

Ratscheneffekte in Graphen



DISSERTATION

zur Erlangung des Doktorgrades der Naturwissenschaften

doctor rerum naturalium

(Dr. rer. nat.)

der Fakultät für Physik

Universität Regensburg

vorgelegt von

Josef Werner Kamann, geboren in München

im September 2014

Die Arbeit wurde von Prof. Dr. Dieter Weiss angeleitet.
Das Promotionsgesuch wurde am 17.06.2014 eingereicht.
Das Promotionskolloquium fand am 14.11.2014 statt.

Prüfungsausschuss:

Vorsitzender: Prof. Dr. Klaus Richter
1. Gutachter: Prof. Dr. Dieter Weiss
2. Gutachter: Prof. Dr. Sergey D. Ganichev
weiterer Prüfer: Prof. Dr. Franz Gießibl

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Theoretische Grundlagen	3
2.1. Eigenschaften von Graphen	3
2.2. Hall-Effekt	6
2.3. Polarisationszustände	8
2.3.1. $\lambda/2$ -Plättchen	9
2.3.2. $\lambda/4$ -Plättchen	10
2.3.3. Stokes Parameter	10
2.4. Strahlungsinduzierte Effekte in Graphen	14
2.4.1. Phänomenologische Beschreibung	14
2.4.2. Photon Drag Effekt	16
2.4.3. Photogalvanische Effekte und Randströme	21
2.5. Effekte durch laterale Übergitterstrukturen	24
2.5.1. Model Nalitov et al.	25
2.5.2. Model Popov - Plasmonen	29
3. Methoden	35
3.1. Optisch gepumpte Gasmolekül-Laser	35
3.1.1. CO ₂ -Laser	36
3.1.2. FIR-Laser	39
3.2. Freie-Elektronen-Laser	41
3.3. Aufbau und Prozessierung der Proben	43
3.3.1. Mikromechanische Exfoliation	44
3.3.2. Epitaktisches Wachstum auf SiC	44
3.3.3. Elektronenstrahl-Lithographie	45
3.3.4. Reaktive-Ionen-Ätzen	46
3.3.5. Erzeugung einer isolierenden Schicht	47
3.3.6. Thermisches Verdampfen von Metallen	48

Inhaltsverzeichnis

3.3.7. Aufbau der Proben	49
3.4. Aufbau der Experimente	53
3.4.1. Aufbau am gepulsten Laser	53
3.4.2. Aufbau an Dauerstrichlaser und FEL	54
4. Experimente	57
4.1. Zum Ratscheneffekt in Graphenflocken	57
4.2. Untersuchung des epitaktischen Graphens	60
4.2.1. Optische Charakterisierung	60
4.2.2. Transportmessung	63
4.3. Nachweis des Ratscheneffektes	64
4.4. Untersuchung der Abhangigkeit von der Polarisation	67
4.5. Untersuchungen zur Abhangigkeit vom Einfallswinkel der Strahlung	71
4.6. Untersuchung der Abhangigkeit von der Wellenlange	74
4.7. Graphen mit Doppelgate-Struktur	77
5. Diskussion	81
5.1. Ratscheneffekte in Proben auf SiC	81
5.1.1. Mechanismus nach Nalitov et al.	81
5.1.2. Mechanismus nach Popov	86
5.2. Doppelgatestrukturen	88
6. Zusammenfassung	91
A. Prozessdokumentation	93
A.1. Ratschenstruktur auf exfoliertem Graphen	93
A.2. Ratschenstruktur auf SiC	94
A.3. Detektor mit halblogarithmischer Antenne auf exfoliertem Graphen	96
A.4. Proben auf exfoliertem Graphen mit Doppelgatestruktur	97

1. Einleitung

Zehn Jahre sind vergangen seit es im Jahre 2004 Andre Geim und Konstantin Novoselov zum ersten Mal gelang, Graphen mit Hilfe der Scotch-Tape-Methode herzustellen und zu charakterisieren [1]. Seitdem hat sich ein facettenreiches Forschungsgebiet um dieses wundersame Material mit seinen herausragenden Eigenschaften gebildet. Es ist faszinierend, dass dieses simple Verfahren mit Klebeband bereits mit geringem Aufwand Graphen in hoher Qualität liefert. Obwohl zweidimensionale Kristalle in der Theorie als thermodynamisch instabil gelten und zur Bildung von dreidimensionalen Strukturen neigen [2], kann Graphen inzwischen mit einer Reihe von Methoden wie CVD- oder epitaktischem Wachstum hergestellt werden [3]. Die Ladungsträger in Graphen werden mit Hilfe der Dirac-Weyl-Gleichung beschrieben und sind somit relativistische, masselose Fermionen. Graphen ermöglicht den experimentellen Zugang zu relativistischen Effekten wie beispielweise dem Klein-Tunneln [4], einem halbzahligen Quanten-Hall-Effekt [5] oder auch phasenabhängigen Phänomenen wie der schwachen Lokalisierung [6, 7]. Für diese Arbeit ist jedoch der hohe intrinsische Grad an Symmetrie des Kristallgitters von Graphen von Bedeutung. Das Ziel dieser Arbeit war es, zum einen den optisch induzierten Ratscheneffekt in Graphen nachzuweisen und zum anderen diesen auf kontrollierte Art und Weise bezüglich der Symmetrie zu analysieren. Der Ratscheneffekt äußert sich als polarisationsabhängiger Photostrom, der durch Beleuchten einer periodisch modulierten Fläche mit asymmetrischer Einheitszelle induziert wird. Dieser Ratscheneffekt bietet einen experimentellen Zugang zu den mikroskopischen Prozessen, die für die elastische Streuung der Ladungsträger verantwortlich sind. Derartige Photoströme durch asymmetrische Überlagerungen wurden bereits in GaAs-Quantentrögen nachgewiesen [8]. Dort war es jedoch schwierig, die Symmetrie des Überlagerungsstruktur zu kontrollieren. In diesen Systemen entstand die Modulation durch Ätzen einer periodischen Struktur in die Deckschicht des Substrats. Die für Ratscheneffekte nötige Asymmetrie folgt aus dem kristallographisch anisotropen Ätzprozess, wodurch die Symmetrie jedoch komplett

1. Einleitung

zerstört wurde. In unstrukturierten Materialien mit ausreichend hoher Symmetrie können durch Beleuchtung mit Ferninfrarot-Strahlung keine Photoströme induziert werden. Diese treten erst auf, wenn die Symmetrie reduziert wird. Graphen bietet die Möglichkeit, dies experimentell umzusetzen.

Diese Arbeit ist wie folgt gegliedert: In Kapitel 2 sollen die theoretischen Grundlagen erläutert werden, die notwendig sind um die Experimente und mikroskopischen Modelle dieser Arbeit zu verstehen. Es wird erläutert, warum Graphen die Basis zur Untersuchung des Ratscheneffekts bildet. Weiter werden die Effekte beschrieben, die im elektrischen Transport und bei Beleuchtung mit THz-Strahlung auftreten. Dabei wird auch detailliert auf die Stokes-Parameter eingegangen und der Einfluss einer lateralen Übergitterstruktur zur Erzeugung des Ratscheneffekts diskutiert. Kapitel 3 ist den experimentellen Methoden gewidmet, die zur Erzeugung der FIR-Strahlung, der Prozessierung der Proben und dem Gewinnen der Messdaten benutzt wurden. In Kapitel 4 werden schließlich die Experimente präsentiert, die zum Nachweis und Charakterisieren des Ratscheneffekts durchgeführt wurden. Anschließend werden diese in Kapitel 5 aus der Perspektive der verschiedenen mikroskopischen Modelle diskutiert. Zuletzt werden die Ergebnisse dieser Arbeit in Kapitel 6 zusammengefasst. Im Anhang werden die Rezepte aufgeführt, mit denen die Proben hergestellt wurden.

2. Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel sollen die theoretischen Grundlagen behandelt werden, die zum Verständnis dieser Arbeit nötig sind. Zunächst werden die wichtigsten Eigenschaften von Graphen, dem zu Grunde liegenden Material, erläutert. Dabei spielt seine Honigwabenstruktur aufgrund von σ -Bindungen eine bedeutende Rolle, sie bildet die Grundlage der Symmetrieeigenschaften von Graphen. Zur Charakterisierung der Materialeigenschaften wird der klassische Hall-Effekt genutzt, er wird in der nötigen Ausführlichkeit erläutert. Danach wird auf die verschiedenen Effekte eingegangen, die durch Bestrahlung der Proben auftreten. In unmodulierten Graphenproben treten der Photon-Drag- oder auch AC¹-Hall-Effekt und der Photogalvanische Effekt auf, in Systemen mit modulierter Fläche existiert zusätzlich der Ratscheneffekt.

2.1. Eigenschaften von Graphen

Seit seiner Entdeckung und ersten Charakterisierung durch Novoselov und Geim im Jahr 2004 [9] hat sich Graphen zu einem der Brennpunkte in der Forschungslandschaft entwickelt. Es besteht aus einer zweidimensionalen Monolage von Kohlenstoffatomen, die, wie in Abbildung 2.1a) skizziert, in einer Honigwabenstruktur angeordnet sind. Dabei befinden sich zwei ununterscheidbare Kohlenstoffatome in der Einheitszelle. Die Kristallstruktur entsteht durch sp^2 -Hybridisierungen, die pro Atom je drei σ -Bindungen zu den nächsten Nachbarn in der Ebene ausbilden, und ein π -Orbital, welches ein schwach lokalisiertes Elektron enthält wie in Abbildung 2.1c) dargestellt. Diese hexagonale Struktur verleiht Graphen seine herausragenden Eigenschaften, wie P.R. Wallace bereits 1947 berechnete [10]. Die Abhängigkeit der Energie E der Ladungsträger von ihrer Wellenvektor \mathbf{k} lässt sich in der Tight-Binding-Näherung berechnen. Dabei werden nur die Wechselwirkungen mit den nächsten Nachbarn berücksichtigt

¹engl. **alternating current**: Wechselstrom

2. Theoretische Grundlagen

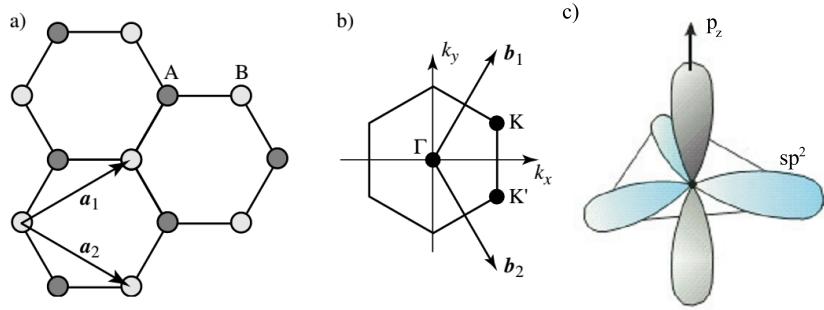


Abbildung 2.1.: a) Honigwabengitter mit Gittervektoren \mathbf{a}_1 , \mathbf{a}_2 und Untergittern A und B, b) Brillouinzone mit reziproken Gittervektoren \mathbf{b}_1 , \mathbf{b}_2 , c) sp^2 -Hybridisierungen am Kohlenstoffatom und p_z -Orbital. Skizzen aus [11].

und weiter entfernte Atome vernachlässigt [5]. Für die Energiedispersion folgt auf diese Weise die Beziehung

$$E(k_x, k_y) = \pm \gamma_0 \sqrt{1 + 4 \cos\left(\frac{\sqrt{3}ak_y}{2}\right) \cos\left(\frac{ak_x}{2}\right) + 4 \cos^2\left(\frac{ak_x}{2}\right)}. \quad (2.1)$$

Hierbei ist γ_0 das sogenannte Austauschintegral für die Wechselwirkung zwischen zwei benachbarten Kohlenstoffatomen, $a = 0,246$ nm ist die Gitterkonstante. Wie in Abbildung 2.2 skizziert, schneiden sich Leitungs- und Valenzband von Graphen in den K- und K'-Punkten der Brillouin-Zone. In den sogenannten Dirac-Kegeln ist die Energiedispersion linear zum Impuls der Ladungsträger:

$$\mathbf{E} = \pm c\hbar|\mathbf{q}|. \quad (2.2)$$

Die Geschwindigkeit der Ladungsträger wird mit c bezeichnet und ergibt sich zu

$$c = \frac{\sqrt{3}\gamma_0 a}{2\hbar} \approx 10^6 \text{ m/s.} \quad (2.3)$$

Sie ist für alle Ladungsträger gleich, unabhängig von Ladung oder Energie. Auch wenn diese Geschwindigkeit zwei Größenordnungen unterhalb der Vakuumlichtgeschwindigkeit liegt, verhalten sich die Ladungsträger, analog zu Photonen, wie relativistische Teilchen ohne Ruhemasse. In der Symmetrie der hexagonalen Gitterstruktur steckt noch ein weiterer Freiheitsgrad. Wie

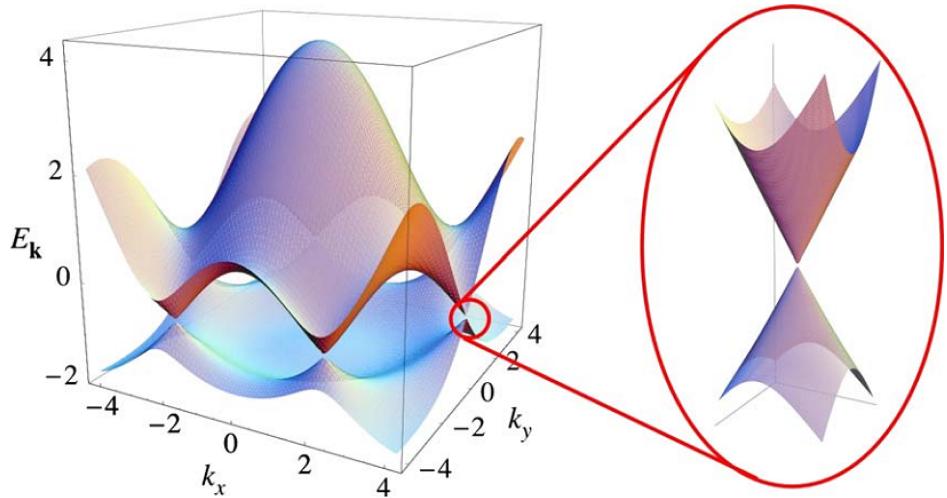


Abbildung 2.2.: links: Energiedispersion über die ganze Brillouin-Zone nach Gleichung (2.1); rechts: Energiedispersion nahe den K/K' -Punkten nach Gleichung (2.2), Grafik aus [11].

in Abbildung 2.1a) durch verschiedene Farben der Atome angedeutet, lässt sich das Wabengitter in zwei trigonale Untergitter zerlegen. Mit diesen zwei Untergittern korrespondieren zwei Punkte K und K' in der Brillouinzone (Abbildung 2.1b)). Um diese K -Punkte bestehen die Wellenfunktionen der Ladungsträger aus einer Superposition von zwei Zuständen. Dieser topologische Freiheitsgrad wird Chiralität genannt. Für Graphen hat das zur Konsequenz, dass seine Ladungsträger mit einem 4-Spinor beschrieben werden müssen. An Stelle der Schrödinger-Gleichung für massive Teilchen tritt dann die Dirac-Weyl-Gleichung für chirale, masselose Fermionen. Formal sind Elektronen in Graphen dann äquivalent zu Neutrinos. Aufgrund ihrer Ladung können Elektronen jedoch viel stärker mit ihrer Umgebung interagieren als die ungeladenen, nur schwach wechselwirkenden Neutrinos. Damit eröffnet Graphen die Möglichkeit, Phänomene aus der relativistischen Quantenmechanik mit vergleichsweise geringem technischen und finanziellen Aufwand in einem Festkörpersystem zu untersuchen [5].

In einer Reihe von theoretischen Arbeiten von Peierls [12, 13], Landau [14], Mermin [15, 16] und Wagner [16] wurde das Fehlen einer kristallographischen oder magnetischen Fernordnung in zweidimensionalen Systemen bei endlichen Tem-

2. Theoretische Grundlagen

peraturen beschrieben. Thermische Fluktuationen führen zu Schwingungen senkrecht zur 2D-Ebene und damit letztendlich zur Bildung von gekrümmten Oberflächen wie Kohlenstoffnanoröhren oder Fullerenen. Diese Schwingungen können allerdings durch die schwach anziehende Van-der-Waals-Wechselwirkung auf einem Substrat kompensiert werden [2]. Damit kann Graphen als zweidimensionaler Kristall nur auf einem Substrat stabil hergestellt werden.

Die Honigwabenstruktur von Graphen ist der Grund für seine hohe intrinsische Symmetrie. Sie gehört zur Punktgruppe D_{6h} für freistehendes Graphen, ein Substrat reduziert die Symmetrie zur Punktgruppe C_{6h} , weil die Äquivalenz der z - und $-z$ -Richtung aufgehoben wird. Dieser hohe Grad an Symmetrie reduziert die Anzahl der strahlungsinduzierten Effekte, welche auftreten können, und bildet die Grundlage für die Untersuchung von Ratscheneffekten.

2.2. Hall-Effekt

Der klassische Hall-Effekt wurde schon vor über einem Jahrhundert von seinem Namensgeber E. Hall entdeckt [17]. Er kann zur Bestimmung von Ladungsträgerdichte n und Beweglichkeit μ genutzt werden und stellt damit ein wichtiges Werkzeug in der Festkörperphysik dar. In Graphen existiert, wie in vielen hochbeweglichen zweidimensionalen Systemen, eine spezielle Form des Hall-Effekts [5], der Quanten-Hall-Effekt (QHE). Er wurde im Jahr 1980 durch von Klitzing in Si-MOSFETs entdeckt [18], 1985 wurde ihm dafür der Nobelpreis verliehen. Der QHE tritt jedoch nur für ausreichend große Magnetfelder B auf wenn $\omega_c\tau \geq 1$ gilt. Die Zyklotronfrequenz ω_c beschreibt die Bewegung der Ladungsträger auf Kreisbahnen, die durch ein angelegtes Magnetfeld B entstehen. Die Beschreibung des klassischen Hall-Effekts erfolgt im Drude-Modell. Es beschreibt die Bewegung von Ladungsträgern unter äußeren Einflüssen wie elektrischen oder magnetischen Feldern in einem dynamischen Gleichgewicht mit einer Driftgeschwindigkeit \mathbf{v}_D und einer Streuzeit τ :

$$\frac{m\mathbf{v}_D}{\tau} = e [\mathbf{E} + \mathbf{v}_D \times \mathbf{B}]. \quad (2.4)$$

Die Ladungsträger bewegen sich zwischen zwei Streuprozessen im Abstand der Streuzeit τ ungestört. Für ein zweidimensionales System mit Magnetfeld $\mathbf{B} = (0, 0, B)$ gilt dann:

$$\begin{bmatrix} \frac{m}{e\tau} & -B \\ +B & \frac{m}{e\tau} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} v_x \\ v_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix}. \quad (2.5)$$

Mit Einführen der Stromdichte $\mathbf{j} = e\mathbf{v}_D n$, der Leitfähigkeit $\sigma = en\mu$ und der Beweglichkeit $\mu = \frac{e\tau}{m}$ wird Gleichung (2.5) zu

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & -\mu B \\ +\mu B & 1 \end{bmatrix} \begin{pmatrix} j_x \\ j_y \end{pmatrix}. \quad (2.6)$$

Durch Vergleich von Gl. (2.6) mit der Definition des Widerstandstensors in der klassischen Elektrodynamik

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} \rho_{xx} & \rho_{xy} \\ \rho_{yx} & \rho_{yy} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} j_x \\ j_y \end{pmatrix} \quad (2.7)$$

ergeben sich folgende Zusammenhänge für Widerstände, Ladungsträgerdichte und Magnetfeld:

$$\begin{aligned} \rho_{xx} &= \sigma^{-1}, \\ \rho_{yx} = \rho_{xy} &= \frac{B}{en}. \end{aligned} \quad (2.8)$$

Diese Herleitung gilt für Systeme mit nur einer Sorte von Ladungsträgern, komplexe Systeme mit mehreren Leitungsbändern oder ambipolare Systeme müssen anstelle des Widerstandstensors mit Hilfe des Leitfähigkeitsensors beschrieben werden. Die obigen Beziehungen ermöglichen den experimentellen Zugang zu den Kenngrößen des zweidimensionalen Systems. Wird dem zu untersuchenden Material ein Strom bekannter Größe aufgeprägt und die über den Strompfad abfallende Spannung V_x gemessen, so ergibt sich die Leitfähigkeit zu

$$\sigma = \frac{1}{R_{\square}} \cdot \frac{L}{W} \quad (2.9)$$

mit der Länge L und der Breite W des Strompfades. Der Schichtwiderstand R_{\square} ergibt sich aus einer Widerstandsmessung in van-der-Pauw-Geometrie [19]. Des Weiteren ist es möglich, aus der Steigung der klassischen Hall-Geraden die Ladungsträgerdichte n zu berechnen. Die Beweglichkeit μ ergibt sich mit Hilfe des Längswiderstands ρ_{xx} . Die Ausdrücke für n und μ sind in Gleichung (2.10) dargestellt:

$$\begin{aligned} n &= \left[e \frac{d\rho_{yx}}{dB} \right]^{-1} = \frac{I}{e \frac{dV_H}{dB}}, \\ \mu &= \frac{1}{en_s \rho_{xx}} = \frac{IL}{en_s V_x W}. \end{aligned} \quad (2.10)$$

2. Theoretische Grundlagen

Bei höheren Magnetfeldern bilden sich Plateaus konstanten Hall-Widerstands und sogenannte Shubnikov-de Haas Oszillationen im Längswiderstand. Diese können im Drude-Model des klassischen Hall-Effekts nicht verstanden werden. Da für diese Arbeit nur der klassische Hall-Effekt zur Charakterisierung der Proben benutzt wurde, soll an dieser Stelle nicht genauer auf den Quanten-Hall-Effekt eingegangen werden.

2.3. Polarisationszustände

Um Ratscheneffekte zu untersuchen, ist es von großer Bedeutung, die Polarisierung der anregenden Strahlung zu kontrollieren. Dies geschieht mit Hilfe von kristallinem z-cut Quarz definierter Dicke als $\lambda/4$ - oder $\lambda/2$ -Plättchen. Mit ihnen lassen sich der Grad der zirkularen Polarisierung sowie die Orientierung des E -Feld Vektors der ursprünglich linear polarisierten Ferninfrarot(FIR)-Laserstrahlung gezielt einstellen. Dies soll nun im Folgenden diskutiert werden.

Das Phänomen der Doppelbrechung ist von grundlegender Bedeutung für die Lichtausbreitung in Festkörpern. Es tritt in einachsigen optischen Kristallen wie beispielsweise Quarz auf und zeichnet sich durch zwei verschiedene Dielektrizitätskonstanten aus: ϵ_{\perp} senkrecht zur optischen Achse, ϵ_{\parallel} parallel dazu. In Abbildung 2.3 ist zu sehen, wie linear polarisiertes Licht \mathbf{E}_{ein} auf ein doppelbrechendes Medium fällt. Seine Komponenten \mathbf{E}_{\perp} und \mathbf{E}_{\parallel} relativ zur optischen Achse erfahren dabei unterschiedliche Brechungsindizes $n_{\perp}=\sqrt{\epsilon_{\perp}}$ und $n_{\parallel}=\sqrt{\epsilon_{\parallel}}$. Das bedeutet, dass sich beide Komponenten des E -Feldes mit unterschiedlicher Geschwindigkeit durch das doppelbrechende Medium bewegen. Die Komponente des Lichts, die senkrecht zur optischen Achse polarisiert ist, wird als der ordentliche Strahl bezeichnet, die parallele außerordentlich. Diese beiden Bezeichnungen folgen aus der Tatsache, dass nur der ordentliche Strahl das Snellius'sche Brechungsgesetz erfüllt. Aufgrund der unterschiedlichen Länge des optischen Weges im Medium für beide Komponenten entsteht zwischen beiden Teilstrahlen ein Gangunterschied Δl beziehungsweise ein Phasenunterschied $\Delta\phi$, abhängig von der Dicke d des Mediums. Diese können durch

$$\Delta l = d(n_{\parallel} - n_{\perp}) \quad (2.11)$$

$$\Delta\phi = k_{\parallel}d - k_{\perp}d = \frac{2\pi d}{\lambda}(n_{\parallel} - n_{\perp}) \quad (2.12)$$

ausgedrückt werden.

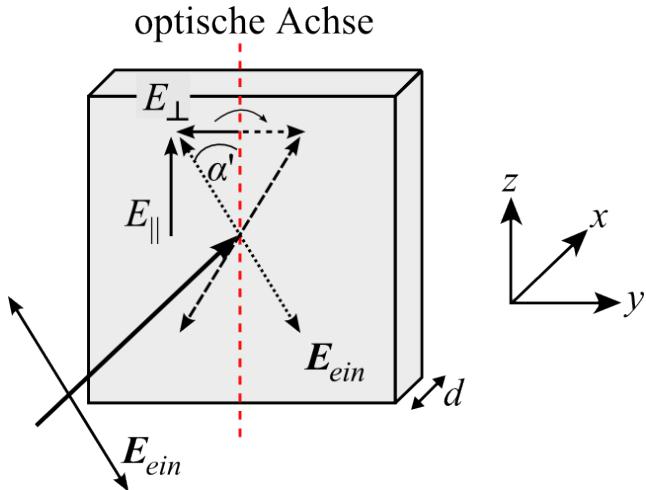


Abbildung 2.3.: Doppelbrechendes Medium, die optische Achse ist parallel zur z -Achse.

2.3.1. $\lambda/2$ -Plättchen

Bei einem $\lambda/2$ -Plättchen beträgt der gewünschte Phasenunterschied

$$\Delta\phi = (2n + 1) \cdot 180^\circ.$$

Dies wird in Abbildung 2.3 deutlich. Zwischen der Polarisationsebene des einfallenden Lichts und der optischen Achse besteht ein Winkel α' . Vor dem doppelbrechenden Medium sind beide Komponenten des E -Felds um einen festen Wert $\Delta\phi$ phasenverschoben, danach unterscheidet sich ihre Phase um $\Delta\phi + 180^\circ$. Dies ist mit einem Vorzeichenwechsel einer der beiden Komponenten gleichzusetzen. Nach dem doppelbrechenden Medium beträgt der Winkel zwischen einfallendem und austretendem Strahl $2\alpha' = \alpha$.

Mit Hilfe von Gleichung (2.12) ergibt sich die Dicke einer Quarzkristallplatte, die zur Funktion als $\lambda/2$ -Plättchen führt. Mit $\Delta\phi = \pi$ folgt

$$d = \frac{\lambda_0}{2} \frac{1}{n_{||} - n_{\perp}}. \quad (2.13)$$

Hieraus wird ersichtlich, woher das $\lambda/2$ -Plättchen seine Bezeichnung hat. Die Brechungsindizes sind von der Wellenlänge der einfallenden Strahlung abhängig, weshalb ein Plättchen bestimmter Dicke nur für eine bestimmte Wellenlänge zur gezielten Manipulation der Strahlung benutzt werden kann. Es besteht auch die Möglichkeit, $\lambda/2$ -Plättchen höherer Ordnung herzustellen, mit $\Delta\phi = 3\pi, 5\pi, 7\pi \dots$

2.3.2. $\lambda/4$ -Plättchen

Wenn linear polarisiertes Licht in zirkular oder allgemein elliptisch polarisiertes umgewandelt werden soll, kommen $\lambda/4$ -Plättchen zum Einsatz. Diese haben die Eigenschaft, die Phase von ordentlichem und außerordentlichem Strahl um 90° zu verschieben. Nach Gl. (2.12) gilt für die Dicke solcher Polarisatoren

$$d = \frac{\lambda_0}{4} \frac{1}{n_{||} - n_{\perp}}. \quad (2.14)$$

Besteht zwischen der Polarisationsebene des einfallenden Lichtes und der optischen Achse des Kristalls ein Winkel φ von 45° oder 225° , so entsteht rechtszirkular (σ^+) polarisiertes Licht. Für $\varphi=135^\circ$ oder 315° wird linkszirkular (σ^-) polarisierte Strahlung erzeugt. Lineare Polarisation entsteht für 0° , 90° und 180° , alle anderen Winkel ergeben elliptisch polarisiertes Licht [20]. Abbildung 2.4 verdeutlicht verschiedene Polarisationszustände der Strahlung, nachdem sie das Verzögerungsplättchen passiert hat. Die Winkel α' und φ bezeichnen jeweils den Winkel, den die Polarisationsebene mit der optischen Achse der Verzögerungsplättchen einschließt.

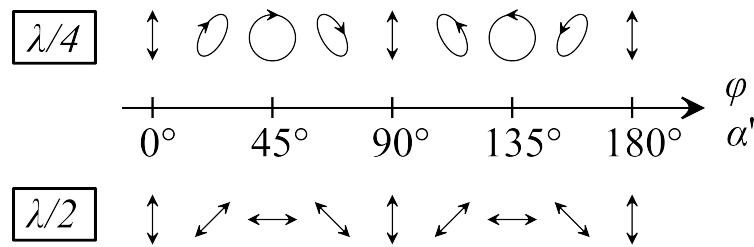


Abbildung 2.4.: Polarisationszustände für $\lambda/2$ - oder $\lambda/4$ -Verzögerungsplättchen und ursprünglich vertikal polarisierte Strahlung.

2.3.3. Stokes Parameter

In diesem Abschnitt soll beschrieben werden, wie der Polarisationszustand der Strahlung mit den sogenannten Stokes Parametern s_0-s_3 dargestellt werden kann. Dies geht auf die Arbeit von Stokes aus dem Jahre 1852 zurück. Es wird erläutert, dass diese vier Parameter ausreichen, um eine elektromagnetische Welle vollständig zu beschreiben. Weiterhin wird dargestellt, wie die Wahl des Verzögerungsplättchens für verschiedene Orientierungen der optischen Achse mit den Stokes-Parametern der transmittierten Strahlung verknüpft ist.

Der nullte Stokes-Parameter $s_0 = E^2 = I$ bezeichnet die Intensität der Strahlung. Die Parameter $s_1 = |E_x|^2 - |E_y|^2$ beziehungsweise $s_2 = (E_x E_y^* + E_y E_x^*)$ stehen für den Grad der linearen Polarisierung entlang der x - und y -Achse beziehungsweise in einem Winkel um 45° gedreht zur x - und y -Achse bei Ausbreitung in z -Richtung. Beim Einsatz von $\lambda/2$ -Plättchen reichen diese drei Parameter s_{0-2} bereits vollständig aus um den Polarisationszustand der Strahlung zu beschreiben. Der Parameter $s_3 = i(E_y E_x^* - E_x E_y^*)$ steht für den Grad der Helizität und ist im Experiment nur bei Verwendung von $\lambda/4$ -Plättchen relevant. In Abbildung 2.5 sind einige Beispiele für Polarisationszustände und ihre Beschreibung durch den Stokes-Vektor (s_0, s_1, s_2, s_3) dargestellt.

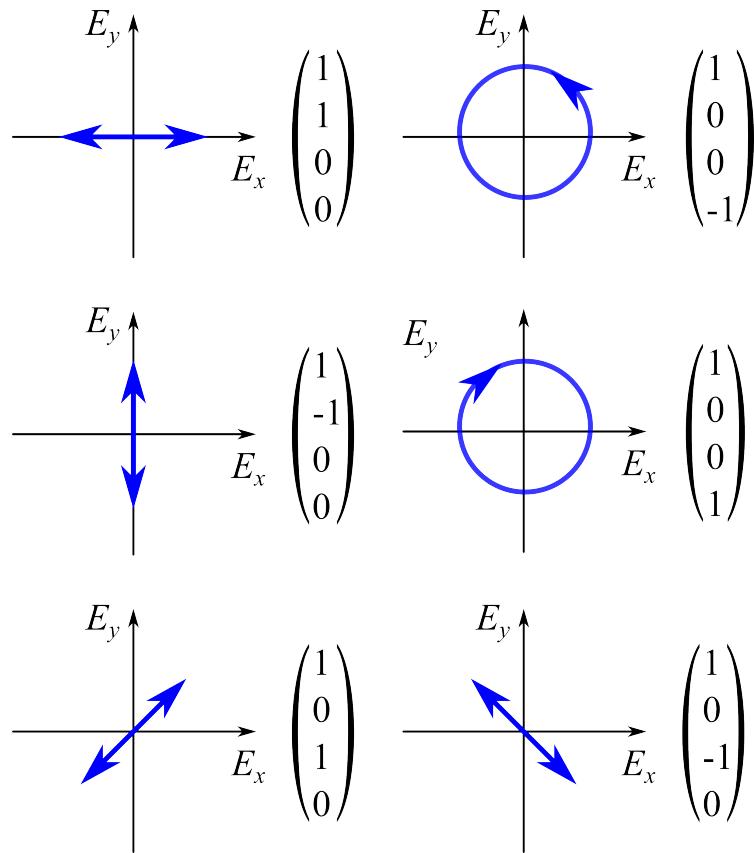


Abbildung 2.5.: Stokes-Vektoren für verschiedene Polarisationszustände.

Jeder Photostrom kann durch folgende Gleichung allgemein mit den normierten Stokes-Parametern $S_i = \frac{s_i}{s_0}$ dargestellt werden:

$$j/I = A + BS_1 + CS_2 + DS_3. \quad (2.15)$$

2. Theoretische Grundlagen

Jeder Summand steht für eine Komponente des Photostroms zu jeweils nur einer Art von Polarisation. Die Parameter A - D sind Materialkonstanten und stellen die Amplitude der jeweiligen Komponente dar. Der zugehörige Stokes-Parameter drückt aus, wie stark die jeweilige Komponente, bedingt durch den Polarisationszustand der Anregung, ausgeprägt ist. Der Parameter A beschreibt Ströme, die unabhängig vom Polarisationszustand auftreten. Sie werden deshalb polarisationsunabhängig oder auch Offset genannt. Photoströme nach den Parametern B und C reagieren auf die Stokes-Parameter für die Orientierung von linearer Polarisation, weshalb sie als lineare Anteile bezeichnet werden. Der Parameter D beschreibt Photoströme, die vom Grad der Helizität $S_3 = \frac{I_{\sigma_+} - I_{\sigma_-}}{I_{\sigma_+} + I_{\sigma_-}}$ abhängen. Für diese sogenannte zirkulare Komponente ist charakteristisch, dass sie beim Wechsel des Drehsinns des elektrischen Feldes von rechts- ($\varphi = 45^\circ$) zu linkszirkular ($\varphi = 135^\circ$) polarisierter Strahlung ihr Vorzeichen ändert.

Der experimentelle Zugang zu den Stokes-Parametern ergibt sich über die Verzögerungsplättchen, deshalb soll nun gezeigt werden, wie die Orientierung der optischen Achsen die Stokes-Parameter beeinflusst. Bei der Verwendung von $\lambda/4$ -Plättchen wird Gleichung (2.15) zu

$$j/I = A + B \cos(4\varphi) + C \sin(4\varphi) + D \sin(2\varphi), \quad (2.16)$$

mit $\lambda/2$ -Plättchen ergibt sich

$$j/I = A + B \cos(2\alpha) + C \sin(2\alpha). \quad (2.17)$$

Die Abhängigkeit der Stokes-Parameter vom Winkel α beziehungsweise φ zwischen optischer Achse und Ausgangspolarisationsebene des $\lambda/2$ - beziehungsweise $\lambda/4$ -Plättchens ist in den Abbildungen 2.6 und 2.7 abgebildet.

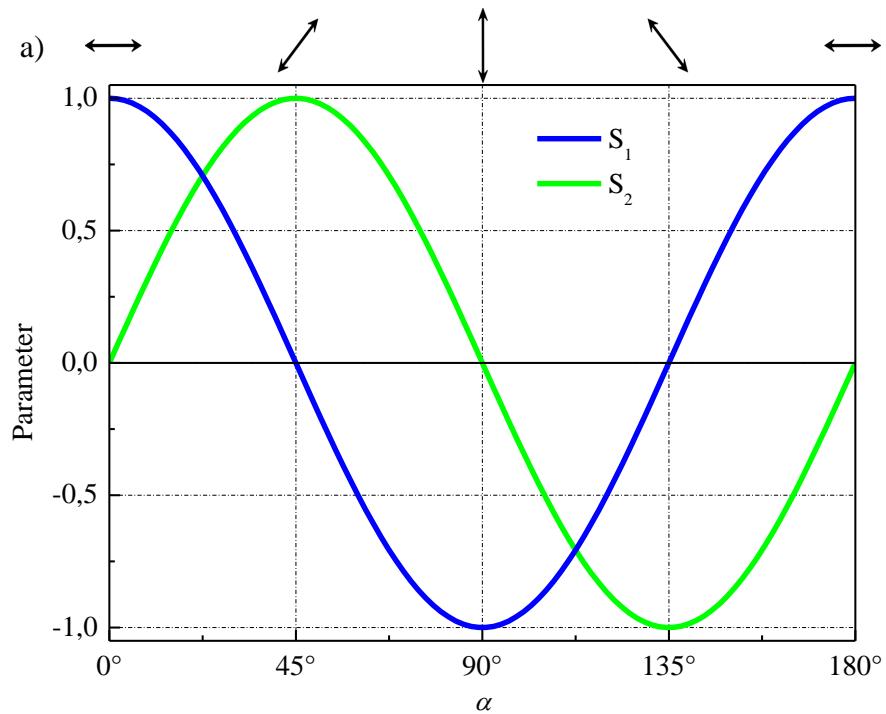


Abbildung 2.6.: Verlauf der Stokes Parameter bei Drehung eines $\lambda/2$ -Plättchens.

