

Kohärente Terahertz-Quantenkontrolle und ultraschnelle Hochfeld-Dynamik in Halbleitern



DISSERTATION
ZUR ERLANGUNG DES DOKTORGRADES DER NATURWISSENSCHAFTEN
(DR. RER. NAT.)
DER FAKULTÄT FÜR PHYSIK DER UNIVERSITÄT REGENSBURG

VORGELEGT VON
THOMAS MAAG
AUS GUNZENHAUSEN
IM JAHR 2017

Das Promotionsgesuch wurde eingereicht am 13.07.2016

Die Arbeit wurde angeleitet von: Prof. Dr. Rupert Huber

Prüfungsausschuss:	Vorsitzender:	Prof. Dr. Andreas Schäfer
	1. Gutachter:	Prof. Dr. Rupert Huber
	2. Gutachter:	Prof. Dr. John Lupton
	weiterer Prüfer:	Prof. Dr. Franz J. Giessibl

Nature isn't classical, dammit, and if you want to make a simulation of nature, you'd better make it quantum mechanical, and by golly it's a wonderful problem, because it doesn't look so easy.

— Richard P. Feynman

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Das Materialsystem Galliumarsenid	7
2.1	Kristallstruktur und elektronische Eigenschaften von Galliumarsenid . .	7
2.2	Gitterschwingungen	9
2.3	Aluminiumgalliumarsenid	10
2.4	Zweidimensionale Elektronengase in Halbleiterheterostrukturen	10
3	Hochfeld-THz-Messplatz mit Femtosekunden-Zeitauflösung	15
3.1	Phasenstarre Impulse	15
3.2	Hochfeld-THz-Generation	17
3.2.1	Femtosekunden-Titan-Saphir-Laserverstärkersystem	18
3.2.2	Intensive THz-Felder durch optische Gleichrichtung mit verkippten Impulsfronten	21
3.2.3	Feldaufgelöste elektro-optische Detektion	25
3.3	Feldaufgelöste kollineare zweidimensionale THz-Spektroskopie	28
3.4	Mikroskopische THz-Photolumineszenz-Spektroskopie	33
4	Kohärente THz-Nichtlinearitäten eines Landau-quantisierten Elektronenga- ses	35
4.1	Dynamik von Ladungsträgern im homogenen Magnetfeld	37
4.2	Das Theorem von Kohn	41
4.3	Zeitaufgelöste THz-Spektroskopie eines Landau-quantisierten 2DEGs . .	44
4.4	Nichtlineare THz-Magnetospektroskopie mit starken THz-Impulsen . . .	48
4.5	Dynamik Landau-quantisierter Elektronen in GaAs-Quantentöpfen . . .	51
4.5.1	Klassisches Modell mit nichtparabolischer Energiedispersion . . .	51
4.5.2	Vielteilchen-Quantentheorie	52
4.5.3	Halbleiter-Blochgleichungen	54
4.5.4	Das Theorem von Kohn im Bild der Ionenfeld-Wechselwirkung .	57
4.5.5	Theoretische Ergebnisse	59

4.6	Kohärente THz-Nichtlinearitäten Landau-quantisierter Elektronen . . .	63
4.7	Das Zwei-Impuls-Experiment in der Vielteilchen-Quantentheorie	68
5	Nichtperturbative Interband-Anregung durch höchstintensive THz-Felder	73
5.1	Ponderomotives Potenzial	74
5.2	Interband-Zener-Tunneln	76
5.3	Überhöhung des elektrischen Nahfeldes in THz-Metamaterialien	77
5.4	THz-Anregung von Galliumarsenid mit atomar starken Lichtfeldern . .	80
5.4.1	Mikroskopische Photolumineszenzaufnahmen	81
5.4.2	Abschätzung der Ladungsträgerdichte	82
5.5	Nichtlineare THz-Antwort der Metamaterialien im Fernfeld	87
5.6	Zusammenfassung: Ladungsträgerdynamik	89
6	Zusammenfassung und Ausblick	95
	Anhang	99
A	Tunnelprozesse und elektronische Kopplung zwischen Elektronengasen	99
B	Das homogene Elektronengas und die Ionenfeld-Wechselwirkung	103
C	Publikationen	105
	Literaturverzeichnis	107

Einleitung

Moderne Computersysteme erreichen durch die fortschreitende Miniaturisierung der Transistorschaltungen heutzutage Taktraten im Gigahertz-Frequenzbereich [Cha14]. Die isolierende Schicht einer Gate-Elektrode besteht dabei oft nur noch aus wenigen Atomlagen. Bei derart kleinen Dimensionen treten quantenmechanische Prozesse auf, die den inkohärenten Stromtransport in konventionellen Halbleiter-Transistoren zusehends beeinflussen und die Geschwindigkeit künftiger Prozessoren ultimativ bestimmen dürften. Die Leistung moderner Rechensysteme kann in Zukunft aber noch weiter erhöht werden, wenn man direkt das elektrische Wechselfeld der optischen Strahlung nutzt und damit versucht, die Bewegung der Elektronen auf einer Zeitskala schneller als eine einzelne Lichtschwingung zu manipulieren. Dieses ultraschnelle Regime der kohärenten Lichtwellenelektronik [Gou07] wird die Entwicklung von Quantencomputern sowie die Quanteninformationsverarbeitung wesentlich mitgestalten [Cau10].

Bereits im Jahre 1982 schlug Richard P. Feynman vor, explizit die Gesetze der Quantenmechanik zu nutzen, um Probleme zu lösen, die mit klassischen Algorithmen und modernsten Hochleistungsrechnern nicht effizient berechnet werden können [Fey82]. In Quantensimulatoren wird die Information in Quanten-Bits (Qubits) gespeichert, die aus einer kohärenten Überlagerung von Basiszuständen bestehen. Die Informationsbausteine sind über Quanten-Gatter verbunden. Diese gestatten es, eine zeitlich steuerbare Wechselwirkung der Qubits untereinander oder mit der Umgebung zu induzieren. Ausschlaggebend ist, dass eine Rechenoperation auf alle möglichen Zustände eines Qubits gleichzeitig wirkt. Beim klassischen Computer wird dagegen nur eine Bitfolge manipuliert. Der Quantenparallelismus potenziert die Rechenleistung und schafft dadurch eine effiziente Grundlage, komplexe Vielteilchensysteme mit quantenmechanischen Algorithmen zu simulieren sowie verschränkte Qubits für die kryptografische Informationsverarbeitung nutzen [Lad10].

In Systemen wie ultrakalten Atomfallen mit einzelnen Atomen [Bla08, Wie99], Bose-Einstein-Kondensaten [Bas12, Blo12] oder supraleitenden Schwingkreisen [Nak99, Hou12] konnten bereits erste Protokolle zur Quantenkontrolle etabliert werden. Weitere bekannte Vertreter sind einzelne Quantenpunkte [Pre08] oder singuläre Farbzentren in Diamant [Hir16]. All diese Quantensysteme verfügen über einige wenige wohldefinierte Zustände und müssen durch Nanostrukturierung aufwändig hergestellt werden, um unerwünschte Wechselwirkung mit der umgebenden Materie bestmöglich auszuschließen. Des Weiteren wird die Taktrate durch die Übergangsenergie der Resonanzen auf den Megahertz-Frequenzbereich begrenzt. Eine vielversprechende Alternative, um Quanteninformationsverarbeitung mit THz¹-Taktfrequenzen zu etablieren, bieten die kollektiven elementaren Anregungen eines Festkörpers [Ul11]. Aufgrund der großen Anzahl an Teilchen und der Coulomb-Korrelation ist die Dephasierung von Quasiteilchen bei starker Anregung sehr komplex und läuft in der Regel auf der Sub-Pikosekundenzeitskala ab [Che01]. Eine ganz besondere kollektive Elementaranregung im Festkörper stellen Kristallelektronen im Magnetfeld dar [Lan30, Koh61]. Die auftretende Zyklotronresonanz weist eine sehr große Kohärenzzeit im Bereich von vielen Pikosekunden auf [Ari11, Zha14].

Elektronische Messmethoden sind im Allgemeinen leider zu langsam, um Elementaranregungen mit Resonanzen im THz-Frequenzbereich im kohärenten Quantenregime zu steuern. Für die erfolgreiche Manipulation wird ein ultrakurzer Steuerimpuls benötigt, der wie ein Funktionsgenerator auf der Femtosekundenzeitskala ($1 \text{ fs} = 1 \cdot 10^{-15} \text{ s}$) arbeitet, und ein wohldefiniertes und reproduzierbares elektrisches Feldprofil zur Verfügung stellt.

Die Entwicklung von Laserquellen mit ultrakurzen Lichtimpulsen [Spe91] in Verbindung mit effizienten THz-Emittlern und Detektoren hat die zeitaufgelöste Spektroskopie grundlegend verändert. Seit einigen Jahren können ultrabreitbandige, phasenstarre Wellenformen im gesamten fern- und mittelinfraroten Spektralbereich genutzt werden [Fer02, Ton07]. Der zeitliche Verlauf des elektromagnetischen Feldes eines Impulses ist im gesamten Impulszug identisch. Die Wellenform der THz-Transienten besteht oft nur noch aus einer oder wenigen Lichtschwingungen und wird mittels elektrooptischer Detektion präzise in der Zeitdomäne vermessen [Wu96, Hub00, Por14]. Die Zeitauflösung liegt dabei weit unterhalb der Oszillationsperiode der Trägerwelle. Mit dieser THz-Technologie gelingt es erfolgreich, die Vielteilchendynamik von niederenergetischen Elementaranregungen und das Wechselspiel mit anderen Quasiteilchen auf der Femtosekundenzeitskala zu analysieren [Hub01, Kai03, Gaa07, Gün09, Tur10, Mat14, AH14, Zha14]. Zusätzlich liegt die Energie der THz-Photonen mit einigen meV ($1 \text{ THz} \hat{=} 4,1 \text{ meV}$) mehrere Größenordnungen unterhalb von Interbandanregungen der meisten Halbleiter. Quasiteilchen im Festkörper können somit sehr stark angeregt werden, ohne dass ein dielektrischer Durchbruch her-

¹ $1 \text{ THz} = 1 \cdot 10^{12} \text{ Hz}$

vorgerufen wird [Kel65]. Die neueste Generation von intensiven THz-Lichtquellen [Heb04, Sel08, Jun10, Sch14, Kam13] liefert routinemäßig genügend Spitzenfeldstärke, um elementare Anregungen von kondensierter Materie im Sinne der Lichtwellenelektronik zu steuern. Zu diesen nichtlinearen Prozessen zählen erste kohärente Kontroll-Experimente [Lei08, Kam11], dynamische Bloch-Oszillationen [Sch14, Hoh15], Rekollisionen von Quasiteilchen [Zak12, Lan16], Interband-Zener-Tunneln [Jun12, Lan14] und Phasenübergänge [Liu12].

Diese Arbeit untersucht die THz-induzierte kohärente Vielteilchen-Wechselwirkung von elementaren Anregungen im Festkörper auf ultrakurzen Zeitskalen. Phasenstarre Wellenformen in einem Frequenzbereich um 1 THz werden genutzt, um Landau-quantisierte Ladungsträger in einem zweidimensionalen Elektronengas im Magnetfeld optisch nichtperturbativ anzuregen. Dabei gelingt es mit feldaufgelöster zweidimensionaler Hochfeld-THz-Spektroskopie erstmals, ein kohärentes Vielteilchensystem im Festkörper nichtlinear zu kontrollieren [Maa16]. Der momentane Polarisationszustand zwischen einzelnen Niveaus wird präzise über die Amplitude und den zeitlichen Verlauf der Wellenform eingestellt. Im Allgemeinen besitzen Inter-Landau-Übergänge eine besonders große Kohärenzzeit und antworten unter schwacher optischer Anregung linear, da sich reine Elektron-Elektron-Wechselwirkung nach dem Kohn-Theorem [Koh61] nicht auf die kollektive Dynamik des Vielteilchen-Oszillators auswirkt.

Mit feldaufgelöster zweidimensionaler THz-Spektroskopie beobachtet man bei Spitzenfeldstärken von nur 1,4 kV/cm bereits eindeutig kohärente nichtlineare Signale wie Vier-Wellen-Mischen (englisch: four-wave mixing, kurz: FWM). Bei dreifacher Amplitude zeigt sich eine unerwartet stark anharmonische Polarisationsantwort des Landau-Systems. Dazu zählen Signale von Sechs-Wellen-Mischen und ein FWM-Signal, das die nichtlineare Polarisationsantwort dominiert. In diesem Regime wird innerhalb eines Halbzyklus der Trägerwelle eine kohärente Superposition von elektronischen Zuständen induziert, die sich über sechs Landau-Niveaus erstreckt. Die Quantendynamik des Systems läuft für mehrere Pikosekunden kohärent ab und kann noch detektiert werden, wenn beide Lichtfelder keinen zeitlichen Überlapp mehr aufweisen. Der quantitative Vergleich der Messdaten mit einer numerischen Vielteilchentheorie in der Zeitdomäne, entwickelt in der Gruppe von Prof. Dr. Mackillo Kira und Prof. Dr. Stephan W. Koch in Marburg, zeigt, dass die optische Antwort in diesem Regime durch die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Elektronen und dem positiv geladenen Ionenhintergrund modifiziert wird. Damit wird ein neuer Grenzbereich kohärenter Landau-Vielteilchendynamik jenseits des Kohn-Theorems erschlossen.

In einem weiteren Experiment werden Nahfelder von Antennenstrukturen (Metamate-

rialien) aus Gold genutzt, um atomar starke Terahertz-Lichtimpulse zu erzeugen, die im undotierten Volumenhalbleiter Galliumarsenid eine extrem nichtlineare Polarisation auslösen. Die überhöhten elektrischen Felder sind mit Spitzenfeldstärken von 12 MV/cm so stark, dass die Ladungsträger durch quasistatisches Interband-Zener-Tunneln während eines Halbzylus der THz-Trägerwelle ins Leitungsband angeregt werden. Die ponderomotive Energie der Elektronen beträgt während dieses Prozesses mehrere keV und vergrößert die Dichte der Ladungsträgerpopulation aufgrund von Stoßionisation auf Werte in der Größenordnung von insgesamt 10^{19} cm^{-3} . Diese THz-induzierte Generation von Ladungsträgern auf ultrakurzen Zeitskalen äußert sich in Form einer breitbandigen Photolumineszenz. Die Energien der emittierten Photonen ist dabei bis zu 500 meV größer als die fundamentale Bandlücke im Material. In der Zeitdomäne beobachtet man eine nicht-lineare Selbstamplitudenmodulation der THz-Transmission, die durch eine ultraschnelle Abschirmung der Metamaterialresonanz innerhalb von etwa 30 fs verursacht wird. Die feldaufgelöste Lichtwellenelektronik eröffnet mit den Ergebnissen dieser Arbeit neue Perspektiven für die Analyse und Kontrolle unerforschter kohärenter Quantenphänomene in Vielteilchensystemen auf der Femtosekundenzeitskala und die optische Informationsverarbeitung mit THz-Taktraten.

Im ersten Abschnitt dieser Arbeit (**Kapitel 2**) wird ein Überblick über die wichtigsten elektronischen Eigenschaften des Volumenhalbleiters Galliumarsenid gegeben. Zusätzlich werden die notwendigen Schritte erläutert, um ein chemisch dotiertes Elektronengas mit gleichzeitig sehr großer Beweglichkeit und Ladungsträgerkonzentration in Galliumarsenid-Quantentöpfen zu erzeugen.

Kapitel 3 stellt den Aufbau der feldaufgelösten Terahertz-Hochfeld-Spektroskopie vor. Damit wird die Dynamik von optisch nichtperturbativ angeregten Ladungsträgern direkt in der Zeitdomäne verfolgt. Auf zwei Strahlwegen verlaufen phasenstarre THz-Transienten, die aus wenigen Lichtschwingungen bestehen und in einem Frequenzbereich zwischen 0,2 THz und 3 THz liegen. Einer der beiden Zweige wird zur intensiven optischen Anregung benutzt und weist elektrische Spitzenfeldstärken im freien Raum von 1,5 MV/cm auf. Die THz-Impulse im anderen Pfad besitzen eine maximale Feldstärke von 90 V/cm. Durch die Überlagerung der beiden Lichtfelder am Ort der Probe können die kohärenten Nichtlinearitäten der Ladungsträger als Funktion der relativen Verzögerungszeit zwischen den beiden Lichtimpulsen und der elektro-optischen Abtastzeit analysiert werden. Eine Fourier-Transformation der zeitaufgelösten 2D-Polarisationsantwort gestattet es, die unterschiedlichen Nichtlinearitäten isoliert auszuwerten. Der letzte Abschnitt erläutert die Methode der Interband-Spektroskopie. Diese wird genutzt, um die angeregte Ladungsträgerpopulation eines Halbleiters als Funktion der THz-Feldstärke zu untersuchen.

Kapitel 4 beschreibt das erste zeitaufgelöste Experiment zur kohärenten Terahertz-Quantenkontrolle eines Vielteilchensystems im Festkörper [Maa16]. Mit zweidimensionaler THz-Hochfeld-Spektroskopie wird die nichtlineare Quantendynamik eines optisch angeregten Elektronengases zeitaufgelöst gemessen. Im Experiment erzeugen intensive THz-Impulse im Elektronengas eine Superposition von Vielteilchenzuständen, die sich über sechs Landau-Niveaus erstreckt. Die Quantendynamik wird in diesem Regime durch kohärente THz-Nichtlinearitäten charakterisiert. Damit ist es jenseits der Erwartung des Kohn-Theorems möglich, die elektronischen Zustände der kollektiven Elementaranregung auf einer Zeitskala schneller als eine Lichtschwingung zu kontrollieren. Der quantitative Vergleich mit einer mikroskopischen Vielteilchen-Quantentheorie belegt, dass die nichtlineare Dynamik von Landau-Systemen bei starker resonanter Anregung durch Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Elektronen und den positiven geladenen Ionen in der entfernten Dotierschicht hervorgerufen wird. Dieses Experiment demonstriert damit erstmals, dass Coulomb-Korrelation von Quasiteilchen direkt genutzt werden kann, um ein Vielteilchensystem im kohärenten Quantenregime nichtlinear zu kontrollieren.

Im Experiment in **Kapitel 5** werden intensive THz-Lichtimpulse im Frequenzbereich um 1 THz verwendet, um den undotierten Volumenhalbleiter Galliumarsenid mit atomar starken Lichtfeldern anzuregen [Lan14]. Nach einer kurzen Einführung der möglichen Prozesse bei starker Anregung von kondensierter Materie mit intensiver Infrarotstrahlung, wird die elektrische Feldüberhöhung von resonanten Antennenstrukturen (Metamaterialien) sowie Abschirmungseffekte durch ein induziertes Ladungsträgerplasma mit numerischen Simulationen berechnet. Im Experiment weisen die Nahfelder der Metamaterialien Spitzenfeldstärken von über 10 MV/cm auf und polarisieren das Material so stark, dass innerhalb einer einzelnen Lichtschwingung quasistatisches Interband-Zener-Tunneln einsetzt. Dieser Prozess erzeugt während weniger 100 fs in Verbindung mit einer Kaskade von Stoßionisationsprozessen eine massive Population an Ladungsträgern. Mit Photolumineszenz-Spektroskopie wird spektral aufgelöst analysiert, bei welchen Energien das heiße Ladungsträgerplasma strahlend in den Grundzustand relaxiert. In der Zeitdomäne zeigt die elektro-optische Detektion eine ultraschnelle Selbstamplitudenmodulation der Metamaterialresonanz. In Kombination mit einer Ladungsträgerdichte an der Grenze der Besetzungsinversion eröffnen sich somit neue Ansätze für ultraschnelle optoelektronische Schaltelemente oder THz-gepumpte, plasmonische Nahinfrarotnanolaser.

Kapitel 6 enthält eine kurze Zusammenfassung der wichtigsten Ergebnisse in der vorliegenden Arbeit und gibt einen Ausblick auf fundamental neue Experimente, die mit feldaufgelöster Hochfeld-THz-Spektroskopie und Femtosekunden-Zeitauflösung möglich sind.