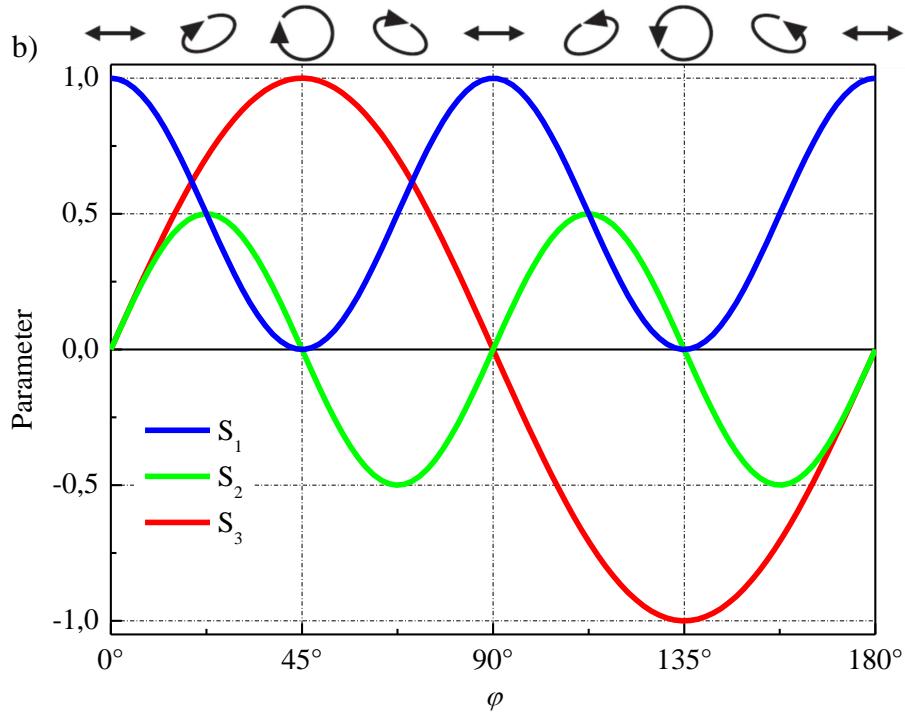


Abbildung 2.7.: Verlauf der Stokes Parameter bei Drehung eines $\lambda/4$ -Plättchens.

2.4. Strahlungsinduzierte Effekte in Graphen

Die Untersuchung von photoelektrischen Effekten im FIR- oder Terahertz-(THz)-Bereich eröffnet eine Möglichkeit zur Beobachtung von Nicht-Gleichgewichtsprozessen in Halbleitern. Die geringe Energie der Photonen im Bereich von nur wenigen 10 meV ist meist zur Erzeugung von freien Ladungsträgern über eine Bandlücke hinweg ausreichend. Vielmehr sind auf diese Weise direkt die Auswirkungen von Umverteilungsprozessen von Ladungsträgern im Impulsraum zu beobachten. Diese Umverteilungsprozesse generieren sogar in homogenen Materialien geeigneter Symmetrie einen gerichteten elektrischen Strom, anders als photovoltaische Effekte, welche Ladungsträger anhand von Potentialbarrieren trennen. Strahlung in einem Halbleiter kann einen gerichteten Strom auch ohne Anlegen einer Spannung erzeugen, die beleuchtete Probe verhält sich aus elektrischer Sicht wie eine Stromquelle [21]. Im folgenden Kapitel soll zunächst die phänomenologische Theorie erläutert werden, die die Polarisationsabhängigkeit von Photoströmen in Graphen ausschließlich an Hand der Symmetrie eines Systems beschreibt. Weiter sollen der Photon-Drag-Effekt, der photogalvanische Effekt und Randströme erläutert werden, da diese Effekte in Experimenten zusätzliche, unerwünschte Beiträge liefern können. Danach wird auf die Effekte eingegangen, die durch Modulierung von Graphen mit einer Übergitterstruktur ermöglicht werden.

2.4.1. Phänomenologische Beschreibung

Die Absorption von homogener Terahertz-Strahlung in homogenen Materialen erzeugt einen gerichteten elektrischen Strom \mathbf{j} , der phänomenologisch durch die Entwicklung nach Potenzen des elektrischen Feldes $\mathbf{E} = \mathbf{E}(\omega, \mathbf{q})$ in Abhängigkeit von Kreisfrequenz ω und Wellenvektor \mathbf{q} der Anregung beschrieben werden kann. Die Terme niedrigster Ordnung, die einen Beitrag zu einem gerichteten Strom liefern, sind durch

$$j_\lambda = \sum_{\mu, \nu} \chi_{\lambda \mu \nu} E_\mu E_\nu^* + \sum_{\mu, \nu, \delta} \Phi_{\lambda \delta \mu \nu} q_\delta E_\mu E_\nu^* \quad (2.18)$$

gegeben [21, 22, 23]. Die Indizes in griechischen Buchstaben beschreiben Raumkoordinaten, der Index λ läuft in zweidimensionalen Systemen wie Quantentrögen oder Graphen nur über die Koordinaten x und y in der Ebene, wohingegen die Indizes μ und ν auch die Normalkoordinate z (Quantisierungs-

richtung) beinhalten können. Die Tensoren $\chi_{\lambda\mu\nu}$ beziehungsweise $\Phi_{\lambda\mu\nu\delta}$ sind Tensoren dritten beziehungsweise vierten Ranges. Der mikroskopische Mechanismus muss für diese phänomenologische Beschreibung nicht bekannt sein. Der Strom \mathbf{j} wird als nichtlineare Antwort zweiter Ordnung auf das zeitabhängige elektrische Feld einer ebenen Welle

$$\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}(\omega, \mathbf{q})e^{-i\omega t + i\mathbf{qr}} + \mathbf{E}^*(\omega, \mathbf{q})e^{i\omega t - i\mathbf{qr}} \quad (2.19)$$

beschrieben. Hierbei ist $E_\nu^* = E_\nu^*(\omega) = E_\nu(-\omega)$ das konjugiert Komplexe von E_ν . Im Folgenden soll der Einfachheit halber die komplexe Amplitude \mathbf{E} des elektrischen Feldes mit $\mathbf{E} = E_0 \mathbf{e}$ bezeichnet werden. Dabei stellt E_0 die reelle Amplitude und \mathbf{e} mit $|\mathbf{e}|^2 = 1$ einen komplexen Polarisationseinheitsvektor dar.

Der erste Term auf der rechten Seite von Gl. (2.18) steht für photogalvanische Effekte und wird in Kapitel 2.4.3 genauer beschrieben. Der zweite Term, der den Wellenvektor \mathbf{q} der Strahlung beinhaltet, beschreibt den Photon-Drag-Effekt und ist Inhalt von Kapitel 2.4.2. An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, dass es noch weitere Terme für Effekte zweiter Ordnung wie die Generation von zweiten Harmonischen oder optischer Gleichrichtung in Gl. (2.18) berücksichtigt werden könnten [24]. Diese liefern jedoch keinen gerichteten Strom und sind für diese Arbeit deshalb nicht von Bedeutung.

Beide Terme auf der rechten Seite von Gl. (2.18) können in eine Summe aus einem rein reellen und einem rein imaginären Ausdruck zerlegt werden. Diese sind dann mit den linear polarisierten und unpolarisierten Komponenten des Lichtes oder mit dem Grad seiner zirkularen Polarisierung verknüpft. Dies kann für beide Tensoren $\chi_{\lambda\mu\nu}$, $\Phi_{\lambda\mu\nu\delta}$ durchgeführt werden und funktioniert ähnlich wie beim Produkt der elektrischen Feldkomponenten:

$$E_\mu E_\nu^* = \{E_\mu E_\nu^*\} + [E_\mu E_\nu^*], \quad (2.20)$$

mit

$$\begin{aligned} \{E_\mu E_\nu^*\} &= \frac{1}{2}(E_\mu E_\nu^* + E_\nu E_\mu^*) \text{ und} \\ [E_\mu E_\nu^*] &= \frac{1}{2}(E_\mu E_\nu^* - E_\nu E_\mu^*). \end{aligned} \quad (2.21)$$

Dabei ist der Term in geschweiften Klammern symmetrisch bezüglich Vertauschung der Koordinatenindizes μ, ν , der in eckigen Klammern antisymmetrisch.

2. Theoretische Grundlagen

Weiter können die Indizes des imaginären antisymmetrischen Teils mit Hilfe des total antisymmetrischen Levi-Civita Tensors $\delta_{\rho\mu\nu}$ zu einem einzelnen Pseudovektor-Index zusammengefasst werden:

$$\sum_{\mu,\nu} \chi_{\lambda\mu\nu}^A [E_\mu E_\nu^*] = i \sum_{\rho,\mu,\nu} \gamma_{\lambda\rho} \delta_{\rho\mu\nu} [E_\mu E_\nu^*] = \sum_{\rho} \gamma_{\lambda\rho} i(\mathbf{E} \times \mathbf{E}^*)_{\rho}. \quad (2.22)$$

Dabei ist $\chi_{\lambda\mu\nu}^A$ der antisymmetrische Teil von $\chi_{\lambda\mu\nu}$ und $\gamma_{\lambda\rho}$ ein Pseudotensor zweiter Stufe. Mit Hilfe dieser Vereinfachungen kann Gl. (2.18) als Summe des linearen (LPGE) und zirkularen (CPGE) photogalvanischen Effektes und des linearen (LPDE) und zirkularen (CacHE²) Photon-Drag-Effektes geschrieben werden:

$$\begin{aligned} j_\lambda = & \underbrace{\sum_{\mu,\nu} \chi_{\lambda\mu\nu} \{E_\mu E_\nu^*\}}_{LPGE} + \underbrace{\sum_{\rho} \gamma_{\lambda\rho} i(\mathbf{E} \times \mathbf{E}^*)_{\rho}}_{CPGE} + \\ & + \underbrace{\sum_{\delta,\mu,\nu} T_{\lambda\delta\mu\nu} q_{\delta} \{E_\mu E_\nu^*\}}_{LPDE} + \underbrace{\sum_{\delta,\rho} \tilde{T}_{\lambda\delta\rho} q_{\delta} (\mathbf{E} \times \mathbf{E}^*)_{\rho}}_{CacHE} \end{aligned} \quad (2.23)$$

Beide Effekte sind zur zweiten Ordnung des elektrischen Feldes proportional, wobei für den PDE zusätzlich der Wellenvektor der Photonen mit einfließt. Aus diesem Grund erfordern die photogalvanischen Effekte das Fehlen eines Inversionszentrums, wohingegen der Photon-Drag-Effekt in symmetrischen wie asymmetrischen Medien erlaubt ist. Die obigen Terme sollen nun in den nächsten Kapiteln genauer behandelt werden.

2.4.2. Photon Drag Effekt

Dieser Effekt wird in Gleichung (2.18) durch den zweiten Term auf der rechten Seite beschrieben und beschreibt die Induzierung eines Stromes durch den Übertrag des Photonenimpulses auf die Ladungsträger. Das Honigwabengitter von Graphen gehört zur Symmetriegruppe D_{6h} und besitzt damit ein räumliches Inversionszentrum. Der Photon-Drag-Effekt erfordert jedoch keine Reduktion der Symmetrie und kann deshalb in jeder Graphenprobe erzeugt werden.

²Circular ac Hall Effect - zirkularer AC-Hall-Effekt

2.4.2.1. Symmetriebetrachtung

Die allgemeine phänomenologische Beschreibung des Photon-Drag-Effekts nach der Zerlegung in den symmetrischen und antisymmetrischen Anteil analog zu den Gleichungen (2.20) und (2.21) lautet

$$j_\lambda = T_{\lambda\delta\mu\nu}q_\delta \frac{e_\mu e_\nu^* + e_\mu^* e_\nu}{2} I + \tilde{T}_{\lambda\delta\rho}q_\delta P_{circ}\hat{e}_\rho I, \quad (2.24)$$

mit $\Phi = T + \tilde{T}$. Der Tensor $T_{\lambda\delta\mu\nu}$ beschreibt den linearen Photon-Drag-Effekt. Dieser hängt nicht vom Vorzeichen der zirkularen Polarisation ab und zeigt seine maximale Amplitude bei linearer Polarisation. Die Komponente $\tilde{T}_{\lambda\delta\rho}$ steht für den zirkularen Photon-Drag-Effekt und ändert ihr Vorzeichen wenn die Drehrichtung der Helizität gewechselt wird. Durch Betrachtung der Symmetrie ergeben sich für die D_{6h} -Punktgruppe fünf linear unabhängige Tensorkomponenten. Zwei dieser Komponenten benötigen jedoch eine Normalkomponente E_z des elektrischen Feldes oder eine Normalkomponente q_z des Photonenimpulses um einen Photostrom zu erzeugen. In einem zweidimensionalen System wie Graphen sind diese Anteile sehr schwach und werden deshalb für die weitere Betrachtung vernachlässigt. Ein Modell dieser Art wird strikt zweidimensional genannt [24]. Auf diese Weise reduziert sich Gleichung (2.24) in einer idealen Graphenlage zu

$$j_x = T_1 q_x \frac{|e_x|^2 + |e_y|^2}{2} I + T_2 \left(q_x \frac{|e_x|^2 - |e_y|^2}{2} + q_y \frac{e_x e_y^* + e_x^* e_y}{2} \right) I + \tilde{T}_1 q_y P_{circ} \hat{e}_z I \text{ und} \quad (2.25)$$

$$j_y = T_1 q_y \frac{|e_x|^2 + |e_y|^2}{2} I + T_2 \left(q_y \frac{|e_x|^2 - |e_y|^2}{2} + q_x \frac{e_x e_y^* + e_x^* e_y}{2} \right) I - \tilde{T}_1 q_x P_{circ} \hat{e}_z I \quad (2.26)$$

mit $T_1 = T_{xxxx} + T_{xxyy}$, $T_2 = T_{xxxx} - T_{xxyy} = 2T_{xyxy}$ und $\tilde{T}_1 = \tilde{T}_{xyz}$ [25]. Hier sind x und y die Koordinaten in der Graphenebene, z steht senkrecht dazu. Aus den Gleichungen (2.25) und (2.26) wird ersichtlich, dass der PDE nur unter Schräganregung auftreten kann. Nur dann sind die Wellenvektoren q_x, q_y von Null verschieden. Bei senkrechter Anregung entsteht kein Strom durch den PDE. Während der lineare PDE parallel und transversal zur Einfallsebene auftritt, kann der zirkulare Photostrom nur senkrecht zur Einfallsebene der Strahlung

2. Theoretische Grundlagen

generiert werden. Mit Hilfe der Stokes-Parameter können diese Gleichungen zu

$$j_x/I = T_1 q_x + T_2/2 \left[q_x \left(\frac{1}{2} + \frac{1}{2} \cos(4\varphi) \right) + q_y \sin(4\varphi) \right] + \tilde{T}_1 q_y \sin(2\varphi) \text{ und} \quad (2.27)$$

$$j_y/I = T_1 q_y + T_2/2 \left[q_y \left(\frac{1}{2} + \frac{1}{2} \cos(4\varphi) \right) + q_x \sin(4\varphi) \right] - \tilde{T}_1 q_x \sin(2\varphi) \quad (2.28)$$

oder

$$j_x/I = T_1 q_x + T_2/2 [q_x \cos(2\alpha) + q_y \sin(2\alpha)] \text{ und} \quad (2.29)$$

$$j_y/I = T_1 q_y + T_2/2 [q_y \cos(2\alpha) + q_x \sin(2\alpha)] \quad (2.30)$$

umgeformt werden. Damit können die verschiedenen Tensorkomponenten direkt aus dem Experiment bestimmt werden.

Die obige Betrachtung wurde für das Honigwabengitter von idealem Graphen, welches zur Punktgruppe D_{6h} gehört, durchgeführt. In Experimenten wird die Symmetrie aber immer durch ein Substrat verändert. Sie reduziert sich zu C_{6v} , da die Äquivalenz der z - und $-z$ -Richtung gebrochen wird. Diese Reduktion ändert allerdings nichts an der qualitativen Erscheinung des PDE, es ändern sich nur die Werte für die Parameter $T_1, \dots, T_4, \tilde{T}_1, \tilde{T}_2$. Im Folgenden soll nun ein mikroskopisches Modell für den PDE vorgestellt werden.

2.4.2.2. Mikroskopisches Modell

In Graphen sind, abhängig von Strahlungsfrequenz ω und elektrischen Charakteristika wie der Transportrelaxationszeit τ , verschiedene Regimes zu beachten. Im klassischen Bereich gilt $\hbar\omega \leq E_F$ beziehungsweise $\omega\tau \leq 1$. Das bedeutet, dass die Photonen der FIR-Strahlung per Drude-Absorption nur Intraband-Übergänge anregen und Interband-Übergänge ausgeschlossen sind. Im quantenmechanischen Bereich, wo $\hbar\omega \geq E_F$ gilt, können Interbandübergänge nicht mehr vernachlässigt werden. Eine detaillierte Beschreibung des PDE in diesem Regime findet sich in [26]. Das folgende Modell beschränkt sich auf den klassischen Bereich, da die Experimente dieser Arbeit nur in diesem Bereich liegen.

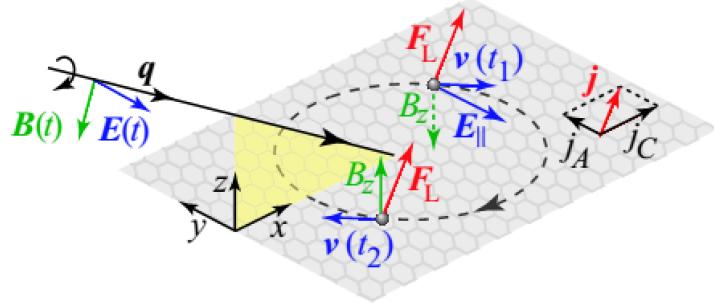
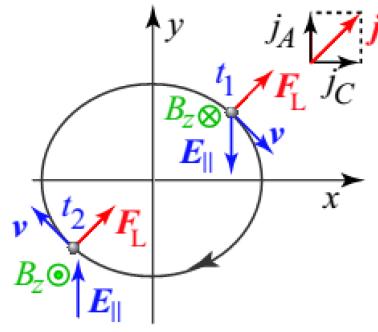
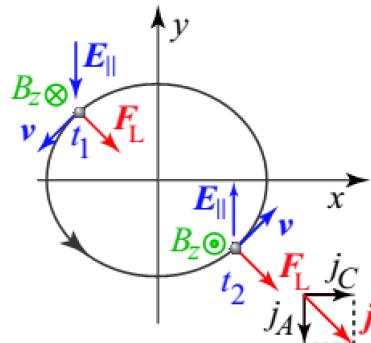
(a) σ_+ , rechtshändig zirkular polarisiert

 (b) σ_+ , rechtshändig

 (c) σ_- , linkshändig


Abbildung 2.8.: klassisches Model des PDE: a) Graphen unter Schräganregung mit rechtshändig zirkular polarisiertem Licht, b) Ansicht von oben und c) Anregung mit linkszirkular polarisierter Strahlung. Aus [25]

In Abbildung 2.8a) ist eine Monolage Graphen unter schiefem Einfall von zirkular polarisierter Terahertz-Strahlung skizziert. Das um die Ausbreitungsrichtung \mathbf{q} rotierende elektrische Feld der Strahlung beschleunigt Ladungsträger auf eine Kreisbahn mit der Geschwindigkeit \mathbf{v} . Aufgrund der Trägheit der Ladungsträger folgen diese dem elektrischen Feld nicht instantan, sondern mit einer Verzögerung. Dies folgt aus dem Drude-Lorentz-Gesetz der Hochfrequenzleitfähigkeit und wird Retardierung genannt [27]. Sie hängt von der Kreisfrequenz ω ab und nimmt mit steigender Frequenz zu. Die Ladungsträger, die sich nun auf einer Kreisbahn bewegen, werden zu einem Zeitpunkt t_1 zusätzlich durch die Magnetfeldkomponente B_z der Strahlung einer Lorentz-Kraft $\mathbf{F}_L = e(\mathbf{v} \times \mathbf{B})$ ausgesetzt. Eine halbe Umlaufdauer eines Ladungsträgers später zum Zeitpunkt t_2 zeigen Geschwindigkeit \mathbf{v} und Magnetfeld \mathbf{B} jeweils in die entgegengesetzte Richtung und die resultierende Lorentz-Kraft \mathbf{F}_L bleibt

2. Theoretische Grundlagen

unverändert. Daraus resultiert über eine ganze Periode gemittelt ein gerichteter Strom, der transversale (J_C) und senkrechte Anteile (J_A) besitzt. Beim Wechsel der Händigkeit der zirkularen Polarisation, wie in Abbildung 2.8c) skizziert, ändert sich nur das Vorzeichen der Komponente J_A senkrecht zur Einfallsebene, der transversale Anteil J_C bleibt unverändert.

Nach dieser bildhaften Beschreibung des zirkularen PDE soll nun eine mathematische Darstellung aller Komponenten des PDE folgen. Dies geschieht nach [25] und [28] mit Hilfe der kinetischen Boltzmann-Gleichung für eine Elektronendichtevertteilung $f(\mathbf{k}, \mathbf{r}, t)$:

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{v} \frac{\partial f}{\partial \mathbf{r}} + \frac{e}{\hbar} \left(\mathbf{E} + \frac{1}{c} [\mathbf{v} \times \mathbf{B}] \right) \frac{\partial f}{\partial \mathbf{k}} = Q\{f\}. \quad (2.31)$$

Hier ist c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum, $\mathbf{v} = \mathbf{v}_k$ die Geschwindigkeit der Elektronen im Zustand \mathbf{k} ,

$$\mathbf{v}_k = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial \varepsilon_k}{\partial \mathbf{k}} = v \frac{\mathbf{k}}{|\mathbf{k}|}, \quad (2.32)$$

$\varepsilon = v\hbar k$ ist die Dispersionsrelation der Elektronen und $Q\{f\}$ ist das Kollisionsintegral. Der PDE ist proportional zur Intensität der anregenden Strahlung und muss deshalb in zweiter Ordnung von elektromagnetischen Feldern abhängen. Aus diesem Grund wird Gleichung (2.31) durch Iterationen bezüglich des elektrischen und magnetischen Feldes gelöst und die Verteilungsfunktion der Elektronen durch

$$f(k, r, t) = f_0(\varepsilon_k) + [f_1(\mathbf{k}) e^{i(\mathbf{q}\mathbf{r} - \omega t + c.c.)}] + f_2(\mathbf{k}) + \dots, \quad (2.33)$$

dargestellt. Die Verteilung der Elektronen im Gleichgewicht ist $f_0(\varepsilon_k)$, $f_1(\mathbf{k})$ beschreibt die lineare Antwort auf die Felder und $f_2(\mathbf{k})$ ist eine homogene, zeit-unabhängige Korrektur die in zweiter Ordnung in \mathbf{E} und \mathbf{B} erscheint. Terme höherer Ordnung oder solche, die mit doppelter Frequenz oszillieren, wurden vernachlässigt. Mit Berücksichtigung der Entartungen bezüglich Spin und Pseudospin (Chiraliät) ergibt sich der Strom durch den PDE zu

$$\mathbf{j} = 4e \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{v}_k f_2(\mathbf{k}). \quad (2.34)$$

Nach Berechnung der Korrekturen $f_1(\mathbf{k})$ und $f_2(\mathbf{k})$ der Verteilungsfunktion und Einsetzen in Gleichung (2.34) können durch Vergleich mit den Gleichungen

(2.25) und (2.26) die phänomenologischen Parameter zu

$$T_1 = -\frac{4\pi e^3 v^4}{\omega c} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\tau_1 f_0'}{1 + \omega^2 \tau_1^2} \times \left[2 \left(\frac{d\tau_1}{d\varepsilon_k} + \frac{\tau_1}{\varepsilon_k} \right) - \frac{1 - \omega^2 \tau_1 \tau_2}{1 + \omega^2 \tau_2^2} \left(\frac{d\tau_1}{d\varepsilon_k} - \frac{\tau_1}{\varepsilon_k} \right) \right], \quad (2.35)$$

$$T_2 = -\frac{4\pi e^3 v^4}{\omega c} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\tau_1 f_0'}{1 + \omega^2 \tau_1^2} \left(\frac{d\tau_1}{d\varepsilon_k} - \frac{\tau_1}{\varepsilon_k} \right) \text{ und} \quad (2.36)$$

$$\tilde{T}_1 = \frac{2\pi e^3 v^4}{c} \sum_{\mathbf{k}} \frac{\tau_1^2 (1 + \tau_2/\tau_1) f_0'}{[1 + (\omega\tau_1)^2][1 + (\omega\tau_2)^2]} \left(\frac{d\tau_1}{d\varepsilon_k} - \frac{\tau_1}{\varepsilon_k} \right) \quad (2.37)$$

bestimmt werden. Diese Parameter gelten auch für Löcher als Ladungsträger, wenn in obigen Gleichungen die Elektronenladung e durch $-e$ und die Gleichgewichtsverteilung f_0 der Elektronen durch die Gleichgewichtsverteilung f_0^+ der Löcher ersetzt wird.

2.4.3. Photogalvanische Effekte und Randströme

Ideal beschriebenes Graphen schließt das Auftreten des PGE durch sein Inversionszentrum aus. In Experimenten liegt das Graphen jedoch zumeist auf einem Substrat, wodurch sich die Symmetrie reduziert und der PGE erlaubt wird. Einen weiteren Einfluss stellen die Ränder des Graphens dar: sie reduzieren die lokale Symmetrie zusätzlich und können Photoströme durch den PGE erzeugen [29].

2.4.3.1. Symmetriebetrachtung

Der PGE ist vom Impuls der Photonen unabhängig, deshalb kann er nur in Medien ohne Inversionssymmetrie auftreten. Für Graphen auf einem Substrat lautet die allgemeine phänomenologische Beschreibung

$$j_\lambda = \chi_{\lambda\mu\nu} \frac{e_\mu e_\nu^* + e_\nu e_\mu^*}{2} I + \gamma_{\lambda\rho} P_{circ} \hat{e}_\rho I. \quad (2.38)$$

Sie reduziert sich wegen der nicht-verschwindenden Tensorkomponenten $\chi_{xxz} = \chi_{yyz}$ und $\gamma_{xy} = -\gamma_{yx}$ bei Schräganregung in der (xz) -Ebene zu

$$\begin{aligned} j_x/I &= \chi_L \frac{e_x e_z^* + e_x^* e_z}{2}, \\ j_y/I &= \chi_L \frac{e_y e_z^* + e_y^* e_z}{2} + \chi_C P_{circ} \hat{e}_x. \end{aligned} \quad (2.39)$$

2. Theoretische Grundlagen

Sowohl die transversale, als auch die senkrechte Komponente des Photostroms benötigt eine z -Komponente des elektrischen Feldes. Wie auch beim PDE kann nur unter Schräganregung ein Photostrom detektiert werden, wohingegen der zirkulare Beitrag ebenfalls nur senkrecht zur EinfallsEbene auftreten kann. Unpolarisierte Strahlung kann den PGE nicht generieren. In Halbleiter-Heterostrukturen breitet sich die Wellenfunktion der Ladungsträger über mehrere Atomlagen aus und kann deshalb von einem elektrischen Feld beeinflusst werden, obwohl keine Bewegung in z -Richtung erlaubt ist. In Graphen sind die Ladungsträger jedoch strikt zweidimensional und werden von E_z kaum beeinflusst. Aus diesem Grund ist der PGE in Graphen stark abgeschwächt. Im Experiment ist der PGE phänomenologisch nicht vom PDE zu unterscheiden und wird deshalb oft von ihm überdeckt. Sie können jedoch durch Untersuchung ihres Verhaltens für verschiedene Anregungsfrequenzen unterschieden werden [26].

Die Situation ändert sich in Graphenstrukturen mit niedrigerer Symmetrie, welche zum Beispiel durch Wölbungen, Terrassenstufen oder Ränder entstehen können. Hier treten neue Beiträge zum PGE auf, welche nicht mehr die z -Komponente des elektrischen Feldes benötigen und dementsprechend stärker ausgeprägt sind. Die naheliegendste Reduzierung der Symmetrie wird durch Beleuchtung der Ränder erreicht. Wenn das Substrat und die mikroskopische Natur des Randes vernachlässigt wird, handelt es sich um ein System mit C_{2v} -Symmetrie. Auf diese Weise ergeben sich folgende, zusätzliche Beiträge zu Gleichung (2.39):

$$j_y = R_L \frac{e_x e_y^* + e_x^* e_y}{2} I + R_C P_{circ} \hat{e}_z I. \quad (2.40)$$

Der Rand ist hier parallel zur y -Achse, die Konstanten R_L und R_C beschreiben den linearen und zirkularen Rand-PGE.

2.4.3.2. Mikroskopisches Modell des Rand-PGE

Im folgenden Kapitel soll nun kurz erläutert werden, wie der Rand-PGE mikroskopisch entsteht. Auf die mikroskopische Beschreibung des PGE in idealem Graphen wird hier verzichtet, da das Verständnis der phänomenologische Theorie ausreicht, um ihn im Experiment als störenden Einfluss zu vermeiden.

Die Fermienergie E_F der Ladungsträger übertrifft in den Experimenten dieser Arbeit die Energie der Photonen $\hbar\omega$ um ein Vielfaches. Aus diesem Grund

genügt eine klassische Beschreibung der Wirkung des elektrischen Feldes auf die Ladungsträger in der Nähe des Randes von Graphen. Ein mikroskopischer Prozess, der die Erzeugung eines Randstromes darstellt, ist in Abbildung 2.9 abgebildet. Das elektrische Feld der Strahlung beschleunigt Ladungsträger, welche dann am Rand diffus gestreut werden. Nur Ladungsträger innerhalb eines Streifens der Breite der freien Weglänge l können in diesem Modell zum Randstrom beitragen. Dieser Prozess ist dem Oberflächen-PGE ähnlich, welcher in Volumenmaterialien beobachtet wurde [30, 31]. Mathematisch lässt sich dieser

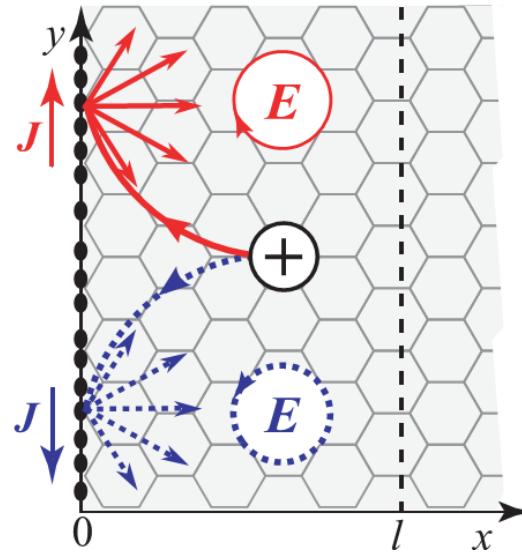


Abbildung 2.9.: Skizze zum mikroskopischen Modell des Rand-PGE:
Anregung mit rechts- oder linkszirkular polarisiertem
Licht, diffuse Streuung der Ladungsträger am Rand
des Graphens. Aus [29]

Prozess der Stromerzeugung durch die Ränder über die kinetische Boltzmann-Gleichung beschreiben. Die Verteilung der Ladungsträger wird mit der Funktion $f(\mathbf{p}, x, t)$ beschrieben, wobei \mathbf{p} für den Impuls der Ladungsträger steht und $x \geq 0$ für eine Ortskoordinate in einer halb-unendlich ausgedehnten Ebene. Diese Verteilungsfunktion erfüllt

$$\frac{\partial f}{\partial t} + v_x \frac{\partial f}{\partial x} + q\mathbf{E}(t) \frac{\partial f}{\partial \mathbf{p}} = Q\{f\} \quad (2.41)$$

mit dem elektrischen Feld der Strahlung $\mathbf{E}(t)$, der Geschwindigkeit der Ladungsträger \mathbf{v} , ihrer Ladung q sowie dem Kollisionintegral $Q\{f\}$. Der Photostrom resultiert, ähnlich wie bei der Berechnung des PDE, aus einer Entwicklung der Ladungsträgerverteilung $f(\mathbf{p}, x, t)$ nach Potenzen des elektrischen

2. Theoretische Grundlagen

Feldes und der Gleichung

$$j_y = 4q \int_0^\infty dx \sum_{\mathbf{p}} f_2(\mathbf{p}, x) \mathbf{v}_y. \quad (2.42)$$

Hier steht f_2 für den Korrekturterm zur Ladungsträgerverteilung in zweiter Ordnung des elektrischen Feldes. Das Kollisionsintegral $Q\{f\}$ wird in einer einfachen Form gewählt:

$$Q\{f(\mathbf{p}, x, t)\} = -\frac{f(\mathbf{p}, x, t) - f_0(\varepsilon_{\mathbf{p}})}{\tau}, \quad (2.43)$$

mit der Streuzeit τ und der Randbedingung für diffuse Streuung bei $x = 0$:

$$f(p_x > 0, p_y, 0, t) = - \int \frac{v'_x}{2p'} f(\mathbf{p}', 0, t) \delta(\varepsilon_{\mathbf{p}} - \varepsilon_{\mathbf{p}'}) \Theta(-v'_x) d\mathbf{p}'. \quad (2.44)$$

Letztendlich ergibt sich der Rand-Photostrom zu

$$j_y = -\frac{q^3 \tau^3 v^2}{2\pi\hbar^2 [1 + (\omega\tau)^2]} \left[\frac{10}{3} \frac{\omega\tau}{(1 + \omega\tau)^2} i [E_0 \times E_0^*]_z + \left(1 + \frac{7}{6} \frac{1 - (\omega\tau)^2}{1 + (\omega\tau)^2} \right) (E_{0,x} E_{0,y}^* + E_{0,x}^* E_{0,y}) \right]. \quad (2.45)$$

Der erste Term in der eckigen Klammer ist proportional zur Helizität der Strahlung und beschreibt den zirkularen Anteil. Der zweite Term steht für die Komponente, die durch linear polarisierte Strahlung entsteht.

2.5. Effekte durch laterale Übergitterstrukturen

In diesem Abschnitt werden die Effekte behandelt, die erst durch periodische Modulation von Graphen möglich werden. Verspannungen in Graphenschichten können nicht nur zur Bildung von Minibändern in der Energiedispersion führen, sie können auch die Symmetrie soweit verändern, dass Dichroismus³ in der Absorption von Licht entsteht. Bei asymmetrischen Verspannungen kann dies sogar zu einem Photostrom führen [32]. Die im Folgenden beschriebenen Effekte entstehen allerdings nicht durch intrinsische Verspannungen in der Graphenschicht, sondern durch eine extern aufgeprägte Modulation durch ein gezielt

³ Dichroismus bedeutet in diesem Fall, dass Licht verschiedener Polarisationen unterschiedlich stark absorbiert wird.

strukturiertes Gate. In GaAs-Quantentrögen konnte bereits eine ähnliche Modulation eines 2DEGs⁴ durch Ätzen einer asymmetrischen Übergitterstruktur in die Deckschicht der Probe einen Photostrom ermöglichen, der im Volumenmaterial aus Symmetriegründen nicht erlaubt war [33, 34]. Im Allgemeinen müssen Systeme, die einen Ratscheneffekt besitzen sollen, zwei Anforderungen erfüllen: Erstens müssen sie eine interne räumliche Asymmetrie besitzen, zweitens dürfen sie nicht im thermischen Gleichgewicht mit ihrer Umgebung sein [35, 34].

Für diese Arbeit kommen zwei Modelle zur Beschreibung des mikroskopischen Mechanismus des Ratscheneffekts in Frage: Zunächst wird der Mechanismus von Nalitov et al. vorgestellt, der eine kombinierte Wirkung aus periodischer Modulation der Ladungsträger und einer periodischen Modulation des einfallenden elektrischen Feldes vorsieht. Danach wird das Modell von Popov behandelt, welches die Proben als Feldeffekttransistoren wahrnimmt und mit der Generierung von Plasmonen in einem periodisch modulierten leitenden Kanal argumentiert.

2.5.1. Model Nalitov et al.

Für dieses Modell ist es wie bei den Theorien zum Ratscheneffekt in GaAs-Quantentrögen in [8, 33] notwendig, dass die Amplitude des elektrischen Feldes einer senkrecht einfallenden Anregung und das zweidimensionale System der Ladungsträger zugleich periodisch moduliert werden:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(x) &= \mathbf{E}_0[1 + h \cos(qx + \varphi_E)] \\ V(x) &= V_0 \cos(qx + \varphi_V) \end{aligned} \tag{2.46}$$

In diesem einfachsten möglichen Fall steht d mit $q = 2\pi/d$ für die Periode des Übergitters entlang der x -Richtung. Weiterhin ist es von grundlegender Bedeutung, dass die Modulierungen zueinander phasenverschoben sind, also $\varphi_V - \varphi_E \neq n\pi$ mit $n = 0, 1, 2, \dots$ gilt. Diese Phasenverschiebung beschreibt die Symmetriebrechung des angeregten Systems und wird experimentell durch ein periodisches Übergitter mit asymmetrischer Einheitszelle realisiert.

⁴2DEG: zweidimensionales Elektronengas

2. Theoretische Grundlagen

2.5.1.1. Beschreibung des Systems und Symmetriebetrachtung

Nalitov et al. sehen zur Realisierung ihres Models Graphen auf einem hochressiven Substrat mit einer dünnen, dielektrischen Schicht und einem periodischen Gitter aus semi-transparenten Metallfingern vor [36]. Die Geometrie dieses Entwurfs ist in Abbildung 2.10 skizziert. Die Metallfinger des Übergitters erzeu-

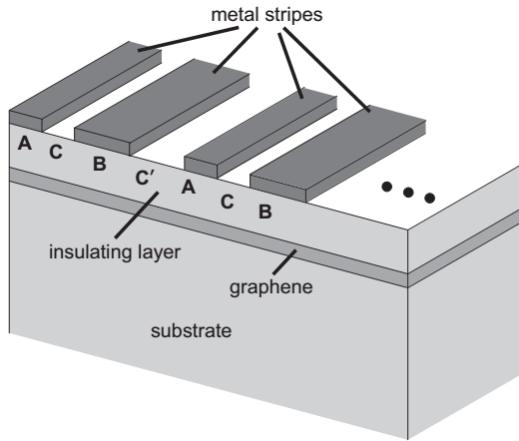


Abbildung 2.10.: Skizze zum Model des Ratscheneffekts nach Nalitov et al. Aus [36].

gen eine elektrostatische Modulation des Ladungsträgersystems. Dies kann entweder durch Erzeugung von periodischen Verspannungen der Graphenschicht unter der Metallstruktur oder durch Anlegen einer Gatespannung geschehen. Das elektrische Feld der Terahertz-Strahlung wird durch Nahfeldbeugungsefekte am Metallgitter moduliert. Im Fall von $A \neq B$, $C \neq C'$ sind die lokalen Extrema der periodischen Funktionen $V(x)$ und $\mathbf{E}(x)$ gegeneinander verschoben, was sich in einem Unterschied ihrer Phasen φ_V und φ_E äußert. Dieser Phasenunterschied bricht die Symmetrie des Systems.

Aus phänomenologischer Sicht muss der Photostrom des Ratscheneffekts vom Potential der elektrostatischen Modulation und von der zweiten Ordnung des elektrischen Feldes abhängen:

$$j_\lambda = \sum_{\mu\nu} \Psi_{\lambda\mu\nu} E_\mu(x) E_\nu^*(x) \frac{dV(x)}{dx}. \quad (2.47)$$

Wenn Graphen, wie in Abbildung 2.10 gezeigt, durch ein asymmetrisches laterales Potential moduliert wird, dann reduziert sich seine Symmetriepunktgruppe zu C_{2v} . Dabei liegt die C_2 -Achse parallel zur Modulierungsrichtung x

und die Spiegelebene σ steht senkrecht auf der y -Achse. Folglich reduziert sich Gleichung (2.47) bei senkrechtem Einfall der Anregung zu

$$\begin{aligned} j_x &= [\chi_0(|e_x|^2 + |e_y|^2) + \chi_L(|e_x|^2 - |e_y|^2)] \overline{E^2(x) \frac{dV}{dx}}, \\ j_y &= [\tilde{\chi}_L(e_x e_y^* + e_x^* e_y) + \gamma P_{\text{circ}}] \overline{E^2(x) \frac{dV}{dx}}. \end{aligned} \quad (2.48)$$

Die Tensorkomponenten χ_0 , $\chi_L/\tilde{\chi}_L$ und γ beschreiben jeweils den Anteil des Ratschenstroms durch unpolarisierte, linear polarisierte sowie zirkular polarisierte Strahlung. Aus Gleichung (2.48) wird ersichtlich, dass der zirkulare und der unpolarisierte Anteil des Ratschenstroms an die Geometrie der Modulation gekoppelt sind: der zirkulare Anteil entsteht nur senkrecht zur Modulationsrichtung x , der Photostrom durch unpolarisierte Strahlung fließt nur parallel dazu. Die Anteile durch lineare Polarisation sind in beide Richtungen möglich.

Der Balken über den letzten Termen steht für den Mittelwert in Raum und Zeit. Diese können für die einfachsten Fälle aus Gleichung (2.46) zu

$$\overline{E^2(x) \frac{dV}{dx}} = qV_0 h E_0^2 \sin(\varphi_V - \varphi_E) \quad (2.49)$$

umgeformt werden. Der Faktor $h \sin(\varphi_V - \varphi_E)$ sollte stark von der Geometrie der Gatestreifen abhängen. Weiterhin sollte das Anlegen von Spannungen an die Elemente A und B der Gatestruktur zu einer Veränderung der Amplitude des lateralen Potentials $V(x)$ führen. Im Folgenden soll nun erläutert werden, wie der Ratscheneffekt aus mikroskopischer Sicht entsteht.

2.5.1.2. Mikroskopisches Modell

In der Arbeit von Nalitov et al. werden zwei verschiedene Mechanismen zur Erklärung des Ratscheneffekts betrachtet [36]: zum einen der Seebeck-Ratscheneffekt, für den die Relaxationszeiten für Impuls- und Energierelaxation identisch sind, zum anderen der polarisationsabhängige Ratscheneffekt, der auf der klassischen kinetischen Boltzmann-Gleichung fußt und verschiedene Mechanismen der elastischen Streuung berücksichtigt. Nach den Berechnungen von Nalitov verschwindet der Seebeck-Ratscheneffekt in Graphensystemen für die berücksichtigten Streumechanismen [36], deshalb wird hier nicht weiter auf die Herleitung des Seebeck-Ratschenstromes eingangen.

2. Theoretische Grundlagen

Wenn Strahlung senkrecht auf ein Ratschensystem wie in Abbildung 2.10 fällt, dann wirkt auf ein Elektron in diesem System die Kraft

$$\mathbf{F}(x) = e[\mathbf{E}(x)e^{-iwt} + c.c.] - \frac{dV(x)}{dx}\hat{x}, \quad (2.50)$$

mit dem Einheitsvektor \hat{x} in x -Richtung. Diese Kraft wird nun in die kinetische Boltzmann-Gleichung eingesetzt:

$$\left(\frac{\partial}{\partial x} + v_{\mathbf{k},x} \frac{\partial}{\partial x} + \frac{\mathbf{F}(x)}{\hbar} \frac{\partial}{\partial \mathbf{k}} \right) f_{\mathbf{k}}(x) + Q_{\mathbf{k}}(f) = 0. \quad (2.51)$$

Hier ist $\mathbf{v} = v_0 \mathbf{k}/k$ die Geschwindigkeit der Elektronen in Graphen und $Q_{\mathbf{k}}$ ist das Kollisionsintegral. In der weiteren Beschreibung wird angenommen, dass $\tau_{tr}, \omega^{-1} \ll \tau_{\varepsilon}$ ist. In diesem Fall beschreibt $Q_{\mathbf{k}}$ nur Impulsrelaxationsprozesse und Prozesse der Energierelaxation werden somit in Gleichung (2.49) vernachlässigt.

Der Ratschenstrom kann auf diese Weise durch die Verteilungsfunktion der Elektronen mit

$$\mathbf{j} = 4e \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{v}_{\mathbf{k}} \overline{f_{\mathbf{k}}(x)} \quad (2.52)$$

beschrieben werden. Hier wird mit dem Faktor 4 die Entartung der Elektronen bezüglich Spin und Chiralität berücksichtigt. Es werden folgende Annahmen gemacht, um die weitere Rechnung zu vereinfachen:

- Die freie Weglänge $l_e = v_0 \tau_{tr}$ und die Energiediffusionslänge $l_{\varepsilon} = v_0 \sqrt{\tau_{tr} \tau_{\varepsilon}}$ sind beide klein im Vergleich zur Periode d der Modulation.
- Diffusionseffekte werden vernachlässigt: $v_0 \ll \omega d$.
- Das elektrische Feld der Strahlung und das laterale Potential sind schwach, so dass $|eE_0|v_0 \tau_{tr} \ll T$ und $|V(x) - \overline{V(x)}| \ll \varepsilon_F$ gilt.

Nun soll, gemäß den phänomenologischen Gleichungen (2.48), die Funktion $\overline{f_{\mathbf{k}}(x)}$ berechnet werden. Dies geschieht in der dritten Ordnung der Störungstheorie, in der zweiten Ordnung der Amplitude des elektrischen Feldes und in der ersten Ordnung des lateralen Potentials [36]. Das Ergebnis wird in Gleichung (2.52) eingesetzt und durch Vergleich mit den phänomenologischen Gleichungen (2.48) ergeben sich die Tensorkomponenten für die verschiedenen

Polarisationsanteile der Strahlung zu

$$\chi_0 = \frac{e^3 v_0^2}{2\pi\hbar^2} (\text{Re}S_1 - \text{Im}S_2), \quad (2.53)$$

$$\chi_L = \tilde{\chi}_L = -\frac{e^3 v_0^2}{2\pi\hbar^2} \text{Im}S_2, \quad (2.54)$$

$$\gamma = \frac{e^3 v_0^2}{2\pi\hbar^2} (\text{Re}S_2 - \text{Im}S_1). \quad (2.55)$$

Die komplexen Koeffizienten $S_{1,2}^G$ sind durch

$$S_1^G = \varepsilon^3 \left(\frac{\tau_1}{\varepsilon} \right)' \tau_{2\omega} \left(\frac{\tau_{1\omega}}{\varepsilon} \right)' - \frac{1}{2} \left[\varepsilon^2 \left(\frac{\tau_1}{\varepsilon} \right)' \tau_{2\omega} \tau_{1\omega} \right]', \quad (2.56)$$

$$S_2^G = \frac{(\tau_1 \varepsilon)' (\tau_{1\omega \varepsilon})'}{\omega \varepsilon} - \frac{1}{2\omega} [(\tau_1 \varepsilon)' \tau_{1\omega}]' \quad (2.57)$$

gegeben, wobei $\varepsilon = \varepsilon_F$ gilt und $\tau_{n\omega} = \tau_n / (1 - i\omega\tau_n)$ mit $n = 1, 2$. Verschiedene Streumechanismen können durch unterschiedliche Ausdrücke für die Korrekturen $\tau_{1,2}$ zur Transportrelaxationszeit τ_{tr} berücksichtigt werden.

2.5.2. Model Popov - Plasmonen

Plasmonen sind Quasiteilchen, die kollektive Schwingung von Elektronen gegenüber von Atomkernen beschreiben. Diese können im Volumen eines Materials verlaufen oder auf die Oberfläche beschränkt sein, wie es bei Graphen aufgrund seiner Zweidimensionalität der Fall ist. Im Vergleich zu Metallen wie Gold oder Silber besitzen die Plasmonen in Graphen herausragende Eigenschaften wie die Durchstimmbarkeit ihrer Wellenlänge durch Anlegen einer Gatespannung [37] oder die geringe Dämpfung der Plasmonen im THz-Bereich [38]. Plasmonen konnten in Feldeffekttransistoren (FET) die Grundlage des Mechanismus der Detektion von FIR-Strahlung bilden. Der Grundstein wurde 1996 von Dyakonov und Shur gelegt [39]. Sie beschreiben die Elektronen im Leitungskanal wie eine zweidimensionale Flüssigkeit, die sich in Wellen fortbewegt. Dabei ist die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Wellen größer als die der Elektronen. Der Kanal des FETs dient als Resonator für die Plasmonen, die Resonanzfrequenz wird durch die Länge des Gates und die Ladungsträgerdichte bestimmt. Damit ist je nach Gütfaktor $Q = \omega\tau$ des Resonators resonante oder breitbandige Detektion möglich [40].

2. Theoretische Grundlagen

Popov hat gezeigt, dass eine Struktur aus Metallstreifen ein effektives Mittel ist, um das elektrische Feld einer senkrecht einfallenden Anregung an die Plasmonen in einem 2DES zu koppeln [41]. Ein gleichgerichteter Photostrom entsteht dann aus Terahertz-Strahlung durch den Prozess des „resistive mixing“: Ein Feldeffektransistor wird von einer Spannung zugleich an den Source-Drain- und an den Gate-Source-Kontakten beeinflusst. Aus der periodisch modulierten Leitfähigkeit des Leitungskanals in Verbindung mit einem induzierten Wechselstrom beziehungsweise den Plasmonen resultiert ein gerichteter Netto-Strom. Dies konnte auch experimentell bereits in verschiedenen Materialsystemen gezeigt werden [40, 42, 43]

Mathematisch wird dieser Vorgang mit der eindimensionalen Euler-Gleichung und der zugehörigen Kontinuitätsgleichung der Hydrodynamik

$$\frac{\partial V(x, t)}{\partial t} + V(x, t) \frac{\partial V(x, t)}{\partial x} + \frac{V(x, t)}{\tau} + \frac{e}{m} E(x, t) = 0, \quad (2.58)$$

$$e \frac{\partial}{\partial t} N(x, t) - \frac{\partial}{\partial x} j(x, t) = 0 \quad (2.59)$$

beschrieben. Hier ist $E(x, t)$ ein oszillierendes elektrisches Feld in der Ebene, welches mit den Plasmonen verknüpft ist. Es soll an dieser Stelle darauf hingewiesen werden, dass $E(x, t)$ hier nicht das elektrische Feld der anregenden Strahlung beschreibt. Die Größen $V(x, t)$ und $N(x, t)$ beschreiben die hydrodynamische Geschwindigkeit und die Ladungsträgerdichte im 2DES⁵ und fließen in die induzierte Stromdichte

$$j = -eN(x, t)V(x, t) \quad (2.60)$$

ein. Die Parameter e, m und τ stehen für Ladung, effektive Masse und Streuzeit der Ladungsträger. Im Falle einer gleichförmigen Plasmonenverteilung verschwinden alle nicht-linearen Terme in den Gleichungen (2.58), (2.59) und kein gleichgerichteter Nettostrom kann entstehen. Aus diesem Grund wird $E(x, t)$ als Störung betrachtet und in höhere Ordnungen entwickelt. Damit wird die induzierte Stromdichte aus Gleichung (2.60) zu

$$j(x, t) = -eN_0(x)V^{(1)}(x, t) - eN_0(x)V^{(2)}(x, t) - eN^{(1)}(x, t)V^{(1)}(x, t). \quad (2.61)$$

Die Terme $N^{(1)}(x, t)$ und $V^{(1)}(x, t)$ stehen für lineare Korrekturen zu Ladungsträgerdichte und -geschwindigkeit, $V^{(2)}(x, t)$ ist ein Term der zweiten Ordnung.

⁵zweidimensionales Elektronensystem

2.5. Effekte durch laterale Übergitterstrukturen

Im Gleichgewicht ist die Ladungsträgerdichte $N_0(x)$. Der Mittelwert über Gleichung (2.61) ergibt die gleichgerichtete Stromdichte

$$j_0 = -e \langle N_0(x) V^{(2)}(x, t) \rangle_{T,L} - e \langle N^{(1)}(x, t) V^{(1)(x,t)} \rangle_{T,L} \quad (2.62)$$

mit den Mittelwerten in spitzen Klammern über die zeitliche Periode $T = 2\pi/\omega$ des elektrischen Feldes und der räumlichen Periode L der Elektronendichtheverteilung im 2DES. Im weiteren Verlauf der Rechnung lassen sich zwei Fälle unterschieden:

1. Das 2DES ist im Gleichgewicht homogen, also $N_0(x) = N_0 = \text{const.}$ und die Plasmonen werden durch $E(x, t) = E_0 \cos(\omega t - qx)$ mit dem Wellenvektor q dargestellt.
2. Das 2DES besitzt im Gleichgewicht eine räumliche periodische Elektronendichtheverteilung mit $N_0(x) = N_0 + \Delta N_0 \cos(q_0 x)$ und wird durch eine stehende Plasmawelle mit dem elektrischen Feld $E(x, t) = 2E_0 \cos(\omega t) \cos(qx + \phi)$ angeregt.

Im ersten Fall ergibt sich der Photostrom zu

$$j_0 = -e \langle N^{(1)}(x, t) V^{(1)}(x, t) \rangle_T = -\frac{qe^3 N_0}{2m^2 \omega (\omega^2 + \gamma^2)} E_0^2, \quad (2.63)$$

wobei $\gamma = 1/\tau$ hier für die Streureate der Elektronen steht. Der physikalische Mechanismus, den Gleichung (2.63) beschreibt, ist in Abbildung 2.11 skizziert. Das oszillierende elektrische Feld der Plasmonen formt die Elektronen in Pakete, so dass $N^{(1)}(x, t)$ und $V^{(1)}(x, t)$ über das ganze 2DES gemäß der linearen Kontinuitätsgleichung (2.59) gleichphasig verlaufen. Aus diesem Grund bewegt sich ein Teil $N(t_1) > N_0$ der Elektronen mit Geschwindigkeit $V^{(1)}(t_1) > 0$, der andere Teil $N(t_2) < N_0$ bewegt sich mit $V^{(1)}(t_2) < 0$ in der anderen Hälfte der Periode in die andere Richtung. Für die Zeitpunkte $t_{1,2}$ soll $t_2 = t_1 + T/2$ mit der Periodendauer T gelten. Da $N(t_1) \neq N(t_2)$ entsteht dabei ein gerichteter Strom.

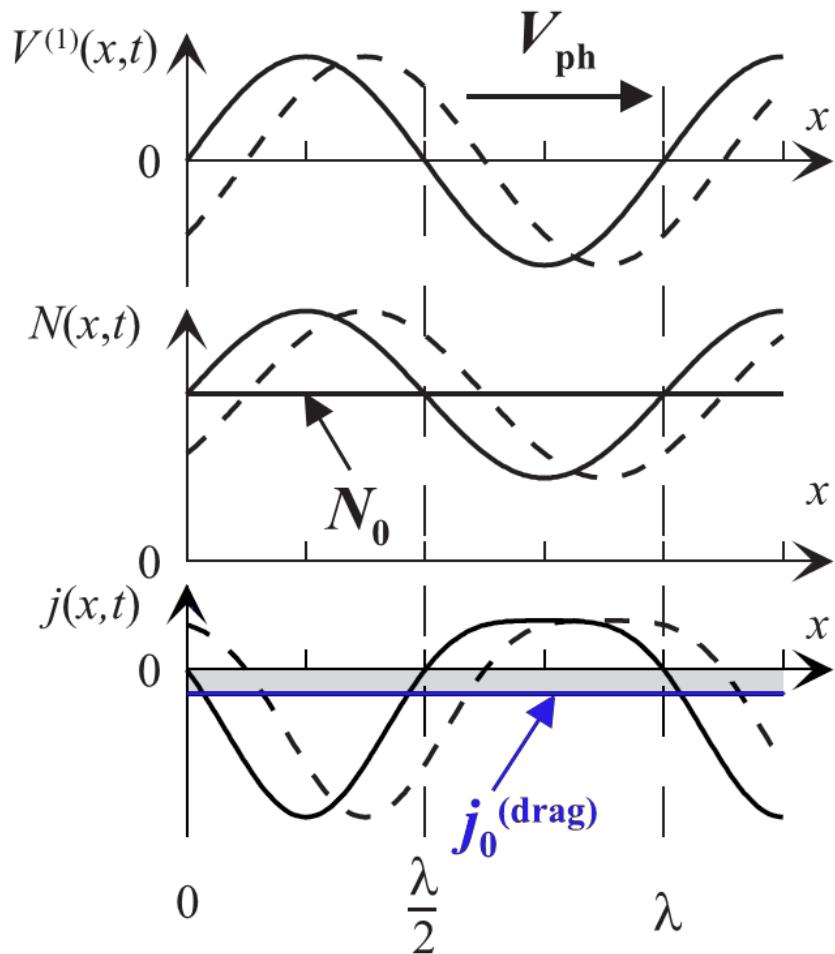


Abbildung 2.11.: Skizze des Plasmonic-Drag-Mechanismus. Ein Plasmon der Wellenlänge λ wandert mit der Phasengeschwindigkeit $V_{\text{ph}} = \omega/q$ in x -Richtung. Gestrichelte und durchgezogene Linien stellen verschiedene Zeitpunkte dar. Der gerichtete Strom $j_0^{(\text{drag})}$ stellt den Mittelwert des Produkts aus Elektronengeschwindigkeit und Elektrondichte dar. Aus [44].

Im zweiten Fall mit der periodischen Ladungsträgerdichte und der stehenden Plasmawelle würde der Mechanismus des Plasmonic Drag keinen Photostrom induzieren. Eine stehende Welle kann in zwei gegenläufige Wellen mit gleicher Amplitude zerlegt werden, dementsprechend würden sich beide Anteile auslöschen. Unter diesen Voraussetzungen wird die Stromdichte durch den Konvektionsterm induziert, den zweiten Term in der Euler-Gleichung (2.58). Die Geschwindigkeit der nicht-linearen Konvektion der Elektronen im Gleichgewicht kann aus Gleichung (2.58) durch Bilden des Mittelwerts über die zeitliche Periode des elektrischen Feldes erhalten werden:

$$\begin{aligned} V_0^{(2)}(x) &= -\frac{1}{\gamma} \left\langle V^{(1)}(x, t) \frac{\partial V^{(1)}(x, t)}{\partial x} \right\rangle_T \\ &= \frac{qe^2}{\gamma m^2(\omega^2 + \gamma^2)} E_0^2 \sin[2(qx + \phi)]. \end{aligned} \quad (2.64)$$

Der Beitrag, der sich durch den Konvektionsterm ergibt, kann durch $j_0^{(\text{conv})} = -eN_0(x)V^{(2)}(x)$ berechnet werden und ergibt sich im einfachsten Fall zu

$$j_0^{(\text{conv})} = -\frac{qe^3 \Delta N_0}{2m^2 \gamma (\omega^2 + \gamma^2)} E_0^2 \sin(2\phi). \quad (2.65)$$

Dazu wurden die Annahmen gemacht, dass $E(x, t)$ und $N_0(x)$ kommensurable Perioden besitzen und $q_0 = 2q$ gelten muss. Die Richtung und der Betrag des Stroms hängen außerdem von der Phase ϕ zwischen diesen beiden Größen ab. Für $\phi = 0, \pi/2, \pi, \dots$ verschwindet der Strom, da $E(x, t)$ und $N_0(x)$ eine gemeinsame Spiegelebene in y - z -Richtung besitzen. Damit wird das System symmetrisch und eine der Grundbedingungen für Ratscheneffekte ist nicht mehr erfüllt. Aus diesem Grund wird der Konvektionsbeitrag $j_0^{(\text{conv})}$ auch Ratschenstrom $j_0^{(\text{ratch})}$ genannt. Eine Skizze des Mechanismus des zweiten Falls ist in Abbildung 2.65 für einen Phasenunterschied von $\phi = \pi/4$ zu sehen. In diesem Fall sind $V^{(2)}(x)$ und $N_0(x)$ räumlich gleichphasig und ein Großteil der Elektronen fließt in x -Richtung. Dadurch entsteht der Ratschenstrom $j_0^{(\text{ratch})}$ in die entgegengesetzte Richtung. Hier wird ebenfalls deutlich, dass durch das Produkt $N_0(x)V^{(1)}(x, t)$ kein Strom entstehen kann, da dieses im zeitlichen Mittel verschwindet.

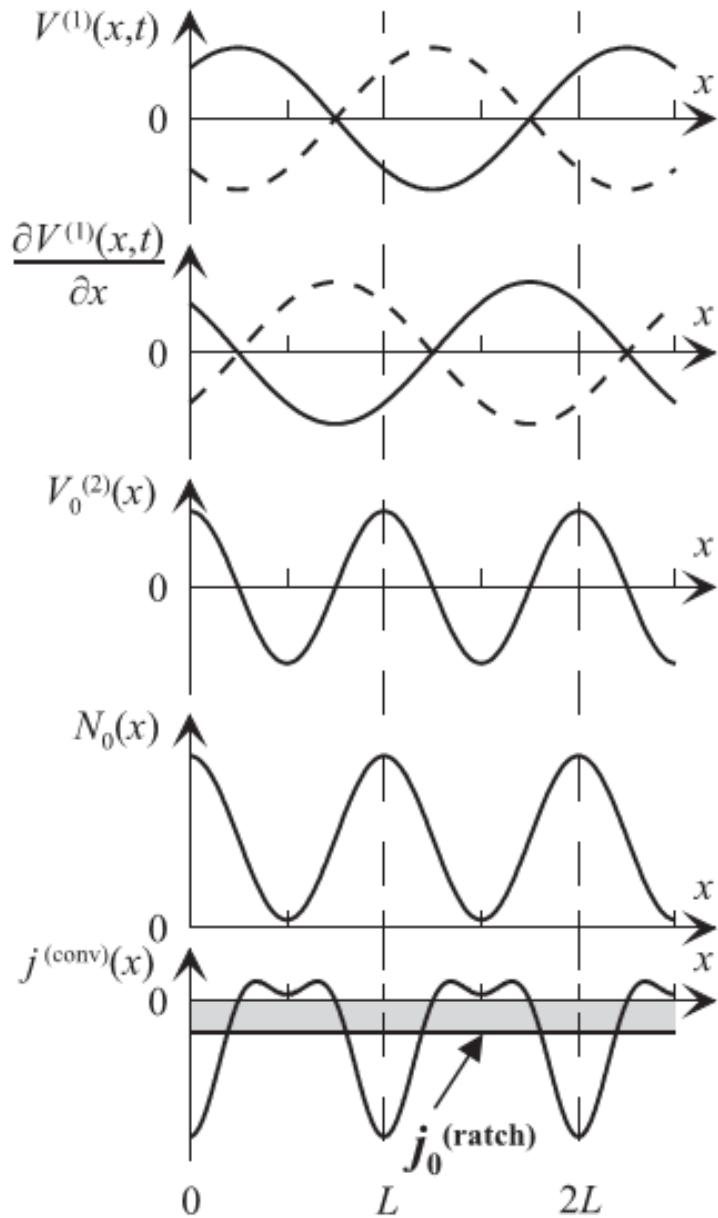


Abbildung 2.12.: Skizze des Plasmonic-Ratchet-Mechanismus in einem räumlich periodischen 2DES. Die stehende Plasmawelle $V^{(1)}(x, t)$ wird für zwei verschiedene Zeitpunkte dargestellt. Ein gleichgerichteter Strom $j_0^{(\text{ratchet})}$ entsteht aus dem Mittelwert des Produkts aus $V^{(2)}$ und $N_0(x)$. Aus [44].

3. Methoden

Im folgendem Kapitel wird erläutert, mit welchen Mitteln die experimentellen Resultate dieser Arbeit erlangt wurden. Dies beinhaltet die Erzeugung der anregenden Strahlung mit optisch gepumpten Gasmolekül-Lasern sowie dem Freie-Elektronen-Laser (FEL) des Helmholtz-Zentrums in Dresden/Rossendorf (HZDR). Weiterhin wird beschrieben, wie die Polarisation der Strahlung mit Hilfe von doppelbrechenden Medien beeinflusst wird. Einen weiteren wichtigen Teil dieses Abschnitts stellen die Methoden zur Prozessierung der Proben in Reinraumumgebung dar, im Anhang sind die ausführlichen Rezepte zu finden. Zum Schluss wird darauf eingegangen, wie die Experimente zum Nachweis und zur Charakterisierung des Ratscheneffekts gestaltet wurden.

3.1. Optisch gepumpte Gasmolekül-Laser

Für diese Arbeit wurden sowohl gepulste als auch kontinuierlich¹ betriebene Laser benutzt. Sie unterscheiden sich nur wenig in ihrer fundamentalen Funktionsweise, erreichen aber unterschiedliche Intensitäten. Die gepulsten Systeme können Peakleistungen im Bereich von mehreren kW liefern mit Pulsdauern um 100 ns, wohingegen die Dauerstrichsysteme bei ungefähr 50 mW arbeiten. Die thermische Belastbarkeit der Proben war für diese Arbeit das entscheidende Kriterium zur Wahl des Lasertyps. Der Aufbau der Lasersysteme besteht aus zwei Teilen: dem Kohlenstoffdioxid (CO_2)- und dem Ferninfrarot- oder auch THz-Laser. Dabei wird die mittelinfrarote² Strahlung des CO_2 -Lasers zum Pumpen des aktiven Medium des FIR-Lasers genutzt, wie Abbildung 3.1 skizziert. Im Folgenden wird die Funktionsweise der beiden Laser erläutert.

¹engl. cw: continuous wave - Dauerstrich

²MidInfraRed: Strahlung im Wellenlängenbereich von 2 μm bis 20 μm

3. Methoden



Abbildung 3.1.: Schema der Erzeugung von FIR/THz-Strahlung. Der CO₂-Laser erzeugt Strahlung im Mittelinfraroten, die dann als Pumpe für den NH₃-Laser dient.

3.1.1. CO₂-Laser

Diese Art von Molekular-Gas-Laser hat sich wegen seiner Kosten- und Energieeffizienz nicht nur in der Industrie, sondern auch in der Forschung bewährt. Er erreicht Wirkungsgrade von 15 - 20 %. Als aktives Medium dient ein Gemisch aus CO₂, Stickstoff (N₂) und Helium (He). Die Zusammensetzung und der Druck des Gemisches unterscheiden sich bei Dauerstrich- und gepulsten Lasern. Bei den Dauerstrich-Lasern wird ein kontinuierlicher Gasfluss eingestellt um einen zusätzlichen Kühlleffekt zu erzielen. Bei den gepulsten Systemen wird das aktive Medium transversal elektrisch, mit Hilfe sogenannter Rogowski-Elektroden, gepumpt (TEA³-Laser). Die spezielle Form der Elektroden und die Technik der Vor-Ionisation des Gases erzeugen eine homogene, stabile elektrische Entladung. Bei den Dauerstrich-Systemen erfolgt die Energiezufuhr über einen Elektronenstrahl, der durch das Gasgemisch parallel zum Resonator läuft. In Abb. 3.2 werden beide Lasertypen schematisch dargestellt.

Die Wellenlänge der emittierten MIR-Strahlung kann durch ein Echelette-Gitter bestimmt werden. Es reflektiert nur eine bestimmte Wellenlänge in das aktive Medium zurück. Durch den Einsatz von Brewster-Fenstern entsteht linear polarisierte Strahlung.

Die gepulsten Laser erreichen Pulsdauern von ungefähr 100 ns und Leistungen im MW-Bereich, die Dauerstrich-Laser liefern 50 W. Da der CO₂-Laser als Pumpe für den FIR-Laser zur Anwendung kommt, werden die grundlegenden Vorgänge, die zur stimulierten Emission führen, im Folgenden erläutert.

Im linearen CO₂-Molekül existieren drei verschiedene Schwingungsmoden, welche mit den Quantenzahlen ν_i bezeichnet werden (siehe Abbildung 3.3): die infrarot-inaktive symmetrische Strettschwingung, die asymmetrische Strettschwingung und die Knickschwingung. Aus diesen drei Normalschwingungen können beliebige Schwingungen des CO₂-Moleküls zusammengesetzt werden.

³TEA:Transversal Excited at Atmospheric pressure

3.1. Optisch gepumpte Gasmolekül-Laser

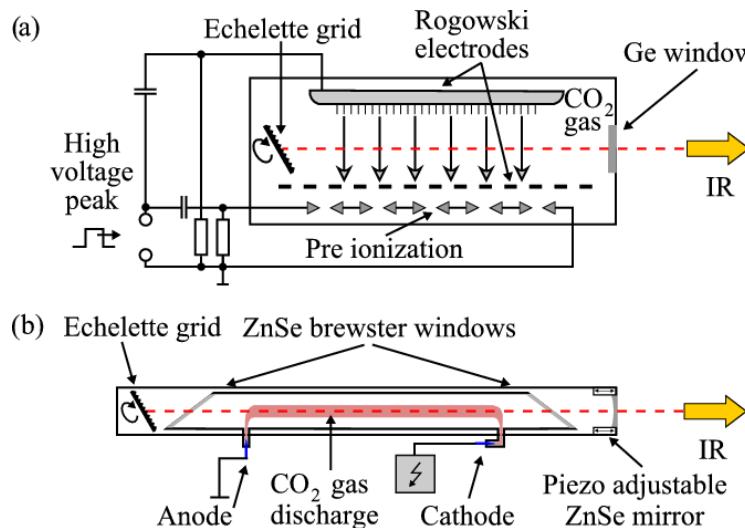


Abbildung 3.2.: Schematischer Aufbau des a) gepulsten und b) Dauerstrich-CO₂-Lasers. Aus [45].

Die Entartung der Knickschwingung (01^l0) wird mit dem Index l berücksichtigt.

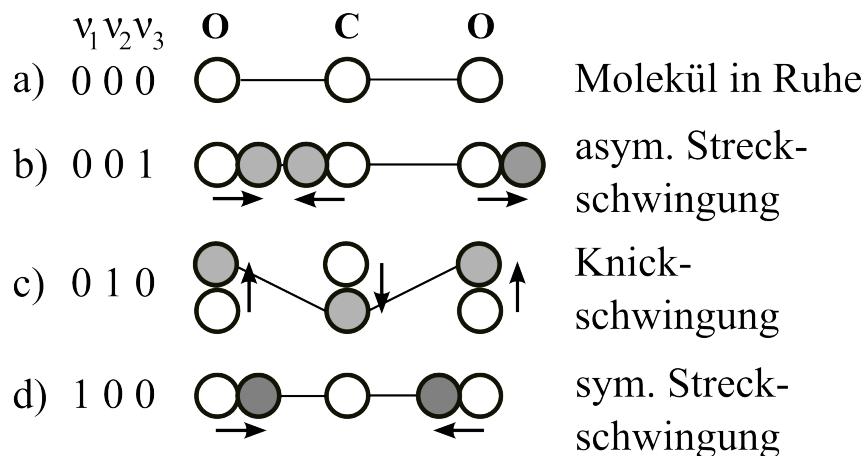


Abbildung 3.3.: Schwingungszustände des CO₂-Moleküls: a) Grundzustand und b) bis d) die drei Normalschwingungen.

3. Methoden

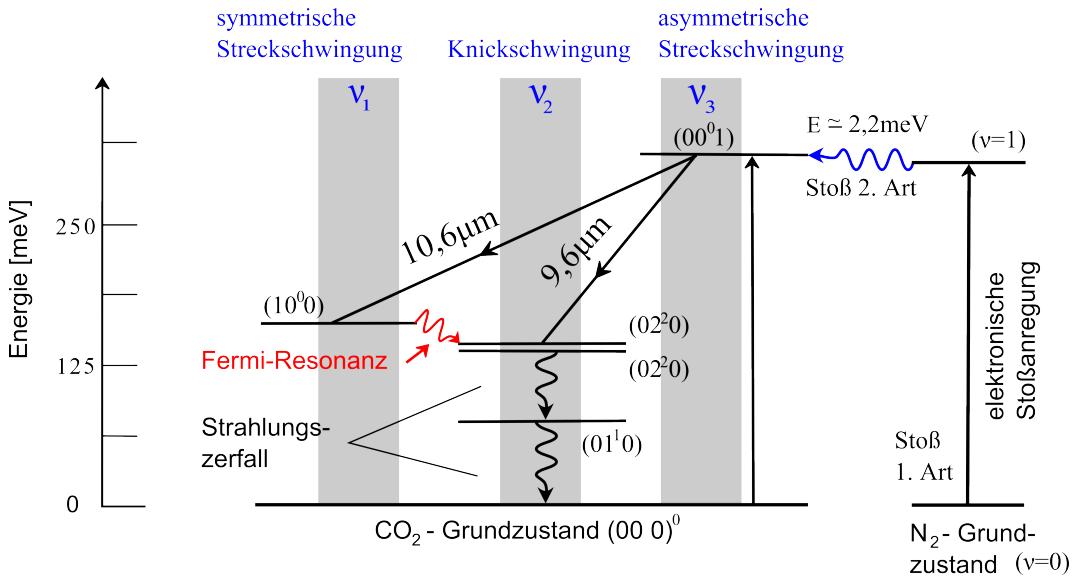


Abbildung 3.4: Termschema der Schwingungsmoden des CO₂- und erster angeregter Zustand des N₂-Moleküls.

Der Stickstoffanteil im Gasgemisch unterstützt den Pumpmechanismus. Aus diesem Grund werden seine ersten beiden Energieniveaus in Abbildung 3.4 gezeigt. Das Anlegen einer Spannung an die Elektroden beschleunigt Elektronen im Gasgemisch, welche durch Stöße 1. Art jeweils CO₂- und N₂-Moleküle in den ersten angeregten Zustand versetzen. Der metastabile erste angeregte Zustand des Stickstoffs liegt nahe am Energieniveau der asymmetrischen Strettschwingung des CO₂-Moleküls, deshalb kann durch Stöße 2. Art effektiv Energie an CO₂-Moleküle übertragen werden. Übergänge von der asymmetrischen zur symmetrischen Strettschwingung erzeugen Strahlung im Wellenlängenbereich von 10,6 μm, Übergänge zur Knickschwingung liegen im Bereich von 9,6 μm. Die beiden unteren Schwingungsniveaus sind sich energetisch sehr nah, weshalb eine Fermi-Resonanz zwischen ihnen besteht. Dies erlaubt eine Entleerung des (10⁰0)-Niveaus, das wegen seiner Infrarot-Inaktivität sonst metastabil wäre. Die Knickschwingung (02²0) relaxiert durch Strahlungszerfall zu (01¹0) und schließlich in den Grundzustand (00⁰0). Das Helium im Gasgemisch sorgt zusätzlich durch Stöße für eine schnelle Entleerung der unteren Laserniveaus.

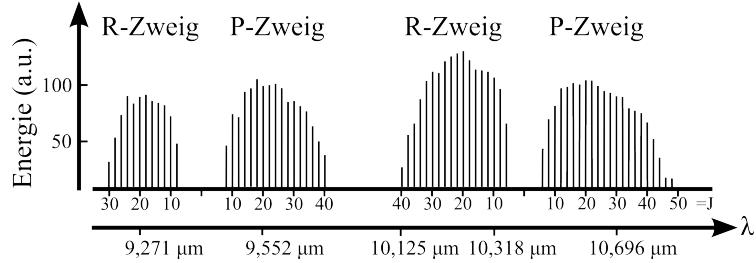


Abbildung 3.5.: Rotationsbanden des CO₂-Moleküls.