Das Materialsystem Galliumarsenid

Alle experimentellen Untersuchungen dieser Arbeit werden an epitaktisch gewachsenen und damit hochreinen Proben aus Galliumarsenid (GaAs) und Heterostrukturen auf GaAs-Basis durchgeführt. Von zentraler Bedeutung ist die Herstellung eines hochbeweglichen, zweidimensionalen Elektronengases (2DEG) zur kohärenten THz-Kontrolle von Elektronen im Magnetfeld. Die Schichtstrukturierung der Verbindung Aluminiumgalliumarsenid und einer dünnen GaAs-Schicht erzeugt einen rechteckförmigen Potenzialtopf. Die Dotierung der Potenzialbarrieren mit Störatomen induziert im GaAs-Quantenfilm ein hochbewegliches 2DEG. Da die de-Broglie-Wellenlänge der elektronischen Wellenfunktion in der gleichen Größenordnung liegt wie die Breite der Quantentöpfe, beeinflussen quantenmechanische Effekte die Dynamik der Elektronen in Wachstumsrichtung. Diese werden im Verlauf des Kapitels herausgearbeitet.

2.1 Kristallstruktur und elektronische Eigenschaften von Galliumarsenid

Aus der Gruppe der III-V-Verbindungshalbleiter ist Galliumarsenid der wichtigste Vertreter und das am besten untersuchte Material. Durch seine hohe Elektronenbeweglichkeit findet es breite Verwendung in der Hochfrequenztechnik und in optoelektronischen Anwendungen. GaAs kristallisiert in der Zinkblendestruktur und besitzt bei Raumtemperatur eine Gitterkonstante von $a = 5,65 \text{ \AA}$. Die zugehörige Einheitszelle ist in Abbildung 2.1a dargestellt. Das Kristallgitter besteht aus zwei kubisch-flächenzentrierten Untergittern, die gegeneinander um den Vektor $(\frac{a}{4}, \frac{a}{4}, \frac{a}{4})$ verschoben sind. Die Kristallstruktur hat somit kein Inversionszentrum. Abbildung 2.1b zeigt die elektronische Bandstruktur von GaAs. Übergänge, die im k -Raum senkrecht verlaufen, sind dipolerlaubt. Im Zentrum des k -

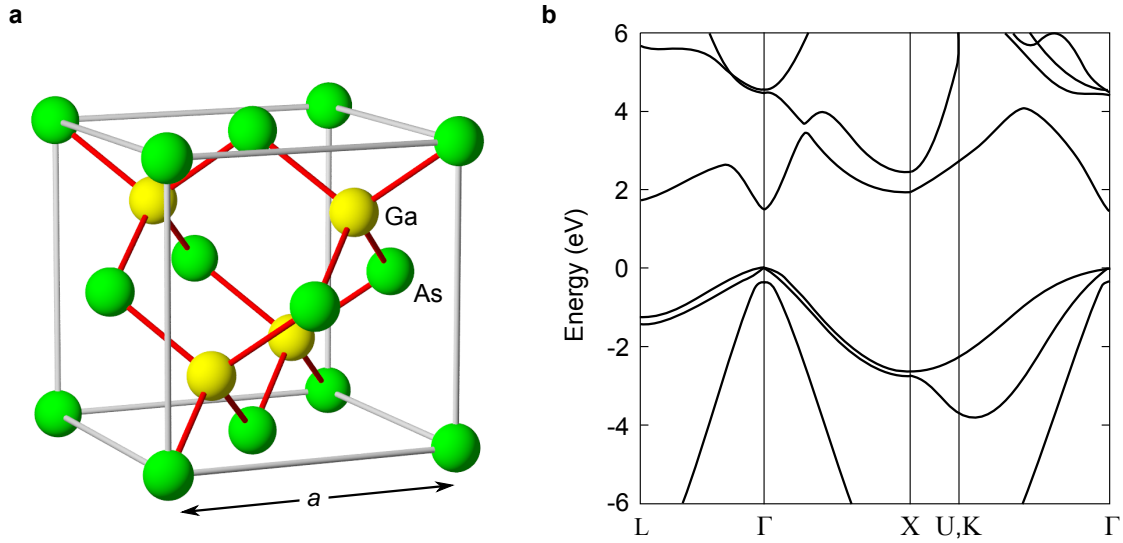


Abbildung 2.1: Kristallstruktur und elektronische Bandstruktur von Galliumarsenid. **a**, Zinkblendekristallstruktur von GaAs. Die gelben Kugeln zeigen Galliumatome (Ga), die grünen Kugeln symbolisieren Arsenatome (As). Die Gitterkonstante ist mit a bezeichnet. **b**, Elektronische Einteilchen-Bandstruktur von GaAs berechnet mit einer 30-Band $k \cdot p$ -Störungstheorie (nach [Ric04]).

Raumes, dem Γ -Punkt in der Brillouinzone, besitzen die Maxima der Valenzbänder und das globale Minimum der Leitungsbänder den gleichen Wellenvektor $\mathbf{k} = 0$. Die Energie der Bandlücke E_g beträgt bei Raumtemperatur 1,42 eV. In der Nähe des Γ -Punktes ist das Leitungsband räumlich isotrop und besitzt in guter Näherung eine parabolische Energiedispersion. Aus der Krümmung des Bandes resultiert eine effektive Elektronenmasse $m_c^* = 0,067 m_e$, mit der Ruhemasse des freien Elektrons m_e . Die elektronischen Eigenzustände sind zweifach spinentartet und setzen sich vorwiegend aus s-artigen Blochwellenfunktionen und ebenen Wellen zusammen. Mit steigendem Wellenvektor flacht das Band zunehmend ab. Diese Nichtparabolizität der Energiedispersion kann phänomenologisch über folgende Gleichung beschrieben werden [Pfe96, Bla11]:

$$E(k)[1 + \eta E(k)] = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_c^*} \quad \text{mit } \eta = 1,06 \text{ eV}^{-1} \quad (2.1)$$

Die Seitentäler an den nächsten Symmetriepunkten, dem L- und X-Punkt, liegen energetisch etwa 300 – 400 meV höher und sind in ihrer Dispersion flacher [Vur01]. Betrachtet man die Dispersionsrelation in der Nähe des Γ -Punktes für die Valenzbandelektronen, so ergibt sich eine deutlich kompliziertere Situation. Aufgrund der p-artigen Atomni-

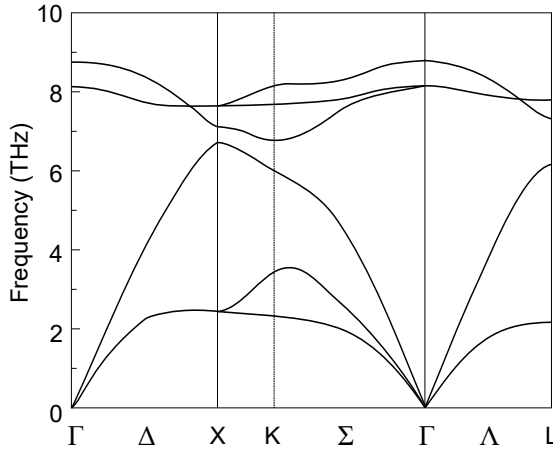


Abbildung 2.2: Quantisierte Phononenzustände in GaAs. Dispersionskurven der möglichen Schwingungsmoden (nach [Str90]).

veaus entsteht eine sechsfache Entartung der Elektronenzustände. Ohne Spinentartung, können am Γ -Punkt insgesamt drei Valenzbänder besetzt werden. Die ersten beiden, das Schwerlochband (englisch: heavy-hole, kurz: hh) und das Band der leichten Löcher (englisch: light-hole, kurz: lh) sind bei $\mathbf{k} = 0$ energetisch entartet. Für lh-Löcher ist die Dispersion im Bereich des Γ -Punktes in guter Näherung sphärisch parabolisch. Die effektive Elektronenmasse beträgt dort $m_{\text{lh}}^* = 0,076 m_e$. Die Energiedispersion der hh-Löcher ist dagegen stark richtungsabhängig. Zum Beispiel wird die Elektronenmasse in $[111]$ -Richtung mit $m_{\text{hh}}^{[111]} = 0,8 m_e$ angegeben, in $[100]$ -Richtung beträgt der Wert dagegen nur $m_{\text{hh}}^{[100]} = 0,4 m_e$. Spielt die anisotrope Dispersion zur Interpretation der experimentell ermittelten Daten keine Rolle, genügt es oft eine gemittelte effektive Schwerlochmasse von $m_{\text{hh}}^* = 0,5 m_e$ anzunehmen. Die Entartung der Valenzbandzustände wird teilweise durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung aufgehoben und führt zu einem um etwa 340 meV tiefer liegenden, abgespaltenen Valenzband (englisch: split-off, kurz: so). Die effektive Masse beträgt dort $m_{\text{v,so}}^* = 0,172 m_e$ [Vur01].

2.2 Gitterschwingungen

Die Schwingungszustände eines Kristallgitters lassen sich in Analogie zur Energie-Impuls-Beziehung der Elektronen durch Phononen mit einem Wellenvektor \mathbf{q} beschreiben. In GaAs führt die zweiatomige Basis der primitiven Einheitszelle dazu, dass es in den Dispersionskurven insgesamt sechs Phononäste gibt (Abbildung 2.2). Drei davon werden als akustische, die anderen als optische Phononzweige bezeichnet. Betrachtet man die Auslenkung entlang einer hochsymmetrischen Richtung des Kristalls, können zwei weitere Untergruppen der Schwingungszustände beschrieben werden. Die Atome der transversalen Moden (TA, TO) oszillieren senkrecht zum Wellenvektor, die der longitudinalen Eigen-

schwingungen (LA, LO) parallel. Von besonderer Bedeutung sind die optischen Schwingungszustände, da diese auch im Zentrum der Brillouinzone ($\mathbf{k} = 0$) ein elektrisches Dipolmoment aufweisen. Das TO-Phonon besitzt hier eine Energie von $E_{\text{TO}} = 30 \text{ meV}$. Da die Schwingungsebene der LO-Phononen parallel zum Wellenvektor \mathbf{q} verläuft, weisen diese Zustände ein makroskopisches Polarisationsfeld auf. Dies führt im Vergleich zum TO-Phonon zu einer leicht erhöhten Rückstellkraft und Energie von $E_{\text{LO}} = 36 \text{ meV}$.

Elektronen im Festkörper können direkt mit diesen Gitterschwingungen wechselwirken. Die Korrelation induziert allerdings eine schnelle Dephasierung des angeregten Elektronenzustandes. Longitudinal optische Phononen beeinflussen also im besonderen Maße die Kohärenz von hochangeregten Quantenzuständen in Galliumarsenid.

2.3 Aluminiumgalliumarsenid

Ein weiterer wichtiger Vertreter aus der Gruppe der III-V-Halbleiter ist die Verbindung Aluminiumgalliumarsenid (AlGaAs). Diese besitzt ebenfalls eine Zinkblendestruktur und ist, wie der Name andeutet, eine Legierung aus GaAs und Aluminiumarsenid (AlAs). Letztgenannter ist ein indirekter Halbleiter, der bei Raumtemperatur eine fundamentale Bandlücke von $E_g = 2,23 \text{ eV}$ besitzt. Das Mischungsverhältnis in AlGaAs zwischen Aluminium- und Galliumatomen wird mit x angegeben ($\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$). Eine Besonderheit dieser Legierung ist, dass man durch das Verhältnis x gezielt zwischen den elektronischen Eigenschaften von AlAs und GaAs interpolieren kann. So besitzt $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ bei tiefen Temperaturen und einem Mischungsverhältnis von $x \leq 0,38$ eine direkte Bandlücke. Für $x > 0,38$ wird AlGaAs zum indirekten Halbleiter [Vur01].

Der sehr geringe Unterschied in den Gitterkonstanten der Verbindungen GaAs und AlAs gestattet es, $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ nahezu verspannungsfrei auf GaAs aufzuwachsen. Mit modernen Verfahren wie der Molekularstrahlepitaxie können dadurch einkristalline Schichten verschiedener Halbleitermaterialien mit Dicken von nur wenigen Atomlagen quasi defektfrei hergestellt werden.

2.4 Zweidimensionale Elektronengase in Halbleiterheterostrukturen

Heterostrukturierung ermöglicht es, die Energielandschaft für Elektronen im Festkörper gezielt zu manipulieren. Dies wird in Abbildung 2.3a an der Grenzfläche von n-dotiertem AlGaAs und intrinsischem GaAs illustriert. Beim Kontakt der beiden Materialien diffundieren freie Ladungsträger unter Abgabe der Energie ΔE_C aus AlGaAs in den Bereich von

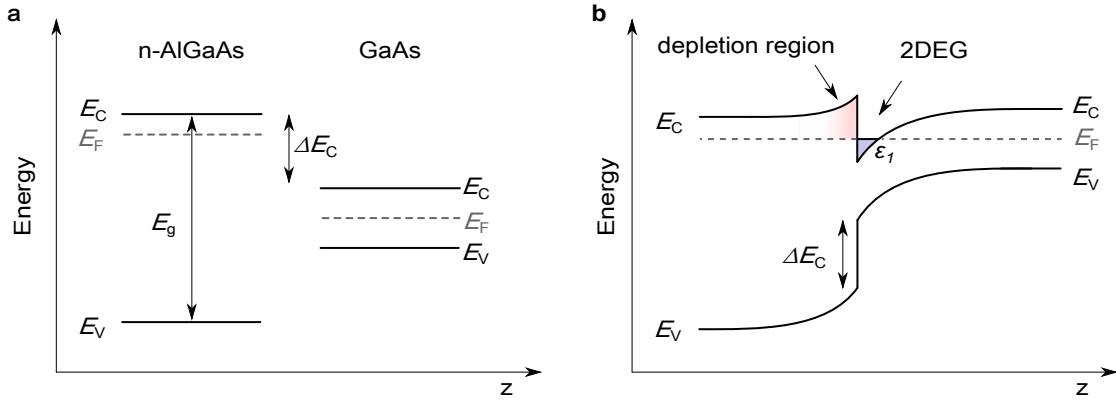


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung des Bandverlaufes und Ausbildung eines Elektronengases an der Grenzfläche zwischen n-dotiertem AlGaAs und intrinsischem GaAs. a, Energieschema vor dem Kontakt. Die Leitungs- und Valenzbänder werden mit E_C beziehungsweise mit E_V angegeben. Die Fermi-niveaus werden mit E_F bezeichnet. Bringt man die beiden Materialien in Kontakt, diffundieren Elektronen aus AlGaAs unter Abgabe von ΔE_C nach GaAs. **b,** Gleichgewichtszustand nach dem Kontakt. Die Fermi-niveaus gleichen sich an, es bildet sich eine Raumladungszone aus und an der Grenzfläche entsteht eine Bandverbiegung. Im roten Bereich befinden sich vorwiegend ionisierte Donatoratome. Die Elektronen bleiben aufgrund des Energieunterschiedes ΔE_C im dreiecksförmigen Potenzialminimum eingeschlossen (blauer Bereich, 2DEG). Die geringe Ausdehnung des Potenzialtopfes induziert eine Aufspaltung der Leitungsbandzustände in Leitungssubbänder. Das niedrigste Energie-Niveau wird hier mit ε_1 bezeichnet.

GaAs. Analog zu einem homogenen p-n-Übergang bildet sich eine Raumladungszone (Abbildung 2.3b, roter und blauer Bereich) aus, die weiter wächst, bis sich die Fermi-niveaus angeglichen haben. Reversible Driftströme der freien Ladungsträger sind an heterogenen Grenzflächen durch die unterschiedlichen Leitungsbandenergien der Größe ΔE_C nicht möglich. Vielmehr induziert die Bandverbiegung die Ausbildung eines dreiecksförmigen Potenzialminimums (englisch: quantum well, kurz: QW). Die Ausdehnung beträgt typischerweise nur einige Nanometer und liegt damit auf der gleichen Größenordnung wie die de-Broglie-Wellenlänge der elektronischen Zustände. Die freie Bewegung im Volumenmaterial in Wachstumsrichtung, der z-Richtung, wird somit quantisiert. Das Leitungsband spaltet in Subbänder ε_n auf, wobei $n \in \mathbb{N}$ das n-te Subband bezeichnet. Das erste Subband ε_1 ist in Abbildung 2.3b eingezeichnet. Die Elektronenbewegung in den anderen beiden Raumdimensionen bleibt frei. Man spricht von einem zweidimensionalen Elektronengas (englisch: two-dimensional electron gas, kurz: 2DEG). Im Unterschied zum Volumenhalbleiter ist die Zustandsdichte eines 2DEGs innerhalb eines Subbandes konstant [Kit05].

Die Energiedispersion schwach wechselwirkender Elektronen innerhalb eines Potenzialtopfes kann in die quantisierte Bewegung in z-Richtung mit Wellenvektor k_z sowie in die

freie Bewegung parallel zur Grenzfläche $k_{\parallel} = (k_x, k_y)$ zerlegt werden. Es gilt:

$$E_n(\mathbf{k}) = \varepsilon_n(k_z) + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m_c^*} . \quad (2.2)$$

Die modulierte Dotierung der Quantentöpfe, also das Einbringen von Störatomen in das Barrierematerial, bringt einen entscheidenden Vorteil gegenüber stöchiometrischer Dotierung von Halbleitersystemen. Die heterogene Grenzfläche trennt die Elektronen räumlich von ihren Donator-Atomrümpfen. Dadurch wird die Störstellenstreuung im Vergleich zu konventionell dotierten GaAs-Volumenmaterialien um mehrere Größenordnungen unterdrückt [Dav97].

Für eine noch bessere Elektronenbeweglichkeit wurde im Rahmen dieser Arbeit eine besondere Halbleiterheterostruktur epitaktisch gewachsen. Das zugehörige Profil des Leitungsbandes der Probe ist in Abbildung 2.4 dargestellt. Das Ziel ist es, innerhalb der QWs eine möglichst homogene, streuarmer Umgebung der Elektronen zu generieren. Dazu werden in dieser Probe zwei GaAs-Potenzialtöpfe gewachsen, die von $\text{Al}_{0,24}\text{Ga}_{0,74}\text{As}$ -Barrieren umgeben sind und eine Breite von je 30 nm besitzen. Der Aluminium-Anteil von 25% führt zu einer Potenzialbarriere von etwa 220 meV. Die kurze Schichtfolge erzeugt im Vergleich zu einer einzelnen Grenzschicht (Abbildung 2.3b) einen nahezu rechteckförmigen Potenzialverlauf in den QWs. Die Dotierung wurde in Form einer wenigen Nanometer dünnen Siliziumschicht (δ -Si) symmetrisch um die Quantentöpfe mit einem Abstand von 72 nm realisiert. Dadurch minimieren sich Streukanäle deutlich, was durch eine experimentell bestimmte Beweglichkeit der Elektronen von $\mu_e = 4.6 \cdot 10^6 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ unter kryogenen Temperaturbedingungen bestätigt ist. Die symmetrische Potenziallandschaft der Heterostruktur ermöglicht es zusätzlich, in jeden Quantentopf eine identisch hohe Ladungsträgerkonzentration von $\rho_e = 1.6 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ einzubringen, ohne dabei die Elektronenbeweglichkeit zu beeinträchtigen. Alle Proben in dieser Arbeit wurden in der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Dominique Bougeard an der Universität Regensburg hergestellt.

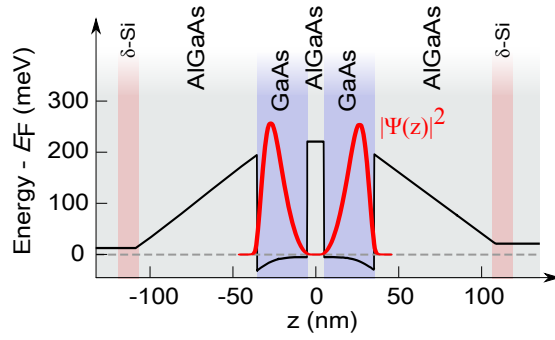


Abbildung 2.4: Räumliches Profil des Leitungsbandes der Halbleiterheterostruktur. Berechneter Leitungsbandoffset zur Fermikante E_F als Funktion des Ortes z (schwarze Linie). Die Elektronen befinden sich in den GaAs-Quantentöpfen (blauer Bereich) und sind von $\text{Al}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ -Barrieren umgeben (graue Flächen). Die Dotierung geschieht symmetrisch im Abstand von 72 nm zu den 2DEGs (δ -Si, roter Bereich). Die rote Linie zeigt die Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichte $|\Psi(z)|^2$ der Elektronen im Quantentopf. Die Berechnungen wurden mit einer kommerziellen Software durchgeführt, die mittels einer numerischen k-p-Methode die Schrödingergleichung selbstkonsistent löst [Bir07].

Hochfeld-THz-Messplatz mit Femtosekunden-Zeitauflösung

In diesem Kapitel wird die Methode der zeitaufgelösten zweidimensionalen Hochfeld-Spektroskopie mit phasenstarken THz-Impulsen beschrieben. Die Grundlage bildet ein Titan-Saphir-Laserverstärkersystem. Die breitbandigen Nahinfrarotimpulse werden verwendet, um optische Gleichrichtung in nichtlinearen Kristallen zu treiben. Besonderes Augenmerk gilt dabei der nichtkollinearen THz-Generation durch verkippte Impulsfronten. Mit dieser Technologie werden besonders hohe elektrische Felder im niederenergetischen Spektralbereich erzeugt. Im Anschluss wird auf die kollineare Phasenanpassung in Zinkblendekristallen eingegangen, mit der schwache phasenstarke THz-Abtastimpulse generiert werden. Der nächste Abschnitt beschreibt die technische Umsetzung der elektrooptischen Detektion. Damit wird die Wellenform der abgestrahlten elektrischen Felder im freien Raum mit absoluter Amplitude und Phase mit Femtosekunden-Präzision aufgezeichnet. Im weiteren Verlauf wird die Funktionsweise der feldaufgelösten kollinearen zweidimensionalen THz-Spektroskopie herausgearbeitet, die es gestattet, ultraschnelle optisch nichtlineare Prozesse direkt in der Zeitdomäne zu studieren. Der letzte Abschnitt diskutiert die Methode der mikroskopischen THz-Photolumineszenz-Spektroskopie. Diese wird verwendet, um die THz-induzierte Ladungsträgergeneration über die fundamentale Bandlücke in intrinsischen Halbleitermaterialien zu analysieren.

3.1 Phasenstarre Impulse

Für die gezielte kohärente nichtlineare Kontrolle von elementaren Anregungen ist es von zentraler Bedeutung intensive Lichtimpulse zu verwenden, bei denen der zeitliche Verlauf

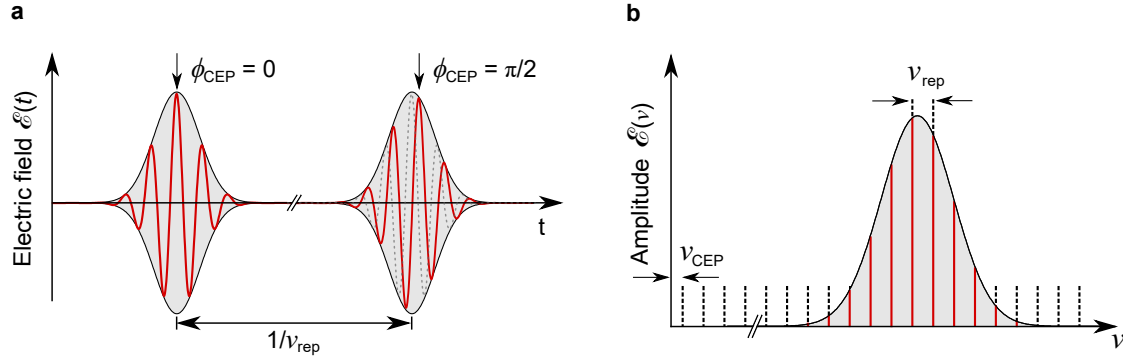


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der Trägerwellen-Einhüllenden-Phase eines Lichtimpulses. **a.** Die rote Kurve zeigt die Trägerwelle des Impulszuges, die schattierte Fläche stellt die Einhüllende des Impulses dar. Der zeitliche Versatz des Maximums der Trägerwelle relativ zur Impulseinhüllenden beschreibt die Trägerwellen-Einhüllenden-Phase $\Delta\phi_{\text{CEP}}$. **b.** Bildung eines Frequenzkamms durch Fouriertransformation des Impulszuges analog **a**. Die roten Linien sind im äquidistanten Abstand der Laserrepetitionsrate ν_{rep} angeordnet. Der gesamte Frequenzkamm wird durch die Trägerwellen-Einhüllenden-Phase um ν_{CEP} vom Ursprung verschoben.

der Trägerwelle im gesamten Impulszug exakt identisch ist [Kam13]. Nur dann kann für jeden Laserschuss garantiert werden, dass elektronische Quantenzustände mit einer identischen Phasenlage angeregt werden. Phasenstabilität in Lichtimpulsen ist genau dann erfüllt, wenn die Phase zwischen der Trägerwelle und der Impulseinhüllenden, die so genannte Trägerwellen-Einhüllenden-Phase (englisch: carrier envelope phase, kurz: CEP), verschwindet. Für Lichtimpulse aus typischen Femtosekunden-Lasersystemen (Abschnitt 3.2.1) ist diese Situation im Allgemeinen nicht erfüllt, da sich im aktiven Lasermedium die Gruppen- und Phasengeschwindigkeiten der propagierenden Strahlung unterscheiden [Jon00, Cun02]. Damit ändert sich die Phase der Trägerwelle des Lichtimpulses während eines Umlaufs im Resonator um ein ganzzahliges Vielfaches einer festen Phasenbeziehung ϕ_{CEP} . Abbildung 3.1a zeigt als Beispiel eine CEP von 90° zwischen zwei aufeinanderfolgenden Impulsen.

Die Fouriertransformation eines solchen Impulszuges liefert einen Frequenzkamm mit äquidistanten Spektrallinien (Abbildung 3.1b). Die Abstände der Linien werden durch die Repetitionsrate ν_{rep} des Laserresonators festgelegt. Im Frequenzraum wird die Phasenverschiebung $\Delta\phi_{\text{CEP}}$ als konstanter Frequenzabstand ν_{CEP} vom Ursprung abgebildet. Die Position jeder einzelnen Spektrallinie definiert sich über:

$$\nu_m = \nu_{\text{CEP}} + m \cdot \nu_{\text{rep}}, \quad \text{mit } \nu_{\text{CEP}} = \frac{\Delta\phi_{\text{CEP}}}{2\pi} \nu_{\text{rep}}, \quad m \in \mathbb{N}. \quad (3.1)$$

Bei bestimmten optisch nichtlinearen Phänomenen, wie der optischen Gleichrichtung

(englisch: optical rectification, kurz: OR) oder der Differenzfrequenzgeneration (kurz: DFG), werden zwei Photonen aus dem gleichen Frequenzkamm zu einem Photon im THz-Spektralbereich gemischt. Die Frequenz des Photons entspricht der Differenzfrequenz zwischen zwei Spektrallinien:

$$\nu_k - \nu_l = (k - l) \cdot \nu_{\text{rep}} + \frac{\Delta\phi_{\text{CEP}}}{2\pi} - \frac{\Delta\phi_{\text{CEP}}}{2\pi} = m \cdot \nu_{\text{rep}} . \quad (3.2)$$

Stammen die Photonen aus der gleichen Laserquelle, heben sich die CEP-Fluktuationen intrinsisch auf. Alle Impulse, die durch DFG- oder OR-Prozesse innerhalb eines Impulszuges erzeugt werden, sind identische Kopien von sich selbst ($\nu_{\text{CEP}} = 0$). Das elektrische Feld der phasenstarken THz-Impulse kann damit als absolute Größe in Amplitude und Phase mit stroboskopischen Messmethoden genau bestimmt werden (siehe Abschnitt 3.2.3).

3.2 Hochfeld-THz-Generation

Ultrakurze, phasenstarke Laserimpulse im THz-Spektralbereich bieten eine einzigartige Möglichkeit, kollektive Elementaranregungen im Festkörper mit Femtosekunden-Zeitauflösung und hoher Sensitivität zu beobachten [Hub01, Kai03, Gaa07, Mat14, Zha14]. Elektrische Spitzenfeldstärken in der Größenordnung von 10^5 V/cm reichen oft schon aus, um Materie stark aus ihrem Gleichgewichtszustand anzuregen oder kohärent zu kontrollieren [Lei08, Kam11, Kam13]. Noch intensivere THz-Strahlung, die eine Amplitude im elektrischen Feld erreicht, wie sie auf atomarer Längenskala im Festkörper auftritt, war lange Zeit kostenintensiven Großforschungseinrichtungen vorbehalten. Dort stellen freie Elektronenlaser oder lineare Teilchenbeschleuniger THz-Impulse zur Verfügung, die Energien von mehreren μJ besitzen [Car02, She07]. Lag die Repetitionsrate dieser THz-Quellen meist im Bereich von wenigen 10 Hz und die Zeitauflösung bei mehreren 10 fs, so zeigen jüngste Ergebnisse, dass zukünftig auch aus Teilchen-Beschleunigern mit stabilen THz-Impulsen mit Spitzenfeldstärken im MV/cm-Bereich zu rechnen ist [Gre16].

Kompakte, Tisch-basierte fs-Laserverstärkersysteme erzielen bereits mit weitaus weniger technischem Aufwand weit intensivere THz-Impulse. Im Multi-THz-Frequenzbereich ist man beispielsweise in der Lage, durch Differenzfrequenzgeneration in optisch nichtlinearen Kristallen breitbandige, höchstintensive THz-Felder zu generieren, die Impulsenergien bis zu $19 \mu\text{J}$ besitzen und Rekordspitzenfeldstärken über 100 MV/cm erreichen [Sel08, Sel10]. Die Zentralfrequenz der Laserimpulse ist dabei in einem Bereich von 10 THz bis 70 THz frei durchstimmbar.

Mit atomar starken elektrischen THz-Feldern können im Festkörper extreme Nichtlinearitäten wie zum Beispiel dynamische Bloch-Oszillationen [Sch14, Hoh15] oder Rekoll-

sionen von Elektron-Loch-Paaren [Lan16] bei Raumtemperatur kontrolliert werden. Diese ultraschnellen und vollständig kohärenten Transportphänomene eines Vielteilchen-Quantensystems können dabei durch die inhärente Phasenstabilität der THz-Impulse auf einer Zeitskala vermessen werden, die weit unterhalb der Oszillationsperiode der Trägerwelle liegt.

Im niederenergetischen THz-Spektralbereich erreichten lange Zeit nur elektrisch vorgespannte Antennen auf GaAs-Wafern Spitzenfeldstärken bis maximal 350 kV/cm [Zha90, Jep96, Dre06]. Alternativ konnte demonstriert werden, dass auch durch Fokussierung intensiver Nahinfrarotstrahlung in Gasen breitbandige, phasenstarre THz-Felder entstehen [Ham93]. Bei geschickter zweifarbigter Anregung eines Gasfilaments erreicht die elektrische Feldstärke der Lichtimpulse Werte bis 400 kV/cm [Clo12].

Einfacher in der Handhabung sind großflächige nichtlineare Kristalle, die zur OR von intensiven NIR-Impulsen genutzt werden. Verwendet man NIR-Impulse mit Energien über 45 mJ und einen ZnTe-Kristall von fast zehn Zentimetern Durchmesser, werden bei einer geringen Wiederholrate von etwa 100 Hz THz-Lichtimpulse mit Energien bis 1,5 μ J erreicht [Bla07]. Hochintensive THz-Transienten können aufgrund der endlichen Phasenadaptation in den nichtlinearen Kristallen nur schmalbandig erzeugt werden. Des Weiteren liegt die Umwandlungseffizienz von NIR-Strahlung in THz-Photonen für gängige nichtlineare Materialien wie ZnTe in der Größenordnung von nur etwa 10^{-5} .

Im vorliegenden Kapitel wird eine hochintensive THz-Quelle vorgestellt, die es ermöglicht, im niederen THz-Frequenzbereich (etwa 0,3–2,5 THz) breitbandig optische Gleichrichtung zu treiben. Kernelement ist ein zentimeterdicker optischer Kristall aus Lithiumniobat. Dieser Festkörper zeichnet sich vor allem durch eine besonders große optische Nichtlinearität und eine hohe Zerstörschwelle aus. Die deutliche Diskrepanz zwischen THz-Phasen- und NIR-Gruppengeschwindigkeit in diesem Material erlaubt keine OR durch kollineare Phasenadaptation. Dennoch ist es durch einen Cherenkov-artigen Generationsmechanismus möglich, breitbandige Phasenadaptation über die gesamte Länge des dicken Kristalls zu gewährleisten, wenn die Impulsfronten der Nahinfrarotstrahlung gezielt verkippt werden [Heb96, Heb02, Heb04]. Die emittierte Strahlung besteht aus einzelnen Lichtschwingungen und erreicht elektrische Spitzenfeldstärken bis 1,5 MV/cm.

Die Funktionsweise des Lasersystems wird im Folgenden vorgestellt. Abbildung 3.2 zeigt ein Schema des gesamten feldaufgelösten Hochfeld-THz-Spektroskopieaufbaus.

3.2.1 Femtosekunden-Titan-Saphir-Laserverstärkersystem

In dieser Arbeit wird ein kommerzielles Laserverstärkersystem verwendet, das aus einem Titan-Saphir-Oszillator und zwei nachfolgenden Titan-Saphir-Verstärkerstufen besteht.

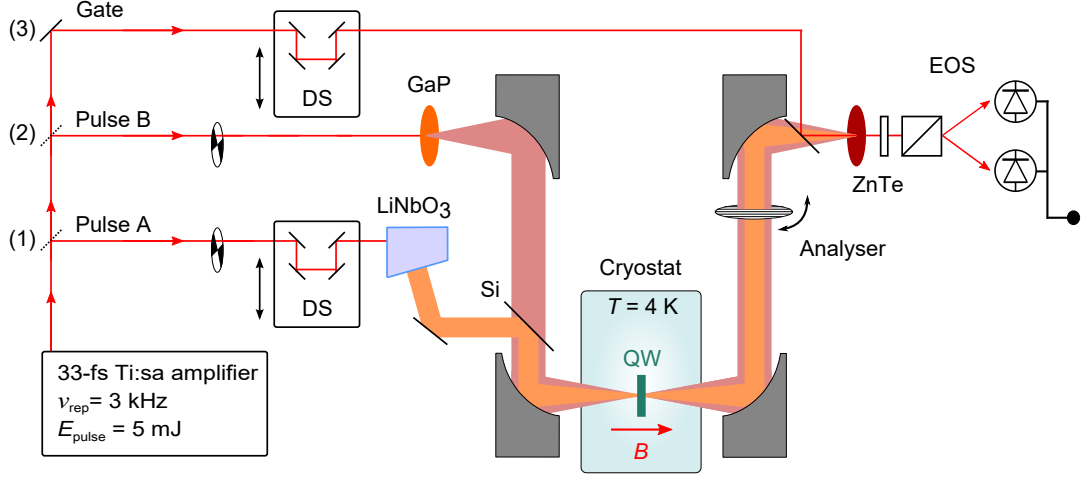


Abbildung 3.2: Schematischer Aufbau der zweidimensionalen THz-Spektroskopie.

Die 33 fs kurzen Nahinfrarot-Impulse (volle Halbwertbreite) aus dem mehrstufigen Titan-Saphir-Laserverstärkersystem bilden die Grundlage der THz-Quelle. Ein Teil der Impulsenergie wird verwendet, um intensive THz-Transienten (Pulse A) durch nichtkollineare optische Gleichrichtung in einem maßgeschneiderten Lithiumniobatkristall (LiNbO_3) zu erzeugen (Strahlpfad 1). Diese werden an einem Siliziumfenster (Si) reflektiert und über einen Parabolspiegel auf die Probe fokussiert. Ein weiterer Teil der Impulsenergie wird an einem zweiten Strahlteiler reflektiert und auf einen $180\text{ }\mu\text{m}$ dünnen Galliumphosphid-Kristall (GaP) gestrahlt. In diesem Zweig (2) wird durch kollineare OR ebenfalls phasenstabile THz-Strahlung (Pulse B) erzeugt. Ein Parabolspiegel rekollimiert das austretende Strahlbündel und überlagert es mit den intensiven THz-Impulsen, so dass Impulse A und B am Brennpunkt des zweiten Parabolspiegels kollinear verlaufen. Die Probe befindet sich am selben Ort in einem Magnetkryostaten, der das Halbleitersubstrat konstant auf eine Temperatur von $4,3\text{ K}$ abkühlt. Die Amplitude der magnetischen Feldstärke B ist im Bereich der Probe räumlich homogen verteilt, steht senkrecht auf der Probenebene und kann variabel zwischen 5 T und 5 T eingestellt werden. Der restliche Teil der Energie der Nahinfrarotimpulse im Strahlzweig 3 (Gate) dient als optischer Schalter, um die transmittierte THz-Strahlung in einem $0,5\text{ mm}$ dicken Zinktellurid-Kristall (ZnTe), der in $[110]$ -Richtung geschnitten ist, feldaufgelöst zu detektieren (EOS, siehe Abschnitt 3.2.3). Mit einem drehbaren Drahtgitterpolarisator (Analyser) können die beiden Polarisationsrichtungen des elektrischen Feldes unabhängig voneinander aufgezeichnet werden. Zwei mechanische Verschiebetische (DS) ermöglichen es, den zeitlichen Abstand τ zwischen den Maxima der Impulse A und B, sowie deren elektrischen Feldverlauf als Funktion der elektro-optischen Abtastzeit t zu vermessen. Die mechanischen Lichtzerhacker in den THz-Zweigen modulieren die elektrischen Signale auf subharmonische Frequenzen der Repetitionsrate des NIR-Laserverstärkers (siehe Abschnitt 3.3).

Der Oszillator erzeugt bei einer Wiederholrate von 80 MHz ultrakurze Laserimpulse mit einer Zentralwellenlänge von 800 nm und einer Energie von 6,3 nJ. Im Allgemeinen besitzen Titan-Saphir-Kristalle ein sehr breitbandiges Fluoreszenzspektrum zwischen $0,69\ \mu\text{m}$ und $1,0\ \mu\text{m}$ [Mou86]. Dies ermöglicht es, MHz-Oszillatoren herzustellen, die Impulszüge mit einer zeitlichen Dauer (volle Halbwertbreite der Impulseinhüllenden, kurz: FWHM) von nur 10 fs aufweisen [Spi94]. Möchte man die Energie der Impulse aus dem Oszillator in Verstärkerstufen maximieren, werden diese erst zeitlich verlängert. Die zeitliche Streckung führt zu einer deutlichen Reduzierung der Spitzenintensitäten und beugt somit Schäden an optischen Komponenten vor. Der Prozess wird als „chirped-pulse amplification“ bezeichnet und konnte erstmals von Strickland und Mitarbeitern bei optischen Frequenzen demonstriert werden [Str85]. Der Impulsstreckter besteht aus einem fokussierenden Spiegel, einem optischen Gitter, einer Verzögerungsstrecke und einem Retroreflektor. Beim Durchlaufen der Strecke werden die spektralen Komponenten des Impulses linear zueinander verzögert. Die hohen Frequenzkomponenten laufen den niederen Frequenzen nach. Nach einem weiteren Umlauf im Impulsstreckter sammeln die NIR-Impulse bereits so viel spektrale Phase auf, dass sich die Impulseinhüllende (volle Halbwertsbreite) auf mehrere 100 Pikosekunden ausdehnt. Im Anschluss gelangen die gestreckten Impulse in die erste regenerative Verstärkerstufe. Technisch besteht diese aus einem Resonator mit zwei Pockelszellen und einem Titan-Saphir-Kristall als aktives Medium. Dieser wird mit 30 W optischer Leistung aus einem frequenzverdoppelten Neodym-dotierten Yttrium-Lithium-Fluorid (Nd:YLF) Laser gepumpt. Die Pockelszellen sind auf die Repetitionsrate des Oszillators synchronisiert und koppeln nur einen aus $2,6 \cdot 10^4$ Laserimpulsen in die erste Verstärkerstufe ein. An dieser Stelle reduziert sich die Wiederholrate von 80 MHz auf 3 kHz. Jeder der Impulse durchläuft den Titan-Saphir-Kristall insgesamt 16 Mal, bis die Impulsenergie um den Faktor $5 \cdot 10^6$ angestiegen ist. Dann wird der Impulszug in die nächste Verstärkereinheit eingekoppelt. Diese besteht aus einem weiteren Titan-Saphir-Kristall, der mit 40 W optischer Leistung aus einem zweiten Nd:YLF-Laser gepumpt wird. Nach einem weiteren Umlauf in der zweiten Stufe passieren die Laserimpulse einen Impulskompressor, der umgekehrt zum oben beschriebenen Impulsstreckter aufgebaut ist. Während des ganzen Verstärkungsprozesses ändert sich die spektrale Form nur minimal. Nach der Kompression wird eine zeitliche Dauer (volle Halbwertbreite) der NIR-Impulse von nur 33 fs erreicht. Am Ausgang des Titan-Saphir-Verstärkersystems werden ultrakurze NIR-Impulse mit einer Energie von 5 mJ emittiert.