Das Spektrum des CO₂-Lasers spaltet sich noch weiter auf, wenn man zusätzlich zu den Schwingungsübergängen auch noch Rotationsübergänge berücksichtigt. Rotationsübergänge sind möglich, wenn die Auswahlregel $\Delta J = \pm 1$ erfüllt ist. Für $\Delta J = -1$ spricht man vom P-Zweig, $\Delta J = +1$ nennt man R-Zweig (Abbildung 3.5). Diese Regeln sind dabei vom unteren Laserniveau zu betrachten. Die 9P20-Linie entspricht also einem Übergang von [(00⁰1), J=21] zu [(02²0), J=20] mit der Wellenlänge 9,552 μm. Die Energieniveaus im CO₂-Molekül ergeben sich zu

$$E = \sum_i^3 E_{vib}(\nu_i) + E_{rot}(J) \quad (3.1)$$

$$E_{vib}(\nu_i) = \hbar\omega_i(\nu_i + 1/2) \quad (3.2)$$

$$E_{rot}(J) = \frac{\hbar}{2\Theta} J(J+1). \quad (3.3)$$

Das Trägheitsmoment des CO₂-Moleküls wird mit Θ bezeichnet. Diese Vielzahl von Energieniveaus erlaubt viele verschiedene Laserlinien, die Auswahl erfolgt durch die Position des Echelette-Gitters. Auf diese Weise ist es möglich, den FIR-Laser gezielt zu pumpen, weil die Wellenlänge des CO₂-Pump-Lasers resonant auf ein Energieniveau im Spektrum des aktiven Mediums abgestimmt werden kann.

3.1.2. FIR-Laser

Der eigentliche FIR-Laser besteht aus einer Glasküvette, die mit zwei Spiegeln abgeschlossen wird. Die Spiegel haben jeweils ein kleines Loch in der Mitte, um die Pumpstrahlung in den Resonator zu bringen beziehungsweise um die FIR-Strahlung auszukoppeln.

3. Methoden

Die Pumpstrahlung des gepulsten CO₂-Lasers wird mit Hilfe einer BaF₂-Linse fokussiert und über ein NaCl-Fenster in den Resonator gebracht. Dieses kristalline Kochsalz-Fenster befindet sich außerhalb des Fokus der Linse, um nicht durch die konzentrierte Energie des CO₂-Lasers beschädigt zu werden. Ein 4-Methylpent-1-en (TPX)-Fenster sorgt dafür, dass nur FIR-Strahlung den Resonator verlässt. Die restliche MIR-Strahlung absorbiert es. Als aktives Medium kommt je nach gewünschter Wellenlänge NH₃ (90 bis 280 μm), D₂O (385 μm) oder CH₃F (496 μm) zum Einsatz.

Bei den Dauerstrich-Lasern bestehen Linse und Fenster jeweils aus ZnSe. Der Spiegel am Austritt wurde aus z-cut Quarz hergestellt und ist mit Silber beschichtet. Dieser lässt einen Teil der FIR-Strahlung austreten und reflektiert aufgrund seiner dielektrischen Eigenschaften Reste der MIR-Pumpstrahlung. Als aktive Medien kommen CH₃OH (96, 118 μm), HCOOH (400 - 500 μm) oder CH₂F₂ (um 200 μm) zum Einsatz.

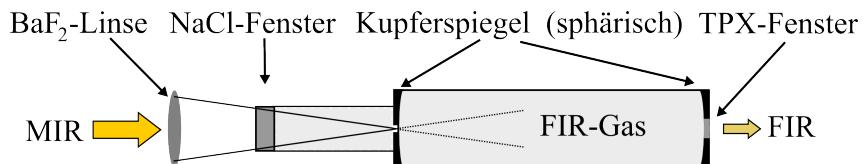


Abbildung 3.6.: Aufbau eines gepulsten FIR-Lasers.

In Abbildung 3.7a) ist der Pumpvorgang für NH₃ skizziert, gilt aber in dieser Form für alle einfacheren prolaten Moleküle mit permanentem Dipolmoment. Der Drehimpuls des Moleküls wird mit J bezeichnet, die Projektion des Drehimpulses auf die Molekül-Symmetriechse mit K . Durch das Pumpen werden Elektronen in das höhere Vibrationsniveau angeregt, wodurch innerhalb der beiden Vibrationsniveaus eine Besetzungsinversion bezüglich der Rotationsniveaus entsteht. Strahlende Übergänge können dann gemäß der Auswahlregeln $\Delta J = \pm 1$ und $\Delta K = 0$ erfolgen. Stimulierte Emission führt dazu, dass die Besetzungsinversion kaskadenartig zu niedrigeren Rotationsniveaus wandert. Voraussetzung für diesen Mechanismus ist, dass die gepumpten Moleküle ein Dipolmoment und die Vibrationszustände eine lange Lebensdauer besitzen. Andernfalls kann sich keine Besetzungsinversion in den Rotationsniveaus des Vibrationsgrundzustands und des ersten angeregten Zustands aufbauen. Einen großen Einfluss auf die Intensität der THz-Strahlung hat der Druck des Lasergases. Bei niedrigem Druck befinden sich zu wenige Moleküle im Resonator um große Intensitäten zu erreichen, bei hohem Druck wird der Grad der Be-

setzungsinvolution durch Stöße der Moleküle untereinander verringert. Es gibt deshalb für jede Laserlinie einen optimalen Druck, bei dem die Intensität maximal ist. Bei der Wahl der Pumpwellenlänge ist weniger Präzision erforderlich, da es durch stimuliertes Ramanübergänge zur resonanten Emission von THz-Strahlung kommt, auch wenn die Pumpwellenlänge nicht genau dem Energieunterschied zwischen zwei Vibrationsniveaus entspricht (siehe Abbildung 3.7b)).

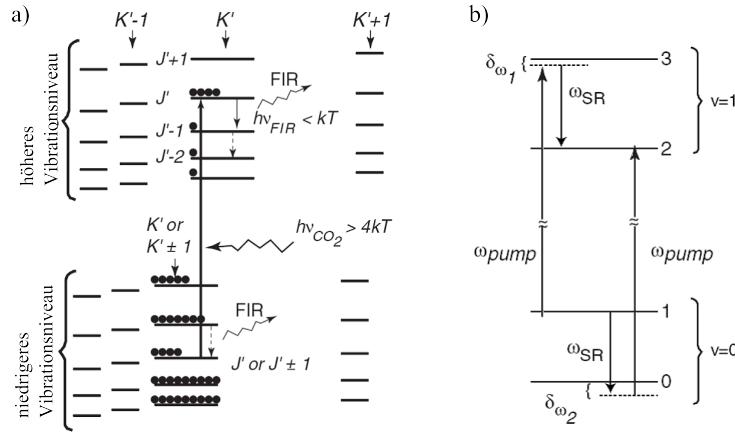


Abbildung 3.7.: a) Übergänge im NH_3 -Molekül und b) stimulierter Ramanprozess.

Die Pumpstrahlung des CO_2 -Lasers ist linear polarisiert, wodurch linear polarisierte FIR-Strahlung erzeugt wird. Für den Fall, dass $|\Delta J|$ für Pump- und FIR-Übergang gleich ist, sind die beiden Polarisationen gleich orientiert, ansonsten orthogonal zueinander [21].

3.2. Freie-Elektronen-Laser

FEL sind keine Laser im ursprünglichen Sinne, da sie kein aktives Medium mit einer Besetzungsinvolution besitzen. Sie nutzen die Tatsache, dass beschleunigte Ladungsträger elektromagnetische Strahlung emittieren. Am HZDR werden Elektronen durch den Linearbeschleuniger ELBE⁴ auf annähernd Lichtgeschwindigkeit beschleunigt, anschließend wird dieser relativistische Elektronenstrahl in einen sogenannten Undulator oder auch Wiggler geführt. Er besteht aus einer alternierenden Anordnung von Magneten, die den Elektronen eine wellenförmige Trajektorie aufzwingt. Dies ist in Abbildung 3.8 skizziert. Die

⁴Elektronen Linearbeschleuniger für Strahlen hoher Brillanz und niedriger Emittanz

3. Methoden

dafür notwendige Radialbeschleunigung führt zur Emission einer elektromagnetischen Welle. Im Ruhesystem des Elektrons ist diese Strahlung in alle Richtungen verteilt, nach einer Lorentz-Transformation ins Laborsystem zeigt sich jedoch, dass die Strahlung kegelförmig in Bewegungsrichtung des Elektrons abgestrahlt wird. Zusätzlich sieht das relativistische Elektron eine verkürzte Periode des Undulators. Weiterhin wird die Wellenlänge der abgestrahlten elektromagnetischen Welle durch den relativistischen Dopplereffekt verkürzt. Mit dem relativistischen Korrekturterm $\gamma = (1 - (v/c)^2)^{-1/2}$, der Undulatorstärke $K_w = eB_w\lambda_w/2\pi m_0 c^2$ sowie der Periode des Undulators λ_w kann die Wellenlänge λ der emittierten Strahlung zu

$$\lambda = \frac{\lambda_w}{2\gamma^2} (1 + K_w^2/2) \quad (3.4)$$

bestimmt werden. Die Länge des Resonators ist so gewählt, dass die emittierte elektromagnetische Welle nach genau einem Umlauf im Resonator mit dem nächsten Elektronenpaket wechselwirkt. Die elektrischen Felder addieren sich konstruktiv und damit wird die Strahlung verstärkt.

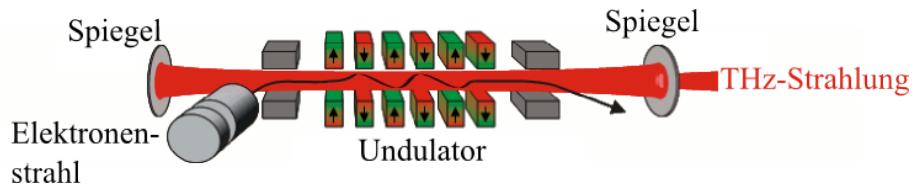


Abbildung 3.8.: Schematischer Aufbau des FEL.

Auf diese Weise kann am HZDR mit den beiden Undulatoren U27 beziehungsweise U100 Strahlung im Wellenlängenbereich von 4 μm bis 20 μm beziehungsweise von 30 μm bis 250 μm erzeugt werden. Weitere charakteristische Eigenschaften der FIR-Strahlung am FELBE⁵ sind in Tabelle 3.1 dargestellt.

Wellenlänge	4 - 250 μm
Pulsdauer	1 - 25 ps
Pulsenergie	0.01 - 2 μJ
Repetitionsrate	13 MHz
Intensität	0.1 - 40 W

Tabelle 3.1.: Parameter der FIR-Strahlung am FELBE

⁵Freie-Elektronen-Laser für ELBE

Ein herausragendes Merkmal des FEL am HZDR stellt die geringe spektrale Breite $\frac{\Delta\lambda}{\lambda} \leq 2\%$ der Strahlung dar, siehe Abbildung 3.9. Dies ermöglicht die Kontrolle des Polarisationszustands der Strahlung mit Hilfe von $\lambda/2$ - und $\lambda/4$ -Plättchen und ist damit von grundlegender Bedeutung für die durchgeführten Experimente.

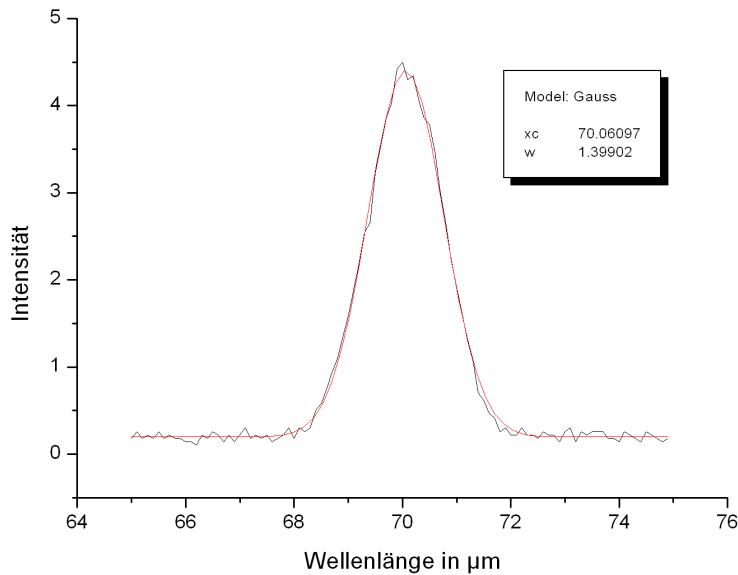


Abbildung 3.9.: Spektrum der FEL-Strahlung bei einer Wellenlänge $\lambda = 70 \mu\text{m}$, gefittet durch eine Gaußkurve mit einer Halbwertsbreite von $\Delta\lambda = 1,4 \mu\text{m}$.

3.3. Aufbau und Prozessierung der Proben

Im Rahmen dieser Arbeit wurden verschiedene Ratschenstrukturen auf Graphen untersucht. Sie wurden mit unterschiedlichen Ausgangsmaterialien hergestellt: mikromechanisch exfoliertes Graphen, sowie epitaktisch gewachsenes Graphen auf semi-isolierendem Siliziumkarbid (SiC). In diesem Abschnitt sollen die verschiedenen Methoden zur Probenpräparation in Reinraumatmosphäre kurz erläutert werden. Der Aufbau der Proben wird erklärt und begründet, präzise Rezepte sind im Anhang zu finden.

3. Methoden

3.3.1. Mikromechanische Exfoliation

Dieses Verfahren, auch „Scotch-Tape-Methode“ nach dem verwendeten Klebeband genannt, ermöglichte erstmals die Herstellung von Graphen-Monolagen: A. Geim und K. Novoselov waren die ersten, die damit erfolgreich arbeiteten und mit ihrer Veröffentlichung [1] die Grundlage für ein ganzes Forschungsfeld legten. Exfolierte Graphenflocken sind üblicherweise mehrere $10 \mu\text{m}^2$ groß und über diese Fläche annähernd einkristallin.

Für diese Arbeit wurde Graphen wie folgt exfoliert:

- Ein Stück Naturgraphit wurde auf Klebefilm gedrückt, so dass eine möglichst lückenlose, deckende Graphitschicht entsteht.
- Diese Schicht wurde durch mehrmaliges Abziehen mit dem Klebebandstreifen weiter gespalten und deren Dicke verringert bis die Graphitschicht ihren metallischen Glanz verloren hatte.
- Danach wurde das Klebeband auf ein gereinigtes Substrat geklebt. Dabei sollte das ausgedünnte Graphit mit dem Substrat in Kontakt gebracht werden. Nun wurde Druck ausgeübt, um eine Lage Graphen vom Graphit zu lösen und an das Substrat zu binden.
- Der Klebefilm wurde wieder abgezogen, das Graphen blieb auf dem Substrat zurück.

Das Substrat bestand aus p-dotiertem Polysilizium mit einer 300 nm dicken Oxidschicht. Bei dieser Dicke ist ein hoher optischer Kontrast des Graphens auf dem Substrat gewährleistet. Weiterhin ermöglichte dies den Einsatz eines Backgates, um zum Beispiel die Ladungsträgerdichte des Graphens zu variieren. Auf dem Substrat waren Marker aus Metall aufgebracht, um die weitere Prozessierung zu erleichtern. Auf diese Weise ließen sich Graphenflocken mit Beweglichkeiten μ im Bereich von mehreren Tausend cm^2/Vs realisieren.

3.3.2. Epitaktisches Wachstum auf SiC

Die Grundlage für dieses Verfahren wurde bereits in den 70er Jahren durch van Bommel gelegt [46]. Er stellte fest, dass beim Erhitzen eines SiC-Kristalls Graphit auf der Oberfläche entsteht. Auf der C-terminierten Oberfläche bildete sich polykristallines Graphit, auf der Si-terminierten Oberfläche ordnete es sich als

Einkristall. Für die Synthese von Graphen wurde dieser Prozess von den Gruppen um Seyller und Weber weiter entwickelt [47]. Das Substrat aus Siliziumkarbid wird in Argon-Atmosphäre auf circa 1800 °C geheizt. Durch das Argon wird der Partialdruck des Si in der Kammer erhöht, da die Si-Atome nicht von der Oberfläche wegdiffundieren können. Die Si-Atome verdampfen langsamer aus dem Kristall und der Prozess wird leichter kontrollierbar. Zuerst entsteht die sogenannte nullte oder Pufferlage, dann die Graphenlagen. Die π -Orbitale der Pufferlage werden wegen der Bindung an das SiC-Substrat abgesättigt und sind deshalb elektrisch inaktiv. Die Puffer- und die erste Graphenlage sind somit voneinander elektrisch entkoppelt. Auch beim Wachstum von Graphen spielt die Oberfläche eine wichtige Rolle: Auf der Si-terminierten Oberfläche wächst Graphen eher langsam, wohingegen sich auf der C-terminierten Oberfläche schnell mehrere, zueinander verdrehte Graphenlagen bilden. Für diese Arbeit wurde auf der Si-Oberfläche gewachsenes Graphen gewählt. Weiterhin können durch Interkalation mit Wasserstoff freie chemische Bindungen zwischen Graphen und Substrat abgesättigt werden. Aus der Pufferlage entsteht dabei eine Graphenlage. Somit bildet sich aus Puffer- und Graphenlage eine vom Substrat entkoppelte Graphendoppellage. Zur Herstellung einer Monolage muss daher nach dem Wachstum der Pufferschicht gestoppt und Wasserstoff interkaliert werden. Dadurch entsteht eine „quasi frei-stehende“ Graphenschicht, die sich durch eine geringere Dotierung und höhere Beweglichkeiten im Bereich von 1000 bis 2000 cm²/Vs auszeichnet [48].

3.3.3. Elektronenstrahl-Lithographie

Das Verfahren der Elektronenstrahl-Lithographie (ESL) ist ein wichtiges Werkzeug im Bereich der Mikro- und Nanostrukturierung und ermöglicht eine präzise und flexible Strukturierung verschiedenster Proben. Gerade bei der Arbeit mit exfoliertem Graphen, wo jede Probe ein Unikat darstellt, kann auf die ESL nicht verzichtet werden. Strukturen im Größenbereich von Hunderten von Nanometern sind einfach realisierbar. Mit Hilfe der ESL werden Strukturen definiert, die dann mit weiteren Methoden wie RIE oder Metallevaporation bearbeitet werden.

Im ersten Schritt wird ein Lack auf das zu strukturierende Material aufgeschleudert. Für diese Arbeit wurde in Chlorbenzol gelöstes Polymethylmethacrylat (PMMA) genutzt. Durch Ausheizen bei 150 °C wird das Lösungsmittel aus

3. Methoden

dem Lack entfernt. Es entsteht eine gleichmäßige Schicht aus Polymerketten auf dem Substrat. Diese Ketten können durch Belichtung mit dem Elektronenstrahl eines Rasterelektronenmikroskops (REM) zerstört beziehungsweise verkürzt werden. Dadurch lassen sie sich mit einem 1:3-Gemisch aus Methylisobutylketon (MIBK) und Isopropanol lösen. Zurück bleibt der unbelichtete Lack (Negativprozess). Dies wird in Abbildung 3.10 skizziert. Nach weiteren Bearbeitungsschritten wie zum Beispiel Ätzen oder Metallbedampfung, kann der Lack mit einem Lösungsmittel wie Aceton oder Chloroform wieder entfernt werden.

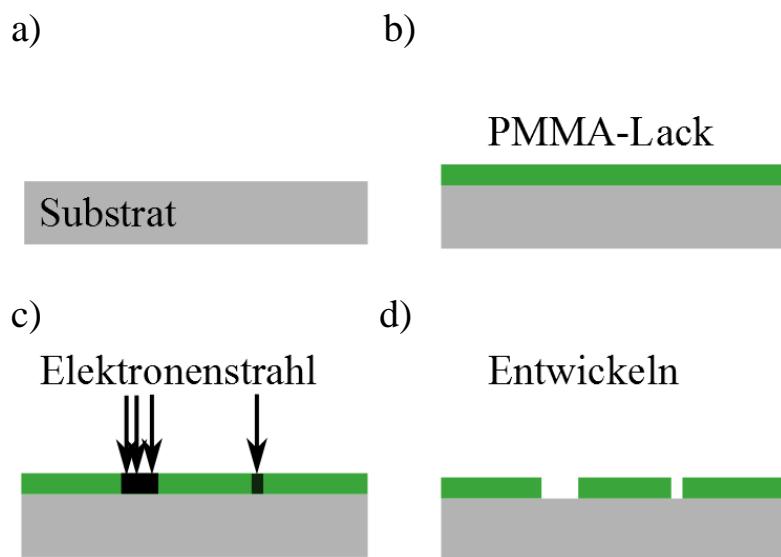


Abbildung 3.10.: Arbeitsschritte für Elektronenstrahllitographie: a) leeres Substrat, auf welches b) Lack aufgespritzt wird. c) Dieser wird per Elektronenstrahl belichtet und d) in einem 1:3 Gemisch aus MIBK und Isopropanol entwickelt.

3.3.4. Reaktive-Ionen-Ätzen

Die Technik des Reaktive-Ionen-Ätzens (RIE⁶) ist in Verbindung mit der ESL ein wichtiges Werkzeug zur Bearbeitung von Graphen. Durch die Kombination beider Methoden können nahezu beliebig geformte Graphenflocken präpariert

⁶engl. Reactive Ion Etching

werden. In der Prozesskammer der RIE-Anlage wird bei einem Basisdruck von circa 1×10^{-6} mbar ein Plasma bei einem stetigen Fluß eines Gasgemisches aus O₂ und Ar erzeugt, welches die unerwünschten Graphenflächen entfernt. Der PMMA-Lack der ESL wird von dem reaktiven Plasma wesentlich langsam geätzt als das Graphen. Aus diesem Grund bleibt das Graphen unter der PMMA-Schicht unberührt. Die Struktur der Ränder der geätzten Flocken ist mit dieser Methode nicht kontrollierbar, also weder vom Typ „armchair“ oder „zigzag“. Um Ränder dieser Art zu erzeugen müssen andere Methoden benutzt werden, zum Beispiel anisotropes Ätzen in Hochtemperatur-Öfen [49].

3.3.5. Erzeugung einer isolierenden Schicht

Isolierende Schichten sind die Grundlage, um Gatestrukturen auf Graphen zu realisieren. Für diese Arbeit wurde das Verfahren der Atomlagenabscheidung (ALD⁷) genutzt. Bei diesem Verfahren werden sogenannte Präkursoren in abwechselnden Pulsen gasförmig in eine Prozesskammer gepumpt. In Skizze 3.11 wird dieser Prozess schematisch dargestellt.

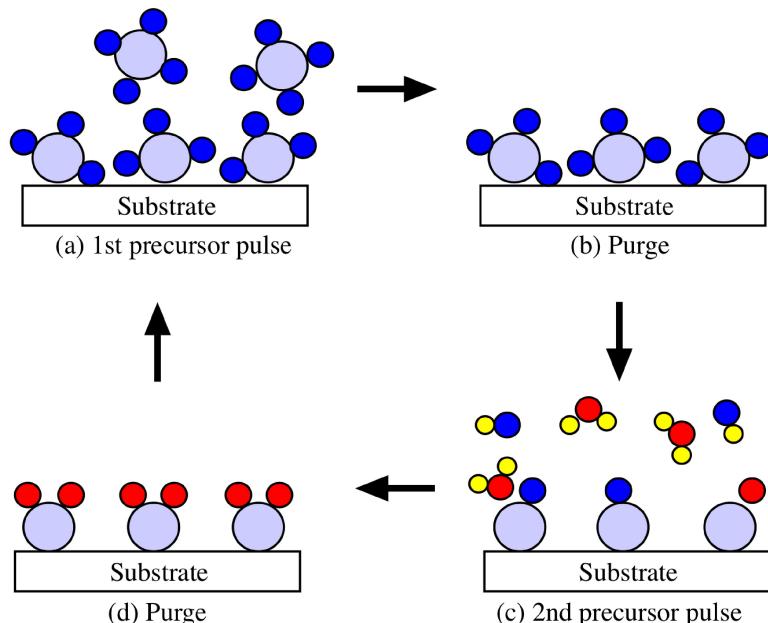


Abbildung 3.11.: Grundprinzip der Atomlagenabscheidung. Aus [50]

Der erste Präkursor wird in die Prozesskammer geführt und adsorbiert auf der

⁷engl. Atomic Layer Deposition - Atomlagenabscheidung

3. Methoden

Oberfläche des Substrats. Diese wird vollständig bedeckt, überschüssige Präkursormoleküle werden unter N₂-Fluß abgeführt. Im nächsten Schritt wird der zweite Präkursor aufgebracht. Dabei reagieren beide Präkursoren miteinander und bilden eine Lage des gewünschten Materials. Danach beginnt der Prozess von vorne. Die alternierende Abfolge von Präkursorpulsen ermöglicht eine präzise Kontrolle der Schichtdicke. Für diese Arbeit sollte Aluminiumoxid als isolierende Schicht aufgebracht werden, deshalb wurden Trimethylaluminium (TMA) und Wasser (H₂O) als Präkursoren verwendet.

Das hydrophobe Verhalten von Graphen verhindert eine vollständige Sättigung der Oberfläche mit Wassermolekülen. Eine zusätzlich aufgebrachte dünne Seed-layer aus Aluminium ($d \leq 1 \text{ nm}$), die dann anschließend in Sauerstoffatmosphäre oxidiert wird, schafft hier Abhilfe. Diese Aluminiumschicht wurde in einer UHV-Anlage thermisch aufgedampft und anschließend in der Schleußenkammer der Anlage oxidiert. Es ist darauf zu achten, dass die Aluminiumschicht nicht zu dick wird, da sie sonst nicht komplett durchoxidiert und die Eigenschaften des Graphens durch zusätzliche Dotierung verändert [51, 52]. Des Weiteren kann auf diese Weise parallel zur Graphenschicht ein leitender Kanal aus Aluminium entstehen. Dieser würde die elektrischen Eigenschaften einer Probe empfindlich stören.

3.3.6. Thermisches Verdampfen von Metallen

Zur Herstellung von Kontakten und Gatestrukturen ist es nötig, Metallfilme auf dem Substrat abzuscheiden. Dies geschieht in der Univex 450 A der Firma LEYBOLD durch Aufheizen der gewünschten Metalle per Elektronenstrahl oder durch Ströme bis zu 200 A. Zur Vermeidung von Verunreinigungen findet dieser Prozess im Vakuum bei Drücken bis zu $p = 5 \times 10^{-7} \text{ mbar}$ statt. Die Form der Kontakt- bzw. Gatestrukturen wurde zuvor mittels ESL definiert. Deshalb orientiert sich die Dicke der Metallschicht an der Dicke des zur ESL aufgebrachten PMMA-Lacks. Im sogenannten Lift-Off Prozess wird das Metall in einem Acetonbad an den unerwünschten Stellen entfernt. Erfahrungsgemäß funktioniert dies bei einem Metall-/Lackdicke-Verhältnis von 1:3 problemlos. Für die Herstellung der Kontakte auf Graphen wurde Palladium (Pd) verwendet. Es bildet mit Graphen ohmsche Kontakte mit Kontaktwiderständen im Bereich von wenigen kΩ. Die Gatestrukturen wurden mit Gold (Au) und einer dünnen Schicht Titan (Ti) als Haftvermittler realisiert.

3.3.7. Aufbau der Proben

Für die Experimente dieser Arbeit wurden drei verschiedene Typen von Proben hergestellt. Die ersten Experimente wurden in Graphenflocken mit einer asymmetrischen Übergitterstruktur ohne Dielektrikum durchgeführt. Darauf folgten Proben, die zusätzlich mit einer Schicht aus Aluminiumoxid versehen wurden, um das Anlegen einer Gatespannung zu ermöglichen. Diese Topgates wurden zum einen auf Proben mit epitaktischem Graphen und zum anderen als Doppelgates auf Graphenflocken realisiert. Ausführliche Rezepte zu allen Strukturen sind im Anhang zu finden.

3.3.7.1. Ratschenstruktur auf exfoliertem Graphen

Die ersten Proben um den Ratscheneffekt zu untersuchen wurden auf exfolierten Graphenflocken hergestellt. Dazu wurde das Graphen per ESL und Bedampfung mit Pd kontaktiert. In einem weiteren Schritt wurde durch ESL eine Übergitterstruktur aus Streifen mit verschiedenen Abständen geformt und durch Bedampfung mit Ti und einer Legierung aus Au und Pd aufgebracht. Diese Legierung wurde gewählt, da sie feinkörniger als zum Beispiel reines Au auf dem Graphen haftet. Einige der Flocken wurden gezielt unstrukturiert gelassen, um sie als Referenz ohne den Ratscheneffekt zu vermessen. In Abbildung 3.12 ist eine REM-Aufnahme in Falschfarben einer modulierten Flocke abgebildet. Die Kontakte sind gelb gefärbt, das Graphen ist grün markiert.

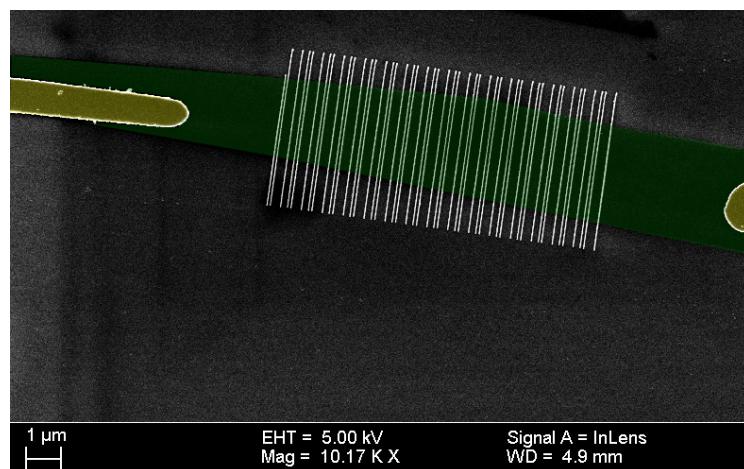


Abbildung 3.12.: REM-Aufnahme einer Graphenflocke (grün) mit Kontakten (gelb) und Metallstreifen.

3. Methoden

3.3.7.2. Ratschenstruktur auf epitaktischem Graphen

Zur Untersuchung des Ratscheneffekts wurde eine asymmetrische Gatestruktur auf epitaktisch gewachsenem Graphen erstellt. Zur Vermeidung von parasitären Photoströmen durch Symmetriebrechung an den Rändern war es wichtig, die Proben so groß zu wählen, dass die Ränder des Graphens nicht durch den FIR-Laser beleuchtet werden. Proben dieser Dimensionen sind in hoher Qualität (derzeit) nur durch epitaktisches Wachstum auf Siliziumkarbid (SiC) möglich. Dieses Material wurde von den Gruppen um Thomas Seyller (TU Chemnitz) und Marcello Lopes (PDI Berlin) zur Verfügung gestellt.

Weiterhin muss darauf geachtet werden, dass das SiC-Substrat möglichst genau in (0001)-Richtung orientiert ist. Bei Abweichungen entstehen auf der Oberfläche für SiC typische Stufenkanten. Die Größe dieser Terrassen hängt von der Ausrichtung des Kristalls ab: Je weniger der Kristall aus der (0001)-Richtung abweicht, desto größer werden die Terrassenflächen und damit die Fläche von einkristallinem Graphen. Korngrenzen an den Kanten der Terrassen können im Graphen Symmetriebrechungen erzeugen und damit unerwünschte Photoströme erlauben, welche dann im ungünstigsten Fall den Ratscheneffekt überdecken. Aus diesem Grund wurde vor der Prozessierung sichergestellt, dass das Graphen ohne Ratschenstruktur keine Photoströme zeigt. Dies ist im Abschnitt 4.2.1 detailliert beschrieben.

Zur Vermeidung von elektrischen Kurzschlüssen wurde ein Rahmen von 200 μm Breite um die zu strukturierende Graphenfläche mit Hilfe von ESL geschrieben und per RIE geätzt. Danach folgte ein weiterer ESL-Schritt um die Kontakte zu definieren. Diese entstanden durch thermische Verdampfung von Palladium mittels Elektronenstrahl. Nach dem Lift-Off Prozess und anschließender Reinigung in Chloroform wurde eine dünne Seedlayer aus Aluminiumoxid aufgebracht. Danach folgte der ALD-Prozess, um die Isolatorschicht zu vervollständigen. Ein weiterer ESL- und Bedampfungsschritt für die Gatestruktur beendete den Herstellungsprozess. Es zeigte sich, dass die dielektrische Schicht mit obigem Verfahren bei exfoliertem Graphen problemlos Gatespannungen bis 20 V ohne Leckstrom Stand hält. Bei den großen Graphenflächen auf SiC war der Widerstand R_{GG} zwischen Gate und Graphen im Bereich von 150 $\text{k}\Omega$. Damit war es nicht möglich, eine Spannung an die Gatestruktur anzulegen ohne die optischen Messungen zu verfälschen. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die Seedlayer nicht homogen über das ganze Substrat aufgebracht wurde und die

isolierende Schicht nach dem ALD-Wachstum unterschiedliche Dicken sowie auch Löcher aufwies. Obwohl der Widerstand R_{GG} zu klein ist, um die Gatestruktur ohne Leckstrom mit einer Spannung zu versorgen, ist er mit einem Unterschied von zwei Größenordnungen zum Kontaktwiderstand groß genug, um das Gate als parallelen Kanal zu vernachlässigen. In Abbildung 3.13 sind Skizzen und Photos aus dem Lichtmikroskop der fertigen Proben zu sehen.

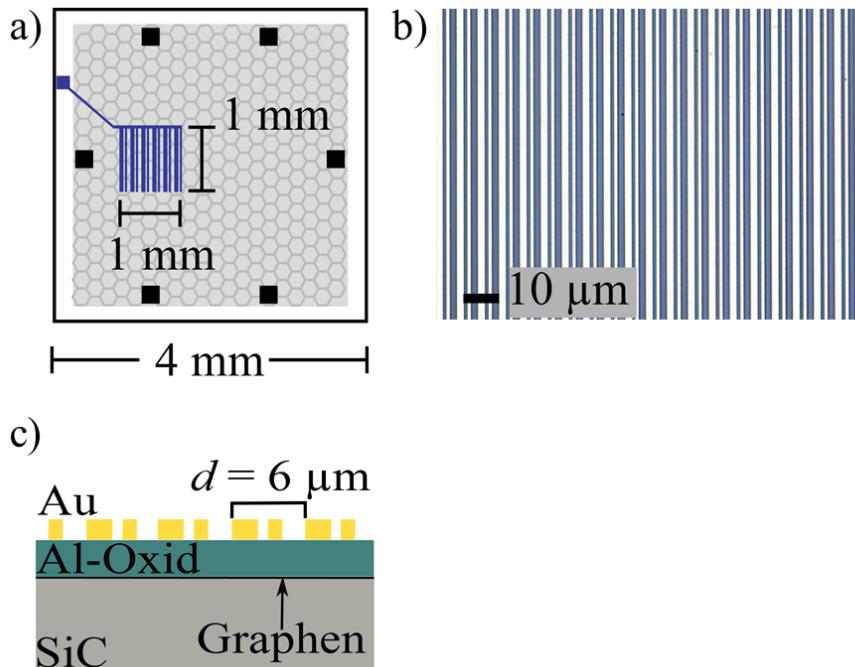


Abbildung 3.13.: a) Skizze der Probe, b) Aufnahme der Gatestruktur im Lichtmikroskop, c) Skizze des Querschnitts der Probe.

3.3.7.3. Doppelgatestruktur auf exfoliertem Graphen

Ein weiterer Probensatz wurde auf exfoliertem Graphen hergestellt. Mit Hilfe von ESL, RIE und Metallbedampfung entstanden kontaktierte Graphenflocken. Diese wurden per Seedlayer und ALD mit einer Isolatorschicht versehen, anschließend wurde das Gate mit ESL und Metallbedampfung erzeugt. Im Gegensatz zu den Proben auf SiC existieren zwei voneinander elektrisch unabhängige Gatestrukturen, die miteinander eine periodische Struktur mit asymmetrischer Einheitszelle bilden. Dies ist mit den Parametern für Abstände $a_{1,2}$ und Dicke der Metallstreifen $d_{1,2}$ in Abbildung 3.14 dargestellt.

3. Methoden

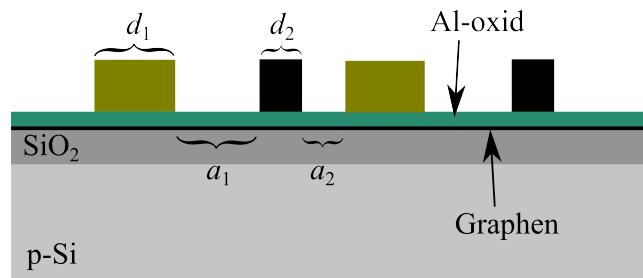


Abbildung 3.14.: Skizze der Geometrie und Benennung der Größen der Doppelgatestrukturen.

Probe	d_1	a_1	d_2	a_2
B	0,5	0,25	0,5	0,25
C	0,15	0,2	0,25	0,4
D	0,5	0,5	1	1

Tabelle 3.2.: Parameter der verschiedenen Doppelgate-Proben in μm .

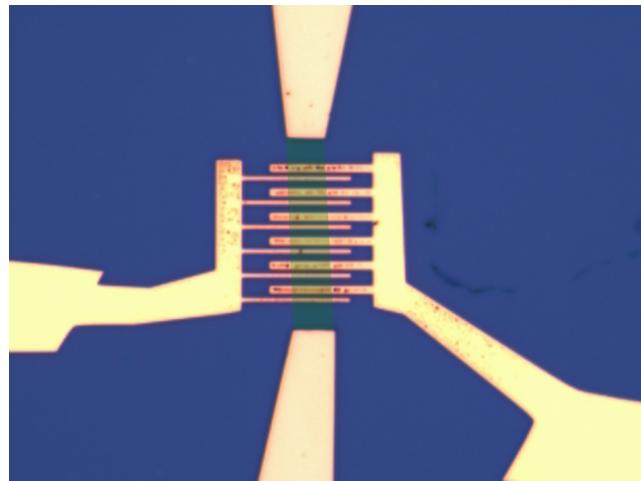


Abbildung 3.15.: Bild der Probe 2013-11-14D aus dem Lichtmikroskop. Die Graphenflocke ist grün markiert. Die Metallstreifen und Abstände sind jeweils $0,5$ oder $1 \mu\text{m}$ breit.