3.2.2 Intensive THz-Felder durch optische Gleichrichtung mit verkipperten Impulsfronten

Optische Gleichrichtung (OR) ist ein nichtlinearer Prozess, der bei nicht verschwindender $\chi^{(2)}$ -Suszeptibilität auftritt und somit nur in nicht inversionssymmetrischen Materialien möglich ist [Bon95, Boy08]. Strahlt man ein starkes Laserfeld in ein solches Medium, kann eine instantane Polarisierung \mathbf{P}^{NL} erzeugt werden, die bei der Summen- oder Differenzfrequenz des treibenden Laserfeldes oszilliert. Verwendet man breitbandige Impulse, die eine Vielzahl von Frequenzkomponenten ω_{NIR} besitzen, entstehen auch bei der optischen Gleichrichtung eine große Anzahl von neu erzeugten Frequenzen ω_{THz} . OR von breitbandigen Impulsen ist damit eine Form der DFG zwischen allen spektralen Komponenten innerhalb eines einzelnen Laserimpulses. Die maximal auftretenden THz-Frequenzen sind im Wesentlichen durch die spektrale Breite des Lasers und die Impulserhaltung (Phasen-anpassung) im nichtlinearen Kristall festgelegt. Die induzierte nichtlineare Polarisierung \mathbf{P}^{NL} im Kristall strahlt nach den Maxwell-Gleichungen elektromagnetische Strahlung in Form einer phasenstarrten Wellenform in den freien Raum ab. Möchte man effizient breitbandige THz-Strahlung erzeugen, muss die Phasenanpassung während des transienten Konversionsprozesses im optisch nichtlinearen Kristall für eine große Anzahl von Frequenzkomponenten erfüllt sein. Dazu entwickelt man die Bedingung der Energie- und Impulserhaltung als Fourierreihe bis zur ersten Ordnung um die Zentralfrequenz ω_{NIR} des eingestrahnten NIR-Impulses. Das Ergebnis lautet [Bon95]:

$$\frac{\omega_{\text{THz}}}{k(\omega_{\text{THz}})} = \left[\left(\frac{\partial k(\omega)}{\partial \omega} \right)_{\omega_{\text{NIR}}} \right]^{-1} \quad \text{beziehungsweise} \quad v_{\text{THz}}^{\text{phase}} = v_{\text{NIR}}^{\text{group}}. \quad (3.3)$$

Optische Gleichrichtung kann also genau dann effizient getrieben werden, wenn die Phasengeschwindigkeit der THz-Strahlung $v_{\text{THz}}^{\text{phase}}$ mit der Gruppengeschwindigkeit $v_{\text{NIR}}^{\text{group}}$ des NIR-Impulses übereinstimmt. Dieser Prozess wird daher auch Gruppengeschwindigkeitsanpassung (englisch: group-velocity matching) genannt.

In geeigneten doppelbrechenden Kristallen kann diese Bedingung auf natürliche Weise erreicht werden, wenn man die Polarisationsrichtungen der eingestrahnten NIR-Photonen als Funktion der Kristallrichtung geschickt wählt. In normal dispersiven Materialien ist Gleichung (3.3) allerdings nicht für alle Frequenzkomponenten gleichermaßen erfüllt. Während der kontinuierlichen Generation von THz-Photonen entlang des Kristalls entsteht eine Phasenverschiebung zwischen den erzeugten Teilwellen. Diese akkumuliert sich als Funktion der Kristalllänge weiter auf, erreicht schließlich den Wert π und führt zur destruktiven Interferenz der induzierten nichtlinearen Polarisierung. Diese endliche Phasenfehlanpassung kann allerdings durch eine nichtkollineare Geometrie vermieden werden. Beide Mechanis-

men (nichtkollineare und kollineare OR) werden in dieser Arbeit genutzt, um gleichzeitig intensive und schwache THz-Impulse in Lithiumniobat (LiNbO_3) beziehungsweise in Galliumphosphid (GaP) zu erzeugen.

Erzeugung intensiver THz-Strahlung durch nichtkollineare Phasenanpassung

Die Erzeugung ultrakurzer, intensiver THz-Lichtimpulse basiert auf Prinzip der optischen Gleichrichtung mit verkippten Impulsfronten. Diese Methode wurde erstmals von Hebling und Mitarbeitern vorgestellt [Heb02]. Die Umwandlungseffizienzen können bis zu 0.25 % betragen und übertreffen damit die Quanteneffizienz von typischen nichtlinear optischen Zinkblendekristallen wie ZnTe um fast vier Größenordnungen [Heb04, Bla07]. Die Funktionsweise wird im Folgenden kurz skizziert.

Der verwendete optisch nichtlineare Kristall Lithiumniobat LiNbO_3 ist ein synthetisches, ferroelektrisches Dielektrikum [Wei85, Dha90]. Das Material besitzt eine Bandlücke von 3,8 eV und zeichnet sich durch eine optisch hohe Zerstörschwelle aus. Femtosekunden-Laserimpulse mit Spitzenintensitäten über 500 GW/cm^2 können problemlos auf den Kristall fokussiert werden [Bai13]. In Kombination mit einer hohen optischen Nichtlinearität von $d_{\text{eff}} = 160 \text{ pm/V}$ für Wellenlängen im Bereich von 800 nm ist dieses Material ideal für die optisch nichtlineare Frequenzkonversion geeignet. Periodisch gepoltes LiNbO_3 hat sich daher schon früh als Material zur Generation der zweiten Harmonischen etabliert [Fej92]. Trotzdem war LiNbO_3 lange Zeit kein Kandidat zur breitbandigen Generation von THz-Strahlung [Heb04]. Der Grund hierfür liegt in der deutlichen Diskrepanz zwischen den Brechungsindizes der nahinfraroten Gruppengeschwindigkeit ($n_{\text{group}}^{\text{NIR}} = 2.23$) und der THz-Phasengeschwindigkeit ($n_{\text{phase}}^{\text{THz}} = 5.16$). Die Bedingung für kollineare Phasenanpassung in Gleichung (3.3) ist nicht erfüllbar.

Ein erster Ansatz [Aus83] mit dem optische Gleichrichtung in Materialien mit hoher Phasenfehlanpassung getrieben werden konnte, nutzt den elektro-optischen Cherenkoveffekt. Hierzu wird ein ultrakurzer Lichtimpuls stark in ein nichtlineares Medium fokussiert, wobei die zeitliche Ausdehnung in Ausbreitungsrichtung des nahinfraroten Pumpimpulses deutlich größer ist als die laterale Feldverteilung. Zu jedem Zeitpunkt wird durch das starke elektrische Feld der nahinfraroten Laserstrahlung eine nichtlineare Polarisation induziert, die sich mit der Gruppengeschwindigkeit $v_{\text{group}}^{\text{NIR}}$ ausbreitet. Diese nichtlineare Polarisation strahlt ihrerseits nach dem Huygenschen Prinzip THz-Photonen in Form von Kugelwellen ab, die sich im nichtlinearen Medium mit der Phasengeschwindigkeit $v_{\text{group}}^{\text{THz}}$ ausbreiten. Die konstruktive Interferenz der Elementarwellen aus verschiedenen Emissionszeitpunkten resultiert in einer kegelförmigen Ausbreitung der THz-Strahlung (Cherenkov-Kegel, Abbildung 3.3a). Obwohl damit die Bedingung der Phasenanpassung

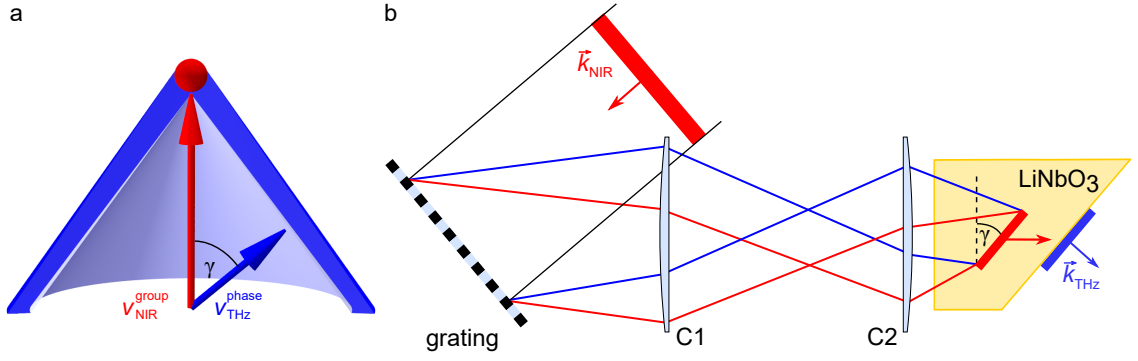


Abbildung 3.3: Nichtkollineare THz-Generation. **a**, Ein stark fokussierter NIR-Laserimpuls (roter Punkt) propagiert mit der Gruppengeschwindigkeit $v_{\text{group}}^{\text{NIR}}$ im nichtlinearen Medium und erzeugt an jedem Ort eine THz-Elementarwelle, die sich mit $v_{\text{phase}}^{\text{THz}}$ ausbreitet. Die konstruktive Interferenz der THz-Teilwellen aus verschiedenen Emissionszeitpunkten überlagert sich zum Cherenkov-Kegel, dessen Öffnungswinkel durch Gleichung (3.4) bestimmt ist. **b**, Schematische Darstellung zur THz-Generation durch Impulsfrontverkipfung. Mit Hilfe eines Beugungsgitters (grating) werden die Impulsfronten der NIR-Strahlung um den Winkel γ verkippt (schräge rote Linie). Die spektral aufgespaltenen Komponenten (rote und blaue Linien als Beispiele für zwei verschiedene Wellenlängen) werden über das Zylinderlinsenteleskop (Linse C1 und C2) in den Kristall abgebildet. Induziert der Laserimpuls eine nichtlineare Polarisation im Material (LiNbO_3), überlagern sich alle THz-Teilwellen konstruktiv und es wird ein intensiver THz-Impuls mit ebener Wellenfront (blaue Linie) aus der Endfacette des Kristalls abgestrahlt.

der optischen Gleichrichtung erfüllt ist, eignet sich diese Methode leider nicht für die Generation höchstintensiver THz-Impulse. Eine räumlich breite, ebene Impulsfront verursacht an jedem Emissionspunkt im nichtlinearen Kristall ein kegelförmiges THz-Strahlprofil mit unterschiedlichen Ausbreitungsrichtungen der Teilwellen. Dies kann anschaulich als nebeneinander aufgereihete Cherenkov-Kegel verstanden werden. Der Grund ist, dass die Geschwindigkeitsanpassung des elektro-optischen Cherenkov-Effekts nicht Gleichung (3.3) folgt. Es gilt vielmehr:

$$v_{\text{phase}}^{\text{THz}} = v_{\text{group}}^{\text{NIR}} \cdot \cos(\gamma) . \quad (3.4)$$

Eine Vergrößerung der optischen Anregefläche mit einer ebenen Impulsfront scheidet damit aus. Verkippt man aber die Impulsfronten der NIR-Strahlung um den Winkel γ , kann die NIR-Gruppengeschwindigkeit genau auf die Phasengeschwindigkeit der THz-Strahlung projiziert werden. Damit ist die Phasenanpassungsbedingung in nichtkollinearer Geometrie erfüllt. Die Verkipfung der Impulsfronten wird durch Beugung der NIR-Impulse an einem optischen Gitter realisiert [Heb96]. Abbildung 3.3b zeigt dazu den schematischen Aufbau. Es ist hier zu bemerken, dass die verschiedenen Wellenlängen der breitbandigen NIR-Strahlung durch das Gitter unter verschiedenen Winkeln gebrochen werden. Diese Winkeldispersion hat unter anderem zur Folge, dass sich die Impulsdauer der NIR-Impulse

verlängert. Die Divergenz wird in diesem Aufbau durch Verwendung einer Zylinderlinse kompensiert. Mithilfe einer zweiten Zylinderlinse werden die Impulse anschließend in den Lithiumniobatkristall fokussiert. Durch eine geschickte Wahl der Brennweiten dieses Teleskops wird das Gitter optimal in den Kristall abgebildet. Die ursprüngliche Impulsdauer ist damit wieder hergestellt [Heb04, Fü12, Bai13]. Der Vorteil der Methode der nicht-kollinearen Phasenanpassung ist deutlich erkennbar. Mit dieser Technologie können sehr große Bereiche innerhalb des Kristalls zur Generation von THz-Strahlung genutzt werden. Vor allem führt die Einstrahlung einer verkippten, aber ebenen Impulsfront zur Emission einer ebenen THz-Welle (Abbildung 3.3b, blaue Linie), die im Vergleich zur kegelförmigen Abstrahlung beim elektro-optischen Cherenkov-Effekt [Aus83] viel besser kollimiert und fokussiert werden kann.

Im Aufbau wird der LiNbO_3 -Kristall mit kollimierten NIR-Impulsen mit einer Energie von 4 mJ bestrahlt. Dadurch entstehen phasenstarre THz-Transienten mit Energien von $0.5 \mu\text{J}$. Da die erzeugte Strahlung im Vergleich zu Sub-1 THz-Strahlung aus großflächigen Emittierkristallen [Bla07] besser fokussiert werden kann, erreicht man mit dieser Technologie elektrische Spitzenfeldstärken bis $1,0 \text{ MV/cm}$. Die THz-Leistung kann noch weiter erhöht werden, indem man die Absorption der resonanten Gitterschwingungen des transversal optischen Phonons reduziert. Die Zentralfrequenz des Phonons liegt bei $\nu_{\text{TO}} = 7.44 \text{ THz}$ und die Absorptionsbandbreite erstreckt sich bei Raumtemperatur über den ganzen niederenergetischen THz-Frequenzbereich [Bak11]. Durch kryogenes Kühlen auf $T = 77 \text{ K}$ wird im Kristall die Phononenabsorption stark reduziert [Pá05, Fü11]. Mit dieser Technik erreicht man dreimal größere THz-Energien als bei Raumtemperatur. Im verwendeten Aufbau liegt die gemessene THz-Spitzenfeldstärke bei $1,5 \text{ MV/cm}$ [Bai13]. Die Wellenform der erzeugten THz-Impulse ist phasenstarr und wird im Experiment elektro-optisch detektiert.

Kollineare optische Gleichrichtung in Zinkblendekristallen

Zinkblendekristalle wie Zinktellurid (ZnTe) oder Galliumphosphid (GaP) finden breite Anwendung in der ultraschnellen THz-Abtast-Spektroskopie. Obwohl die kubische Kristallstruktur keine Doppelbrechung und damit auch keine kritische Phasenanpassung ermöglicht, können diese Kristalle dennoch zur effizienten Generation von phasenstarken Lichtimpulsen genutzt werden. Die Zinkblendestruktur ist nicht inversionssymmetrisch und besitzt entlang einer Kristallrichtung einen nichtlinearen optischen Koeffizienten d_{41} [Boy08]. Ferner gehen die unterschiedlichen Atome in der Zinkblendestruktur keine rein kovalente, sondern auch eine leicht ionische Bindung ein. Dies führt entlang der Kristallrichtung, die auch den nichtlinearen Koeffizienten aufweist, zu einer zusätzlichen räumlich

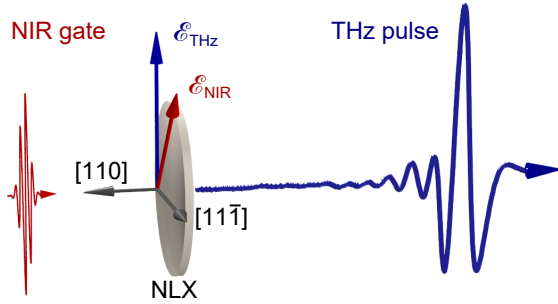


Abbildung 3.4: Schematischer Aufbau zur Generation phasenstabiler THz-Impulse durch kollineare optische Gleichrichtung. Für Zinkblendekristalle erhält man optimale Phasenanpassung, wenn die einfallenden Nahinfrarotimpulse parallel zur $[110]$ -Orientierung des nichtlinearen Kristalls (NLX) propagieren und die Polarisation einen Winkel von 60 Grad zwischen den dargestellten Symmetrieachsen im Material einnimmt. Die emittierte THz-Strahlung ist linear-polarisiert und phasenstabil.

inhomogenen Potentiallandschaft. Diese anharmonische elektrostatische Wechselwirkung im Kristallgitter verstärkt die Nichtlinearität der Zinkblendekristalle. Für Wellenlängen aus Titan-Saphir-Lasern beträgt d_{41} in ZnTe etwa 4 pm/V. Im mechanisch festeren Material GaP fällt die Nichtlinearität mit $d_{41} = 1$ pm/V geringer aus. In den genannten Zinkblendekristallen ist effiziente THz-Generation sogar unter senkrechtem Einfall möglich, da die unterschiedlichen Ausbreitungsgeschwindigkeiten für NIR- und THz-Photonen breitbandig übereinstimmen. Abbildung 3.4 zeigt schematisch die Ausbreitungsrichtung der linear polarisierten NIR-Impulse. Die größte optische Frequenzmischung findet statt, wenn die einfallenden NIR-Impulse parallel zur $[110]$ -Achse des Kristalls eingestrahlt werden und die Polarisation entlang der $[001]$ -Richtung verläuft [Lee08]. In dieser Konfiguration besitzen die THz-Impulse eine Polarisation mit einem elektrischen Feldvektor, der um 60 Grad gedreht ist, also entlang der $[\bar{1}11]$ -Kristallrichtung oszilliert.

3.2.3 Feldaufgelöste elektro-optische Detektion

Der herausragendste Vorteil des elektro-optisches Abtastens (englisch: electro-optic sampling, kurz: EOS) ist die Möglichkeit, die absolute Amplitude und Phase von elektromagnetischer Strahlung im freien Raum zu bestimmen [Fer02]. Des Weiteren ist die Messmethode extrem sensitiv [Wu95, Kü04] und findet breite Verwendung in der Sensorik und der Bildgebung [Ton07, Bla13, Eis14]. In [Por14] konnte ferner gezeigt werden, dass die Detektionsgrenze nur noch durch das quantenmechanische Schrotrauschen der NIR-Abtaststrahlung limitiert ist. Mittlerweile erstreckt sich die Bandbreite des EOS bis in den nahinfraroten Frequenzbereich [Sel08, Mat12, Kei16].

Elektro-optisches Abtasten basiert auf dem gleichnamigen elektro-optischen Effekt, der auch unter dem Begriff Pockels-Effekt bekannt ist. Im Experiment werden phasenstabile THz-Transienten (Abbildung 3.5, blaue Wellenform) mit NIR-Impulsen aus dem Ab-

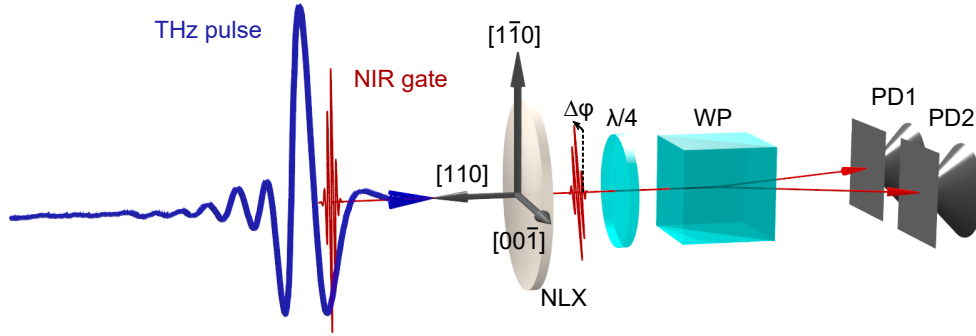


Abbildung 3.5: Geometrie der feldaufgelösten elektro-optischen Detektion für kohärente elektrische Signale durch endliche Phasenanpassung. Linear und parallel polarisierte THz- und NIR-Abtastimpulse werden in einen nichtlinearen Kristall (NLX) fokussiert. Für Zinkblendekristalle erhält man das maximale elektro-optische Signal, wenn die Polarisation der einfallenden Strahlung (THz und NIR) parallel zur $[1\bar{1}0]$ -Richtung des nichtlinearen Kristalls orientiert ist. Das momentane elektrische THz-Feld induziert eine Doppelbrechung im Medium, die zu einer leicht elliptischen Polarisation um den Winkel $\Delta\varphi$ der NIR-Impulse führt. Eine Kombination aus einem Viertelwellenplättchen $\lambda/4$ und einem Wollaston-Prisma (WP) fungiert als Ellipsometer und trennt die vertikalen und horizontalen Polarisationskomponenten räumlich. Im Anschluss werden die Signale durch ein Paar baugleicher Photodioden elektrisch ausgelesen (balancierte Detektion).

tastzweig überlagert und in einen nichtlinearen Kristall fokussiert [Gal99]. Der Zeitversatz t zwischen den Maxima der Impulseinhüllenden wird präzise über einen Verschiebetisch eingestellt (siehe Abbildung 3.2). Bei geeigneter Polarisationsrichtung der THz-Impulse relativ zur Kristallachse induziert das momentane elektrische THz-Feld im Kristall eine Doppelbrechung (Abbildung 3.5). Die Polarisation der transmittierten NIR-Strahlung erfährt durch diesen Effekt als Funktion der elektrischen THz-Amplitude eine Phasenverzögerung von $\Delta\varphi$ zwischen den beiden unabhängigen Polarisationskomponenten [Wu95]. Ist die Impulsbreite der Abtastimpulse zusätzlich sehr kurz, also deutlich geringer als die Periodendauer der THz-Trägerwelle, dann kann die Phasenverzögerung der NIR-Impulse als Parameter angenommen werden, der in guter Näherung proportional zur momentanen THz-Amplitude skaliert [Hub04, Bla07]. Nach Durchgang durch den Detektor-Kristall induziert ein Viertelwellenplättchen ($\lambda/4$) zwischen den beiden Polarisationskomponenten eine zusätzliche Phasendifferenz von $\pi/2$. Die NIR-Impulse durchlaufen im Anschluss einen Strahlteilerwürfel (Wollaston-Prisma, WP), der die unabhängigen Feldkomponenten räumlich trennt und diese auf zwei identische Photodioden (PD) leitet. Liegt kein THz-Feld an, dann sind die NIR-Impulse nach dem $\lambda/4$ -Plättchen zirkular polarisiert und die Differenz der beiden Diodenströme beträgt $\Delta I = I_{PD1} - I_{PD2} = 0$ (balancierte Detektion). Die THz-induzierte Elliptizität der Polarisation spiegelt sich damit direkt als Ungleich-

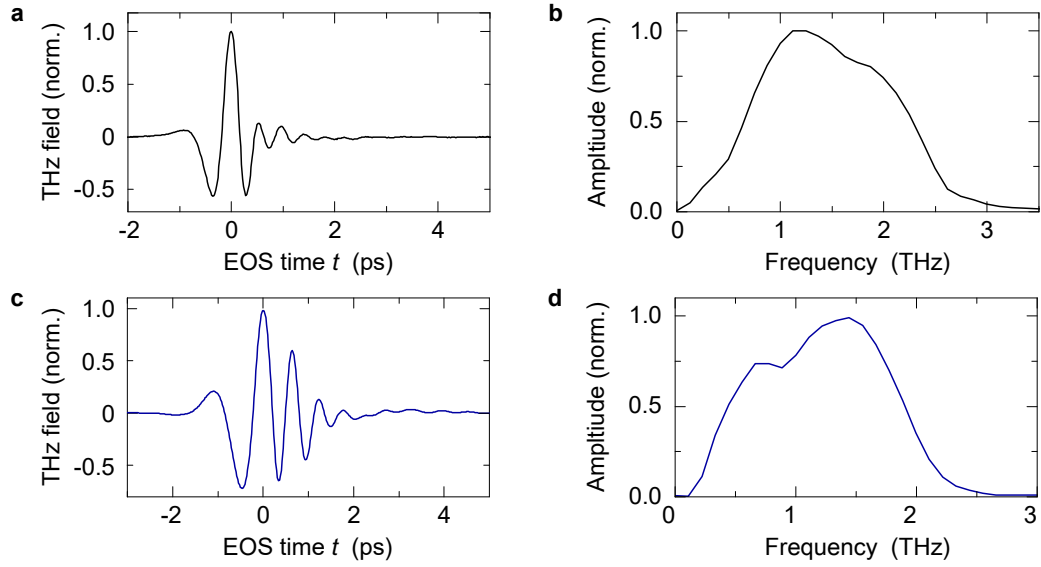


Abbildung 3.6: Elektrische Feldverläufe typischer THz-Transienten. a, Erzeugte THz-Wellenform bei Verwendung eines $180\,\mu\text{m}$ dünnen GaP-Emitter. b, Amplitudenspektrum von a. c, Wellenform aus dem LiNbO_3 -Kristall. d, Amplitudenspektrum. Als Detektorkristall wird für beide Lichtfelder ein $500\,\mu\text{m}$ dicker ZnTe-Kristall verwendet.

gewicht im gemessenen elektrischen Signal ΔI wider und erlaubt es, den elektrischen Feldverlauf präzise als Funktion der Zeit t über die Variation der Verzögerungsstrecke abzutasten.

In Zinkblendekristallen wird die maximale Doppelbrechung erreicht, wenn beide Laserimpulse parallel zur $[1\bar{1}0]$ -Richtung polarisiert sind. Abbildung 3.6 zeigt den zeitlichen Verlauf der THz-Wellenform, die im Experiment zur kohärenten Terahertz-Kontrolle verwendet werden. Die Transienten bestehen aus wenigen Lichtschwingungen und stammen aus einem $180\,\mu\text{m}$ dünnen GaP-Kristall als THz-Emitter (Abbildung 3.6a) beziehungsweise aus dem LiNbO_3 -Kristall (Abbildung 3.6c). Die zugehörigen Amplitudenspektren sind in Abbildung 3.6b und 3.6d dargestellt. Für die kohärente Kontrolle der elektrischen Dipolübergänge (Inter-Landau-Übergänge) in Kapitel 4 reicht es aus, Signale zu detektieren, die Frequenzen bis zu 2 THz aufweisen. Die THz-Wellenformen werden daher mit einem $500\,\mu\text{m}$ dicken ZnTe-Kristall aufgezeichnet. Ein drehbarer Drahtgitterpolarisator im Strahlengang nach der Probe wird genutzt, um zirkular polarisierte THz-Transienten feldaufgelöst zu detektieren [Pla01, Ari11].

3.3 Feldaufgelöste kollineare zweidimensionale THz-Spektroskopie

Zweidimensionale (2D) Spektroskopie ist eine der aussagekräftigsten Methoden, um die Dynamik von angeregter Materie auf ultrakurzen Zeitskalen zu untersuchen [Muk95]. Das Grundprinzip gehorcht folgendem Schema. Mit einer Abfolge von ultrakurzen Laserimpulsen, die zu unterschiedlichen Zeiten auf eine Probe treffen, werden zum Beispiel elektrische Dipol-Übergänge wie Vibrationsmoden oder elektronische Resonanzen angeregt. Im Anschluss wird der zeitliche Verlauf der abgestrahlten elektrischen Felder aus der Probe als Funktion der relativen Verzögerungszeiten zwischen den Impulsen detektiert. In Abbildung 3.7a ist ein mögliches Szenario mit zwei THz-Lichtimpulsen und dem ultrakurzen NIR-Impuls (vertikale rote Linie) der elektro-optischen Detektion in kollinearer Geometrie skizziert. Abbildung 3.7b zeigt das Experiment im Wellenvektorbild.

Treten bei der Licht-Materie-Wechselwirkung nichtlineare und vor allem kohärente Signale auf, können diese direkt herangezogen werden, um ultraschnelle Prozesse der Vielteilchen-Quantenkinetik von angeregter Materie zu analysieren. Dazu zählen Modulationen der Übergangsfrequenzen, transiente Kopplungsstärken oder die Wechselwirkung mit der Umgebung [Ham98, Muk00, Asp00, Fec03, Jon03, Bri05, Cho08]. In all den genannten Studien erfolgt die Analyse der Korrelationsmechanismen allerdings in einer nichtkollinearen Geometrie des Spektroskopieaufbaus [Muk95]. Abbildung 3.7c zeigt dazu eine schematische Skizze, wenn die Lichtimpulse aus unterschiedlichen Richtungen mit Wellenvektoren (k_1, k_2, k_3) auf die Probe treffen. Im Fall einer nichtlinearen Wechselwirkung besteht die optische Antwort aus Photonen mit neuen Wellenvektoren, die sich aus einer Linearkombination der Wellenvektoren der eingestrahlteten Photonen zusammensetzen. Als Beispiel wird in Abbildung 3.7c ein nichtlineares Signal betrachtet, das den Wellenvektor $k_{\text{NL}} = k_2 - k_1 + k_3$ aufweist. Da die Wellenvektoren der eingestrahlteten Impulse in unterschiedliche Richtungen zeigen, propagieren die nichtlinearen Signale gemäß der Phasenanpassungsbedingung im Material ebenfalls in neue Richtungen. Um alle Nichtlinearitäten aufzuzeichnen, muss das optische Signal also nicht nur zeitlich, sondern auch räumlich aufgelöst detektiert werden. Können nur die Intensitäten ($I \sim |\mathcal{E}|^2$) bestimmt werden, ist zusätzlich ein Lichtimpuls aus dem gleichen Spektralbereich nötig (heterodyne Detektion), um die genaue Phasenlage der nichtlinearen transmittierten Polarisationsantwort zu bestimmen [Hoc07, Ham11].

Arbeitet man dagegen mit phasenstarken Impulsen in Kombination mit EOS in kollinearer Geometrie (Abbildung 3.7a und b), kann die gesamte nichtlineare Antwort der angeregten Materie gleichzeitig detektiert werden [Kue09]. Diese Technologie wird in Kapitel 4 genutzt, um kohärente nichtlineare Vielteilchenprozesse von angeregten Elektronen im

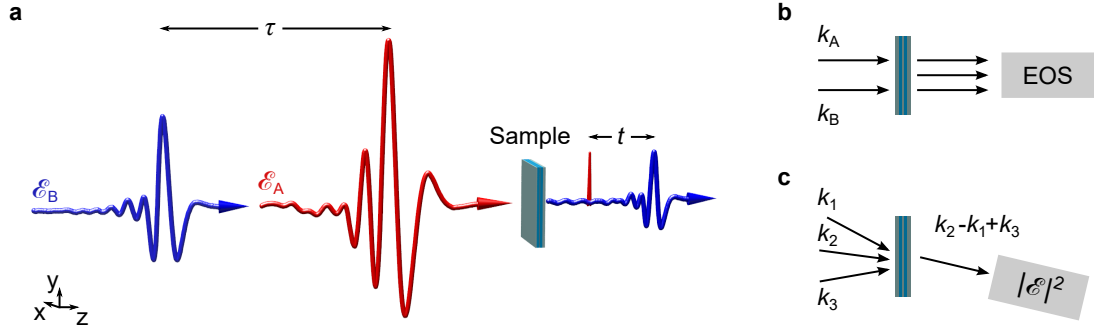


Abbildung 3.7: Prinzip der Spektroskopie mit mehreren Lichtimpulsen. **a**, Schema der kollinearen Geometrie. Die Anregung der Probe erfolgt mit einem intensiven THz-Transienten (\mathcal{E}_A). Ein weiterer Impuls (\mathcal{E}_B) tastet die momentane Polarisationsantwort des Nichtgleichgewichtssystems mit einer relativen Zeitverzögerung von τ ab. Das elektrische Feld, das aus der Probe in Transmission abstrahlt, wird als Funktion der Zeit t mit Hilfe eines ultrakurzen NIR-Impulses (vertikale rote Linie) elektro-optisch detektiert (EOS). **b**, Wellenvektorbild der kollinearen Geometrie: Hier kopropagieren alle linearen oder nichtlinearen Signale, die aus Linearkombinationen der Wellenvektoren k_A und k_B bestehen, entlang der gleichen Ausbreitungsrichtung (Pfeile). **c**, Im Fall einer nichtkollinearen Anregung werden hier exemplarisch drei Lichtimpulse mit unterschiedlichen Ausbreitungsrichtungen (k_1, k_2, k_3) auf die Probe fokussiert. Detektiert man nur die Intensität ($I \sim |\mathcal{E}|^2$) benötigt man einen weiteren Lichtimpuls als Referenz (siehe Text). Im Fall einer nichtlinearen Antwort unterliegen die gemischten Photonen der Phasenpassungsbedingung und somit gewissen Auswahlregeln, wie $k_{NL} = k_2 - k_1 + k_3$. Diese vektorielle Superposition von Wellenvektoren, beschreibt auch die Ausbreitungsrichtung der nichtlinearen Signale im Raum. In dieser Anregungsgeometrie muss die Polarisationsantwort zusätzlich räumlich aufgelöst detektiert werden.

Magnetfeld zu erforschen. Die optisch nichtlineare Licht-Materie-Wechselwirkung, die im Rahmen der Experimente auftritt, wird im Folgenden genauer beschrieben.

Teile der Impulsenergie aus dem Laserverstärker werden verwendet, um intensive (\mathcal{E}_A) und schwache THz-Transienten (\mathcal{E}_B) zu erzeugen. Ein dritter ultrakurzer NIR-Lichtimpuls dient der elektro-optischen Detektion. Für resonante Untersuchungen mit Frequenzen ν_0 nutzt man THz-Impulse aus dem gleichen Spektralbereich. Diese werden kollinear überlagert und auf die Probe fokussiert. Zwei mechanische Lichtzerhacker in den THz-Zweigen sind auf subharmonische Frequenzen der Repetitionsrate des Lasers eingestellt. Damit ist gewährleistet, dass die Probe entweder von nur einem der beiden Impulse, \mathcal{E}_A beziehungsweise \mathcal{E}_B , oder beiden Impulsen gleichzeitig angeregt wird. Nachdem die Lichtfelder die Probe polarisiert haben, wird das abgestrahlte elektrische Feld in Transmission als Funktion der relativen Verzögerungszeit τ zwischen den Impulsen und der elektro-optischen Abtastzeit t vermessen. Die Photoströme an den Photodioden werden mit differentieller Lock-In-Technik ausgelesen. Als Ergebnis erhält man Signale $\mathcal{E}_A(\tau, t)$,

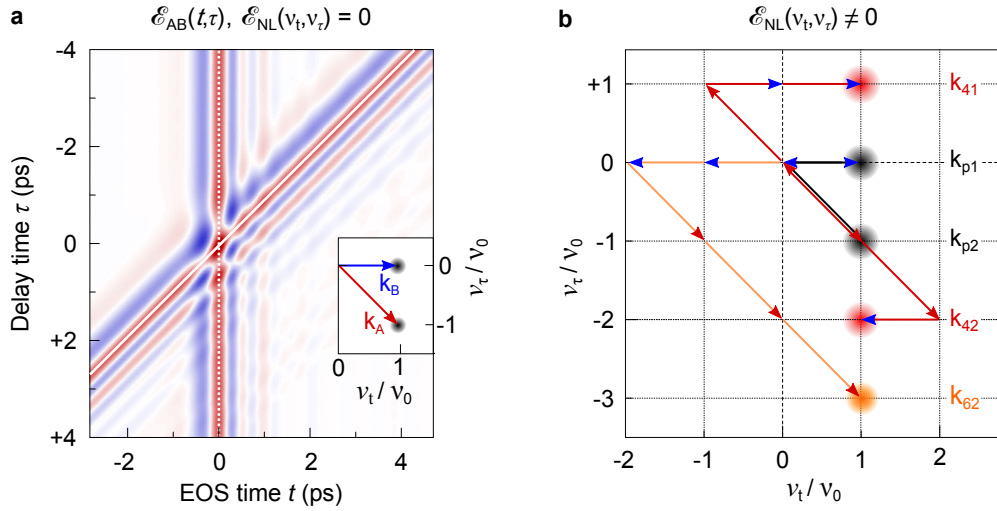


Abbildung 3.8: Zeitaufgelöste optische Licht-Materie-Wechselwirkung im kohärenten Regime. **a**, Synthetische Aufnahme einer 2D-THz-Antwort einer Probe mit zwei Lichtimpulsen \mathcal{E}_A und \mathcal{E}_B . Der zeitliche Verlauf der Wellenformen ist in Abbildung 3.6a und c dargestellt. Kasten: Bei linearer Licht-Materie-Wechselwirkung, $\mathcal{E}_{NL}(t, \tau) = 0$, besteht die zweidimensionale Fouriertransformation aus spektralen Anteilen, die durch die Wellenvektoren k_A und k_B repräsentiert werden. Die Frequenzachsen sind auf die Zentralfrequenz ν_0 der elektronischen Resonanz normiert. **b**, 2D-Fouriertransformation eines möglichen nichtlinearen Signals $\mathcal{E}_{NL}(t, \tau)$. Die auftretenden Nichtlinearitäten unterliegen den Auswahlregeln in Tabelle 3.1. Im Frequenzraum erreicht man den Ort eines nichtlinearen Signals durch die Superposition der Wellenvektoren (farbige Pfeile mit roten und blauen Köpfen) aus **a**, Kasten. Anrege-Abtast- und FWM-Signale sind als schwarze beziehungsweise rote Punkte markiert. Beim Sechs-Wellen-Mischen ($\chi^{(5)}$ -Prozess) wechselwirken insgesamt sechs Photonen (oranger Punkt).

$\mathcal{E}_B(t)$ aus individuellen Transmissionsmessungen durch Impuls A oder B, oder die gesamte Antwort $\mathcal{E}_{AB}(\tau, t)$, wenn beide Impulse die elektronische Resonanz im Material anregen. Die abgestrahlten elektrischen Felder der Polarisationsantwort bestehen aus linearen und nichtlinearen Beiträgen. Das gesamte Signal lautet:

$$\mathcal{E}_{AB}(\tau, t) = \mathcal{E}_A(\tau, t) + \mathcal{E}_B(t) + \mathcal{E}_{NL}(\tau, t) . \quad (3.5)$$

Bei einer harmonischen Dynamik gilt $\mathcal{E}_{NL}(\tau, t) = 0$. Abbildung 3.8a zeigt für diesen linearen Fall der Licht-Materie-Wechselwirkung eine synthetische zweidimensionale THz-Transmission der Polarisationsantwort $\mathcal{E}_{AB}(\tau, t)$. In dem Bild verlaufen die Wellenfronten der THz-Antwort durch Impuls \mathcal{E}_A diagonal (durchgezogene Linie), die der Probe durch Impuls \mathcal{E}_B zeigt sich mit vertikalen Wellenfronten (gestrichelte Linie). Aus einer Fouriertransformation von $\mathcal{E}_{AB}(\tau, t)$ entlang der Zeitachsen t und τ resultiert eine 2D-Karte im Fourierraum als Funktion der Frequenzen ν_t und ν_τ (Abbildung 3.8a, Kasten). Die Si-

Nichtlinearer Prozess	Wellenvektor	Frequenzen	
		ν_t	ν_τ
Anrege- und Abtastsignale	$k_{p1} = k_A - k_A + k_B$	ν_0	0
	$k_{p2} = k_B - k_B + k_A$	ν_0	$-\nu_0$
Vier-Wellen-Mischen	$k_{41} = 2k_B - k_A$	ν_0	ν_0
	$k_{42} = 2k_A - k_B$	ν_0	$-2\nu_0$
Sechs-Wellen Mischen	$k_{61} = 3k_A - 2k_B$	ν_0	$-3\nu_0$
	$k_{62} = 3k_B - 2k_A$	ν_0	$2\nu_0$

Tabelle 3.1: Wellenvektoren und Frequenzen, die zum nichtlinearen Signal \mathcal{E}_{NL} beitragen.

gnale der THz-Felder werden räumlich durch die Wellenvektoren k_A und k_B getrennt und befinden sich ausschließlich an den Punkten $(\nu_0, 0)$ beziehungsweise $(\nu_0, -\nu_0)$. Es ist hier sinnvoll anzumerken, dass die gemessenen Signale reelle Messgrößen (quantenmechanische Observablen) sind. Daher ist die Fouriertransformation von $\mathcal{E}_{AB}(\tau, t)$ invariant gegenüber einem gleichzeitigen Vorzeichenwechsel von ν_t und ν_τ .