Bei diesen Proben wurde exfoliertes Graphen als Grundlage gewählt, da die zu erwartenden plasmonischen Signale laut Popov [44] in der Größenordnung von kV/W anzusiedeln sind. Im Vergleich dazu sind parasitäre Signale durch Randeffekte vernachlässigbar.

3.4. Aufbau der Experimente

3.4.1. Aufbau am gepulsten Laser

Das Lasersystem und die doppelbrechenden Quarzkristalle ermöglichen die Erzeugung von THz-Strahlung und die kontrollierte Manipulation ihrer Polarisationszustände. Um die Stärke eines Laserpulses zu bestimmen, wird mit einem Strahlteiler ein kleiner Referenzpuls ausgekoppelt und dessen Leistung über einen Photon-Drag-Detektor (PD5F) gemessen. Danach passiert der FIR-Puls ein Stück schwarze Polyethylen-Folie, um restliche MIR-Strahlung auszufiltern. Es folgt das λ -Plättchen, ein Parabolspiegel fokussiert auf die Probe. Zwischen den Kontakten der Probe baut sich bei Beschuss eine Spannung auf, die verstärkt wird und über einen Lastwiderstand einen Strom fließen lässt. Ein Speicheroszilloskop bestimmt den Spannungsabfall über diesen Lastwiderstand. Um ein Übersteuern des Verstärkers und damit Sättigen des Signals zu vermeiden, besteht die Möglichkeit, Referenz- und Hauptpuls mit Hilfe von Teflonscheiben N_1 und N_2 abzuschwächen. Des Weiteren kann auf diese Weise das Verhalten des Signals für verschiedene Intensitäten der Strahlung untersucht werden. Zum Justieren der Probe in den Fokus des FIR-Lasers wird ein Helium-Neon (HeNe)-Laser, der im sichtbaren Bereich bei einer Wellenlänge $\lambda = 632$ nm arbeitet, parallel zur optischen Achse des CO₂-Lasers montiert. Dieser Justierlaser dient auch zum Einstellen senkrechten Einfalls auf die Probe mittels Rückreflex.

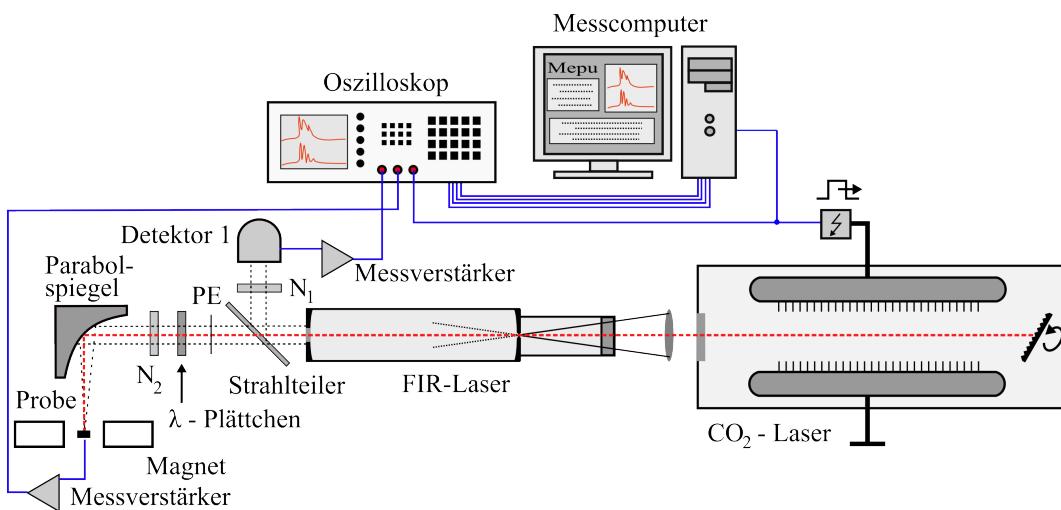


Abbildung 3.16.: Aufbau der Messung mit gepulstem Laser.

3. Methoden

Ein Labview-Programm am Messcomputer steuert den Trigger des CO₂-Lasers und den Schrittmotor des Verzögerungsplättchens. Zudem speichert es alle vom Speicheroloskop erfassten Messwerte (Referenz- und Probensignal). Dieses System ermöglicht automatisierte Messungen.

Aus technischen Gründen ist es nicht möglich, dass jeder Schuss des Lasers die exakt gleiche Leistung liefert. Photogalvanische Effekte skalieren jedoch linear mit der Intensität der Strahlung, deshalb ist es von großer Bedeutung, die Leistung eines jeden Laserschusses zu bestimmen. Der PD5F wandelt FIR-Pulse in messbare Spannungen unter Ausnutzung des Photon-Drag-Effekts um. Die Empfindlichkeit dieses Detektors ist deshalb proportional zum Quadrat der Wellenlänge der einfallenden Strahlung. Da auch die anderen im Experiment benutzten Komponenten ihre Eigenschaften mit der Wellenlänge der Strahlung ändern, wird der Aufbau für jede Wellenlänge und jedes λ -Plättchen kalibriert. Dazu stellt man einen weiteren Photon-Drag-Detektor an den Probenort, misst dort die Intensität U_{2Cal} der FIR-Strahlung und stellt sie ins Verhältnis zur Intensität U_{1Cal} des Referenzpulses. Im Verhältnis von U_{2Cal} zu U_{1Cal} stecken nun alle optischen Eigenschaften der im Aufbau verwendeten Komponenten. Unter Berücksichtigung aller genannten Parameter ergibt sich die Leistung des FIR-Puls am Ort der Probe zu

$$P[kW] = U_1 \cdot \frac{1000mV}{100} \cdot \frac{U_{2Cal}}{U_{1Cal}} \cdot \frac{(90\mu m)^2}{\lambda^2} \cdot \frac{1kW}{12,8mV} \cdot \frac{N_{2Cal}}{N_{1Cal}} \cdot \frac{N_{1Mess}}{N_{2Mess}} \quad (3.5)$$

N_1 und N_2 bezeichnen hierbei die Anzahl der Abschwächer während der Messung und der Kalibrierung. Für den Photostrom gilt dann

$$j = \frac{U_{2max} + U_{2min}}{R_L VP}. \quad (3.6)$$

Der Lastwiderstand R_L beträgt bei allen durchgeführten Messungen 50 Ω .

3.4.2. Aufbau an Dauerstrichlaser und FEL

Auf dem Datenblatt unterscheiden sich FEL und Dauerstrich (cw⁸)-Laser beträchtlich voneinander, im Labor wurde jedoch für beide Quellen der gleiche Aufbau genutzt. Bei den Dauerstrichsystemen ist wegen der vergleichsweise geringen Leistung ein rauscharmer, differentieller Vorverstärker und ein Lock-In-Verstärker notwendig. Dieser wird über das Referenzsignal eines Choppers

⁸engl. continuous wave

getriggert. Auch hier steuert ein Labview-Programm am Messcomputer den Schrittmotor des Verzögerungsplättchens und zeichnet die Signale der Lock-In-Verstärker auf. Zusätzlich kann über die Lock-In-Verstärker eine Gatespannung angelegt werden.

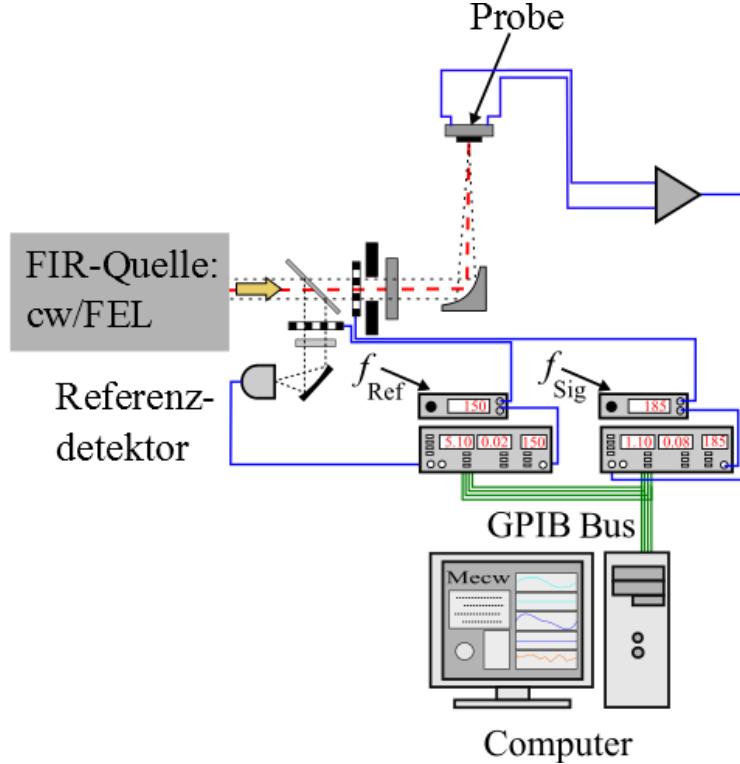


Abbildung 3.17.: Aufbau der Messungen an Dauerstrichlaser und FEL.

Der FEL liefert Durchschnittsleistungen bis zu $P_{max} = 150$ Watt. Dies gefährdet allerdings die mechanische Stabilität der Proben. Deshalb wurde auch am FEL nur mit Intensitäten $P \leq 250$ mW gearbeitet. Die FIR-Pulsdauer des FEL im Bereich von $t_p = 10$ ps bei einer Repetitionsrate von 34 MHz ist sehr kurz. Das bedeutet, dass ungefähr alle 30 ns ein 10 ps Puls die Probe anregt. Der Lock-In-Verstärker mittelt damit auch über große Zeiträume, in denen die Probe nicht angeregt wird. Dies schwächt das integrierte Signal stark ab, was aber durch die hohen Pulsennergien des FEL unproblematisch für die Messungen war. Die Signalamplituden bei gleicher Strahlungsintensität sind wegen der unterschiedlichen Natur der Anregung allerdings nicht zwischen den beiden Lasertypen vergleichbar. Trotz der kurzen Pulse betrug die spektrale Breite der FEL-Strahlung $\frac{\Delta\lambda}{\lambda} \leq 2\%$. Damit konnten auch am FEL des HZDR Verzöge-

3. Methoden

rungsplättchen zur Kontrolle der Polarisation benutzt werden. Ein Detektor am Ort der Probe ermöglichte die Kalibration des Aufbaus.

4. Experimente

In diesem Kapitel sollen die Experimente dargestellt werden, die zum einen die Existenz des Ratscheneffekts nachweisen und zum anderen den Ratscheneffekt hinsichtlich seines Verhaltens bezüglich Polarisation, Wellenlänge und Einfallswinkel der Anregung charakterisieren. Zunächst werden Messungen an Proben vorgestellt, die auf Basis von exfolierten Graphenflocken entstanden sind. Es folgen Untersuchungen an Proben, die auf epitaktisch gewachsenem Graphen realisiert wurden. Das Graphen wird zunächst optisch und im elektrischen Transport charakterisiert, anschließend werden Messungen zum Ratscheneffekt an den modulierten Proben vorgestellt. Zuletzt werden Experimente an Graphenflocken mit Doppelgatestrukturen beschrieben.

4.1. Zum Ratscheneffekt in Graphenflocken

Im folgenden Abschnitt werden Messungen an Proben vorgestellt, die mit Graphenflocken auf SiO_2 realisiert wurden. Die Größe des Graphens ist bei der Exfoliation üblicherweise auf Skalen von wenigen $10 \mu\text{m}$ begrenzt. Bei diesen Proben wurde die modulierende Metallstruktur direkt auf das Graphen aufgebracht. Die Modulation der Ladungsträgerdichte erfolgt in diesem Fall direkt durch die lokale Dotierung des Graphens durch den Kontakt mit dem Metall. Eine Aufnahme solch einer Struktur mit einem Rasterkraftmikroskop (AFM¹) ist in Abbildung 4.1 gezeigt. Die Asymmetrie der Modulierung wird durch unterschiedliche Abstände zwischen den Metallstreifen gewährleistet.

In Abbildung 4.2 ist eine Messung des Photostroms in einer Probe auf Basis von exfoliertem Graphen dargestellt. Die Daten wurden bei einer Wellenlänge von $\lambda = 148 \mu\text{m}$, senkrechttem Einfall $\Theta = 0^\circ$ und einer Backgatespannung $U_{\text{BG}} = 0 \text{ V}$ aufgezeichnet. Damit ist die Fermi-Energie E_F der Ladungsträger

¹engl. **Atomic Force Microscopy**

4. Experimente

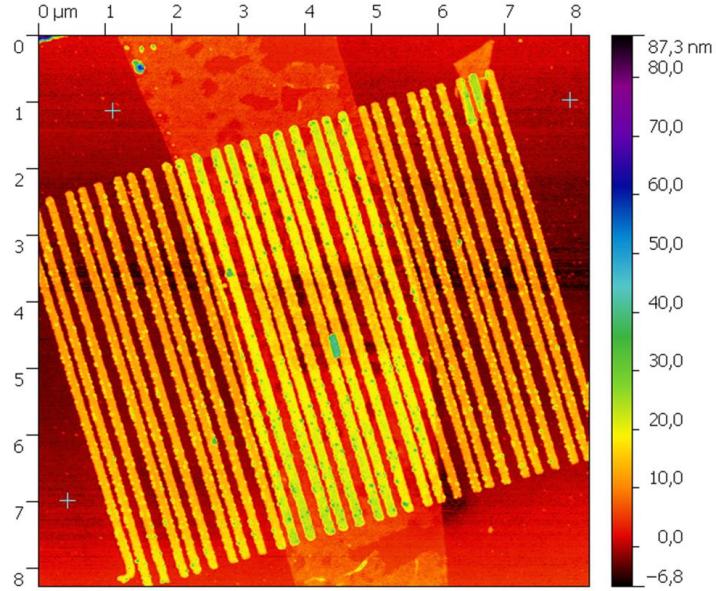


Abbildung 4.1.: AFM-Bild einer modulierten Graphenflocke. Die Asymmetrie entsteht durch die unterschiedlichen Abstände der Metallstreifen.

weit vom Dirac-Punkt entfernt. Die roten Kreise bezeichnen Daten, die auf einer unstrukturierten Graphenfläche gewonnen wurden, die schwarzen Quadrate stammen von einem modulierten Bereich. Die Linien stellen Fits nach der Gleichung

$$j/I = A + B \cos(4\varphi) + C \sin(4\varphi) + D \sin(2\varphi) \quad (4.1)$$

dar. Für den Ratscheneffekt würden aus phänomenologischer Sicht nur Beiträge durch die zirkulare und lineare Komponente C und D möglich sein, da der Strom hier senkrecht zur Symmetrieebene der Modulation fließt. Der Fit der Messung in der modulierten Fläche zeigt, dass durch D in dieser Messung kein Beitrag entsteht, für C ergibt sich ein Wert von $0,1 \text{ nA/W}$. Zusätzlich sind $A = -0,03 \text{ nA/W}$ und $B = 0,13 \text{ nA/W}$. Randströme können in diesem System in allen Termen auftreten. Dies liegt daran, dass in Graphenflocken die Ränder auf mikroskopischer Ebene zufällig orientiert sind und nicht perfekt parallel zu einer Koordinatenachse verlaufen. Aus $B > C$ kann geschlossen werden, dass der Anteil durch Randströme bereits größer ist als der Anteil des Ratschenstroms. Die Messung im unstrukturierten Bereich zeigt, dass bereits ohne Modulation ein polarisationsabhängiger Photostrom induziert wird. Die-

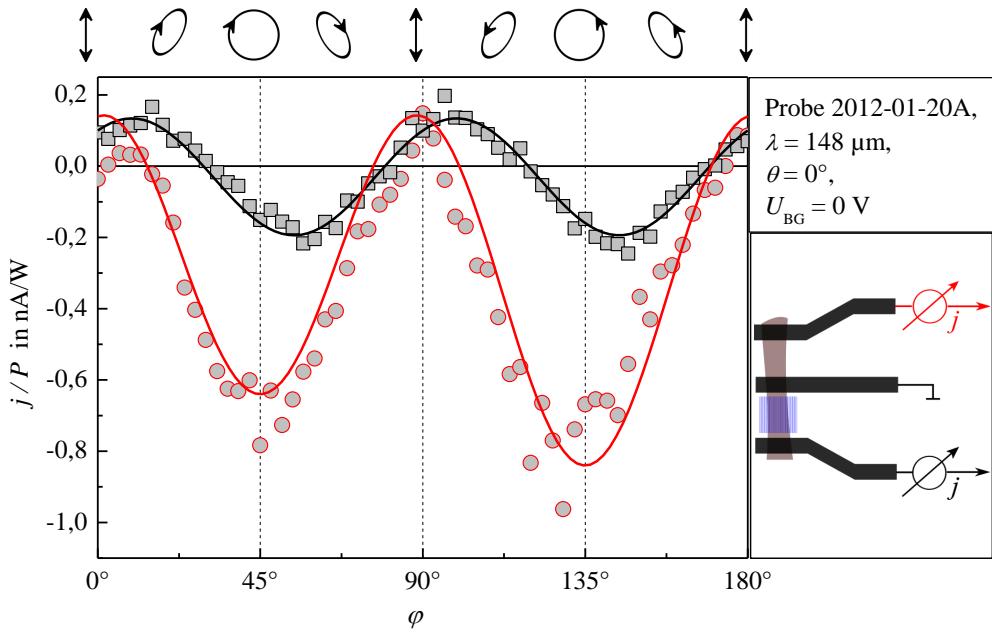


Abbildung 4.2.: Messung des Photostroms in einer strukturierten (schwarze Quadrate) und einer unstrukturierten (rote Kreise) Graphenfläche bei senkrechtem Einfall und einer Wellenlänge von $\lambda = 148 \mu\text{m}$. Rechts unten ist eine Skizze der Probe abgebildet.

ser ist ebenfalls auf die Ränder der Graphenflocke zurückzuführen und kann im Modell der Randströme erklärt werden [29]. Im unmodulierten Bereich sind die Randströme deutlich ausgeprägt und zeigen dort mit den Amplituden $A = -0,35 \text{ nA/W}$, $B = 0,44$, $C = 0 \text{ nA/W}$ und $D = 0,1 \text{ nA/W}$ andere Werte als im modulierten Bereich. Dies zeigt, dass der Ratscheneffekt aus der Messung im modulierten Bereich nicht aus der Differenz der Messungen beider Bereiche gewonnen werden kann. Dazu sollten die vom Ratscheneffekt unabhängigen Parameter A und B in beiden Flächen zumindest ähnliche Werte besitzen. Durch die mikroskopisch unterschiedliche Form der Ränder bilden beide Bereiche unterschiedliche Ausprägungen der Randströme aus. Es war in mehreren Proben nicht möglich, das von der Phänomenologie des Ratscheneffekts geforderte Verhalten des Photostroms bezüglich der Polarisation zu erhalten. Aus diesem Grund wurde auf weitere Experimente mit Strukturen dieser Art

4. Experimente

verzichtet, da die Amplitude des Ratscheneffekts in diesem System deutlich größer sein müsste, damit die Randströme vernachlässigt werden könnten.

4.2. Untersuchung des epitaktischen Graphens

4.2.1. Optische Charakterisierung

Die Untersuchung erster Proben auf Basis von exfoliertem Graphen zeigte, dass für die weitere Erforschung des Ratscheneffekts großflächiges Graphen zwingend erforderlich ist. Die Ränder der Graphenlage müssen genügend weit von der Ratschenstruktur entfernt sein, um die Erzeugung von Randströmen zu vermeiden. Weiterhin ist es wichtig, dass die Terrassenstufen an der Oberfläche des SiC nicht die Symmetrie des Graphens beeinflussen. Sie entstehen durch die Abweichung des SiC-Substrats von der (0001)-Wachstumsrichtung [47]. In realen Kristallen ist diese Abweichung nicht vermeidbar. Im Falle einer Reduzierung der Symmetrie des Graphens könnte aus phänomenologischer Sicht bereits bei senkrechttem Einfall ein Photostrom durch den PGE im unstrukturierten Graphen auftreten und später den Ratscheneffekt im modulierten Material maskieren. Aus diesem Grund muss das Graphen vor dem Aufbringen der lateralen Modulation untersucht und eine Reduzierung der Symmetrie ausgeschlossen werden.

Das epitaktische Graphen für diese Arbeit stammt zum einen aus der Gruppe von Marcello Lopes (PDI Berlin) und zum anderen aus der Gruppe von Thomas Seyller (TU Chemnitz). Die Proben werden mit FG269A (AG Lopes) und E1 (AG Seyller) bezeichnet. Zur Untersuchung des Graphens wurde je Wafer eine circa $(4,5 \text{ mm})^2$ große Graphenfläche mit zwei aufeinander senkrecht stehenden Kontaktpaaren versehen (siehe Inset in Abbildung 4.3). Die Ergebnisse der Messungen am Material der Berliner Gruppe sind in Abbildung 4.3 zu sehen. Die Geometrie der Messung müsste aus phänomenologischer Sicht bei Verwendung eines $\lambda/4$ -Plättchens lineare und zirkulare Beiträge des AC Hall Effekts senkrecht zur Einfallsrichtung ergeben, gemäß

$$j_y/I = C \sin(4\varphi) \sin \Theta + D \sin(2\varphi) \sin \Theta \quad (4.2)$$

mit dem Einfallswinkel Θ in der x - z -Ebene. Dieser Ausdruck kann aus Gleichung (2.29) erhalten werden, indem nur Terme mit dem Wellenvektor q_x berücksichtigt werden.

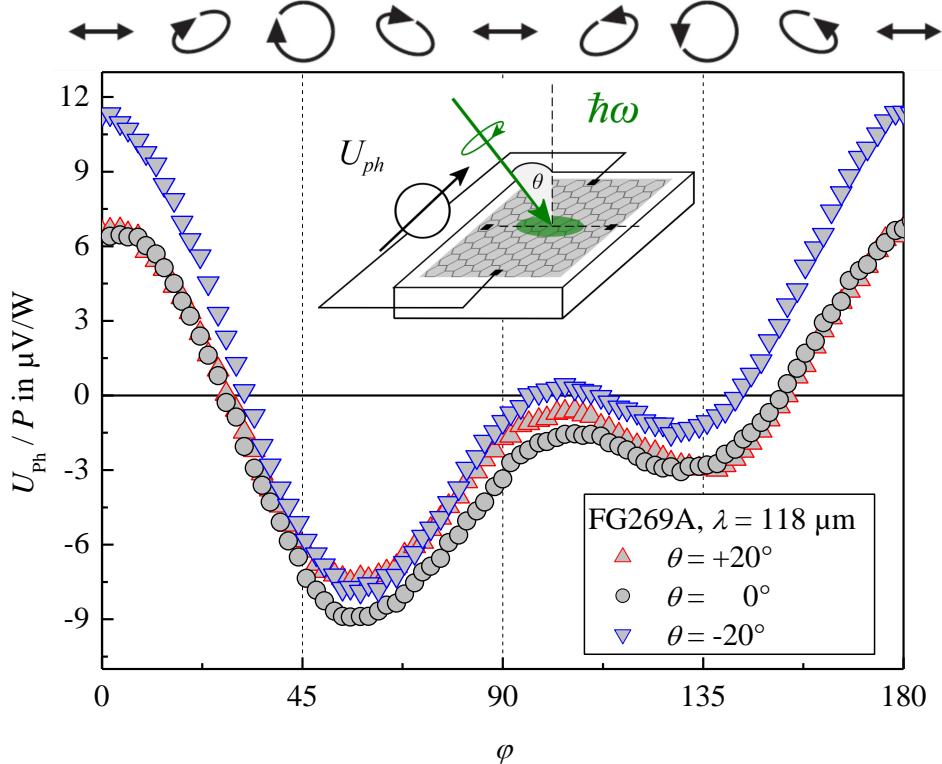


Abbildung 4.3.: Messung des Photostroms in unstrukturiertem Graphen FG 269A der Gruppe Lopes. Die Messung des Photostroms erfolgt senkrecht zur Einfallsebene für verschiedene Einfallswinkel Θ .

Bereits bei senkrechttem Einfall ist ein polarisationsabhängiger Photostrom zu sehen. Dies ist mit den phänomenologischen Gleichungen nicht erklärbar. Des Weiteren sollte für die gleichen Polarisationszustände bei $\varphi = 0^\circ$ und $\varphi = 90^\circ$ auch die gleiche Amplitude des Photostroms auftreten. Dies ist in der Messung nicht der Fall. Weiterhin ändert das Variieren des Einfallswinkels Θ nur wenig am Signal. Nach Gleichung (4.2) muss der Photostrom beim Wechsel der Einfallswinkels von $\Theta = +20^\circ$ nach $\Theta = -20^\circ$ sein Vorzeichen wechseln, was in der Messung nicht zu sehen war. Aufgrund dieser Messung wurde das Material der Berliner Gruppe nicht für weitere Experimente verwendet, da die Signale bei senkrechttem Einfall die Untersuchung des Ratscheneffekts beeinträchtigen würden.

Im Folgenden soll das Material E1 der AG Seyller untersucht werden. Die Messungen sind in Abbildung 4.4 dargestellt. Die Anregung erfolgte unter schrägem

4. Experimente

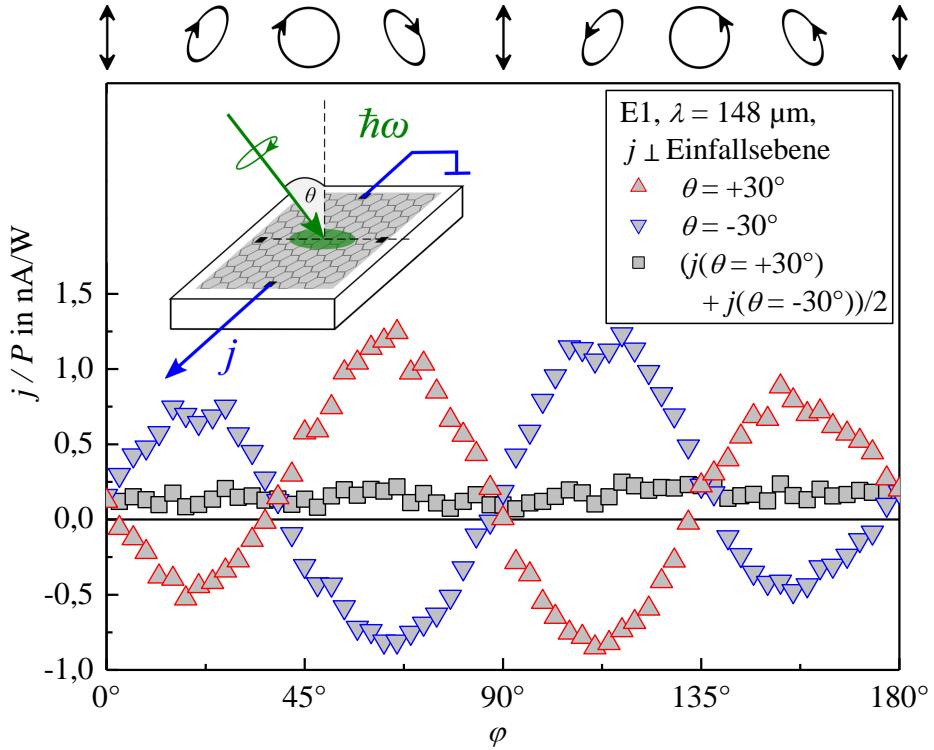


Abbildung 4.4: Messung des Photostroms in unstrukturiertem Graphen E1 der AG Seyller. Der Photostrom wird senkrecht zur EinfallsEbene für verschiedene Einfallswinkel Θ aufgezeichnet.

Einfall von $\Theta = +30^\circ$ und $\Theta = -30^\circ$, der induzierte Strom wurde senkrecht zur EinfallsEbene in der sogenannten transversalen Geometrie gemessen. Er kann durch

$$j/I = C \sin(4\varphi) \sin \Theta + D \sin(2\varphi) \sin \Theta + \xi \quad (4.3)$$

beschrieben werden. Die Amplituden C beziehungsweise D beschreiben den linearen beziehungsweise zirkularen AC Hall Effekt. In Abbildung 4.4 wird die Summe $(j(\Theta = +30^\circ) + j(\Theta = -30^\circ))/2$ statt einer Messung bei senkrechtem Einfall dargestellt. Exakt senkrechter Einfall ist im Labor nur schwer zu realisieren, da der THz-Laserstrahl mit Hilfe eines Laser im sichtbaren Wellenlängenbereich justiert werden muss. Die Summe der Photoströme für verschiedene Vorzeichen des Einfallswinkels Θ ergibt nach Gleichung (4.3) das Doppelte des Photostroms, der für senkrechten Einfall zu erwarten wäre. Dieser polarisationsunabhängige Beitrag ξ ist aus phänomenologischer Sicht nicht erklärbar, im

Vergleich zu den anderen Beiträgen jedoch klein. Bei weiteren Messungen trat dieser Beitrag auch in der parallelen Geometrie auf, in der die Photospannung parallel zur Einfallsebene abgegriffen wird. Auch dort war der polarisationsunabhängige Beitrag immer deutlich kleiner als der AC Hall Effekt. Das Fehlen einer Polarisationsabhängigkeit in allen Geometrien lässt darauf schließen, dass die Symmetrie der Graphenlage in diesem Material nicht durch die Stufen im SiC-Substrat beeinflusst wird. Es ist zu erwarten, dass der Ratscheneffekt in diesem Material nach der Strukturierung der dominante Effekt sein wird.

4.2.2. Transportmessung

Zur weiteren Charakterisierung des epitaktischen Graphens wurden elektrische Transportmessungen durchgeführt. Der klassische Hall-Effekt erlaubt den Zugang zu intrinsischen Materialeigenschaften wie der Beweglichkeit μ , der Transportrelaxationszeit τ sowie der Ladungsträgerdichte n . Zur Messung des klassischen Hall-Effekts wurde der Probe ein Strom von $j = 100$ nA durch ein Kontaktpaar aufgeprägt und mit dem darauf senkrecht stehenden Kontaktpaar die Hallspannung U_H gemessen. Die magnetische Flußdichte \mathbf{B} stand senkrecht auf der Graphenfläche. Die Daten und die Geometrie der Messung sind in Abbildung 4.5 dargestellt. Der Hall-Widerstand $R_H = U_H/j$ ist bis zu einer Feldstärke $|\mathbf{B}| \leq 2$ T linear vom angelegten \mathbf{B} -Feld abhängig, Plateaus des Quanten-Hall-Effekts bilden sich ab $|\mathbf{B}| \geq 4$ T. Im Rahmen dieser Arbeit wurde nur der klassische Hall-Effekt betrachtet, da er genügt um das Material zu charakterisieren. Dies geschah durch lineares Fitten der Hallwiderstandsgeraden. Aufgrund der undefinierten Abmessungen des Strompfades in der Probe entstand ein Offset von $-0,37$ k Ω im Hall-Widerstand. Dieser ist aufgrund des Versatzes der Hall-Elektroden nicht vermeidbar. Weiterhin würde ein definierter Strompfad Begrenzungen benötigen und damit die optische Charakterisierung durch Randströme stören. Da zur Berechnung der Materialeigenschaften nur die Steigung der Hallgeraden eingeht, wurde dieser Offset vernachlässigt. Nach den Gleichungen (2.10) ergeben sich Ladungsträgerdichte n und Beweglichkeit μ , nachdem der Schichtwiderstand ρ_{xx} mit Hilfe der van-der-Pauw-Methode bestimmt wurde [19], im vorliegenden Graphen zu $n = 5,2 \times 10^{11}$ cm $^{-2}$ und $\mu = 1800$ cm 2 /Vs. Mit diesen Größen lässt sich die freie Weglänge $l = \frac{\hbar}{e}\mu\sqrt{\pi n} = 16$ nm und schließlich die Transportrelaxationszeit $\tau = \frac{l}{v} = 16$ fs berechnen. In moduliertem Graphen ist wegen der

4. Experimente

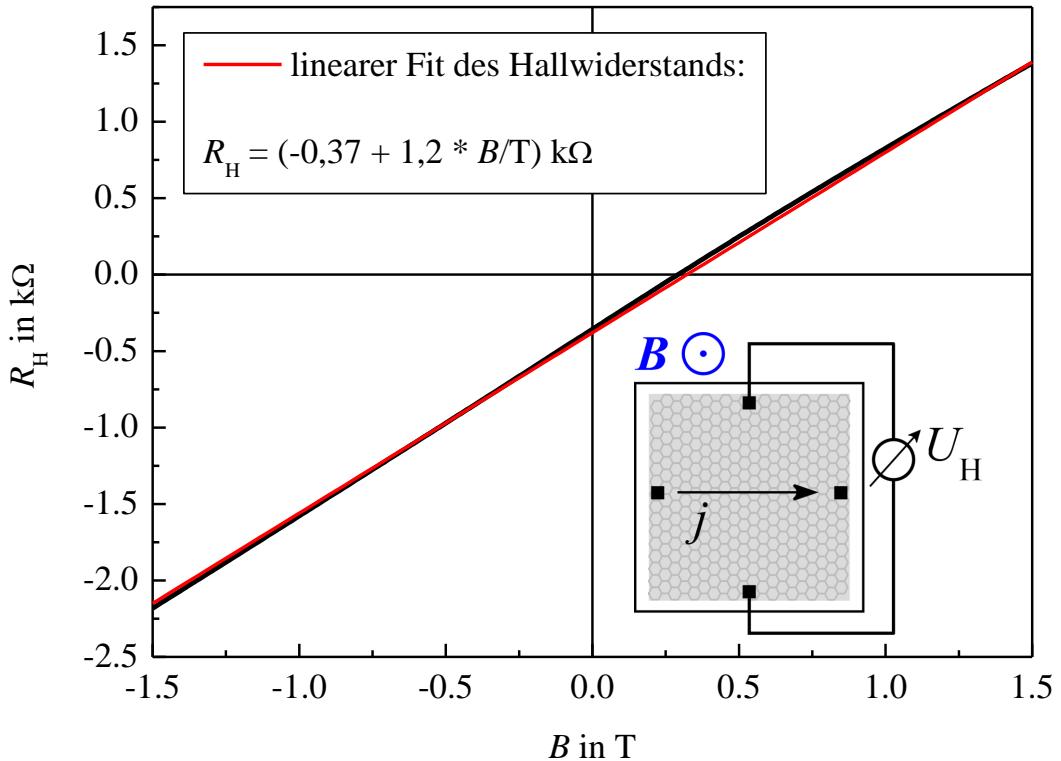


Abbildung 4.5.: Bestimmung der Steigung der klassischen Hall-Geraden zur Berechnung von Beweglichkeit μ und Transportrelaxationszeit τ .

Prozessierung mit einer niedrigeren Beweglichkeit μ zu rechnen, die freie Weglänge l der Ladungsträger ist also auf jeden Fall kleiner als die Periode der Modulation.

4.3. Nachweis des Ratscheneffektes

Zum Nachweis des Ratscheneffektes wurde das zuvor geprüfte epitaktische Graphen, wie in Kapitel 3 beschrieben, mit einer modulierenden Struktur versehen. Zunächst soll ausschließlich die Existenz des Ratscheneffektes gezeigt werden, der Vergleich mit der phänomenologischen Theorie und die ausführliche Diskussion der Polarisationsabhängigkeit folgt im nächsten Kapitel.

In Abbildung 4.6 ist ein Experiment dargestellt, in dem bei einer Wellenlänge von $\lambda = 118 \mu\text{m}$ zunächst der strukturierte Bereich angeregt wurde (schwarze Quadrate), danach wurde die unstrukturierte Graphenfläche beleuchtet (rote

Kreise). Der Photostrom beziehungsweise die induzierte Photospannung wird

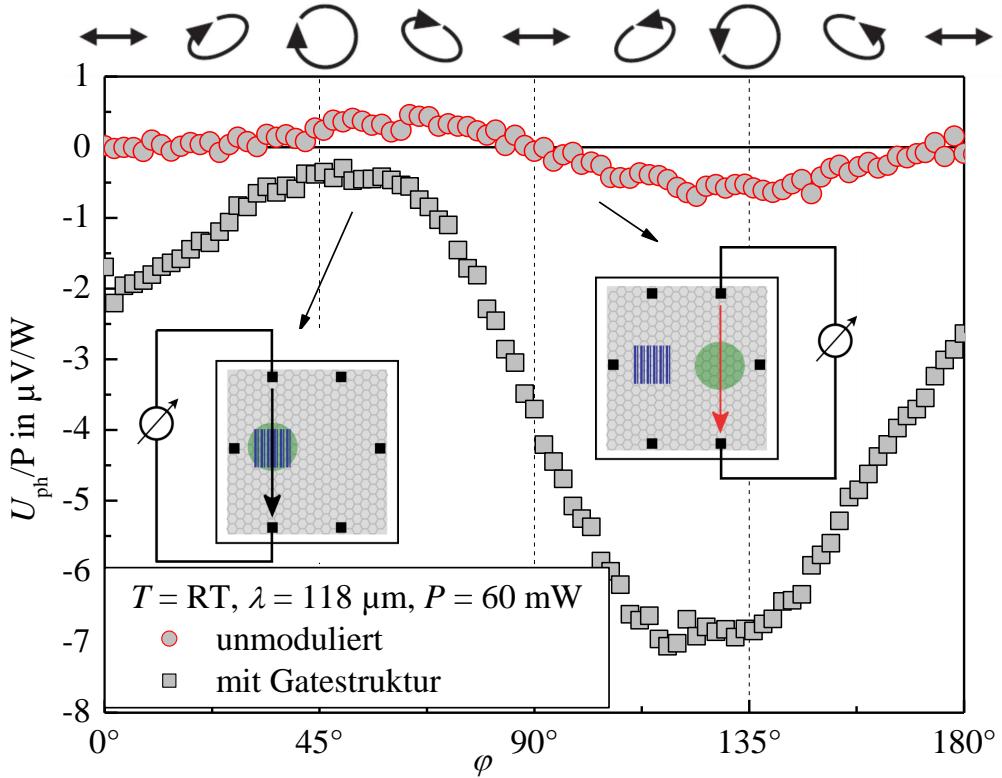


Abbildung 4.6.: Messung des Photostroms in moduliertem (schwarze Quadrate) sowie unstrukturiertem (rote Kreise) Graphen parallel zu den Gatestreifen für verschiedene Polarisationszustände von linear bis zirkular polarisiert.

als Funktion des Polarisationszustands durch den Winkel φ dargestellt. Es soll darauf hingewiesen werden, dass sämtliche Messungen ohne das Anlegen einer Gatespannung an die Metallstruktur entstanden sind. Die dielektrische Schicht aus Aluminiumoxid konnte nicht vollständig isolierend aufgebracht werden, der Widerstand zwischen Gate und Graphen betrug circa $150 \text{ k}\Omega$.