Im Fall einer nichtlinearen Wechselwirkung in der Probe setzt sich $\mathcal{E}_{NL}(\tau, t)$ aus verschiedenen Ordnungen von optischen Nichtlinearitäten zusammen. Um dieses Signal aus der gesamten THz-Antwort zu extrahieren (siehe Gleichung (3.5)), werden die Beiträge $\mathcal{E}_A(\tau, t)$ und $\mathcal{E}_B(t)$, die bei der differentiellen Lock-In Detektion gleichzeitig gemessen werden, von $\mathcal{E}_{AB}(\tau, t)$ abgezogen. Die anschließende Fouriertransformation erstellt eine 2D-Frequenzlandschaft $\mathcal{E}_{NL}(\nu_t, \nu_\tau)$ mit Signalen (Abbildung 3.8b), die durch die gleichzeitige Wechselwirkung der beiden Lichtimpulse mit der elektronischen Resonanz entstanden sind. Diese Mehr-Photonen-Prozesse sind an Punkten (ν_t, ν_τ) im Frequenzraum lokalisiert, die aus ganzzahligen Vielfachen $(+\nu_0, \pm \nu_0)$ der Eigenfrequenz ν_0 des angeregten Systems bestehen.

Korrelationen, die in $\mathcal{E}_{NL}(\tau, t)$ auftreten, sind im Experiment mindestens von der nichtlinearen Ordnung χ^3 , da die Kristallorientierung im Fall der Landau-quantisierten Elektronen keine Rolle spielt und somit Inversionsymmetrie vorherrscht.

Die mögliche Auswahl an Wellenvektoren und Frequenzen der generierten Photonen im Experiment ist in Tabelle 3.1 aufgelistet. Dritte harmonische Frequenzen ($\nu_t = 3\nu_0, \nu_\tau$) können aufgrund der begrenzten spektralen Bandbreite der Kryostatfenster aus Siliziumdioxid nicht detektiert werden und werden deshalb nicht mit aufgeführt.

Die Auswahlregeln der Wellenvektoren sind in den nichtlinearen 2D-Spektren durch verschiedene sogenannte Liouville-Pfade dargestellt [Muk95, Kue09]. Diese führen beim nicht-

linearen Prozess in Abhängigkeit von den beteiligten Photonen in Form einer aneinandergereihten Kette von Wellenvektoren direkt zu den nichtlinearen Signalen (Abbildung 3.8b, farbige Pfeile). Die Wellenfronten für k_{p1} -Signale verlaufen in der 2D-Zeitdomäne vertikal, Wellenvektoren k_{p2} besitzen diagonale Wellenfronten. FWM-Signale mit Wellenvektor k_{41} propagieren in der 2D-Zeitdomäne um 90° dazu gedreht. Vier-Wellen-Mischsignale am Punkt $(\nu_0, -2\nu_0)$ verlaufen in der Zeitdomäne unter $22,5^\circ$, SWM-Signale $(\nu_0, -3\nu_0)$ unter einem Winkel von $11,25^\circ$.

Das Signal in Abbildung 3.8b bei $(\nu_t = \nu_0, \nu_\tau = 0)$ ist ein Anrege-Abfrage-Signal, bei dem Impuls A das System anregt und Impuls B die instantane Polarisation abfragt. Für k_{p2} ist der physikalische Mechanismus identisch, die Impulse tauschen jedoch ihre Rollen.

Im Fall der Vier-Wellen-Mischsignale (FWM, k_{41} , k_{42}) soll nun vereinfacht angenommen werden, dass sich die Einhüllenden der THz-Trägerwelle $\tilde{\mathcal{E}}(t - \tau)$ beziehungsweise $\tilde{\mathcal{E}}(t)$ nur langsam verändern. Damit kann man für die elektrischen Felder, die durch die Impulse A und B im Medium erzeugt werden, schreiben [Kue09]:

$$\mathcal{E}_A(t - \tau) = \frac{1}{2} \tilde{\mathcal{E}}(t - \tau) e^{i\pi\nu_0(t-\tau)} + \text{c.c.} , \quad (3.6)$$

$$\mathcal{E}_B(t) = \frac{1}{2} \tilde{\mathcal{E}}(t) e^{i2\pi\nu_0 t} + \text{c.c.} , \quad (3.7)$$

mit den jeweiligen komplex konjugierten Komponenten (c.c.). Bei der Generation von nichtlinearen Signalen mit dem Wellenvektor k_{42} tragen zwei Photonen aus Impuls B und ein Photon aus Impuls A bei. Daraus folgt für nichtlineare Polarisation, die proportional zum Produkt der beteiligten elektrischen Felder ist:

$$P_{\text{FWM}}^{(3)} \propto \mathcal{E}_B(t) \mathcal{E}_B(t) \mathcal{E}_A(t - \tau) \propto \tilde{\mathcal{E}}^2(t) \tilde{\mathcal{E}}^*(t - \tau) e^{i2\pi\nu_0 t} e^{i2\pi\nu_0 \tau} . \quad (3.8)$$

Im Frequenzraum von $\mathcal{E}_{\text{NL}}(\tau, t)$ befindet sich dieser Prozess am Punkt (ν_0, ν_0) . Dieser Ort kann generell über verschiedene sogenannte Liouville-Pfade erreicht werden [Muk95, Kue09]. Es können auch FWM-Signale entstehen, die unter dem Wellenvektor k_{42} abstrahlen. Für elektrische Felder, die durch Sechs-Wellen-Mischen entstehen, sind insgesamt sechs Photonen beteiligt ($\chi^{(5)}$ -Nichtlinearitäten). Durch individuelle inverse Fouriertransformation der einzelnen Maxima an den Positionen (ν_t, ν_τ) kann der dynamische Verlauf der einzelnen nichtlinearen Signale direkt in der Zeitdomäne verfolgt werden.

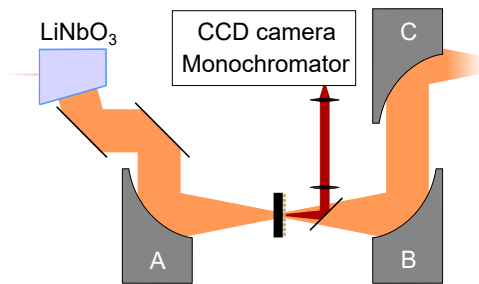


Abbildung 3.9: Prinzip der Photolumineszenz-Spektroskopie. Strahlengang der emittierten Photolumineszenz (rote Strecke) beziehungsweise der starken THz-Impulse aus dem LiNbO₃-Kristall (orange). Wahlweise kann die Probenoberfläche in einem Monochromator oder auf eine flächige CCD-Kamera abgebildet werden. Dies ermöglicht neben der spektralen Auflösung auch eine räumliche Kartografierung der Ladungsträgergeneration auf der Probenoberfläche.

3.4 Mikroskopische THz-Photolumineszenz-Spektroskopie

Dieser Abschnitt erläutert die Interband-Spektroskopie. Diese Methode wird verwendet, um die Ladungsträgerpopulation im Leitungsband des intrinsischen Halbleiters GaAs als Funktion der THz-Feldstärke zu untersuchen (Kapitel 5). Die Probe befindet sich in der Brennebene der Parabolspiegel A und B des experimentellen Aufbaus (Abbildung 3.9). Die Orientierung ist so gewählt, dass die Photolumineszenz, die in Transmission aus der Probe austritt, mit einem Spiegel aus dem THz-Strahlengang ausgekoppelt wird. Ein Teleskop, bestehend aus einer Rekollimationslinse und einem Mikroskopobjektiv, bildet die Oberfläche der Probe wahlweise auf den Eingangsspalt eines Monochromators oder auf die Oberfläche einer sensitiven CCD-Kamera (englisch: charged-coupled device, kurz: CCD) ab. Im ersten Fall wird dadurch das Spektrum der abgestrahlten Photonen analysiert. Die Verwendung des flächigen CCD-Chips erlaubt es alternativ, die genaue Position der Ladungsträgergeneration auf der Probenoberfläche zu bestimmen.

Kohärente THz-Nichtlinearitäten eines Landau-quantisierten Elektronengases

Die kohärente Kontrolle von elektronischen Quantenzuständen ist eines der großen Paradigmen der physikalischen Grundlagenforschung. Mit der Möglichkeit einen Quantencomputer zu bauen, könnte dieser Forschungsbereich richtungsgebend für die zukünftige Informationstechnologie werden [Cau10, Lad10]. In ultrakalten Gasen, die aus wenigen Atomen bestehen, konnten bereits kohärente Quantenzustände präpariert werden, die anschließend mit Hilfe der auftretenden nichtlinearen Licht-Materie-Wechselwirkung im System ausgelesen wurden [Wie99]. Im Bereich der kondensierten Materie zeigen sich ebenfalls Erfolge bei der kohärenten Kontrolle einzelner Elektronenzustände in supraleitenden Nano-Schwingkreisen [Cla08] oder atomartigen Übergängen in Quantenpunkten [Sti01, Dor16]. Die kohärente Quantenkontrolle von Vielteilchensystemen im Festkörper ist dagegen noch weitgehend unerforscht.

Im Allgemeinen befinden sich in einem Festkörper innerhalb eines Kubikzentimeters etwa 10^{23} geladene Teilchen. Daher ist auch sofort klar, dass das gesamte Spektrum optischer und elektronischer Eigenschaften aller kondensierten Materie durch Vielteilchen-Wechselwirkung grundlegend gestaltet wird. Starke Coulomb-Korrelation zwischen den Teilchen führt in der Regel zu einer Dephasierung der angeregten Quantenzustände, die innerhalb von wenigen bis hundert Femtosekunden abläuft [Che01]. Die Aussicht zur ultraschnellen Quantenkontrolle von kollektiven Anregungen im Festkörper scheidet für die meisten Vielteilchensysteme somit leider aus. Eine besondere Ausnahme existiert allerdings: Die Zyklotronresonanz von freien Elektronen eines Festkörpers im Magnetfeld. Speziell in hochbeweglichen Quantenfilmen aus Galliumarsenid werden nach THz-Anregung besonders lange kohärente Polarisationsantworten der Landau-quantisierten

Elektronen gemessen [Wan07, Wan10b, Wan10a, Ari11, TNI12]. Die Besonderheit ist, dass der harmonische Quasiteilchencharakter der Elektronen [Lan57] trotz Coulomb-basierter Vielteilchen-Korrelationen erhalten bleibt. Alle Ladungsträger oszillieren in der Probe mit konstanter Geschwindigkeit auf Kreisbahnen senkrecht zum angelegten Magnetfeld, unbeeinflusst von der stark repulsiven Kraft der gleich geladenen elektronischen Nachbarn. Dieser Sachverhalt wurde von Walther Kohn in einem Theorem bestätigt [Koh61]. Es besagt, dass die elektrischen Dipol-Übergänge der Landau-quantisierten Elektronen in translationsinvarianten Systemen nicht durch Coulomb-Felder beeinflusst werden. Auch äußere elektromagnetische Störungen bewirken keine Änderung der harmonischen Kinetik der Quasiteilchen. Der kollektive quantenmechanische Oszillator antwortet also nach optischer Anregung stets linear. In Verbindung mit einem großem Dipolmoment und dem harmonischen Energiespektrum sind Landau-quantisierte Elektronengase ideale Systeme, um komplexe Quantenphänomene, wie den ganzzahlig und gebrochenen rationalen Quanten-Hall-Effekt [Kli80, Tsu82, Kli86, Jai89, Hal93, Du93], komplexe Prozesse im Bereich ultrastarken Licht-Materie-Wechselwirkung [Sca12], Superradianz [Zha14] und erste Erfolge der kohärenten THz-Kontrolle [Ari11] zu beobachten. In der letztgenannten Publikation zeigt sich bei verwendeten Spitzenfeldstärken im Bereich von 100 V/cm keine nichtlineare Antwort der Polarisierung. Des Weiteren induziert starke optische Anregung nach dem Kohn-Theorem nur harmonisch Mehr-Photonen-Absorption. Die Energie der Elektronen und die Polarisationsantwort ändert sich als Funktion der THz-Spitzenfeldstärke lediglich linear. Kohärente Präparations-Auslese-Experimente im Quantenregime benötigen allerdings eine Nichtlinearität im System, die den momentanen Zustand adressierbar macht [Lad10].

Die vorliegende Arbeit demonstriert, dass harmonische Landau-Systeme eines Halbleiters deutliche kohärente Nichtlinearitäten zeigen, wenn diese optisch nichtperturbativ angeregt werden. Im Experiment werden starke THz-Impulse verwendet, um Landau-quantisierte Elektronen in GaAs-Quantenfilmen anzuregen. Die Ladungsträger werden durch die wohldefinierte THz-Wellenform gezielt polarisiert, wodurch sich eine kohärente Superposition von Quantenzuständen zwischen den Landau-Niveaus ausbildet. Bei Spitzenfeldstärken oberhalb von 1 kV/cm zeigt die Polarisationsantwort der Zyklotronresonanz bereits eine erste Nichtlinearität. Im transmittierten elektrischen Feld erkennt man eine deutliche Phasenverzögerung der harmonischen Nachläufer, die mit steigender Impulsenergie retardiert und gedämpft wird. Bei Spitzenfeldstärken von 8,7 kV/cm bleicht die Zyklotronresonanz vollständig aus.

In einem weiteren Experiment wird mit einem zweiten, schwachen THz-Impuls, der zeitlich relativ zum ersten verzögert ist, der momentane Polarisationszustand über die nichtlineare THz-Antwort des Systems ausgelesen. Bereits bei geringen Spitzenfeldstärken von

1,4 kV/cm treten kohärente Anrege-Abfrage-Signale und Vier-Wellen-Mischsignale auf. Für größere Felder sind Signale messbar, bei denen insgesamt sechs Photonen mit der elektronischen Resonanz wechselwirken. In diesem Regime lässt sich die Anregung nicht mehr perturbativ beschreiben. Es werden sogar kohärente nichtlineare Signale jenseits des zeitlichen Überlapps beider THz-Impulse beobachtet. Die induzierte nichtlineare Polarisation weist also weiterhin eine sehr lange Dephasierung auf. Alle gemessenen optischen Nichtlinearitäten werden einem Vielteilchen-Quantenmodell quantitativ gegenübergestellt. Als Ergebnis zeigt sich zum Beispiel, dass bereits bei moderaten THz-Spitzenfeldstärken von 4,3 kV/cm Bandstruktureffekte auftreten, die gegenüber Nichtlinearitäten aus dem nicht-parabolischen Verlauf des Bandes um Größenordnungen stärker ausfallen. Vielmehr wird die kohärente Nichtlinearität von einem Coulomb-korrelierten Quanteneffekt dominiert. Es handelt sich um die attraktive Wechselwirkung zwischen den Elektronen und ihren ionisierten Donatoratomen, die sich über 70 nm weit entfernt in der Barrierschicht der Halbleiterheterostruktur befinden und diese kohärente, dynamische Nichtlinearität induzieren. Die gewonnenen Erkenntnisse wurden in der Fachzeitschrift *Nature Physics* [Maa16] veröffentlicht. Die Diskussion in diesem Kapitel folgt der genannten Publikation.

4.1 Dynamik von Ladungsträgern im homogenen Magnetfeld

Bewegt sich ein ungebundenes Teilchen mit elektrischer Ladung e und Ruhemasse m_e in einem homogenen, statischen Magnetfeld B , wirkt auf dieses die Lorentzkraft. Die zeitlich konstante Radialkraft führt dazu, dass Elektronen senkrecht zur Magnetfeldrichtung Kreisbewegungen vollziehen. Die dazugehörige Frequenz ν_c wird auch Zyklotronfrequenz genannt. Für diese gilt:

$$\nu_c = \frac{\omega_c}{2\pi} = \frac{1}{2\pi} \frac{|e|B}{m_e} . \quad (4.1)$$

Die Bewegung des geladenen Teilchens parallel zu B ist unabhängig von der Amplitude des angelegten Magnetfeldes und entspricht der eines freien Teilchens. Die klassische Hamiltonfunktion kann somit in eine freie Bewegung parallel zur Magnetfeldrichtung und in eine Bewegungsgleichung des linearen harmonischen Oszillators in der dazu senkrechten Ebene separiert werden [CT09].

Im Quantenregime zeigen sich klare Analogien zum klassischen Bild freier, kreisender Elektronen im homogenen Magnetfeld. Experimentell wird dieses Szenario durch ein chemisch dotiertes zweidimensionales Elektronengas (2DEG) in einer Halbleiterheterostruktur realisiert (siehe Abschnitt 2.3), das senkrecht zur freien Bewegungsebene der Elektronen von einem Magnetfeld durchdrungen wird. In der quantenmechanischen Beschreibung der Elektronenbewegung wird der Hamiltonoperator \hat{H} nach dem Prinzip der minimalen

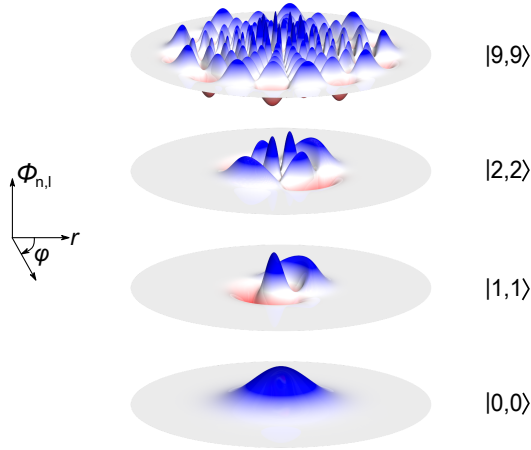


Abbildung 4.1: Wellenfunktionen der elektronischen Zustände im 2DEG bei angelegtem Magnetfeld. Wellenfunktion $\phi_{n,l}(r,\varphi)$ für Quantenzahlen n,l mit $l = n$.

Kopplung beschrieben [CT09]:

$$\hat{H} = \frac{1}{2m_e^*} [\hat{\mathbf{p}} + |e|\mathbf{A}(\hat{\mathbf{r}})]^2, \quad (4.2)$$

mit der effektiven Masse m_e^* des Elektrons im Leitungsband und der Elementarladung e . Im Allgemeinen ist $m_e^* \equiv m_e^*(\mathbf{k})$ ein Tensor zweiter Stufe, der vom Wellenvektor \mathbf{k} und der Energie der Kristallelektronen abhängt. Der Elektronenimpuls wird über den Operator $\hat{\mathbf{p}}$ definiert. Für das Vektorpotential $\mathbf{A}(\hat{\mathbf{r}}) = \frac{1}{2}\mathbf{B} \times \hat{\mathbf{r}}$ wird die symmetrische Eichung gewählt und das Magnetfeld zeigt in z-Richtung, also $\mathbf{B} = B\mathbf{e}_z$. Aufgrund der Rotationssymmetrie ist es sinnvoll, das Problem in Polarkoordinaten (r, ϕ, z) darzustellen. Die Bewegung in z-Richtung ist bereits durch die räumliche Einschränkung des 2DEGs vollständig beschrieben (Gleichung (2.2)), daher werden im Folgenden nur die Anteile des Hamiltonoperators entlang der Quantenfilmebene $\mathbf{r}_{\parallel} = (r, \phi)$ berücksichtigt. Die Lösung der Schrödingergleichung $\hat{H}\phi(\mathbf{r}_{\parallel}) = E\phi(\mathbf{r}_{\parallel})$ ist vollständig harmonisch [CT09]. Die Energieeigenwerte E_n entsprechen dem eines quantenmechanischen harmonischen Oszillators:

$$E_n = h\nu_c \left(n + \frac{1}{2} \right), \quad n = 0, 1, 2, \dots \quad (4.3)$$

Dieses Materialsystem wurde erstmals von Lev Dawidowitsch Landau in Metallen theoretisch beschrieben [Lan30]. Daher werden die Übergänge auch Landau-Niveaus (englisch: Landau levels, kurz: LL) genannt. Das Energiespektrum hängt nur von der Quantenzahl n ab. Die Auswahlregeln der elektrischen Dipolübergänge der Elektronen im Landau-System entsprechen ebenso denen eines quantenmechanischen harmonischen Oszillators:

$$\Delta n = \pm 1. \quad (4.4)$$

Inter-Landau-Übergänge können also nur zum energetisch benachbarten Niveau stattfinden. Die zugehörigen Eigenfunktionen $\phi_{n,l}(r,\phi)$ zu den Energieeigenwerten E_n lauten:

$$\phi_{n,l}(r,\phi) = \mathcal{N}_{n,l} e^{i(n-l)\phi} e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{r}{r_c}\right)^2} \left(\frac{r}{r_c}\right)^{|n-l|} L_{n_{l,-}}^{|n-l|} \left(\frac{r}{r_c}\right), \quad (4.5)$$

wobei $n, l = 0, 1, 2, \dots$, $\mathcal{N}_{n,l} = \sqrt{\frac{1}{\pi r_c^2} \frac{(n_{l,-})!}{(n_{l,+})!}}$, $n_{l,\pm} = \frac{n+l \pm |n-l|}{2}$, $r_c = \sqrt{\frac{\hbar}{eB}}$ den sogenannten klassischen Landau-Radius und $L_l^n(x)$ die assoziierten Laguerre-Polynomen darstellen. Die Wellenfunktionen bestehen aus einer Gaußschen Normalverteilung, die mit Polynomen von r moduliert wird. In Abbildung 4.1 werden exemplarisch für vier unterschiedliche Kombinationen von Quantenzahlen Wellenfunktionen dargestellt. In der Landau-Quantisierung kondensiert die konstante Zustandsdichte der statischen Ladungsträgerkonzentration im 2DEG (Abbildung 4.2a, graue Fläche) auf diskrete Niveaus mit einem Abstand von $\hbar\nu$ und einer endlichen Linienbreite Γ . Der Grad der Entartung D ist in jedem Landau-Niveau identisch und kann im Grundzustand anschaulich berechnet werden. Hier hängt die maximale Amplitude der elektronischen Wellenfunktion $r_{\max} = r_c \sqrt{2l+1}$ nur von l ab. Für $r > r_{\max}$ wird $\phi_{n,l}(r,\phi)$ stark gedämpft. Betrachtet man nun die Bewegung eines Elektrons im Magnetfeld auf einer Fläche $S = \pi R^2$ mit der Bedingung $S \gg r_c^2$, dann kann die Entartung abgeschätzt werden, in dem man die Landau-Orbits betrachtet, die gerade noch in S liegen. Für große Quantenzahlen l kann zusätzlich die Bedingung $r_{\max}^2 \approx 2lr_c^2$ angenommen werden. Für die Entartung folgt somit:

$$D \sim \frac{R^2}{2r_c^2} = \frac{SeB}{h}. \quad (4.6)$$

In der Literatur wird die Besetzung der Landau-Niveaus durch den Füllfaktor f ausgedrückt. Der Füllfaktor setzt sich aus dem Verhältnis der Flächenladungsdichte ρ_{2D} und der möglichen Anzahl der Zustände D innerhalb eines einzelnen Landau-Niveaus zusammen [Bar95]:

$$f = \frac{\rho_{2D}}{D} = n_e \frac{h}{eB}, \quad (4.7)$$

die neben der Anzahl der Ladungsträger n_e im 2DEG nur von Naturkonstanten und dem angelegten Magnetfeld B abhängt. Die Spinaufspaltung der Elektronenzustände durch den Zeeman-Effekt kann vernachlässigt werden, da dieser erst bei Feldern oberhalb von $B > 10$ T und Temperaturen von $T < 1,5$ K eine resonante Anregung im THz-Frequenzbereich induziert [Coo94, Hu95b]. Daher sind bei allen Experimenten in dieser Arbeit die 2DEGs nicht spinpolarisiert und jedes Landau-Niveau wird mit der doppelten Anzahl von Elektronen besetzt. Erhöht man das Magnetfeld, verschieben die Landau-Niveaus Richtung Fermi-Kante E_F . Hier wird zusätzlich ein idealisierter Zustand angenommen, dass die

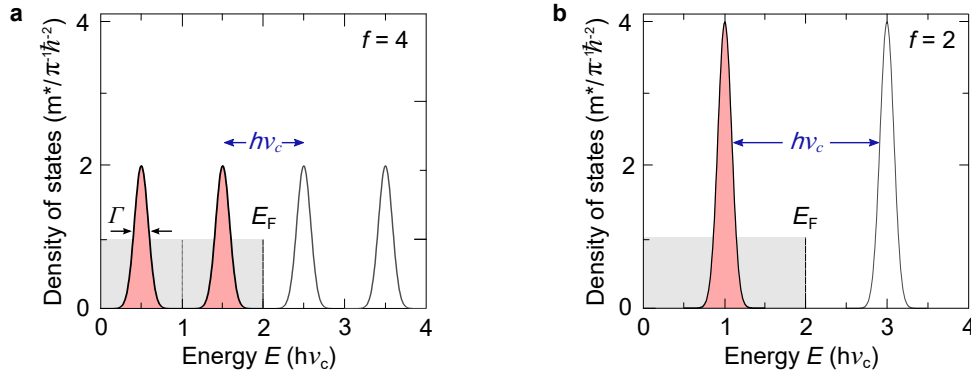


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung der Zustandsdichte als Funktion der Energie und des angelegten Magnetfeldes bei $T = 0$ K. **a**, Die konstante Zustandsdichte eines zweidimensionalen Elektronengases (grauer Kasten) kondensiert beim Anlegen eines Magnetfeldes auf diskrete Niveaus mit endlicher Breite Γ (rote Fläche). Der Abstand zum energetisch höher liegenden Zustand beträgt $h\nu_c$. Aufgrund der zweifachen Spin-Entartung sind die Landau-Niveaus doppelt besetzt. **b**, Da der Füllfaktor indirekt proportional mit dem angelegten Magnetfeld skaliert, kann man einen Grundzustand erzeugen, in dem sich alle Elektronen im untersten Landau-Niveau befinden.

thermische Besetzung durch eine scharfe Fermikante E_F definiert ist. Diese Annahme ist gerechtfertigt, da die thermische Energie $k_B T$ mit der Boltzmann-Konstante k_B und der Temperatur T unter den experimentellen Bedingungen von $T = 4,3$ K und Magnetfeldstärken von $B > 1$ T über eine Größenordnung geringer ausfällt als die Energie $h\nu_c$ der Landau-quantisierten Elektronen. Erst bei größeren Temperaturen ($T > 30$ K) macht sich eine thermische Besetzung angeregter Zustände bemerkbar. Dann öffnen sich vor allem Streukanäle wie resonante Gitterschwingungen, die zu einer Verbreiterung der Linienbreite Γ der Landau-Niveaus führen [Hu95a, Hu96, Zha14]. Beim Überschreiten der Fermi-Energie, verteilen sich die Elektronenzustände auf die energetisch niedrigeren Niveaus. In diesem Regime beobachtet man ganzzahlige Sprünge im Hall-Widerstand. Dieses Quantenphänomen wird daher auch ganzzahliger Quantenhalleffekt genannt [Kli80, Kli86]. Bei noch größeren Magnetfeldern misst man sogar diskrete Widerstandswerte, die bei gebrochenen rationalen Füllfaktoren auftreten [Tsu82, Jai89, Hal93, Du93]. In diesem Szenario paaren sich zur Minimierung der Eigenenergie Elektronen mit magnetischen Elementaranregungen (magnetischen Flussquanten) und bilden neue Quasiteilchen aus, sogenannte Komposit-Fermionen (englisch: composite fermions) [Kuk02]. Derartige Effekte sind allerdings nur bei sehr niedrigen Temperaturen ($T < 1,6$ K) oder Magnetfeldern $B > 5$ T experimentell beobachtbar. Im Rahmen dieser Arbeit wird ein Magnetkryostat verwendet, dessen maximaler Arbeitspunkt mit $B = 5$ T bei einer minimal erreichbaren Temperatur von 4,3 K definiert ist. Daher kann der Grundzustand des magnetisch vorgespannten Sy-

stems durchgehend als schwach wechselwirkendes Elektronengas verstanden werden. Der Quasiteilchencharakter definiert sich weiterhin über die effektive Masse der Elektronen im Leitungs- oder Valenzband des Materials [Dre53, Kit02].

Um Inter-Landau-Übergänge experimentell beobachten zu können, muss in einem anschaulichen Bild die mittlere freie Weglänge, definiert über die Streuzeit τ zwischen zwei Streuprozessen der kreisenden Elektronen im Magnetfeld, in der gleichen Größenordnung liegen wie die Periodendauer T_c einer vollständigen Zyklotronbahn. Die Elektronen dürfen während dieser Zeit keinen Streuprozess erfahren. Formell bedeutet dies, dass für die Streuzeit der Elektronen gelten muss:

$$\tau > T_c = \frac{1}{\nu_c} , \quad (4.8)$$

beziehungsweise

$$\nu_c \tau = \frac{1}{2\pi} \frac{|e|B}{m_e^*} \tau = \frac{\mu}{2\pi} B > 1 , \quad (4.9)$$

hier bezeichnet μ die Beweglichkeit der Ladungsträger [Dre55].

Möchte man die obige Ungleichung erfüllen, kann man bei einem Magnetfeld von $B = 1$ T genau dann Inter-Landau-Übergänge experimentell beobachten, wenn die Beweglichkeit der Ladungsträger größer ist als $10^4 \frac{\text{cm}^2}{\text{Vs}}$. Solch große Werte können technologisch entweder in hochreinen Volumenmaterialien oder 2DEGs erreicht werden (Abschnitt 2.4). Für den Halbleiter Galliumarsenid (GaAs) und $B = 1$ T stellt sich die CR-Frequenz bei 0,3 THz ein. Für gängige III-V-Verbindungshalbleiter mit ähnlichen effektiven Massen liegt ν_c ebenfalls im unteren THz-Frequenzbereich und sind damit ohne großen technischen Aufwand experimentell zugänglich [Hil12].

Besonderes Augenmerk verdient das elektrische Dipolmoment d_{el} der Inter-Landau-Übergänge. Dieses skaliert in Analogie zum quantenmechanischen harmonischen Oszillator wie $d_{\text{el}} = e \cdot r \sqrt{n}$, mit der Elementarladung e , dem Ortsoperator r und der Quantenzahl n . Nimmt man wieder ein Magnetfeld von $B = 1$ T an, dann beträgt das Dipolmoment beim Übergang aus dem Grundzustand $n = 0$ nach $n = 1$ ungefähr $d_{\text{el}} \approx e r_c = 26 e \text{ nm}$. Bei atomaren Übergängen skaliert der Ortsoperator hingegen mit dem Bohrradius $r \equiv a_B$. Das Dipolmoment der Inter-Landau-Übergänge ist somit um etwa drei Größenordnungen stärker als das von atomaren Resonanzen.

4.2 Das Theorem von Kohn

Das große Dipolmoment von Elektronen im Magnetfeld führt zu einer besonders starken Kopplung an das elektromagnetische Strahlungsfeld. Aus diesem Grund stellen Materie-

anregungen, die auf Zyklotronresonanzen basieren, den derzeitigen Rekord im Bereich der ultrastarken Licht-Materie-Wechselwirkung [Hag10, Sca12]. Bei resonanter Licht-Materie-Kopplung an eine photonische Resonanz eines Metamaterials zeigen sich enorm große Vakuum-Rabi-Aufspaltungen bis zu $\frac{\Omega_R}{\omega_c} \approx 0,9$ [Mai14]. Die Vakuum-Rabi-Frequenz Ω_R beschreibt dabei die Oszillation der Energie zwischen Lichtfeld und der Materieanregung. Eine besondere Eigenschaft der Elektronen im Magnetfeld ist die scheinbare Immunität gegenüber Coulomb-korrelierter Wechselwirkung, wie der Elektron-Elektron-Streuung. Nach dem Kohn-Theorem [Koh61] antwortet ein translationsinvariantes System wechselwirkender geladener Teilchen im Magnetfeld immer harmonisch auf eine externe Störung. Auch unter optischer Anregung bleibt die Quasiteilchennatur der Elektronen erhalten, obwohl der räumliche Überlapp der elektronischen Wellenfunktionen im 2DEG und damit die Coulomb-Kraftwirkung bei Energieabsorption zunimmt. Genauer, nach dem Kohn-Theorem kann keine perturbative Störung die Übergangsenergie $h\nu_c$ des Nichtgleichgewichtszustandes modifizieren. Daher ist die optische Antwort des wechselwirkenden Vielteilchensystems nach dem Kohn-Theorem stets linear. Diese allgemeine Aussage soll nun kurz vorgestellt werden:

Der Hamiltonoperator eines Systems aus N geladenen Teilchen der Masse m_e , auf die ein homogenes magnetisches Feld B in z -Richtung wirkt, kann geschrieben werden als [Koh61]:

$$\hat{H} = \frac{1}{2m_e} \sum_{i=1}^N \hat{\mathbf{P}}_i^2 + \sum_{i<j}^N V(|\hat{\mathbf{r}}_i - \hat{\mathbf{r}}_j|) = \hat{H}_0 + \hat{V}_{ee} . \quad (4.10)$$

Der Gesamtimpuls des Systems (oder Schwerpunktsimpuls) setzt sich aus der Summe der einzelnen kanonischen Impulse $\hat{\mathbf{P}}_i$ zusammen:

$$\hat{\mathbf{P}}_e = \sum_{i=1}^N \hat{\mathbf{P}}_i = \sum_{i=1}^N (\hat{\mathbf{p}}_i + e\hat{\mathbf{A}}(\hat{\mathbf{r}}_i)) . \quad (4.11)$$

Betrachtet man den Kommutator zwischen der Coulomb-Wechselwirkung \hat{V}_{ee} der Elektronen und dem Gesamtimpuls so kann man zeigen, dass gilt [Koh61]:

$$[\hat{V}_{ee}, \hat{\mathbf{P}}_e] = 0 . \quad (4.12)$$

Dies bedeutet, dass der Gesamtimpuls des Systems eine messbare Observable ist, die nicht von Coulomb-Korrelation zwischen den Elektronen beeinflusst wird. Diese Gleichung zeigt ferner, dass auch externe perturbative Störungen, wie homogene elektromagnetische Strahlung keine Möglichkeit hat, interne Freiheitsgrade des Elektronengases anzuregen. Translationsinvariante Landau-Systeme koppeln also nur über ihren Schwerpunktsimpuls $\hat{\mathbf{P}}_e$ an das Strahlungsfeld. Um dies zu zeigen, definiert man die zugehörigen Leiteropera-

toren $P_{\pm} = P_x \pm iP_y$, die der Kommutatorregel $[\hat{H}, P_{\pm}] = \pm h\nu_c P_{\pm}$ genügen. Wendet man diese Beziehung auf den Grundzustand Ψ_0 mit der Energie E_0 an, dann erhält man als nichttriviale Lösung:

$$\hat{H}P_+\Psi_0 = h\nu_c P_+\Psi_0 + E_0\Psi_0 . \quad (4.13)$$

Da $\Psi_1 \equiv P_+\Psi_0$ erkennt man sofort, dass der erste angeregte Zustand ein Eigenzustand von \hat{H} ist, der die Energie $E_1 = E_0 + h\nu_c$ besitzt.

In einem weiteren Schritt wird das System einer externen Störung ausgesetzt. Bei homogener elektromagnetischer Strahlung, die sich mit einer Amplitude E_0 entlang der positiven z-Richtung ausbreitet und eine links-zirkuläre Polarisation ($\mathbf{E}_- = \mathbf{e}_x - i\mathbf{e}_y$) besitzt, gilt für die elektrische Feld-Komponente:

$$\mathbf{E} = E_0 \frac{1}{\sqrt{2}} \mathbf{E}_- e^{-(ik_z z + \nu_c t/2\pi)} . \quad (4.14)$$

Mit $\mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}$ folgt daraus für das resultierende Vektorpotential:

$$\mathbf{A}' = -\frac{2\pi E_0}{\sqrt{2}i\nu_c} \mathbf{E}_- e^{(-i\nu_c t/2\pi)} . \quad (4.15)$$

In erster Ordnung Störungstheorie folgt für den Störoperator \hat{H}' [CT09]:

$$\hat{H}' \approx \frac{e}{m^*} \mathbf{P} \cdot \mathbf{A}' = \frac{e}{m^*} (P_x + P_y) \cdot \mathbf{A}' . \quad (4.16)$$

Setzt man nun Gleichung (4.15) in (4.16) ein, erhält man als Ergebnis für \hat{H}' :

$$\hat{H}' = -\frac{2\pi e}{i\nu_c m^*} \mathbf{E}_- P_+ e^{(-i\nu_c t/2\pi)} . \quad (4.17)$$

Man sieht also, dass die äußere Störung des Landau-quantisierten Elektronensystems über den Leiteroperator P_+ des Gesamtimpulses mit den Eigenzuständen des ungestörten Hamiltonoperators \hat{H}_0 verknüpft ist. Die Kopplung der Elektronen im Magnetfeld an ein äußeres Strahlungsfeld ist damit nur kollektiv über die Schwerpunktsbewegung möglich. Als Ergebnis erhält man in Transmission parallel zur Magnetfeldrichtung eine scharfe Absorption von links zirkular-polarisierter Strahlung bei der Resonanzfrequenz $\nu = \nu_c$ des Inter-Landau-Überganges. Im folgenden Abschnitt wird das Kohn-Theorem bei schwacher optischer Anregung experimentell verifiziert.

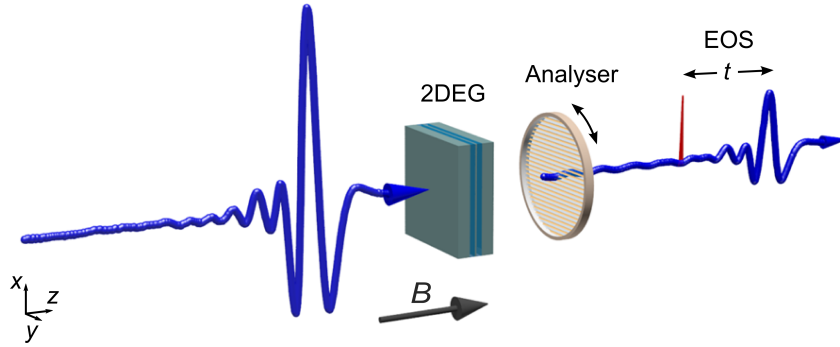


Abbildung 4.3: Schematischer Aufbau der THz-Transmissionsspektroskopie in Faraday-Geometrie. Linear polarisierte THz-Impulse treffen auf die Probe (2DEG) und induzieren eine Polarisation im Material. Der Verlauf der abgestrahlten elektrischen Felder wird in Transmission als Funktion der Zeit t elektro-optisch detektiert. Das Magnetfeld B steht senkrecht auf der Quantenfilmebene der Probe. Ein Drahtgitter-Polarisator (Analyser) und ermöglicht es beide Feldkomponenten der abgestrahlten Polarisation unabhängig zu beobachten.