Die Messung in Abbildung 4.6 zeigt, dass nur dann ein ausgeprägtes Signal zu sehen war, wenn der Laser auf die modulierte Fläche zentriert wurde. Beim Beleuchten der leeren Graphenfläche war nur ein sehr schwaches Signal sichtbar. Die Intensität des Laserstrahls war gaußförmig mit einer Halbwertsbreite von circa einem Millimeter verteilt. Das Signal auf der unstrukturierten Fläche stammte dementsprechend daher, dass ein Randbereich des Laserstrahls

4. Experimente

noch den modulierten Bereich anregte. Weiterhin zeigte sich, dass der Ratscheneffekt eine ausgeprägte zirkulare Komponente aufwies. Dies ist an den unterschiedlichen Amplituden der Photospannung für links- ($\varphi = 45^\circ$) und rechtszirkular ($\varphi = 135^\circ$) polarisierte Strahlung erkennbar. Diese ausgeprägte zirkulare Komponente wurde zum weiteren Nachweis des Ratscheneffektes genutzt. In Abbildung 4.7 ist eine Messung zu sehen, in der der Laser über die ganze Probe gescannt wurde. Für jede Position wurde eine vollständige Pola-

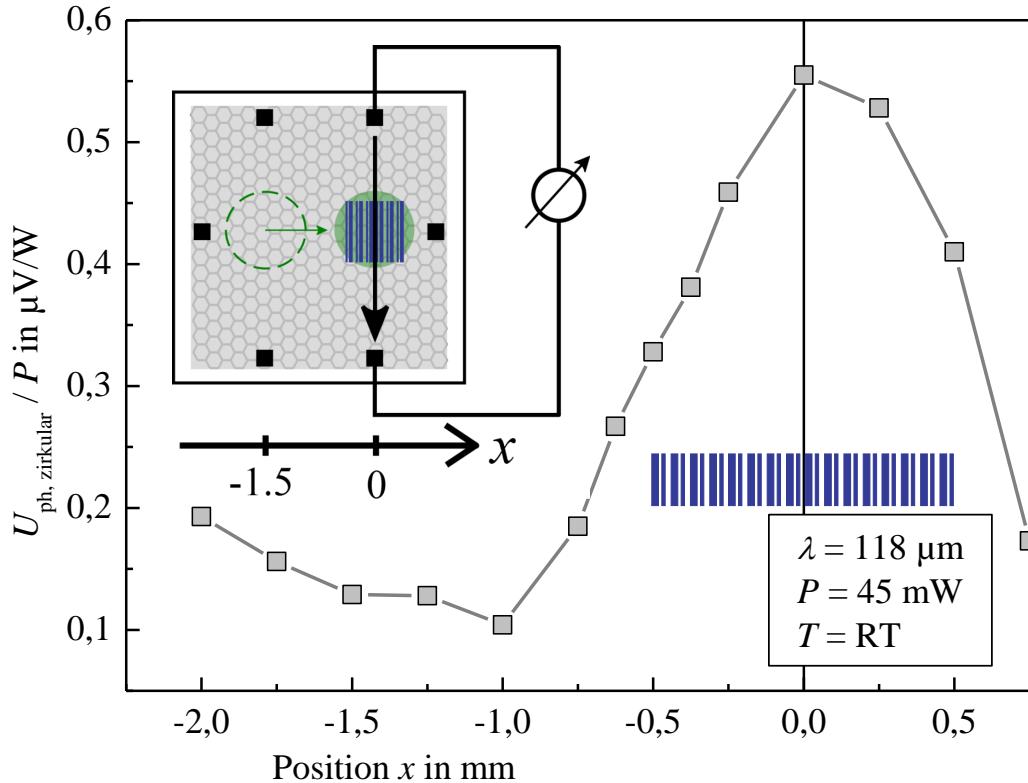


Abbildung 4.7.: Messung des zirkularen Komponente der Photospannung für verschiedene Positionen des Lasers auf der Probe E2 bei einer Wellenlänge von $\lambda = 118\mu\text{m}$.

risationsabhängigkeit aufgezeichnet und daraus der zirkulare Anteil bestimmt. Eine helizitätsabhängige Photospannung kann nur durch den Ratscheneffekt entstehen, durch das Betrachten der zirkularen Komponente werden zum Beispiel antennennähnliche Effekte der Kontakte ausgeschlossen. Der Scan über die Probe zeigte, dass die induzierte Spannung genau dann am größten ist, wenn der Laserstrahl auf die Gitterstruktur bei $x = 0$ zentriert ist. Wenn der Laser sich vom Zentrum entfernt, nimmt auch das Signal ab. Die Form der Kurve ähnelt dabei dem gaußschen Strahlprofil des Lasers, ist jedoch wegen der end-

lichen Ausdehnung der Gatestruktur verbreitert. Das Ansteigen des Signals ab $x = -1,5$ mm ist durch Randstrome wegen der Beleuchtung des Randes zu erklaren. Im Groen und Ganzen ist dieses Experiment jedoch ein Nachweis fur die Entstehung der Photospannung am Ort der Metallstruktur. Nachdem nun der Ratscheneffekt eindeutig nachgewiesen wurde, soll nun sein Verhalten bezuglich der Polarisation der Anregung untersucht werden.

4.4. Untersuchung der Abhangigkeit von der Polarisation

Die Untersuchung des Verhaltens des Ratscheneffekts bezuglich der Polarisation der Anregung liefert einen Hinweis auf den Einfluss der Modulation auf die Symmetrie des Systems. Durch das Auftreten oder Fehlen von Beitragen, die von der linearen oder zirkularen Polarisation der Strahlung abhangen, lsst sich auf die Symmetrieelemente in der Probe schlieen. Nun soll qualitativ untersucht werden, wie die Orientierung des elektrischen Feldes die Erzeugung des Photostroms beeinflusst.

Die linear polarisierte FIR-Strahlung des Lasers wurde durch Verzogerungsplattchen in den gewinschten Polarisationszustand manipuliert. In Abbildung 4.8 ist eine Messung dargestellt, in der die Orientierung von linear polarisierter Strahlung mit Hilfe eines $\lambda/2$ -Plattchens in der Probenebene gedreht wurde. Dabei wurde die induzierte Photospannung senkrecht (rote Kreise) und parallel (schwarze Quadrate) zur Modulationsrichtung abgegriffen (siehe Skizze in Abbildung 4.8). Die Photospannung parallel zur Modulationsrichtung x bestand aus zwei Beitragen: einer polarisationsunabhangig, der andere hangte von linearer Polarisation durch den Stokes-Parameter S_1 ab. Dabei war die lineare Komponente genau dann maximal, wenn das elektrische Feld der Strahlung parallel oder senkrecht zur Gitterstruktur der Modulation orientiert war. Der Photostrom senkrecht zur Modulation in y -Richtung zeigte in erster Linie lineare Beitrage proportional zu S_2 . Es trat ebenfalls ein Offset auf, dieser war jedoch deutlich kleiner als in x -Richtung. Die Daten konnen durch

$$\begin{aligned} j_x/I &= \chi_0 + \chi_L \cos(2\alpha) \\ j_y/I &= \tilde{\chi}_L \sin(2\alpha) + \zeta \end{aligned} \tag{4.4}$$

4. Experimente

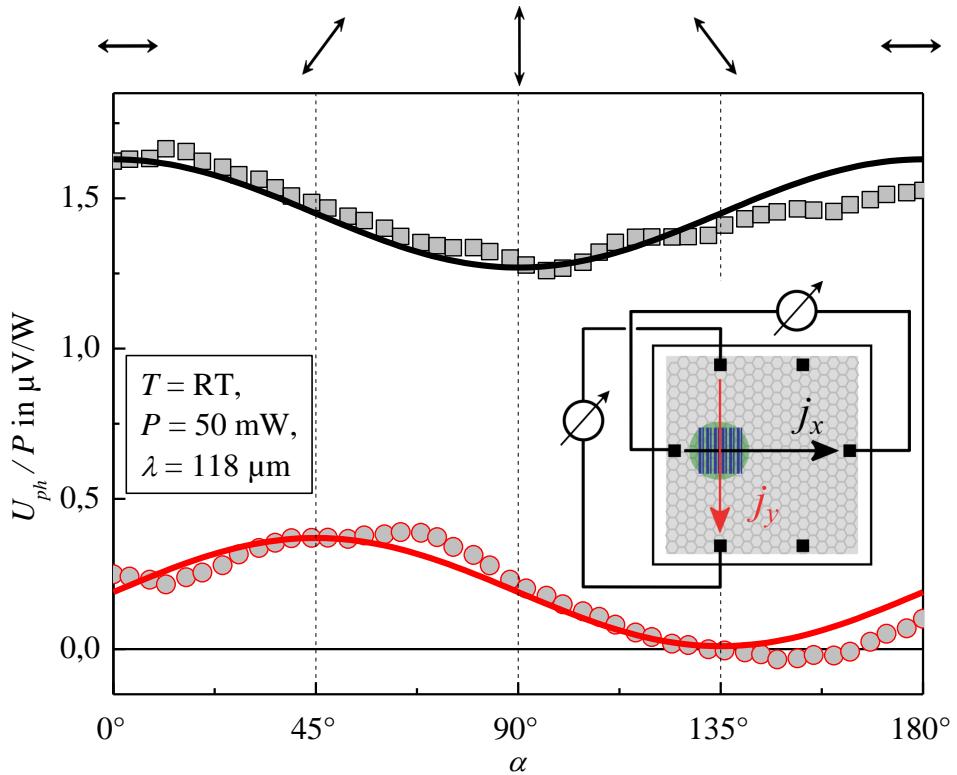


Abbildung 4.8.: Messung der Photospannung für verschiedene Orientierungen des elektrischen Feldes auf der Probe E3 bei einer Wellenlänge von $\lambda = 118\mu\text{m}$ und senkrecht Einfall $\Theta = 0^\circ$.

gefittet werden. Die Komponenten χ_0, χ_L und $\tilde{\chi}_L$ waren durch die phänomenologische Theorie des Ratscheneffekts zu erwarten, der Beitrag durch ζ ist im Bild des Ratscheneffekts nicht vorhanden. Die Komponente ζ aus dieser Messung und die Komponente ξ bei der Untersuchung des unstrukturierten Graphens bewegten sich beide im Bereich von $0,2\ \mu\text{V}/\text{W}$. Es liegt daher nahe, dass der polarisationsunabhängige Beitrag ζ durch Inhomogenitäten des Graphens entstand. Die Tensorkomponenten der beiden linearen Beiträge, die zu $S_1 \propto \cos(2\alpha)$ beziehungsweise $S_2 \propto \sin(2\alpha)$ proportional sind, konnten durch die gleichen Amplituden $\chi_L = \tilde{\chi}_L$ gefittet werden und sind damit gleich groß. Die Messungen in Abbildung 4.8 können vollständig durch die Gleichungen (4.4) beschrieben werden, die verschiedenen Komponenten des Ratscheneffekts wurden eindeutig identifiziert.

Weitere Hinweise über die Symmetrie der Proben konnten durch Untersuchung

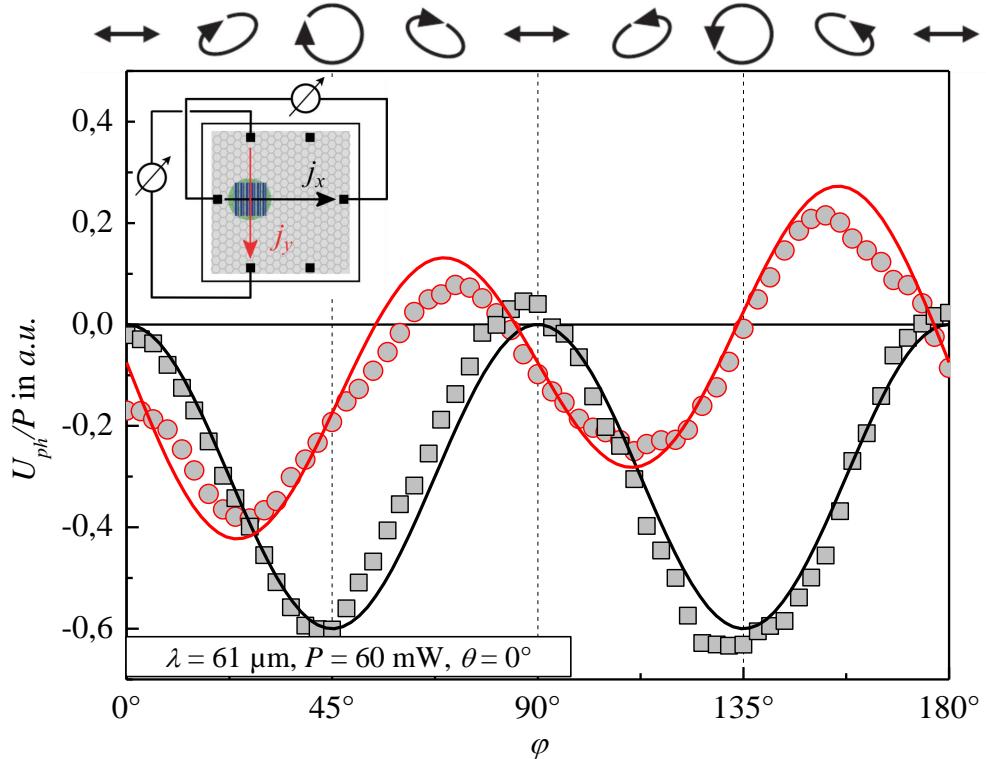


Abbildung 4.9.: Messung der Photospannung fur elliptische Polarisation auf Probe E3 bei einer Wellenlange von $\lambda = 61 \mu\text{m}$ und senkrecht Einfall $\Theta = 0^\circ$.

mit elliptisch polarisierter Strahlung erhalten werden. Bei Bestrahlung mit elliptisch polarisiertem Licht anderte sich die Abhangigkeit der linearen Komponenten des Photostroms von den Stokes-Parametern S_1 und S_2 nicht, allerdings wird eine zusatzlich Komponente γ erwartet, die zur Helizitat der Strahlung S_3 empfindlich ist. Die lineare Polarisation des Lasers wurde mit Hilfe von $\lambda/4$ -Plattchen in elliptische Polarisation konvertiert. Eine derartige Messung ist fur eine Wellenlange von $\lambda = 61 \mu\text{m}$ in Abbildung 4.9 dargestellt. Wie in der Messung zuvor wurde die Photospannung in x -Richtung parallel zur Modulation (schwarze Quadrate) und in y -Richtung senkrecht zur Modulation (rote Kreise) bei senkrecht Einfall der Strahlung abgegriffen. Die linearen Komponenten des Photostroms, abhangig von $S_1 \propto \cos(4\varphi)$ und $S_2 \propto \sin(4\varphi)$, traten in den gleichen Richtungen auf wie bei der Messung mit rein linear polarisierter Strahlung. Zusatzlich war in y -Richtung, parallel zur Spiegelebene des Ubergitters, eine weitere Komponente zu beobachten. Diese hangte von der Helizitat der Strahlung S_3 ab und wechselte ihr Vorzeichen, wenn die Polari-

4. Experimente

sation von links- zu rechtszirkular polarisiert verändert wurde. Die Daten in Abbildung 4.9 können phänomenologisch durch

$$\begin{aligned} j_x/I &= \chi_0 + \chi_L/2 (1 + \cos(4\varphi)) \\ j_y/I &= \gamma \sin(2\varphi) + \tilde{\chi}_L/2 \sin(4\varphi) + \zeta' \end{aligned} \quad (4.5)$$

beschrieben werden. Auch hier tritt wieder ein Offset ζ' in y -Richtung auf, wie zuvor ist er aber kleiner als die anderen Beiträge zum Photostrom. Damit wurde auch für elliptisch polarisierte Strahlung gezeigt, dass die Modulation durch die Gatestruktur die Symmetrie des Graphens auf kontrollierte Art und Weise reduziert. Die phänomenologischen Gleichungen (4.4) und (4.5) behalten ihre Gültigkeit unabhängig von der Wellenlänge und beschreiben jedes Experiment, welches im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurde. Mit ihrer Hilfe konnte jede Messung in die verschiedenen Komponenten zerlegt werden, die zur Generierung des Gesamtphotostroms beitragen. Ein Beispiel so einer Zerlegung ist in Abbildung 4.10 gezeigt. Sie zeigt einen Ausschnitt der Daten von Abbildung 4.9, der Photostrom in y -Richtung wird in lineare, zirkulare und Offset-Komponente zerlegt. Diese sind durch verschiedene Linien skizziert.

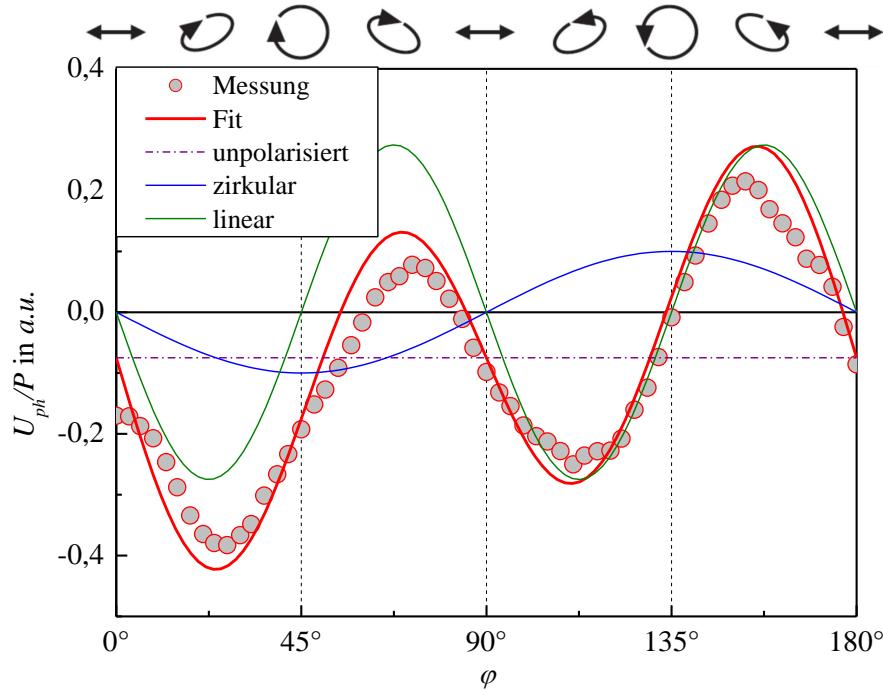


Abbildung 4.10.: Zerlegung des Photostroms in y -Richtung in seine Komponenten.

4.5. Untersuchungen zur Abhangigkeit vom Einfallsinkel der Strahlung

Die Untersuchung des Verhaltens des Photostroms fur verschiedene Einfallsinkel der Strahlung diente nicht nur der Charakterisierung des Ratscheneffekts. Es sollte uberpruft werden, ob der AC-Hall-Effekt trotz der Veranderung der Proben durch die Modulation auftritt. In den Messungen zur Charakterisierung des Graphens auf SiC wurde gezeigt, dass der AC-Hall-Effekt fur senkrechten Einfall $\Theta = 0^\circ$ verschwindet und bei Schraganregung fur verschiedene Vorzeichen des Einfallsinkels unterschiedliche Vorzeichen der Amplitude besitzt. Dabei entstehen senkrecht zur Einfallsebene die Beitrage zum AC-Hall-Effekt, die proportional zu S_2 und S_3 sind, und parallel zur Einfallsebene die Anteile, die von S_0 und S_1 abhangen. Wird nun die Geometrie der Messung derart gewahlt, dass die Einfallsebene in der x - z -Ebene liegt und damit senkrecht auf der Modulationsrichtung x steht, so sind der Ratscheneffekt und der AC-Hall-Effekt gleichzeitig eindeutig unterscheidbar zu messen. Diese Geometrie ist in Abbildung 4.11 abgebildet.

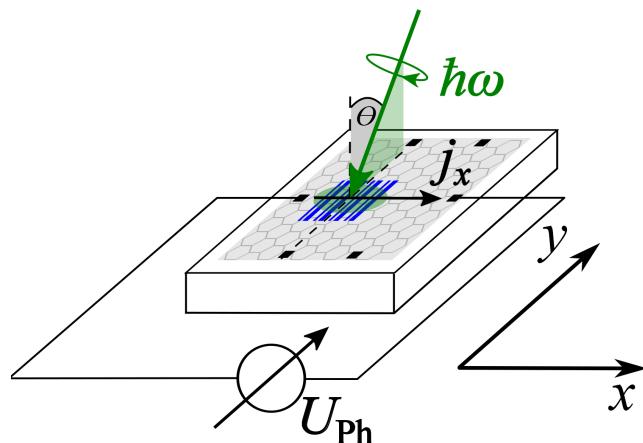


Abbildung 4.11.: Geometrie zur Messung der Einfallsinkelabhangigkeit in x -Richtung.

Wenn der Photostrom in x -Richtung gemessen wird, zeigt der Ratscheneffekt Beitrage, die proportional zu S_0 und $S_1 \propto \cos(4\varphi)$ sind, wohingegen die Beitrage des AC Hall-Effekts durch $S_2 \propto \sin(4\varphi)$ und $S_3 \propto \sin(2\varphi)$ induziert werden. In Abbildung 4.12 ist eine Reihe von Messungen in dieser Geometrie fur Einfallsinkel von $\Theta = 0^\circ, \pm 20^\circ$ dargestellt. Fur senkrechten Einfall (schwarze

4. Experimente

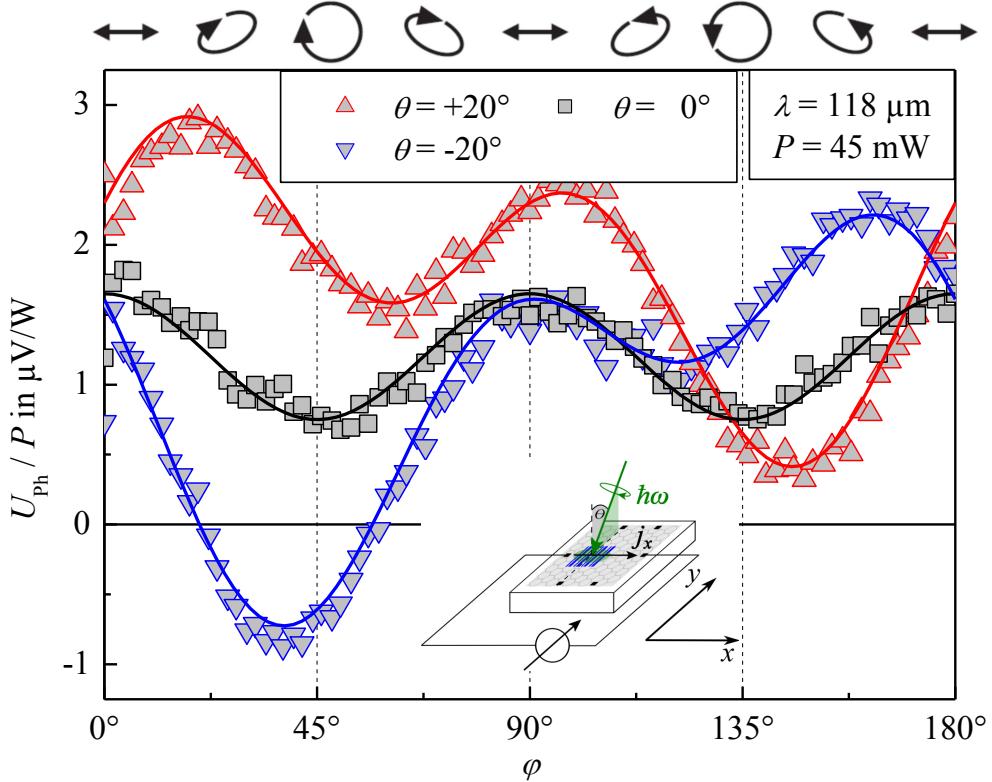


Abbildung 4.12.: Polarisationsabhängigkeit des Photostroms für verschiedene Einfallswinkel Θ . Die Linien stellen Fits nach Gleichung (4.6) dar.

Quadrat) waren nur die Komponenten des Ratscheneffektes zu beobachten, für schrägen Einfall entstehen, wie zuvor beschrieben, zusätzlich Anteile durch den AC-Hall-Effekt. Es ist deutlich zu sehen, dass die Beiträge des AC Hall-Effekts ihr Vorzeichen wechselten, wenn beim Einfallswinkel Θ das Vorzeichen geändert wurde.

Für Abbildung 4.13 wurde jeden Wert des Einfallswinkels Θ von -30° bis $+30^\circ$ eine Polarisationsabhängigkeit aufgezeichnet und die verschiedenen Beiträge durch Fitten mit

$$j_x/I = \chi_0 + \chi_L \cos(4\varphi) + C \sin(4\varphi) + D \sin(2\varphi) \quad (4.6)$$

ermittelt. Die ersten beiden Terme mit χ_0, χ_L beschreiben den Ratscheneffekt, die anderen den AC-Hall-Effekt. Die Messung zeigte wiederum, dass für senkrechten Einfall $\Theta = 0^\circ$ nur der Ratscheneffekt Beiträge ungleich null besaß während der AC Hall-Effekt verschwand. Die Komponenten, die zu C und D proportional sind, wechselten ihr Vorzeichen für unterschiedliche Vorzeichen

4.5. Untersuchungen zur Abhangigkeit vom Einfallsinkel der Strahlung

des Einfallswinkels und konnen in Abbildung 4.13 linear in Θ gefittet werden. Der zu χ_L proportionale lineare Anteil der Photostroms anderte seine Amplitude nur unwesentlich fur verschiedene Einfallsinkel.

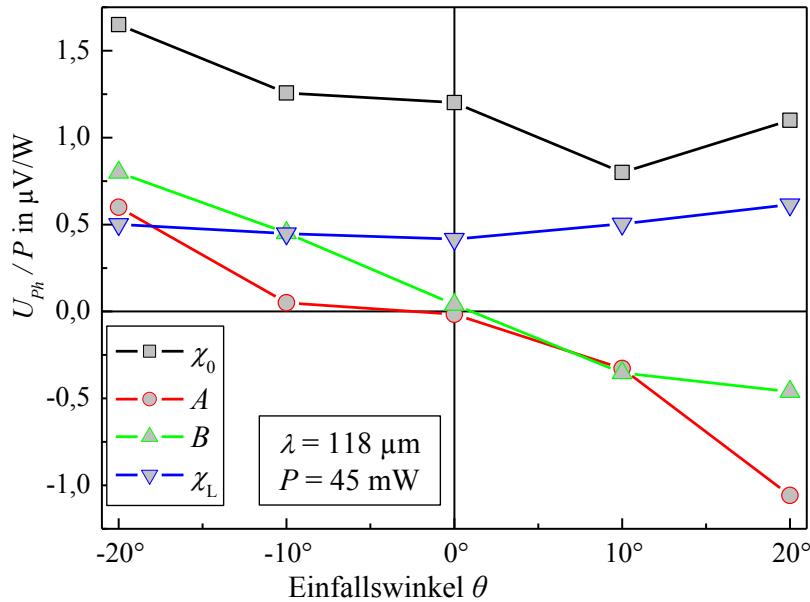


Abbildung 4.13.: Beitrage zum Photostrom in x -Richtung fur verschiedene Einfallsinkel Θ bei einer Wellenlange von $\lambda = 118 \mu\text{m}$.

Wird der Photostrom in y -Richtung gemessen, dann zeigen die Effekte im Vergleich zur Messung in Abbildung 4.13 genau entgegengesetztes Verhalten: der AC Hall Effekt wird proportional zu S_0 und S_1 , der Ratscheneffekt wird durch S_2 und S_3 induziert. Messungen dazu sind in Abbildung 4.14 dargestellt und konnen durch

$$j_y/I = A + B \cos(4\varphi) + \tilde{\chi}_L \sin(4\varphi) + \gamma \sin(2\varphi) \quad (4.7)$$

gefittet werden. Die Komponenten des Ratscheneffekts zu $\tilde{\chi}_L$, γ anderten ihre Amplitude kaum wenn der Einfallsinkel verandert wurde. Der zu A proportionale polarisationsunabhangige Beitrag war linear vom Einfallsinkel Θ abhangig, der Offset von circa $-0,24 \mu\text{V}/\text{W}$ bei $\Theta = 0^\circ$ war hochstwahrscheinlich dem Einfluss des Substrats ξ geschuldet. Der zu B proportionale lineare Beitrag hing ebenfalls linear von Θ ab. Diese Messungen zeigen, dass Anregung unter senkrecht Einfall zur Untersuchung des Ratscheneffekts zwingend notwendig war, da der AC-Hall-Effekt unter Schraganregung auch im modulierten System

4. Experimente

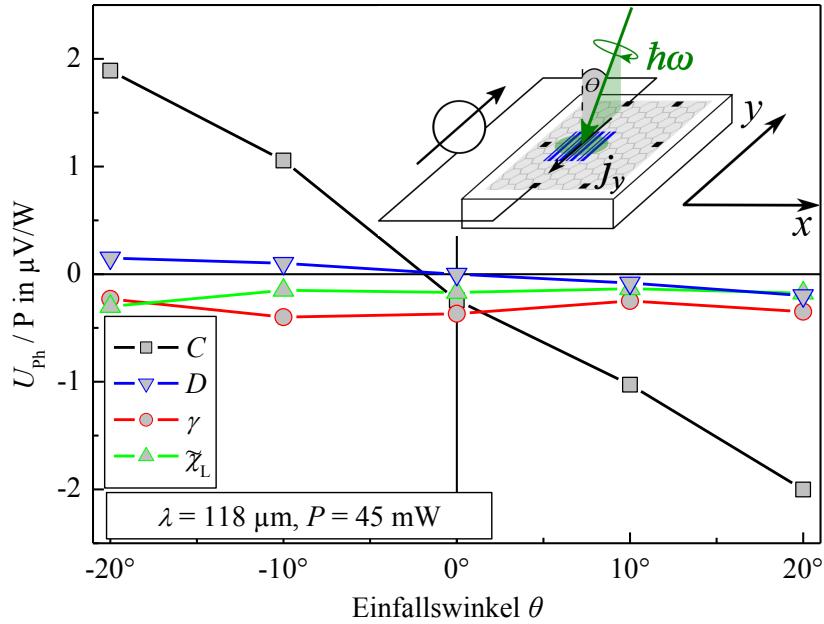


Abbildung 4.14.: Beiträge zum Photostrom in y -Richtung für verschiedene Einfallswinkel Θ bei einer Wellenlänge von $\lambda = 118 \mu\text{m}$.

zusätzliche Beiträge lieferte. In der hier gewählten Geometrie sind die einzelnen Beiträge phänomenologisch unterscheidbar, in anderen Geometrien treten jedoch Beiträge auf, die von den gleichen Stokes-Parametern abhängen und dann nicht mehr eindeutig getrennt werden können. Die Einfallwinkelabhängigkeit zeigt außerdem, dass sich der AC-Hall-Effekt in modulierten Graphenproben genauso wie in unstrukturierten Proben verhält.

4.6. Untersuchung der Abhängigkeit von der Wellenlänge

Die Untersuchung der Polarisationsabhängigkeit ermöglichte Rückschlüsse auf die Symmetrieeigenschaften der Proben. Das Verhalten des Ratscheneffekts für verschiedene Wellenlängen der Anregung hingegen ist ein Werkzeug um die mikroskopischen Prozesse zur Erzeugung des Ratscheneffekts zu verstehen. Nalitov et al. konnten durch Rechnung zeigen [36], dass verschiedene Arten von elastischen Streuprozessen unterschiedliches Verhalten des Ratscheneffekts für verschiedene Wellenlängen der Anregung hervorruft. Auch die Berechnungen

4.6. Untersuchung der Abhangigkeit von der Wellenlange

von Popov [44] zeigen, dass verschiedene Beitrage des plasmoneninduzierten Ratscheneffekts unterschiedliches Verhalten bezuglich der Wellenlange der Anregung zeigen.

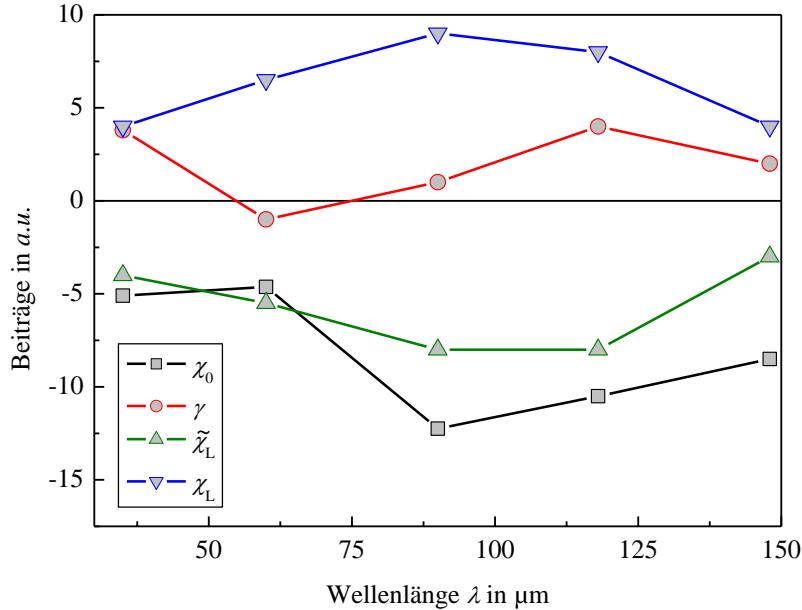


Abbildung 4.15.: Beitrage zum Ratscheneffekt fur verschiedene Wellenlangen bei senkrechttem Einfall $\Theta = 0^\circ$.

Ziel der Messungen am FELBE war es, diese Berechnungen im Experiment zu uberprufen. Zu diesem Zweck wurde fur die Wellenlangen $\lambda = 35, 60, 90, 118, 148 \mu\text{m}$ jeweils eine Abhangigkeit von elliptischer Polarisation aufgezeichnet. Durch den Einsatz der jeweils passenden $\lambda/4$ -Plattchen wurde der ganze Stokes-Parameterraum abgedeckt. Durch Fits mit den phanomenologischen Gleichungen (4.5) wurden die Amplituden der linearen, zirkularen und polarisationsunabhangigen Bestandteile erhalten. Diese Werte sind in Abbildung 4.15 dargestellt. Die linke Skala ist in beliebigen Einheiten $a.u.^2$ angegeben, da am FEL mit dem vorgestellten Aufbau nur die mittlere Energie der Pulse messbar war, nicht jedoch die Energie eines einzelnen Pulses. Damit war die am FEL gemessene Leistung nicht mit der an den cw-Methanol-Lasern identisch. Alle Daten, die am FEL aufgezeichnet wurden, sind jedoch in den gleichen beliebigen Einheiten und damit in sich vergleichbar. Es sei darauf hingewiesen, dass in diesem Abschnitt nur Daten gezeigt werden, die am FEL entstanden

²engl. arbitrary units

4. Experimente

sind. Die Messungen zeigen, dass die linearen Beiträge χ_L und $\tilde{\chi}_L$ für alle Wellenlängen den gleichen Betrag der Amplitude besaßen. Weiterhin zeigten die linearen Komponenten nur wenig Abweichung beim Ändern der Wellenlänge. Bemerkenswert ist der zirkulare Beitrag γ : er zeigte einen Wechsel des Vorzeichens von positiv zu negativ und wieder zurück für steigende Wellenlängen. Die obigen Daten werden zusätzlich durch eine Messung bei $\lambda = 76 \mu\text{m}$ unterstützt, wie in Abbildung 4.16 gezeigt wird. Sie zeigt das Verschwinden der

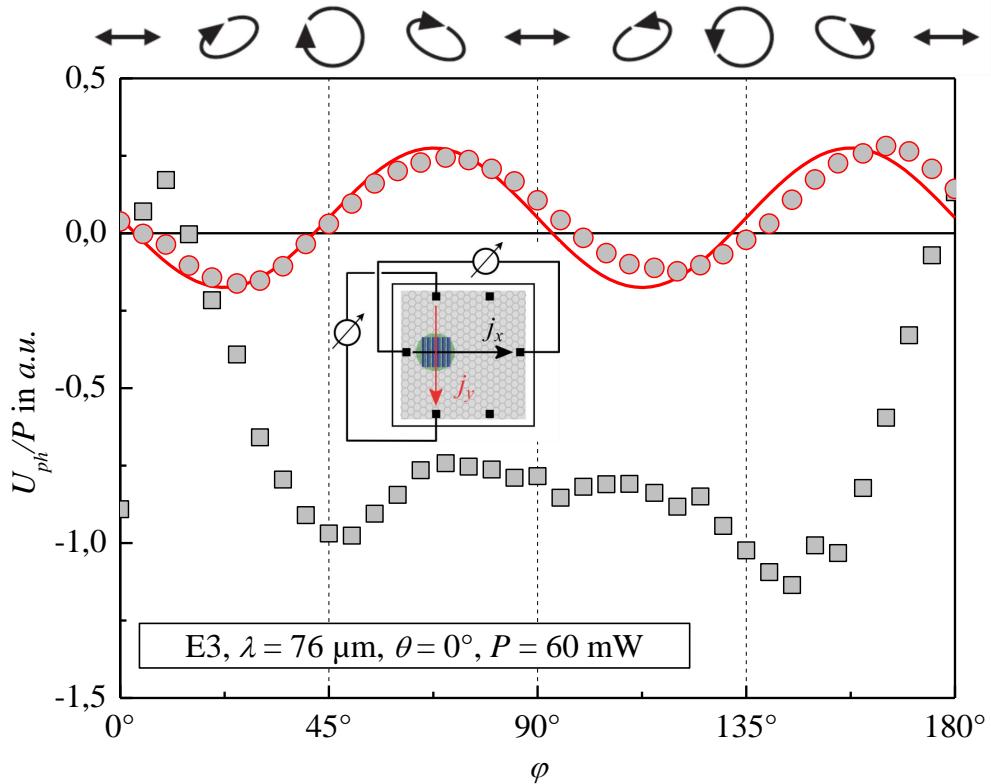


Abbildung 4.16.: Messung des Photostroms bei einer Wellenlänge von $\lambda = 76 \mu\text{m}$ und senkrechtem Einfall $\Theta = 0^\circ$.

zirkularen Komponente in y -Richtung, wurde für die Wellenlängenabhängigkeit jedoch vernachlässigt da das Verhalten in x -Richtung nicht erklärbar ist. Die Amplitude der linearen Komponente in y -Richtung würde sich ebenfalls gut in Abbildung 4.15 einfügen. Die Messung in Abbildung 4.16 deutet damit ebenfalls auf den Vorzeichenwechsel der zirkularen Komponente hin.

4.7. Graphen mit Doppelgate-Struktur

Bei diesen Proben wurde Graphen mit einer dielektrischen Aluminiumoxid-schicht versehen und anschließend eine Doppelgatestruktur prozessiert. Ein Doppelgate besteht aus zwei ineinander verzahnten periodischen Kammstrukturen, die elektrisch unabhängig sind. Die Breiten und Abstände der Metallstreifen sind so gewählt, dass eine asymmetrische Einheitszelle entsteht. Die Spannung an den Gates wurde mit Hilfe des Lock-In Verstärkers, der den Spannungsabfall über das Graphen misst, kontrolliert. Eine Skizze einer Messung dieser Art ist in Abbildung 4.17 zu sehen.

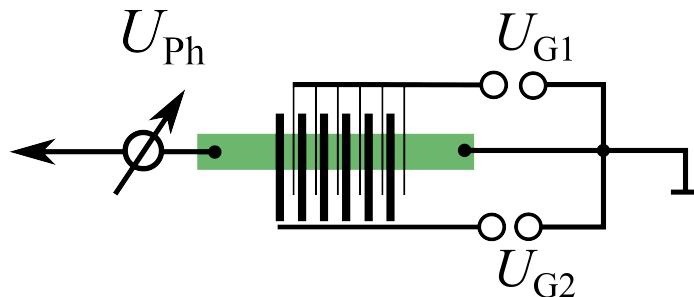


Abbildung 4.17.: Schematischer Aufbau der Messungen an Graphen (grün) mit Doppelgatestruktur.

Die folgenden Messungen sind in dieser Konfiguration entstanden. Zunächst wurde das Verhalten des Photostroms untersucht, wenn an eines der Topgates eine Spannung U_{G1} angelegt wurde. In Abbildung 4.18 ist die Photospannung für elliptische Polarisation der Strahlung für zwei Topgatespannungen $U_{G1} = 0, +3$ V dargestellt. Die Linien kennzeichnen phänomenologische Fits nach Gleichung (2.16):

$$j/I = A + B \cos(4\varphi) + C \sin(4\varphi) + D \sin(2\varphi).$$

Beide Kurven hängen von allen Stokesparametern ab, keiner der Parameter $A-D$ verschwindet. Dies war für den polarisationsunabhängigen Beitrag A und die linearen Komponenten B und C zu erwarten, da der Strompfad nicht parallel zur horizontalen Polarisationsebene des Lasers orientiert war. Das hier gemessene Signal ist eine Summe der beiden Ströme in Gleichung (2.48). Das Auftreten der zirkularen Komponente D passt jedoch nicht zur phänomenologischen Theorie des Ratscheneffekts.

4. Experimente

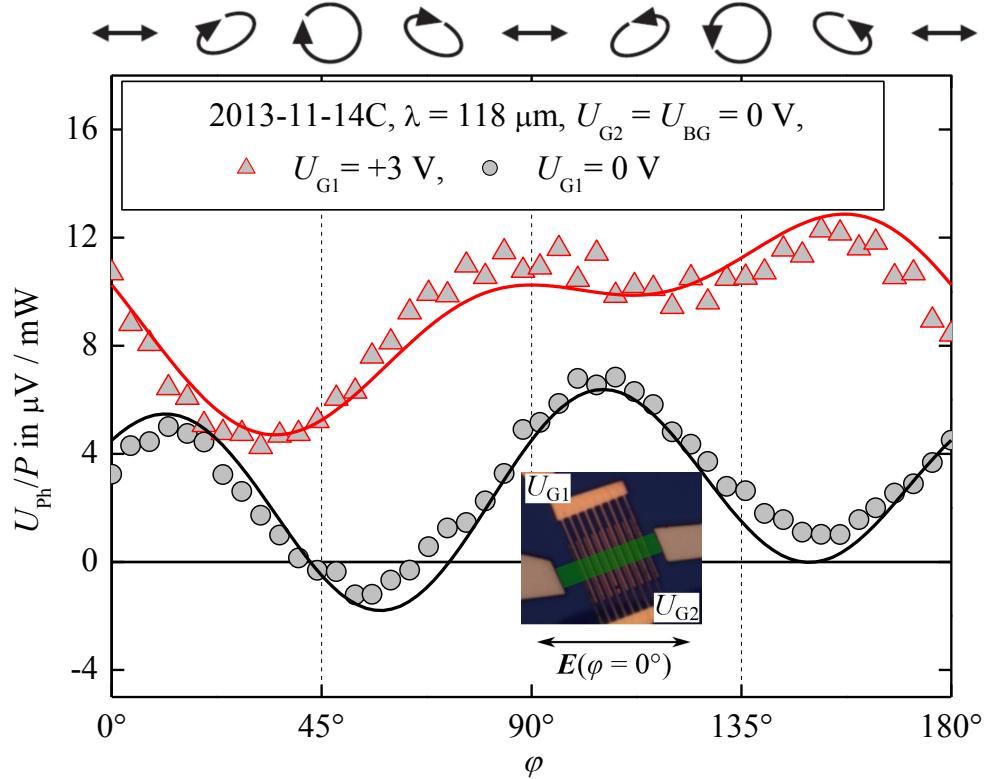


Abbildung 4.18.: Messung des Photostroms in Probe 2013-11-14C bei einer Wellenlänge von $\lambda = 118 \mu\text{m}$ und senkrechtem Einfall $\Theta = 0^\circ$ für verschiedene Topgatespannungen U_{G1} . Das Inset zeigt die Geometrie der Messung.

Aus diesem Grund sollten die linearen Beiträge näher untersucht werden. In Abbildung 4.19 wurde die Abhängigkeit der Photospannung für verschiedene Werte der Spannung an den Topgates und der Orientierung von linearer Polarisation gemessen. Hier waren beide Gates auf gleichem Potential, es galt $U_G = U_{G1} = U_{G2}$. Die durchgezogenen Linien stellen phänomenologische Fits nach Gleichung (2.17)

$$j/I = A + B \cos(2\alpha) + C \sin(2\alpha)$$

dar. Es wird deutlich, dass für $U_G = 1,5 \text{ V}$ der Photostrom hauptsächlich durch den Parameter $C = -9 \mu\text{V}/\text{mW}$ beschrieben wird. Wurde die Gatespannung auf $U_G = 1,7 \text{ V}$ erhöht, änderte sich die Abhängigkeit grundlegend und der Photostrom lässt sich durch $A = B = 9 \mu\text{V}/\text{mW}$ darstellen. Für $U_G = 2,0 \text{ V}$ trugen alle Komponenten A, B und C zur Photospannung bei. Somit wurde deutlich, dass die Stärke der Modulation Einfluss auf das phänomenologische

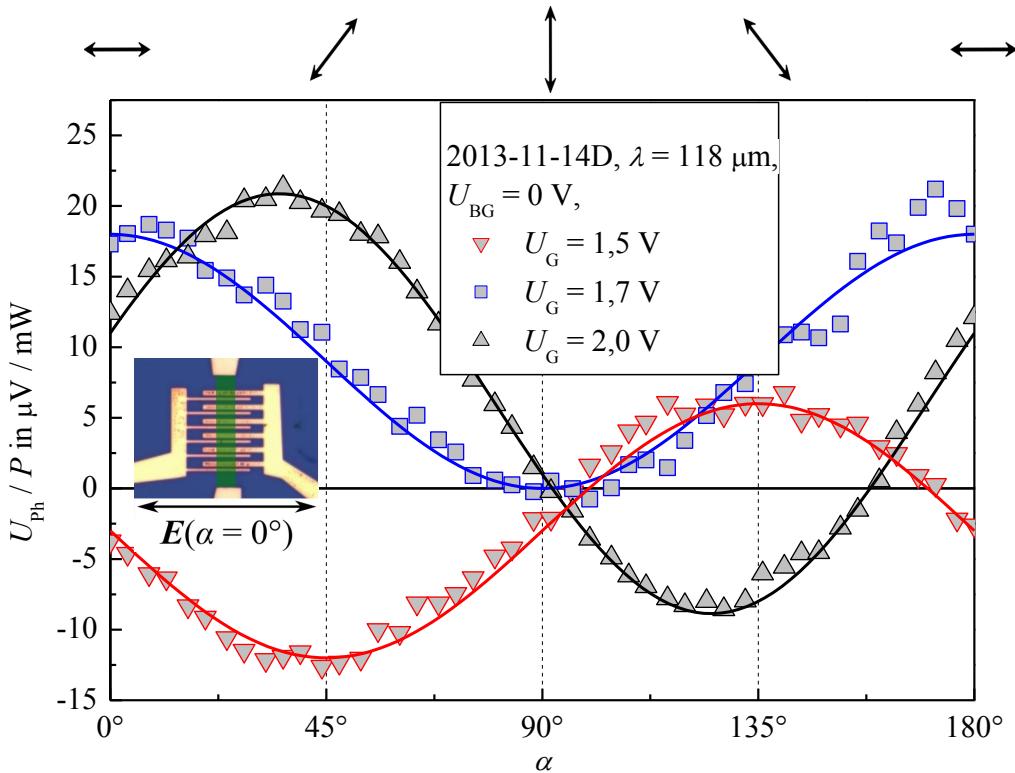


Abbildung 4.19.: Messung des Photostroms in Probe 2013-11-14D bei einer Wellenlänge von $\lambda = 118 \mu\text{m}$ und senkrechtem Einfall $\Theta = 0^\circ$ für verschiedene Topgatespannungen U_G . Beide Topgates befinden sich auf dem gleichen Potential $U_{\text{TG}} = U_{\text{G}1} = U_{\text{G}2}$. Das Inset zeigt die Geometrie der Messung.

Verhalten des Photostroms hatte.

In Abbildung 4.20 sind jeweils Photostrom und Zweipunktwiderstand im modulierten Graphen bei $U_{\text{TG}} = -1 \text{ V}$ dargestellt. Der Widerstand ergab sich aus der Messung des Spannungsabfalls über die Graphenflocke bei einem Strom $I = 1 \mu\text{A}$. Das Photosignal wurde mit linear polarisiertem Licht bei senkrechtem Einfall erzeugt und zeigte hier ein lokales Maximum bei einer Backgatespannung $U_{\text{BG}} = 30 \text{ V}$. Der Blick auf den elektrischen Widerstand zeigte, dass sich bei $U_{\text{BG}} = 25 \text{ V}$ der Dirac-Punkt befand. Um diesen zeigte das Photosignal zusätzlich Vorzeichenwechsel, weit vom Dirac-Punkt entfernt fiel seine Amplitude ab.

Abschließend soll erwähnt werden, dass diese Experimente nur einen ersten

4. Experimente

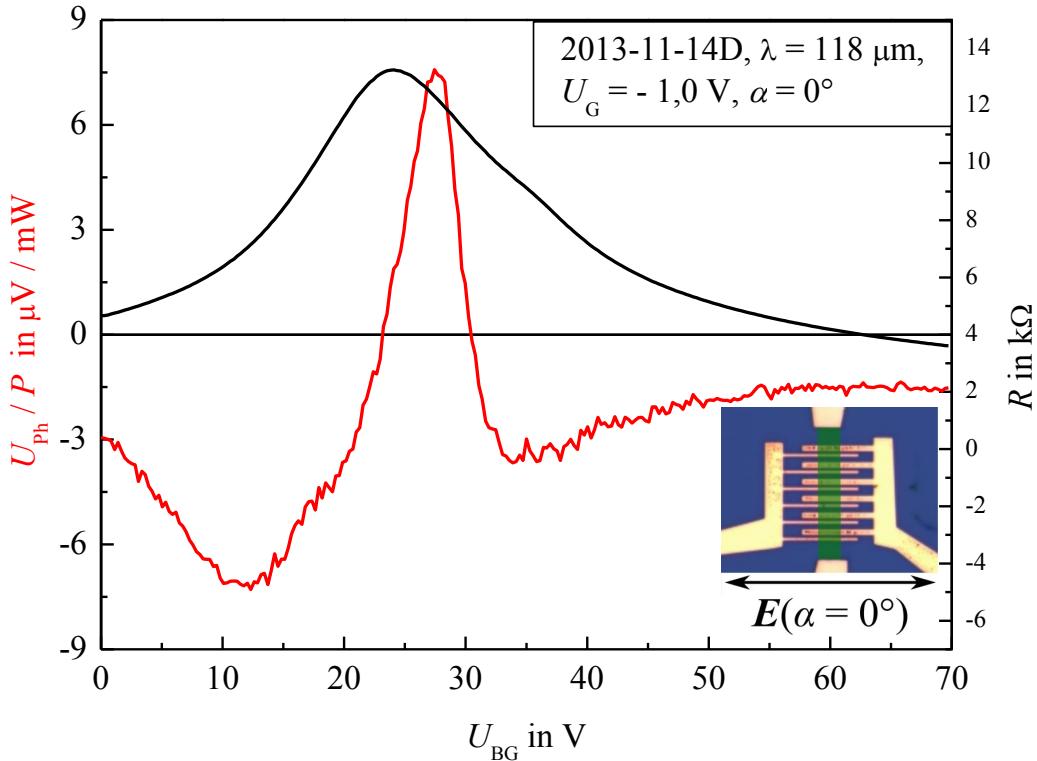


Abbildung 4.20.: Messung des Photostroms (rote Kurve) in Probe 2013-11-14D bei einer Wellenlänge von $\lambda = 118 \mu\text{m}$, senkrecht Einfall $\Theta = 0^\circ$ in Abhängigkeit von der Backgatespannungen U_{BG} . Beide Topgates befinden sich auf dem gleichen Potential $U_G = -1\text{V}$. Der Zweipunktwiderstand über das Graphen wird durch die schwarze Linie dargestellt.

Einblick in die Untersuchung der Doppelgatestrukturen liefern. Graphenstrukturen an Luft neigen dazu, Verunreinigungen anzulagern. Dadurch haben sich die Experimente zwar qualitativ über die Dauer der Messungen nicht verändert, quantitative Eigenschaften wie beispielsweise die Lage des Dirac-Punkts, Maxima oder Nullstellen des Photostroms variierten jedoch stark. Zusätzlich traten Hystereseen beim Durchfahren der Gatespannungen auf. Aus diesen Gründen sind weitere Experimente an diesen Strukturen nötig.

5. Diskussion

Nun sollen die Experimente im Hinblick auf die jeweiligen mikroskopischen Mechanismen der vorgestellten theoretischen Ansätze von Nalitov et al. und Popov betrachtet werden. Dabei liegt der Fokus auf den Experimenten mit den SiC-Proben, da die Untersuchung des Ratscheneffekts auf exfoliertem Graphen ohne Dielektrikum nicht aussagekräftig war. Zunächst sollen diese Experimente im Bild von modulierter Ladungsträgerdichte und moduliertem elektrischen Feld von Nalitov et al. betrachtet werden, danach folgt der Vergleich zur Generierung des Photostroms durch Plasmonen nach Popov. Abschließend folgt eine Betrachtung der Experimente mit den Doppelgatestrukturen.

5.1. Ratscheneffekte in Proben auf SiC

5.1.1. Mechanismus nach Nalitov et al.

Das Modell von Nalitov et al. folgt zunächst einem phänomenologischen Ansatz. Daraus wird ersichtlich, dass der Ratschenstrom in zweiter Ordnung vom elektrischen Feld der Strahlung abhängen sollte und folglich direkt proportional zur Intensität der Anregung ist. Dies ist in den ersten Experimenten zum Nachweis des Ratscheneffekts in Abbildung 4.7 bereits sichtbar: der Photostrom war genau dann maximal, wenn der Laser direkt auf die Ratschenstruktur zentriert war, und nahm entsprechend ab, wenn nur Teile der Intensität auf die Ratschenstruktur trafen.

Der phänomenologische Ansatz liefert über die Symmetriebetrachtung zudem eine Aussage über die Polarisationsabhängigkeit des Ratscheneffekts. Die Vorhersage in Gleichung (2.48) konnte durch alle Experimente bestätigt werden. Photoströme durch lineare Polarisation zu den Tensorkomponenten χ_L und $\tilde{\chi}_L$ konnten sowohl in x - als auch y -Richtung beobachtet werden, wohingegen der helizitätsabhängige Beitrag γ nur senkrecht zur Modulationsrichtung auftrat.

5. Diskussion

Die polarisationsunabhängige Komponente χ_0 war parallel zur Modulationsrichtung x zu beobachten, jedoch wurde ihre Amplitude durch den kleineren Beitrag des Substrats ξ etwas verfälscht. Im Großen und Ganzen stimmen Theorie und Experiment hier sehr gut überein.

Die Frequenzabhängigkeit des Ratscheneffekts wurde von Nalitov et al. für zwei verschiedene elastische Streumechanismen diskutiert: kurzreichweitige Streuung an Störstellen sowie langreichweitige Streuung durch die Coulombwechselwirkung mit Verunreinigungen. Die Komponenten $\chi_0, \chi_L, \tilde{\chi}_L$ sowie γ können als Funktion des Produkts $\omega\tau$ aus den Gleichungen (2.53), (2.54) und (2.55) mit Hilfe der komplexen Koeffizienten S_1^G, S_2^G in (2.56) und (2.57) bestimmt werden. Weiterhin wird der jeweilige Streumechanismus durch verschiedene Korrekturen τ_1 und τ_2 zur Transportrelaxationszeit τ berücksichtigt. Im Fall der kurzreichweitigen Streuung sind dies

$$\tau_1 = \tau \frac{\varepsilon_F}{\varepsilon} \text{ und } \tau_2 = \frac{\tau_1}{2}, \quad (5.1)$$

bei der Coulombstreuung soll

$$\tau_1 = \tau \frac{\varepsilon}{\varepsilon_F} \text{ und } \tau_2 = 3\tau_1 \quad (5.2)$$

gelten [36]. Damit ergeben sich folgende Ausdrücke für die frequenzabhängigen Terme der Photostrombeiträge:

Komponente	Streumechanismus	
	kurzreichweitig	Coulomb
χ_0	$\propto \frac{1}{2} \frac{\omega^6 \tau^6 + 3\omega^4 \tau^4 + 6\omega^2 \tau^2 - 8}{(\omega^4 \tau^4 + 8\omega^2 \tau^2 + 16)(\omega^4 \tau^4 + 2\omega^2 \tau^2 + 1)}$	$\propto \frac{\omega^2 \tau^2 + 3}{\omega^4 \tau^4 + 2\omega^2 \tau^2 + 1}$
$\chi_L = \tilde{\chi}_L$	0	
γ	$\propto \frac{\omega \tau (2\omega^4 \tau^4 + \omega^2 \tau^2 + 8)}{(\omega^4 \tau^4 + 8\omega^2 \tau^2 + 16)(\omega^4 \tau^4 + 2\omega^2 \tau^2 + 1)}$	$\propto \frac{1}{\omega (\omega^4 \tau^4 + 2\omega^2 \tau^2 + 1)}$

Tabelle 5.1.: Frequenzabhängigkeiten der verschiedenen Komponenten des Ratscheneffekts für verschiedene Streumechanismen

Diese Ausdrücke sind in Abbildung 5.1 für kurzreichweitige Streuung und in Abbildung 5.2 für Coulomb-Streuung dargestellt. Für kurzreichweitige Streuung sollte der zirkulare Beitrag bei $\omega\tau = 0, 5$ resonantes Verhalten und die unpolarisierte Komponente bei $\omega\tau = 1, 4$ einen Vorzeichenwechsel aufweisen. Für $\omega\tau \gg 2$ gehen alle Beiträge gegen Null. Die Photoströme durch lineare Polarisierung müssen unabhängig von der Frequenz verschwinden. Für Streuprozesse

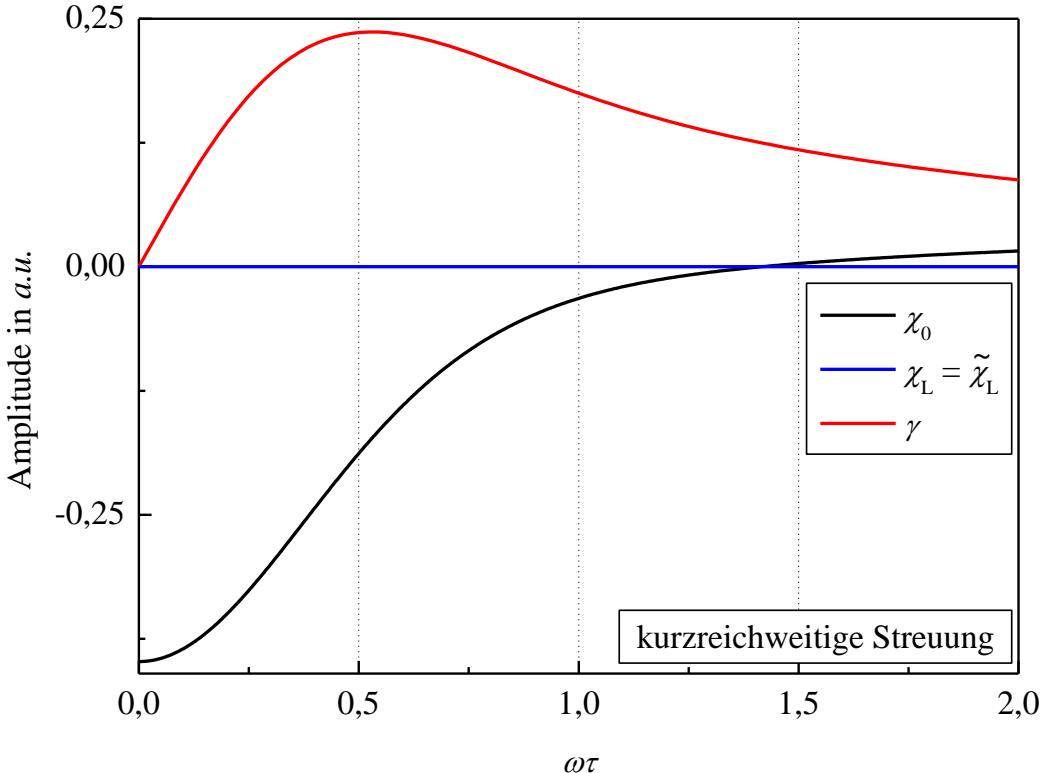


Abbildung 5.1.: Theoretische Frequenzabhängigkeit der verschiedenen Komponenten des Ratscheneffekts für kurzreichweitige Streuung an Störstellen.

durch die Coulombwechselwirkung sind keine Resonanzen zu erwarten, hier wird jedoch für die polarisationsunabhängige und die linearen Komponenten eine identische Amplitude vorhergesagt. Wie zuvor verschwinden für $\omega\tau \gg 2$ alle Beiträge.

In Abbildung 5.3 sind die entsprechenden Messungen des Ratscheneffekts für verschiedene Werte von $\omega\tau$ dargestellt. Die Transportrelaxationszeit wurde durch Transportmessungen an der unstrukturierten Graphenprobe zu $\tau = 16$ fs bestimmt. Erwartungsgemäß müsste sie nach der Prozessierung in den modulierten Proben ein wenig geringer sein, nach den optischen Messungen war eine Bestimmung der Parameter jedoch nicht mehr möglich. Die Daten der Frequenzabhängigkeit können nicht ausschließlich einem einzelnen Streumechanismus zugeordnet werden. Unter Berücksichtigung der kurzreichweiten Streuung ist das Auftreten der linearen Komponenten $\chi_L, \tilde{\chi}_L$ nicht erklärbar und der Fit für den polarisationsunabhängigen Teil χ_0 zeigt große Abweichungen.

5. Diskussion

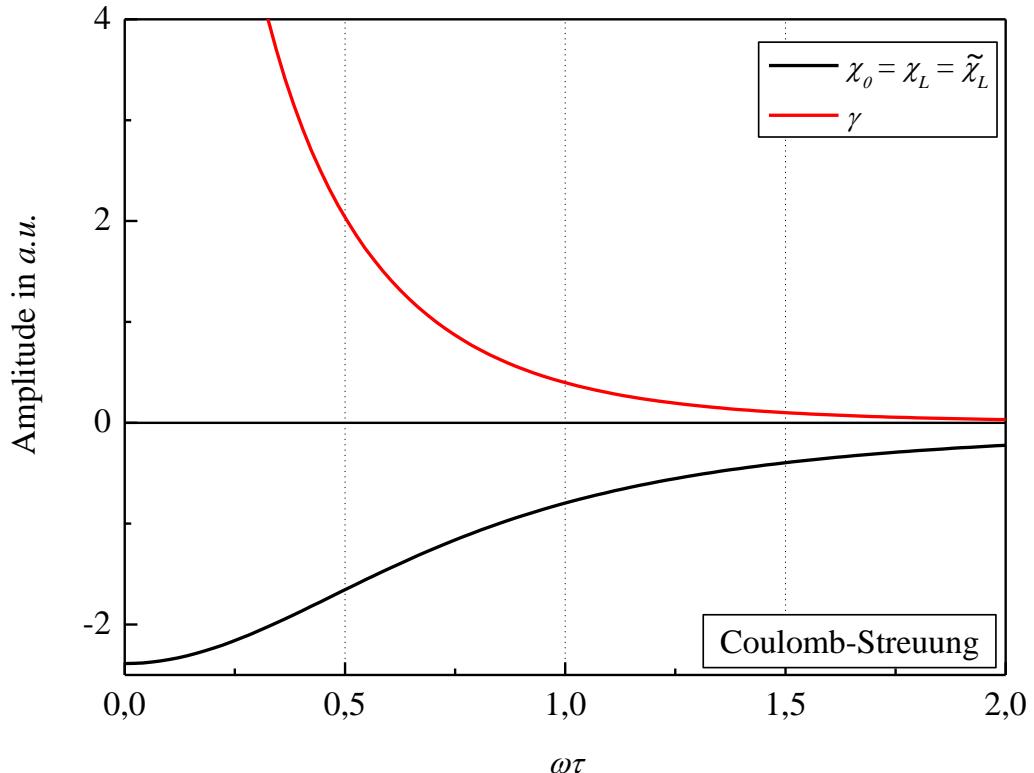


Abbildung 5.2.: Theoretische Frequenzabhängigkeit der verschiedenen Komponenten des Ratscheneffekts für langreichweite Streuung durch Coulombwechselwirkung mit Verunreinigungen.

Deutlich besser passt hier das Bild der Coulombstreuung: Die Daten von linearer und polarisationsunabhängiger Komponente können relativ gut genähert werden. Im Experiment ist die Vorhersage der Rechnung für die Frequenzabhängigkeit der Beträge $\chi_L = \tilde{\chi}_L = \chi_0$ somit annähernd erfüllt. Der doppelte Vorzeichenwechsel des zirkularen Photostroms für Werte von $\omega\tau$ um 0,7 ist mit keinem der beiden Streumechanismen vereinbar und deutet darauf hin, dass entweder eine Kombination von beiden Mechanismen als Möglichkeit für weitere Berechnungen in Betracht gezogen werden sollte oder ein weiterer Mechanismus berücksichtigt werden muss.

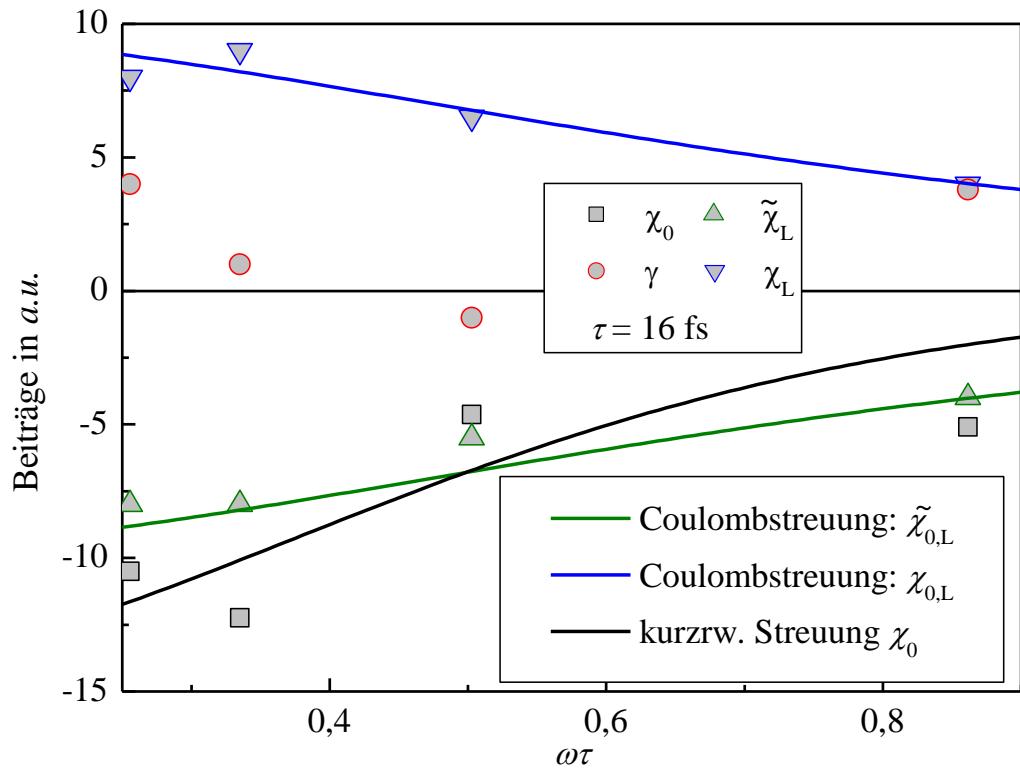


Abbildung 5.3.: Experimentelle Daten zur Frequenzabhängigkeit des Ratscheneffekts. In dieser Darstellung wurde die Transportrelaxationszeit $\tau = 16 \text{ fs}$ genutzt. Die Linien stellen Fits nach den zuvor berechneten Frequenztermen dar.

5.1.2. Mechanismus nach Popov

Der plasmonische Mechanismus wurde von Popov in Feldeffekttransistoren berechnet. Aus diesem Grund wurde diese Theorie nur für einen leitenden Kanal parallel zur Modulationsrichtung aufgebaut, eine Aussage zu einem Photostrom senkrecht zur Modulationsrichtung ist also nicht möglich. Weiterhin ist gezeigt worden, dass Feldeffekttransistoren zur helizitätsabhängigen Detektion von THz-Strahlung fähig sind wenn die Eindringlänge l der Plasmonen in den Leitungskanal mindestens halb so groß wie Länge des Leitungskanals ist [43, 53]. Dazu ist es allerdings notwendig, dass die Kontakte von Leitungskanal und Gate beleuchtet werden. Dies ist in den hier vorgestellten Proben nicht möglich, da durch die Abmessungen der Proben der Großteil der Intensität auf der Gatestruktur zentriert ist und an den Kontakten des Leitungskanals die Anregungsintensität gegen Null geht. Nach diesem Modell ist also, wie experimentell beobachtet, in Modulationsrichtung x kein helizitätsabhängiger Photostrom zu erwarten.

In den Arbeiten von Popov ist nicht direkt erwähnt, welchen Einfluss verschiedene Polarisationszustände auf die Generierung der plasmonischen Photostrome besitzen [41, 44]. In einer Reihe von Arbeiten von Knap [40, 42], Sakowicz [54, 55] oder Drexler [43] wurden in Halbleiter-FET-Systemen eine antennenähnliche \cos^2 -förmige Abhängigkeit des Photostroms vom Orientierungswinkel α von linearer Polarisation gefunden. Dabei war die E-Feld Orientierung des maximalen Photostroms nicht zwingend parallel zum Leitungskanal des FETs. Die Orientierung der Gate- und Kontaktfäden war für die Orientierung der Polarisationsebene verantwortlich, bei der Plasmonen am effektivsten angeregt wurden. In dieser Arbeit stellte sich bei den Photoströmen in x -Richtung immer eine Abhängigkeit von $j_x \propto S_1 = \cos(2\alpha) = \frac{1}{2}(1 + \cos(4\varphi))$ ein. Damit wurde das größte Signal induziert, wenn das elektrische Feld parallel zur Modulation und dem Leitungskanal war. Beim Drehen der Polarisierung und damit dem Vermindern des elektrischen Feldes E_x in x -Richtung verringerte sich auch der Photostrom, sein Minimum erreichte er

- wenn beim Drehen eines $\lambda/2$ -Plättchens das elektrische Feld in y -Richtung senkrecht auf der Modulationsrichtung stand beziehungsweise
- wenn beim Drehen eines $\lambda/4$ -Plättchens die Amplitude des elektrischen Feldes E_x in x -Richtung minimal wurde.

Die Kontakte fielen hier als Antennenelemente weg, da sie außerhalb des Durch-

messers des Laserstrahls lagen, deshalb koppelte das elektrische Feld in den Experimenten direkt an den Leitungskanal über die Gatestreifen, wie in Popovs Arbeit [41] beschrieben. Offensichtlich können die Gatestreifen E-Felder sämtlicher Orientierungen an die Plasmonen im Leitungskanal koppeln, sonst wäre in den Experimenten für $E_x = 0$ kein Signal mehr messbar.

In seiner Arbeit [44] sagt Popov Empfindlichkeiten des plasmonischen Photosignals für hochbewegliches Graphen mit $\mu = 250000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ im Bereich von kV/W voraus. Die Proben in dieser Arbeit besaßen eine wesentlich geringere Beweglichkeit $\mu = 2000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$, die Empfindlichkeit war jedoch im Verhältnis dazu nochmals deutlich kleiner im Bereich von nA/W . Die Amplitude des Ratschenstroms im Experiment passt hier nicht zur theoretischen Vorhersage. Dies könnte darin begründet sein, dass die Modulierung der Ladungsträgerdichte $\Delta N_0/N_0$ durch die Gatestreifen im Experiment nur als schwach angenommen werden kann, da die dielektrische Aluminiumoxid-Schicht zwischen Graphen und Metallstreifen das Anlegen einer Gatespannung nicht zuließ. Folglich dürfte der Plamonic-Ratchet-Mechanismus nur schwach ausgeprägt sein, da er nach Gleichung (2.65) direkt von ΔN_0 abhängt. Die für hohe Frequenzen abfallende Amplitude aller Photostromkomponenten in Abbildung 5.3 deutet ebenfalls in diese Richtung.

In einem allgemeineren Modell beschreibt Popov das plasmonische elektrische Feld im FET durch zwei Wellen unterschiedlicher Amplitude E_{\pm} , die sich in entgegengesetzte Richtungen ausbreiten [44]:

$$E(x, t) = E_+ \cos(\omega\tau - qx - \phi) + E_- \cos(\omega\tau + qx + \phi).$$

In diesem Fall kann der Strom durch den Plamonic-Drag-Mechanismus durch

$$j_0^{(\text{drag})} = -\frac{qe^3 N_0}{2m^2 \omega (\omega^2 + \gamma^2)} \quad (5.3)$$

mit dem jeweiligen Wellenvektor q , der Gleichgewichtsladungsträgerdichte N_0 und $\gamma = 1/\tau$ dargestellt werden. Damit kann für $\omega/2\pi = 1 \text{ THz}$, $d = 1\mu\text{m}$, $N = 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ und der einfallenden Intensität $I = cnE_0^2/2\pi = 1 \text{ W/cm}^2$ der Photostrom zu

$$j^{(\text{drag})} \propto 1,6 \frac{E_+^2 - E_-^2}{E_0^2} \text{ mA/cm} \quad (5.4)$$

abgeschätzt werden, was sich auch in Popovs Arbeit [44] widerspiegelt. Ivchenko [56] konnte zeigen, dass mit $(E_+ - E_-)/E_0 \approx E_{\pm}/E_0 \approx 10^{-2}$ nur ein kleiner

5. Diskussion

Teil des eingestrahlten Lichtes zum elektrischen Feld der Plasmonen beiträgt, und somit kann der Photostrom weiter zu

$$j^{(\text{drag})} \sim 0,1 \text{nA/cm} \text{ oder } j^{(\text{drag})}/I \sim 0,1 \text{nA cm/W} \quad (5.5)$$

abgeschätzt werden [57]. Diese Abschätzungen sind in der Größenordnung der experimentellen Daten und zeigen, dass der plasmonische Mechanismus des Ratschenstroms auch in den Experimenten dieser Arbeit auftreten kann.

5.2. Doppelgatestrukturen

Die Experimente in den Abbildungen 4.19 und 4.20 zeigen deutlich, dass das phänomenologische Verhalten in den Doppelgatestrukturen stark von der angelegten Gatespannung abhing. Demnach konnte über das Variieren der Gatespannung die Symmetrie des modulierten Elektronensystems verändert werden. Einen Hinweis darauf liefern in Abbildung 4.19 die Kurven für $U_{\text{TG}} = 1,7 \text{ V}$ und $U_{\text{TG}} = 2,0 \text{ V}$. Erstere passt zu den Erwartungen der phänomenologischen Theorie, da nur die Beiträge A und B auftreten. Letztere beinhaltet alle Beiträge, was aus phänomenologischer Sicht auf ein komplett asymmetrisches System schließen lässt. Damit wurde die Symmetriegruppe durch Variieren der Gatespannung von C_{2v} zu C_1 reduziert. Diese Beobachtung ist mit der phänomenologischen Beschreibung von Nalitov et al. allerdings nicht vereinbar.

Die Amplitude der Photospannung, die in den Doppelgatestrukturen gemessen wurde, liegt im Bereich von mehreren $\mu\text{V}/\text{mW}$. Dies ist drei Größenordnungen höher als in den SiC-Proben beobachtet wurde. Der Grund dafür könnte in der stärkeren Modulation des 2DES liegen, da das Dielektrikum auf den Doppelgatestrukturen aufgrund der geringeren Dimensionen keine Leckströme beim Anlegen einer Gatespannung verursachte. Dies war in den SiC-Proben nicht möglich, da die Leckströme durch das Dielektrikum die Messungen verfälscht hätten. Nach Nalitov et al. ist der Ratscheneffekt in Gleichung (2.49) direkt von der Amplitude V_0 des modulierenden Potentials abhängig [36], nach Popov in den Gleichungen (2.63) und (2.65) direkt zu Ladungsträgerdichte N_0 beziehungsweise ihrer Veränderung ΔN_0 [44]. Die Steigerung der Amplitude ist im Rahmen dieser beiden Mechanismen nicht erklärbar. Bei Nalitov et al. liegt das möglicherweise an der Berechnung im semiklassischen Modell für $E_F \gg \hbar\omega$, da gerade im Bereich um den Dirac-Punkt auch Interband-Übergänge möglich

werden und berücksichtigt werden sollten. Ein Hinweis für dieses Argument ist das Maximum des Photostroms in der Nähe des Dirac-Punkts in Abbildung 4.20. Am Dirac-Punkt müsste ein Photon beliebiger Energie $\hbar\omega$ einen Interband-Übergang erzeugen können und damit die Zahl der absorbierten Photonen am größten sein. Dies würde effektiv die Intensität $I = cnE^2/2\pi$ der Anregung erhöhen, wobei der Aborptionskoeffizient $n = n(E_F)$ eine Funktion der Fermienergie darstellt. Für Popovs Mechanismus sollte eine ähnliche Argumentation gelten, da die Anregung der Plasmonen in den hydrodynamischen Gleichungen (2.58) und (2.59) nicht quantenmechanisch beschrieben wird.

6. Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Photoströme in einer Reihe von Systemen auf Basis von Graphen untersucht. Da Ratscheneffekte nur in Systemen mit asymmetrischer Modulation auftreten können, wurden sowohl Graphenflocken als auch epitaktisches Graphen mit einer asymmetrisch periodischen Struktur aus Metallstreifen versehen. Erste Experimente zeigten, dass der Ratscheneffekt in modulierten Graphenflocken ohne Dielektrikum nicht eindeutig von Randströmen unterschieden werden konnte.

Aus diesem Grund wurde epitaktisch gewachsenes Graphen auf SiC auf seine Tauglichkeit als Substrat für weitere Experimente überprüft. Das Material der AG Seyller zeigte unstrukturiert im Experiment bei senkrechttem Einfall keine polarisationsabhängigen Signale, weshalb es zur weiteren Untersuchung des Ratscheneffekts herangezogen wurde. Nachdem das epitaktische Graphen mit der Ratschenstruktur versehen war, konnte der Ratscheneffekt zum ersten Mal eindeutig nachgewiesen werden. Die modulierte Fläche war dabei zweifelsfrei der Ort, an dem das gemessene Signal entstand. Im Anschluss wurde der Einfluss des Polarisationszustands der Anregung auf das Ratschensignal betrachtet. Die phänomenologische Theorie, die auch Grundlage für den mikroskopischen Mechanismus von Nalitov et al. darstellt [36], kann allein durch Betrachtung der Symmetrie der Ratschenstruktur die Polarisationsabhängigkeit des Ratscheneffekts beschreiben. Dabei ist bemerkenswert, dass der helizitätsabhängige Beitrag des Ratscheneffekts immer nur senkrecht zur Modulationsrichtung auftrat und die polarisationsunabhängige Komponente immer parallel dazu. Linear polarisierte Strahlung konnte in jeder Richtung Ratschenströme erzeugen.

Weiterhin wurde der Einfluss des Einfallswinkels Θ auf die Photospannung untersucht. Es zeigt sich, dass durch Schräganregung neben dem Ratscheneffekt zusätzlich der Photon-Drag-Effekt auftritt. Durch die Wahl der Geometrie war es möglich, beide Effekte gleichzeitig und eindeutig unterscheidbar zu messen.

6. Zusammenfassung

Zur Untersuchung des Ratscheneffekts für verschiedene Wellenlängen wurde im Rahmen dieser Arbeit Strahlzeit am FEL des Helmholtz-Zentrums Dresden/Rossendorf beantragt. Dort wurde der Ratscheneffekt für eine ganze Reihe von Wellenlängen nachgewiesen und untersucht. Zum einen konnte sicher gestellt werden, dass die phänomenologische Betrachtung der Polarisationsabhängigkeit über den ganzen Bereich der eingesetzten Wellenlängen gilt, zum anderen wurden die Amplituden der verschiedenen Beiträge zum Ratscheneffekt als Funktion der Wellenlänge bestimmt. Es zeigte sich, dass das Modell von Nalitov et al. die linearen und polarisationsunabhängigen Beiträge relativ gut beschreibt, wenn langreichweitige Coulomb-Streuung als elastischer Streu mechanismus berücksichtigt wird. Der Mechanismus nach Popov, der über die Generierung von Plasmonen argumentiert, kann in den Experimenten dieser Arbeit nur konstante Amplituden vorhersagen [44], was nur grob den Messungen entspricht. Der helizitätsabhängige Beitrag konnte durch keines der vorgestellten Modelle nachvollzogen werden.

Zuletzt wurden die Experimente an den Doppelgatestrukturen auf Basis von exfoliertem Graphen diskutiert. Durch die dielektrische Aluminiumoxid-Schicht ist es möglich, das 2DES stärker zu modulieren als es in den SiC-Proben möglich war. Dadurch sollte der Ratscheneffekt deutlich stärker als die Randströme ausgeprägt sein. Die Messungen zeigen, dass die Topgates einen großen Einfluss auf das phänomenologische Verhalten der Photospannung haben. Dies lässt vermuten, dass die Variation der Gatespannung sich direkt auf die Symmetrie des 2DES im Graphen auswirkt. Weiter ist die Amplitude der Photospannung in diesen Strukturen um drei Größenordnungen höher als in den Proben auf SiC. Dies liegt möglicherweise an der stärkeren Modulation des 2DES durch das Anlegen der Gatespannung. Zusätzlich ist denkbar, dass in der Region um den Dirac-Punkt zusätzlich Interband-Übergänge möglich werden und der Energieübertrag durch die einfallende Strahlung damit effektiver ist. Dies wirft jedoch die Frage auf, warum um den Dirac-Punkt nicht nur das Maximum des Photostroms auftritt, sondern zusätzlich Vorzeichenwechsel auftreten. Zur genaueren Untersuchung sind weitere Experimente nötig, da bis jetzt Hystereseen beim Durchfahren der Gatespannungen aufgetreten sind. Dies kann vermieden werden, wenn die Proben in Stickstoff-Atmosphäre untersucht werden.

A. Prozessdokumentation

Im Rahmen dieser Arbeit wurden eine Reihe von verschiedenen Proben realisiert. Hier soll nun exakt aufgelistet werden, wie die einzelnen Systeme entstanden sind.

A.1. Ratschenstruktur auf exfoliertem Graphen

- Reinigung und Entfernung der Schutzlackschicht der $(4,5\text{mm})^2$ großen Si-Substrate in Aceton im Ultraschallbecken. Anschließend Spülen mit Aceton und Isopropanol und Trocknen durch Stickstoff.
- Reinigung der Substrate in O_2 -Plasma: 10 Minuten bei einer Leistung $P = 30\%$ und einem Druck $p = 1 - 2 \text{ mbar}$.
- Exfoliation von Graphen mit Hilfe von Scotch Magic Tape und Naturgraphit.
- Untersuchen der Probe unter dem Lichtmikroskop und Lokalisieren von Graphenflocken. Die Lagenzahl des Graphens wurde in Schwarzweiß-Bildern über den Kontrast der Grauwerte von Graphen und Substrat bestimmt.
- Aufschleudern von PMMA-200K (7%):
 - 1. Stufe: 3000 UPM, Beschleunigung 0, $t = 5 \text{ s}$
 - 2. Stufe: 8000 UPM, Beschleunigung 9, $t = 30 \text{ s}$

Ausbacken des Lacks bei einer Temperatur von $T = 150 \text{ }^\circ\text{C}$ für 8 Minuten.

- ESL für die Kontakte und Bondpads bei einer Beschleunigungsspannung von 30 kV und einer Dosis von $600 \text{ } \mu\text{C}/\text{cm}^2$.
- Entwickeln des belichteten Lacks in 1:3 MIBK/Isopropanol für 45 s, anschließend Spülen in Isopropanol für 30 s und Trocknen mit Stickstoff.
- Aufdampfen von 60 nm Pd mit einer Rate von 2 \AA/s per Elektronenstrahlverdampfer in der Univex A.

A. Prozessdokumentation

- Lift-Off in Aceton und Isopropanol.
- Aufschleudern von PMMA-950K (1%):
 - 1. Stufe: 3000 UPM, Beschleunigung 0, $t = 5$ s
 - 2. Stufe: 8000 UPM, Beschleunigung 9, $t = 30$ s

Ausbacken des Lacks bei einer Temperatur von $T = 150$ °C für 8 Minuten.

- ESL für die modulierenden Metallstreifen: Beschleunigungsspannung 30 kV, Arbeitsabstand 5 mm, Flächendosis 560 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$.
- Entwickeln des belichteten Lacks in 1:3 MIBK/Isopropanol für 45 s, anschließend Spülen in Isopropanol für 30 s und Trocknen mit Stickstoff.
- Aufdampfen von 5 nm Ti mit einer Rate von 1 $\text{\AA}/\text{s}$ per Elektronenstrahlverdampfer und 60 nm $\text{Au}_{0,6}/\text{Pd}_{0,4}$ per thermischem Verdampfer in der Univex A.
- Lift-Off in Aceton und Isopropanol.
- Einkleben des Substrats in einen Chipcarrier mit zweikomponentigem Leitsilber, Ausheizen bei 100° C für mindestens 15 Minuten, dann binden.

A.2. Ratschenstruktur auf SiC

- Reinigung und Entfernung der Schutzlackschicht der $(4,5 \text{ mm})^2$ großen SiC/Graphen-Substrate in Aceton. Anschließend Spülen mit Aceton und Isopropanol und Trocknen durch Stickstoff.
- Aufschleudern von PMMA-200K (7%):
 - 1. Stufe: 3000 UPM, Beschleunigung 0, $t = 5$ s
 - 2. Stufe: 8000 UPM, Beschleunigung 9, $t = 30$ s

Ausbacken des Lacks bei einer Temperatur von $T = 150$ °C für 8 Minuten.

- ESL für den RIE-Prozess bei einer Beschleunigungsspannung von 30 kV und einer Dosis von 500 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$.
- Entwickeln des belichteten Lacks in 1:3 MIBK/Isopropanol für 45 s, anschließend Spülen in Isopropanol für 30 s und Trocknen mit Stickstoff.

- Ätzen in der Plasmalab80Plus RIE-Anlage mit einem O_2 -Fluß von 100 sccm, $p = 35$ mTorr, $P = 50$ W, $t = 20$ s
- Entfernen der Lackrückstände mit Aceton und Isopropanol
- Aufschleudern von PMMA-200K (7%):
 - 1. Stufe: 3000 UPM, Beschleunigung 0, $t = 5$ s
 - 2. Stufe: 8000 UPM, Beschleunigung 9, $t = 30$ s

Ausbacken des Lacks bei einer Temperatur von $T = 150$ °C für 8 Minuten.

- ESL für Kontaktpads bei einer Beschleunigungsspannung von 30 kV und einer Dosis von $500 \mu\text{C}/\text{cm}^2$.
- Entwickeln des belichteten Lacks in 1:3 MIBK/Isopropanol für 45 s, anschließend Spülen in Isopropanol für 30 s und Trocknen mit Stickstoff.
- Aufdampfen von 60 nm Pd mit einer Rate von 2 \AA/s per Elektronenstrahlverdampfer in der Univex A.
- Lift-Off in Aceton und Isopropanol.
- Zusätzlicher Reinigungsschritt in Chloroform, danach Spülen in Isopropanol und Trocknen mit Stickstoff.
- Aufdampfen einer 1 nm dicken Schicht Al in UHV bei $p = 10^{-9}$ mbar, dabei Kühlen des Probenhalters mit flüssigem Stickstoff. Temperatur des Substrats circa -120 °C. Danach Oxidieren des Aluminiums für 45 Minuten unter O_2 -Atmosphäre in der Schleusenkammer der Anlage. Anschließend erneutes Aufdampfen und Oxidieren von 1 nm Al.
- Aufbringen von 26 nm Aluminiumoxid in der Savannah100 ALD: purge time = 20s, flow = 20 sccm, Basisdruck 0,5 Torr, Prozesstemperatur 150° C, Pulsdauer TMA/H₂O 5s.
- Aufschleudern von PMMA-200K (7%):
 - 1. Stufe: 3000 UPM, Beschleunigung 0, $t = 5$ s
 - 2. Stufe: 8000 UPM, Beschleunigung 9, $t = 30$ s

Ausbacken des Lacks bei einer Temperatur von $T = 150$ °C für 8 Minuten.

- ESL für Gatestruktur bei einer Beschleunigungsspannung von 30 kV, einem Arbeitsabstand von 5 mm und einer Dosis von $425 \mu\text{C}/\text{cm}^2$.
- Entwickeln des belichteten Lacks in 1:3 MIBK/Isopropanol für 45 s, anschließend Spülen in Isopropanol für 30 s und Trocknen mit Stickstoff.

A. Prozessdokumentation

- Aufdampfen von 5 nm Ti mit dem Elektronenstrahlverdampfer und 60 nm Au aus der thermischen Quelle mit Raten von jeweils 2 Å/s in der Univex A.
- Lift-Off in Aceton und Isopropanol.
- Einkleben des Substrats in einen Chipcarrier mit zweikomponentigem Leitsilber, Ausheizen bei 100 °C für mindestens 15 Minuten, dann binden.

A.3. Detektor mit halblogarithmischer Antenne auf exfoliertem Graphen

Diese Proben entstanden in Zusammenarbeit mit Martin Mittendorff und Dr. Stephan Winnerl aus dem Helmholtz-Zentrum Dresden/Rossendorf. Ziel dieser Kollaboration war es, einen breitbandigen Detektor zu realisieren, der schnell genug ist, um die Pulse des FELs zeitlich aufzulösen. Aus Gründen der Vollständigkeit soll hier beschrieben werden, mit welchen Mitteln diese Proben entstanden sind. Eine detaillierte Beschreibung der Experimente mit den Detektoren befindet sich in [58].

Von diesen Proben gibt es verschiedene Typen, die sich in der Prozessierung jedoch nicht stark unterscheiden. Es wurden zwei unterschiedliche Substrate benutzt: p-dotiertes Si mit hoher Leitfähigkeit sowie undotiertes, hochohmiges Si. Beide Substrattypen besitzen eine 285 nm dicke Oxidschicht. Bei den Proben mit unterschiedlichen Metallen je Antennenhälfte ist ein zusätzlicher ESL- und Bedampfschritt nötig, der jedoch in seiner Ausführung nicht von den anderen Schritten abweicht. Hier soll die Prozessierung eines Detektors beschrieben werden, bei dem beide Hälften der Antenne aus dem gleichen Metall bestehen.

- Reinigung und Entfernung der Schutzlackschicht der $(4,5 \text{ mm})^2$ großen Si-Substrate in Aceton im Ultraschallbecken. Anschließend Spülen mit Aceton und Isopropanol und Trocknen durch Stickstoff.
- Reinigung der Substrate in O_2 -Plasma: 10 Minuten bei einer Leistung $P = 30\%$ und einem Druck $p = 1 - 2 \text{ mbar}$.
- Exfoliation von Graphen mit Hilfe von Scotch Magic Tape und Naturgraphit.

A.4. Proben auf exfoliertem Graphen mit Doppelgatestruktur

- Untersuchen der Probe unter dem Lichtmikroskop und Lokalisieren von Graphenflocken. Die Lagenzahl des Graphens wurde in Schwarzweiß-Bildern über den Kontrast der Grauwerte von Graphen und Substrat bestimmt.
- Aufschleudern von PMMA-200K (7%):
 - 1. Stufe: 3000 UPM, Beschleunigung 0, $t = 5$ s
 - 2. Stufe: 8000 UPM, Beschleunigung 9, $t = 30$ s

Ausbacken des Lacks bei einer Temperatur von $T = 150$ °C für 8 Minuten.

- ESL für die Antennen, Kontakte und Bondpads bei einer Beschleunigungsspannung von 30 kV und einer Dosis von $600 \mu\text{C}/\text{cm}^2$.
- Entwickeln des belichteten Lacks in 1:3 MIBK/Isopropanol für 45 s, anschließend Spülen in Isopropanol für 30 s und Trocknen mit Stickstoff.
- Aufdampfen von 60 nm Pd mit einer Rate von 2 \AA/s per Elektronenstrahlverdampfer in der Univex A.
- Lift-Off in Aceton und Isopropanol.

A.4. Proben auf exfoliertem Graphen mit Doppelgatestruktur

- Reinigung und Entfernung der Schutzlackschicht der $(4,5 \text{ mm})^2$ großen Si-Substrate in Aceton im Ultraschallbecken. Anschließend Spülen mit Aceton und Isopropanol und Trocknen durch Stickstoff.
- Reinigung der Substrate in O_2 -Plasma: 10 Minuten bei einer Leistung $P = 30\%$ und einem Druck $p = 1 - 2 \text{ mbar}$.
- Exfoliation von Graphen mit Hilfe von Scotch Magic Tape und Naturgraphit.
- Untersuchen der Probe unter dem Lichtmikroskop und Lokalisieren von Graphenflocken. Die Lagenzahl des Graphens wurde in Schwarzweiß-Bildern über den Kontrast der Grauwerte von Graphen und Substrat bestimmt.
- Aufschleudern von PMMA-200K (7%):
 - 1. Stufe: 3000 UPM, Beschleunigung 0, $t = 5$ s
 - 2. Stufe: 8000 UPM, Beschleunigung 9, $t = 30$ s

A. Prozessdokumentation

Ausbacken des Lacks bei einer Temperatur von $T = 150^\circ\text{C}$ für 8 Minuten.

- ESL für den RIE-Prozess bei einer Beschleunigungsspannung von 30 kV und einer Dosis von $580 \mu\text{C}/\text{cm}^2$.
- Entwickeln des belichteten Lacks in 1:3 MIBK/Isopropanol für 45 s, anschließend Spülen in Isopropanol für 30 s und Trocknen mit Stickstoff.
- Ätzen in der Plasmalab80Plus RIE-Anlage mit einem Ar/O₂-Fluß (50/50) von 100 sccm, $p = 35 \text{ mTorr}$, $P = 50 \text{ W}$, $t = 20\text{s}$
- Entfernen der Lackrückstände mit Aceton und Isopropanol
- Aufschleudern von PMMA-200K (7%):
 - 1. Stufe: 3000 UPM, Beschleunigung 0, $t = 5 \text{ s}$
 - 2. Stufe: 8000 UPM, Beschleunigung 9, $t = 30 \text{ s}$

Ausbacken des Lacks bei einer Temperatur von $T = 150^\circ\text{C}$ für 8 Minuten.

- ESL für Kontakte und Bondpads bei einer Beschleunigungsspannung von 30 kV und einer Dosis von $580 \mu\text{C}/\text{cm}^2$.
- Entwickeln des belichteten Lacks in 1:3 MIBK/Isopropanol für 45 s, anschließend Spülen in Isopropanol für 30 s und Trocknen mit Stickstoff.
- Aufdampfen von 60 nm Pd mit einer Rate von 2 \AA/s per Elektronenstrahlverdampfer in der Univex A.
- Lift-Off in Aceton und Isopropanol.
- Zusätzlicher Reinigungsschritt in Chloroform, danach Spülen in Isopropanol und Trocknen mit Stickstoff.
- Aufdampfen einer 1 nm dicken Schicht Al in UHV bei $p = 10^{-9} \text{ mbar}$, dabei Kühlen des Probenhalters mit flüssigem Stickstoff. Temperatur des Substrats circa -110°C . Danach Oxidieren des Aluminiums für 60 Minuten unter O₂-Atmosphäre in der Schleusenkammer der Anlage.
- Aufbringen von 30 nm Aluminiumoxid in der Savannah100 ALD: purge time = 35s, flow = 20 sccm, Basisdruck 0,5 Torr, Prozesstemperatur 120°C , Pulsdauer TMA/H₂O 5s.
- Aufschleudern von PMMA-200K (7%):
 - 1. Stufe: 3000 UPM, Beschleunigung 0, $t = 5 \text{ s}$

A.4. Proben auf exfoliertem Graphen mit Doppelgatestruktur

- 2. Stufe: 8000 UPM, Beschleunigung 9, $t = 30$ s

Ausbacken des Lacks bei einer Temperatur von $T = 150$ °C für 8 Minuten.

- ESL für Gatestruktur bei einer Beschleunigungsspannung von 30 kV, einem Arbeitsabstand von 5 mm und einer Dosis von $425 \mu\text{C}/\text{cm}^2$.
- Entwickeln des belichteten Lacks in 1:3 MIBK/Isopropanol für 45 s, anschließend Spülen in Isopropanol für 30 s und Trocknen mit Stickstoff.
- Aufdampfen von 5 nm Ti mit dem Elektronenstrahlverdampfer und 60 nm Au aus der thermischen Quelle mit Raten von jeweils 2 \AA/s in der Univex A.
- Lift-Off in Aceton und Isopropanol.
- Einkleben des Substrats in einen Chipcarrier mit zweikomponentigem Leitsilber, Ausheizen bei 100 °C für mindestens 15 Minuten, dann binden.

Literaturverzeichnis

- [1] A.K. Geim und K.S. Novoselov, *Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films*, Science **306**, 666 (2004).
- [2] K.S. Novoselov, *Graphene: Materials In The Flatland*, Phys. Rev. **71**, 622 (2010).
- [3] A.K. Geim, *Graphene: Status and Prospects*, Science **324**, 1530 (2009).
- [4] M.I. Katsnelson, *Graphene: carbon in two dimensions*, materials today **10**, (2007).
- [5] U. Zeitler, J. Giesbers, und J.-K. Maan, *Quanten-Hall-Effekt in Graphen*, Phys. Unserer Zeit 3 **40**, 124–131 (2009).
- [6] C. Berger, Z. Song, X. Li, X. Wu, N. Brown, C. Naud, D. Mayou, T. Li, J. Hass, A.N. Marchenkov, E.H. Conrad, P.N. First, und W.A. de Heer, *Electronic Confinement and Coherence in Patterned Epitaxial Graphene*, Science **312**, 1191 (2006).
- [7] F.V. Tikhonenko, D.W. Horsell, R.V. Gorbachev, und A.K. Savchenko, *Weak Localization in Graphene Flakes*, Phys. Rev. Lett. **100**, 056802 (2008).
- [8] P. Olbrich, E.L. Ivchenko, R. Ravash, T. Feil, S.D. Danilov, J. Allerdings, D. Weiss, D. Schuh, W. Wegscheider, und S.D. Ganichev, *Ratchet effects induced by terahertz radiation in heterostructures with a lateral periodic potential*, Phys. Rev. Lett. **103**, 090603 (2009).
- [9] K.S. Novoselov, A.K. Geim, S.V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S.V. Dubonos, I.V. Grigorieva, und A.A. Firsov, *Electric Field Effect in Atomically Thin Carbon Films*, Science **306**, 666 (2004).
- [10] P.R. Wallace, *The Band Theory of Graphite*, Phys. Rev. **71**, 622 (1947).
- [11] A.H. Casto Neto, F. Guinea, N.M.R. Peres, K.S. Novoselov, und A.K. Geim, *The electronic properties of graphene*, Reviews of modern physics **81**, 110–155 (2009).

Literaturverzeichnis

- [12] R.E. Peierls, *Bemerkungen über Umwandlungstemperaturen*, Helv. Phys. Acta **7**, 81 (1934).
- [13] R.E. Peierls, *Quelques proprietes typiques des corps solides*, Ann. I. H. Poincare **5**, 177 (1935).
- [14] L.D. Landau, *Zur Theorie der Phasenumwandlungen II.*, Phys. Z. Sowjetunion **11**, 26 (1937).
- [15] N.D. Mermin, *Crystalline order in two dimensions*, Phys. Rev. **176**, 250 (1968).
- [16] N.D. Mermin und H. Wagner Phys. Rev. Lett. **17**, 1133 (1966).
- [17] E.H. Hall, *On a new action of the magnet on electric currents*, Amer. J. Math. **2**, 287 (1879).
- [18] K.v. Klitzing, G. Dorda, und M. Pepper, *New Method for High-Accuracy Determination of the Fine-Structure Constant Based on Quantized Hall Resistance*, Phys. Rev. Lett. **45**, (1980).
- [19] L.J. van der Pauw, *A method of measuring the resistivity and Hall coefficient on lamellae of arbitrary shape*, Philips Technical Review **26**, 220–224 (1959).
- [20] W. Zinth und H.-J. Körner, *Physik III*. Oldenbourg, München, 1998.
- [21] S.D. Ganichev und W. Prettl, *Intense Terahertz Excitation of Semiconductors*. Oxford University Press, (Oxford, 2006).
- [22] E.L. Ivchenko und G.E. Pikus, *Superlattices and other Heterostructures: Symmetry and Optical Phenomena*. Solid-State Sciences 110. Springer, (Berlin, 2.ed., 1997).
- [23] B.I. Sturman und V.M. Fridkin, *The Photovoltaic and Photorefractive Effects in Non-Centrosymmetric Materials*. Gordon and Breach Science Publishers, (New York, 1992).
- [24] M.M. Glazov und S. D. Ganichev, *High frequency electric field induced nonlinear effects in graphene*, arXiv:cond-mat (2013).
- [25] J. Karch, P. Olbrich, M. Schmalzbauer, C. Brinsteiner, U. Wurstbauer, M.M. Glazov, S.A. Tarasenko, E.L. Ivchenko, D. Weiss, J. Eroms, und S.D Ganichev, *Photon helicity driven electric current in graphene*, arXiv:cond-mat (2010).

- [26] C. Jiang, V.A. Shalygin, V.Yu Panevin, S.N. Danilov, M.M. Glazov, R. Yakimova, S. Lara-Avila, S. Kubatkin, und S.D Ganichev, *Helicity-dependent photocurrents in graphene layers excited by midinfrared radiation of a CO₂ laser*, Phys. Rev. B **84**, 125429 (2011).
- [27] N.W. Ashcroft und N.D. Mermin, *Festkörperphysik*. Oldenbourg, München, 2007.
- [28] V.I. Perel' und Ya.M. Pinskii Sov. Phys. Solid State **15**, 688 (1973).
- [29] J. Karch, C. Drexler, P. Olbrich, M. Fehrenbacher, M. Hirmer, M.M. Glazov, S.A. Tarasenko, E.L. Ivchenko, B. Birkner, J. Eroms, D. Weiss, R. Yakimova, S. Lara-Avila, S. Kubatkin, M. Ostler, T. Seyller, und S.D Ganichev, *Terahertz radiation driven chiral edge currents in graphene*, Phys. Rev. Lett. **107**, 276601 (2011).
- [30] L.I. Magarill und M.V. Entin, *tbd surface PGE*, Phys. Solid State **21**, 743 (1979).
- [31] V.L. Alperovich, V.I. Belinicher, V.N. Novikov, und A.S. Terekhov, *Surface photovoltaic effect in gallium arsenide*, JETP Lett. **31**, 581–584 (1980).
- [32] Yu. Yu. Kiselev und L.E. Golub, *Optical and photogalvanic properties of graphene superlattices formed by periodic strain*, Phys. Rev. B **84**, 235440 (2011).
- [33] P. Olbrich, J. Karch, E.L. Ivchenko, J. Kamann, B. März, M. Fehrenbacher, D. Weiss, und S.D. Ganichev, *Classical ratchet effects in heterostructures with a lateral periodic potential*, Phys. Rev. B **83**, 155313 (2011).
- [34] E.L. Ivchenko und S.D. Ganichev, *Ratchet effects in quantum wells with a lateral periodic potential*, Phys. Rev. B **86**, 115301 (2012).
- [35] P. Reimann, *Brownian Motors: noisy transport far from equilibrium*, Physics Reports **361**, 57–265 (2002).
- [36] A.L. Nalitov, L.E. Golub, und E.L. Ivchenko, *Ratchet effects in graphene with a lateral periodic potential*, Phys. Rev. B **86**, 115301 (2012).
- [37] J. Chen, M. Badioli, P. Alonso-González, S. Thongrattanasiri, F. Huth, J. Osmond, M. Spasenovic, A. Centeno, A. Pesquera, P. Godignon, A.Z. Elorza, N. Camara, F.J. García de Abajo, R. Hillenbrand, und

- F. Koppens, *Optical nano-imaging of gate-tunable graphene plasmons*, Nature **487**, 77–81 (2012).
- [38] X. Luo, T. Qiu, W. Lu, und Z. Ni, *Plasmons in graphene: Recent progress and applications*, Materials Science and Engineering **74**, 351–376 (1973).
- [39] M. Dyakonov und M. Shur, *Detection, Mixing, and Frequency Multiplikation of Terahertz Radiation by Two-Dimensional Electronic Fluid*, IEEE Transactions On Electron Devices **43**, (1996).
- [40] W. Knap, F. Teppe, N. Dyakonova, D. Coquillat, und J. Lusakowski, *Plasma wave oscillations in nanometer field effect transistors for terahertz detection and emission*, J. Phys.: Condens. Matter **20**, 384205 (2008).
- [41] Popov V.V., *Plasmon Excitation and Plasmonic Detection of Terahertz Radiation in the Grating-Gate Field-Effect-Transistor Structures*, J. Infrared Milli Terahz Waves **32**, 1178–1191 (2011).
- [42] W. Knap, M. Dyakonov, D. Coquillat, F. Teppe, N. Dyakonova, J. Lusakowski, K. Karpierz, M. Sakowicz, G. Valusis, I. Seliuta, D. Kasalynas, A. El Fatimy, Y.M. Meziani, und T. Otsuji, *Field Effect Transistors for Terahertz Detection: Physics and First Imaging Applications*, J. Infrared Milli Terahz Waves **30**, 1319–1337 (2009).
- [43] C. Drexler, N. Dyakonova, P. Olbrich, J. Karch, M. Schafberger, K. Karpierz, Y. Mityagin, M.B. Lifshits, F. Teppe, O. Klimenko, Y.M. Meziani, W. Knap, und S.D. Ganichev, *Helicity sensitive terahertz radiation detection by field effect transistors*, J. Appl. Phys. **111**, 124504 (2012).
- [44] V.V. Popov, *Terahertz rectification by periodic two-dimensional electron plasma*, Apl. Phys. Lett. **102**, 253504 (2013).
- [45] P. Olbrich, *THz radiation induced spin polarized currents in low dimensional semiconductor structures*. Dissertation am Institut für experimentelle und angewandte Physik der Universität Regensburg, (Universität Regensburg, 2010).
- [46] A.J. Van Bommel, J.E. Crombeen, und A. Van Tooren, *Leed and Auger electron observations of the SiC (0001) surface*, Surface Science **48**, 463–472 (1974).

- [47] K.V. Emtsev, A. Bostwick, K. Horn, J. Jobst, G.L. Kellogg, L. Ley, J.L. McChesney, T. Ohta, S.A. Reshanov, J. Röhrl, E. Rotenberg, A.K. Schmid, D. Waldmann, H.B. Weber, und Th. Seyller, *Towards wafer-size graphene layers by atmospheric pressure graphitization of silicon carbide*, Nature Materials **8**, 203–207 (2009).
- [48] F. Speck, J. Jobst, F. Fromm, M. Ostler, D. Waldmann, M. Hundhausen, H.B. Weber, und Th. Seyller, *The quasi-free-standing nature of graphene on H-saturated SiC(0001)*, Appl. Phys. Lett. **99**, 122106 (2011).
- [49] F. Oberhuber, S. Blien, S. Heydrich, F. Yaghobian, T. Korn, C. Schüller, C. Strunk, D. Weiss, und J. Eroms, *Weak localization and Raman study of anisotropically etched graphene antidots*, Appl. Phys. Lett. **103**, 143111 (2013).
- [50] A.R. Barron, *Atomic Layer Deposition*, Connexions Website <http://cnx.org/contents/ae29812b-5c71-4740-ac36-6809c528202622> (14. Jul. 2009).
- [51] F.-X. Schrettenbrunner, *Untersuchungen von top-gates auf Graphen-Strukturen*. Diplomarbeit am Institut für experimentelle und angewandte Physik der Universität Regensburg, (, 2010).
- [52] M. Drienovsky, *Strukturierte Topgates auf Graphen mit HfO_2 und AL_2O_3 als Dielektrikum*. Diplomarbeit am Institut für experimentelle und angewandte Physik der Universität Regensburg, (, 2013).
- [53] K.S. Romanov und M.I. Dyakonov, *Theory of helicity-sensitive terahertz detection by field effect transistors*, Apl. Phys. Lett. **102**, 153502 (2013).
- [54] M. Sakowicz, J. Lusakowski, K. Karpierz, M. Grynberg, W. Knap, und W. Gwarek, *Polarization sensitive detection of 100 GHz radiation by high mobility field-effect transistors*, Journal of Applied Physics **104**, 024519 (2008).
- [55] M. Sakowicz, J. Lusakowski, K. Karpierz, M. Grynberg, W. Gwarek, S. Boubanga, D. Coquillat, W. Knap, A. Shchepetov, und S. Bollaert, *A High Mobility Field-Effect Transistor as an Antenna for sub-THz Radiation*, AIP Conference Proceedings **1199**, 503 (2010).
- [56] E.L. Ivchenko und M.I. Petrov, *im Druck*, Phys. Solid State (2014).
- [57] L.E. Golub, *Emailkorrespondenz im August 2014*, .

Literaturverzeichnis

- [58] M. Mittendorff, S. Winnerl, J. Kamann, J. Eroms, D. Weiss, H. Schneider, und M. Helm, *Ultrafast graphene-based broadband THz detector*, Appl. Phys. Lett. **103**, 021113 (2013).

Danksagung

Zum Schluss möchte ich mich herzlich bei all jenen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. Vielen Dank an

- Prof. Dr. Dieter Weiss, der mich in seine Arbeitsgruppe aufgenommen und unterstützt hat, dieses interessante Thema zu ergründen.
- Prof. Dr. Sergey Ganichev, der mir stets bei der Interpretation meiner Messung geholfen hat und mir die Möglichkeit gab, die experimentellen Aufbauten seiner Arbeitsgruppe zu benutzen.
- Dr. Jonathan Eroms, der mir bei allen experimentellen und organisatorischen Problemen weitergeholfen hat.
- Prof. Dr. Leonid Golub für die Diskussionen zur Theorie.
- Claudia Rahm und Elke Haushalter für die Hilfestellung bei organisatorischen Fragen.
- Anton Humbs, Uli Gürster, Michael Weigl, Thomas Haller und Conny Linz für die technische Unterstützung.
- Martin Mittendorff und Stephan Winnerl vom HZDR für die tolle Zusammenarbeit und die Hilfe rund um den FEL.
- Dr. Jonathan Eroms und Dr. Peter Olbrich für das Korrekturlesen meiner Arbeit.
- Dr. Sergey Danilov für die Unterstützung am FEL in Dresden.
- die AG Ganichev für die Unterstützung an den Lasern.
- ehemalige und aktuelle Kollegen des Lehrstuhl Weiss für die angenehme Atmosphäre und den einen oder anderen Stammtisch.
- meine tatsächlichen und gefühlten Bürogenossen Flo, Sabine und Franz für die vielen Gespräche und Diskussionen rund um Physik und die großen und kleinen Probleme des Alltags.
- meine Eltern, die mir das Studium der Physik erst möglich gemacht haben.
- meine Frau Christina dafür, dass sie in jeder Lebenslage für mich da ist.