4.3 Zeitaufgelöste THz-Spektroskopie eines Landau-quantisierten 2DEGs

Zuerst wird die optische Antwort des Elektronengases mit schwachen THz-Impulsen bestimmt, die durch optische Gleichrichtung von NIR-Strahlung in einem $180\,\mu\text{m}$ dünnen Gallumphosphidkristall erzeugt werden. Das Experiment wird in der sogenannten Faraday-Geometrie durchgeführt. Abbildung 4.3 zeigt schematisch den Aufbau. Das Magnetfeld B und die Ausbreitungsrichtung der THz-Impulse stehen senkrecht auf der Quantenfilmebene, der (x,y) -Ebene. Das B -Feld wird variabel zwischen 0 und 5 T eingestellt. Das elektrische Feldprofil der phasenstarken THz-Transienten besteht aus einzelnen Lichtschwingungen (Abbildung 4.4, schwarze Kurve), die Spitzenfeldstärke beträgt am relativen EOS-Zeitnullpunkt $\mathcal{E}_0 = 90\,\text{V/cm}$. Für die Experimente befindet sich die Probe in einem Magnetkryostaten mit optischem Zugang. Durch kryogenes Kühlen beträgt die Gittertemperatur der Probe für alle Messungen 4,3 K. Technisch besteht die epitaktisch gewachsene Halbleiterheterostruktur aus zwei chemisch dotierten GaAs-Quantentrögen mit einer Breite von je 30 nm. Die Töpfe umgibt eine Barrierschicht aus der Verbindung $\text{Al}_{0,24}\text{Ga}_{0,76}\text{As}$. Die Energie des Leitungsbandes der Barrierschicht ist um $\Delta E = 220\,\text{meV}$ größer als die der Töpfe. Damit ist gewährleistet, dass zwischen den beiden 2DEGs keine Wechselwirkung stattfinden kann, die zu einer nichtlinearen Kopplung führen würde (Anhang A). Die Ladungsträgerdichte beträgt in jedem Quantentopf $\rho_e = 1,6 \cdot 10^{11}\,\text{cm}^{-2}$. Die Elektronen besitzen aufgrund des räumlichen Abstandes zur Dotierschicht von 72 nm

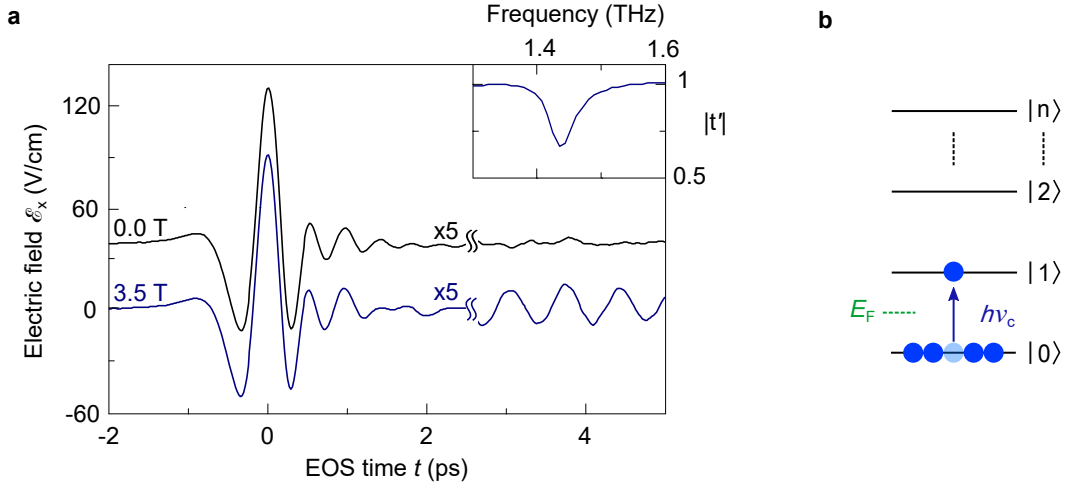


Abbildung 4.4: Lineare THz-Magnetospektroskopie Landau-quantisierter 2DEGs. **a**, Transmittierte THz-Impulse bei $B = 3.5$ T (blaue Kurve) und bei $B = 0$ T (schwarze Kurve, vertikal versetzt). Kasten: Das Amplitudenverhältnis $|t'|$ aus den Fourierspektren der Wellenformen zeigt die Zyklotronresonanz als schmalbandigen Einbruch bei der Resonanzfrequenz $\nu_c = 1.45$ THz. **b**, Landau-Quantisierung. Bei $B = 3.5$ T kondensieren alle Ladungsträger in den Grundzustand $|n = 0\rangle$. Die schwachen THz-Impulse generieren eine Polarisation nur zwischen den Zuständen $|0\rangle$ und $|1\rangle$. Diese strahlt für positive Verzögerungszeiten $t > 0$ in Form von langlebigen Oszillationen in das Fernfeld ab.

eine sehr hohe Beweglichkeit. Diese wurde mit der Van-der-Pauw-Messmethode [Pau59] bei $T = 4,3$ K experimentell bestimmt und beträgt $\mu_e = 4,6 \cdot 10^6 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$. Nach Anregung der Probe durch den schwachen THz-Impuls wird die Wellenform der abgestrahlten Polarisation in Transmission als Funktion der Zeit t elektro-optisch detektiert. Mit Hilfe eines Analysators werden die Polarisationskomponenten parallel (\mathcal{E}_x) und senkrecht (\mathcal{E}_y) zur eingestrahlten THz-Polarisation unabhängig voneinander gemessen.

Ohne Magnetfeld ($B = 0$ T) weist das elektrische Feld (parallel zur x-Richtung) in Transmission nach der Probe im Bereich von $t = 0$ ps Oszillationen auf (Abbildung 4.4.a, schwarze Kurve), die identisch zum zeitlichen Profil des treibenden THz-Impulses verlaufen. Für $B = 3,5$ T zeigen sich bei positiven Verzögerungszeiten zusätzlich langlebige oszillatorische Nachläufer (blaue Kurve, 5-fach vergrößert dargestellt). Diese spiegeln die elementare Anregung der Zyklotronresonanz eines 2DEGs im Magnetfeld wider. Das Amplitudenverhältnis $|t'| = \mathcal{E}(\nu, B = 3,5 \text{ T}) / \mathcal{E}(\nu, B = 0 \text{ T})$ der Signale im Fourier-Raum zeigt die Zyklotronresonanz als schmalbandigen Einbruch in der Transmission bei der Resonanzfrequenz $\nu_c = 1,45$ THz (Abbildung 4.4a, Kasten). Physikalisch geschieht folgendes: Durch das angelegte Magnetfeld ($B = 3,5$ T) kondensiert das freie Elektronengas komplett in den energetisch entarteten Grundzustand $|n = 0\rangle$ des Landau-Systems (Abbildung 4.4b). Der Füllfaktor beträgt unter Berücksichtigung der Spinentartung $f/2 = 0,95$.

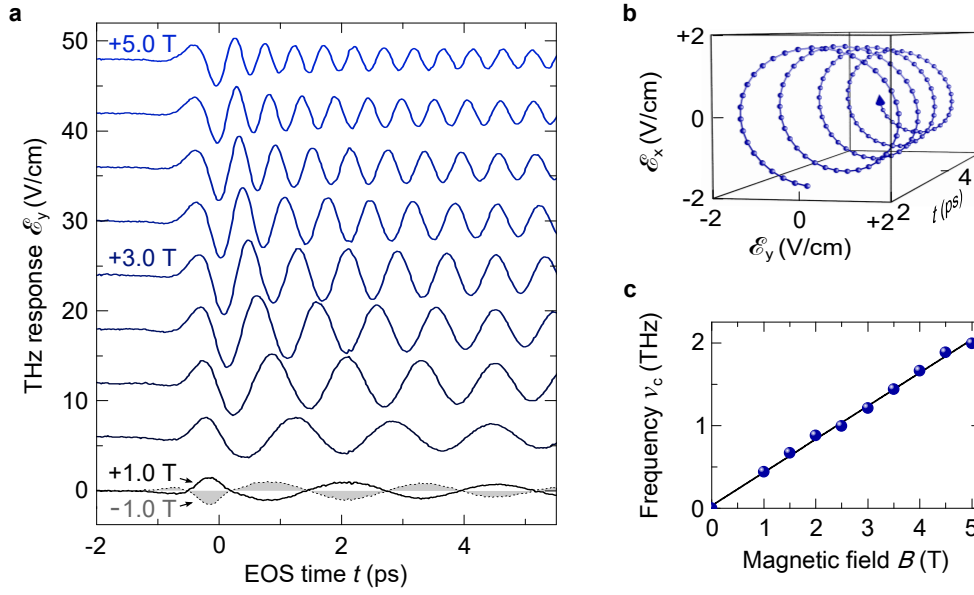


Abbildung 4.5: Zeitaufgelöste Reemission des Landau-Systems senkrecht zum elektrischen Feld der treibenden THz-Impulse. **a**, Messung der Polarisationsantwort $\mathcal{E}_y(t)$ als Funktion des Magnetfeldes zwischen $B = +1,0$ T und $+5,0$ T in Schritten von $B = 0,5$ T (durchgezogene Kurven). Zeigt das Magnetfeld in die entgegengesetzte Richtung, $B = -1,0$ T, dreht sich die Phase der abgestrahlten Wellenform um 180° (graue Fläche). **b**, Parametrische Darstellung der Polarisationsantwort des Inter-Landau-Überganges zwischen Zustand $|0\rangle$ und $|1\rangle$ bei einer Magnetfeldstärke von $B = 3,5$ T. **c**, Zyklotronresonanzfrequenzen ν_c ermittelt aus dem Amplitudenspektrum von **a** als Funktion des Magnetfeldes B . Aus der Steigung (schwarze Linie) ergibt sich eine konstante effektive Masse der Ladungsträger von $m_e^* = 0,067 m_0$.

Das elektrische Feld des THz-Transienten induziert durch das elektrische Dipolmoment der Inter-Landau-Übergänge eine Polarisation zwischen den Zuständen $|0\rangle$ und $|1\rangle$. Die kohärente Überlagerung der entarteten Elektronenzustände führt zu einer makroskopischen Polarisation, die anschließend wieder kohärent in das Fernfeld abstrahlt.

Abbildung 4.5a zeigt die Reemission $\mathcal{E}_y(B, t)$ der Inter-Landau-Übergänge senkrecht zum eingestrahlten Feld als Funktion der Abtastzeit t für verschiedene Magnetfeldstärken B . Hier zeigt sich die Harmonizität der angeregten Landau-quantisierten Quasiteilchen. Die Polarisationsantwort besteht für alle angelegten Magnetfelder aus einer langlebigen Oszillation, die um den Zeitnullpunkt beginnt und sich für $t \geq 0$ fortsetzt. Der Unterschied in der Amplitude der CR-Oszillationen für verschiedene B -Feldstärken stammt vom Profil des Amplitudenspektrums der treibenden THz-Impulse. Für alle Messungen zeigt sich zudem zur festen Verzögerungszeit $t = -250$ fs ein Halbzyklus konstanter Amplitude, der dem Einschwingvorgang des getriebenen harmonischen Oszillators zuzuordnen ist. In Abbildung 4.5b ist die CR-Reemission für $B = 3,5$ T polarisationsaufgelöst dargestellt. Für die Richtung parallel zum elektrischen Feld des eingestrahlten THz-Impulses wird die

reine Polarisationsantwort der Inter-Landau-Übergänge durch Differenz der beiden Signale $\mathcal{E}_x(t, B = 3,5 \text{ T}) - \mathcal{E}_x(t, B = 0,0 \text{ T})$ isoliert. Das abgestrahlte Feld weist, wie in den theoretischen Überlegungen aus dem vorherigen Abschnitt erwartet, eine links-zirkulare Polarisationsantwort mit einer konstanten Kohärenzzeit $\tau_{\text{CR}} = 9 \text{ ps}$ auf. Mit Vorzeichenwechsel des B -Feldes wechselt auch die Helizität des abgestrahlten Feldes [Ari11]. Als Beispiel zeigt die graue Fläche in Abbildung 4.5a die gemessene CR-Reemission für ein Magnetfeld von $B = -1,0 \text{ T}$. Abbildung 4.5c illustriert die lineare Beziehung der Resonanzfrequenz ν_c des Inter-Landau-Überganges als Funktion des Magnetfeldes B . Aus $\nu_c = eB/2\pi m_e^*$ (Gleichung (4.1)) kann direkt auf die effektive Masse $m_e^* = 0,067 m_e$ der Elektronen im Leitungsband geschlossen werden, wobei m_e die Ruhemasse des Elektrons bezeichnet.

Die Kohärenzzeit τ_{CR} der angeregten Elektronen im Magnetfeld kann durch die exponentielle Zerfallskonstante der Polarisationsantwort direkt bestimmt werden. Dazu wird die gemessene CR-Reemission aus Abbildung 4.5a mit einer gedämpften sinusförmigen Welle verglichen. Die zugehörige Formel lautet: $A \cdot \exp(-t/\tau_{\text{CR}}) \cdot \sin(2\pi\nu_c t + \varphi_0)$. Amplitude A und relative Phase φ_0 der Polarisationsantwort werden in den Messdaten numerisch angepasst. Als Ergebnis zeigt sich, dass die Kohärenzzeit nicht vom Magnetfeld abhängt und für alle Messungen bei schwacher optischer Anregung $\tau_{\text{CR}} = 9 \text{ ps}$ beträgt. Der Wert liegt aber deutlich unter der Streuzeit $\tau_{\text{DC}} = 175 \text{ ps}$, die bei Transportmessungen mit der Van-der-Pauw-Messmethode über die Formel $\tau_{\text{DC}} = m_e^* \mu_e / e$ bestimmt werden kann. Die Ursache für den Unterschied in den Streuzeiten begründet sich in der Art der Messmethode. In Experimenten mit inkohärenten Lichtquellen oder Studien in Form von Transportmessungen, wird die Antwort des Systems zeitlich integriert. So zeigt sich zum Beispiel bei der Ferninfrarot-Spektroskopie eines 2DEGs im Magnetfeld eine abweichende Linienbreite der Zyklotronresonanz, die durch die auftretenden mehrfachen Rückreflexe an den Grenzflächen der Probe verursacht wird [Chi76, Cho88, Mat96, Mik04]. Des Weiteren berücksichtigen diese Messmethoden keine kohärenten Depolarisationseffekte.

Erst die zeitaufgelöste THz-Magnetospektroskopie ermöglichte es, die tatsächliche Linienbreite der Inter-Landau-Übergänge zu bestimmen und eine Erklärung für die Anomalie der Kohärenzzeit zu finden [Zha14]. Hier wird der einmalige Zeitpunkt der kohärenten Anregung genau eingestellt und die THz-Antwort bis zum Abklingen der Polarisation direkt in der Zeitdomäne verfolgt, bevor Rückreflexe das Signal verfälschen. Mit der elektro-optischen Detektion kann die absolute Amplitude und Phase der abgestrahlten elektrischen Felder exakt gemessen werden, um die optische Leitfähigkeit und die reine Zerfallszeit τ_{CR} der angeregten Zyklotronresonanz quantitativ zu bestimmen [Wan10a]. Der Grund weshalb optisch und kohärent angeregte Inter-Landau-Übergänge eine weitaus schnellere Dephasierung aufweisen auf als zum Beispiel mit der Van-der-Pauw-Mess-

methode bestimmt wird, basiert auf dem Prinzip der ultraschnellen superradianten Abstrahlung (Superradianz). Zhang und Mitarbeiter [Zha14] untersuchten dazu die Zerfallszeit der Polarisation angeregter Elektronen im Magnetfeld als Funktion der Ladungsträgerdichte n_e und stellten dabei fest, dass die Dephasierung mit der Teilchendichte im Nichtgleichgewichtszustand korreliert. Die Stärke der Dephasierung der makroskopischen Polarisation hängt hier sogar wesentlich von der Anzahl der beteiligten Ladungsträger im dichten Gas ab. Im Vergleich zu der Annahme, es wechselwirken n_e unabhängige Oszillatoren mit der optischen Strahlung, fällt die gekoppelte Depolarisation bei Superradianz um den Faktor $N \sim n_e \lambda_c^2$ stärker aus. Der Parameter definiert sich über die Anzahl der Elektronen n_e im Elektronengas, die sich innerhalb der kohärenten Anregungsfläche der THz-Strahlung mit Wellenlänge λ_c befinden. In GaAs-Quantentöpfen beträgt die Wellenlänge des elektronischen Übergangs bei einem Magnetfeld von $B = 1$ T genau $\lambda_c = 0,6$ cm. In Verbindung mit dem großen Dipolmoment und der großen Wellenlänge stellt die superradiante Dämpfung vor allem in hochreinen Elektronengasen den schnellsten Prozess dar, der zu einer kollektiven Depolarisation der angeregten Quantenzustände führt. Superradianz ist zwar ein Vielteilchenprozess von Elektronen, er begrenzt aber nur die Lebensdauer. Er hat keinen Einfluss auf die Übergangsenergien $h\nu_c$ des Landau-Systems. Die Antwort der Zyklotronresonanz bleibt weiterhin strikt linear.

Vergleicht man die experimentell ermittelte Zerfallszeit $\tau_{CR} = 9$ ps bei einer Elektrodendichte von $\rho_e = 1,6 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ pro 2DEG in der Probe unter schwacher optischer Anregung, so stimmt diese mit den Ergebnissen aus [Zha14] sehr gut überein. Dies belegt, dass die Kohärenz der Zustände im 2DEG bei schwacher THz-Amplitude durch Superradianz festgelegt ist. Im nächsten Experiment sollen nun intensive THz-Impulse verwendet werden, die das Elektronensystem im Magnetfeld möglichst stark anregen.

4.4 Nichtlineare THz-Magnetospektroskopie mit starken THz-Impulsen

In Analogie zur vorherigen Messreihe in Faraday-Geometrie wird das Landau-System nun mit starken THz-Feldern angeregt. Diese werden in einem Lithiumniobat-Kristall durch optische Gleichrichtung ultrakurzer Impulse aus dem Titan-Saphir-Laserverstärkersystem erzeugt (Abschnitt 3.2). Die Spitzenfeldstärke \mathcal{E}_0 der THz-Transienten wird für die Messreihe mit einem Paar von Drahtgitter-Polarisatoren zwischen $0,7 \text{ kV/cm}$ und $8,7 \text{ kV/cm}$ variiert. Das elektrische Feld der einfallenden Impulse ist weiterhin in x -Richtung polarisiert. Die Polarisationsantwort $\mathcal{E}_y(t)$ des Systems wird hier senkrecht dazu elektro-optisch hintergrundfrei detektiert. Das Magnetfeld beträgt für alle Messungen $B = 3,5$ T.

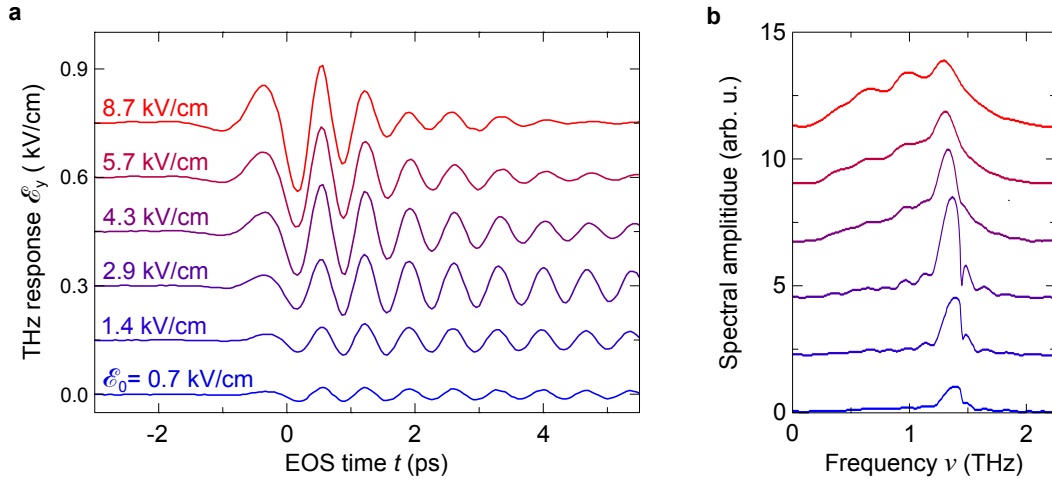


Abbildung 4.6: Nichtlineare Reemission eines Landau-quantisierten Elektronenensembles unter dem Einfluss starker THz-Impulse. **a**, THz-Wellenform der Polarisationsantwort $\mathcal{E}_y(t)$ bei verschiedenen Anregungsfeldstärken mit einer Maximalamplitude von \mathcal{E}_0 zwischen 0,7 kV/cm und 8,7 kV/cm. Die Amplitude des Magnetfeldes beträgt für alle Messungen $B = 3,5$ T. Die Daten sind zum besseren Verständnis vertikal verschoben. Für Feldstärken $\mathcal{E}_0 \geq 2,9$ kV/cm setzt eine zunehmende Rotverschiebung der Polarisationsantwort ein. Ab $\mathcal{E}_0 \geq 4,3$ kV/cm bricht die Kohärenzzeit des angeregten Systems stark ein. Dies führt bei den höchsten THz-Feldern dazu, dass der zeitliche Feldverlauf der Polarisationsantwort im Wesentlichen dem des treibenden THz-Transienten folgt. **b**, Das zugehörige Amplitudenspektrum bestätigt die nichtlineare Antwort des Systems. Bis $\mathcal{E}_0 = 1,4$ kV/cm steigt die Amplitude der Zyklotronresonanz linear an und hat ein Maximum bei einer Frequenz von $\nu_c = 1,45$ THz. Für größere Feldstärken setzt eine Rotverschiebung ein und die Polarisationsantwort verbreitert sich spektral.

Abbildung 4.6a zeigt die beobachteten Ergebnisse in der Zeitdomäne. Für Anregungsfeldstärken $\mathcal{E}_0 \leq 1,4$ kV/cm beobachtet man einen Anstieg der Amplitude der Polarisationsantwort $\mathcal{E}_y(t)$. Der zeitliche Verlauf der Wellenform besitzt bei diesen Messungen aber weiterhin eine ähnliche Form und gleicht dem der schwachen THz-Anregung (siehe Abbildung 4.5a). Für $\mathcal{E}_0 \geq 2,9$ kV/cm setzt eine zunehmende Retardierung der Phase ein und die Nachläufer der Polarisationsantwort zeigen für spätere Verzögerungszeiten einen schnelleren Zerfall. Dieser wird für die stärksten hier gezeigten Anregungsfeldstärken ($\mathcal{E}_0 = 8,7$ kV/cm) derart drastisch, dass die Reemission im Wesentlichen nur noch aus der instantanen Polarisation des treibenden Feldes besteht (Abbildung 4.6a, rote Kurve).

Abbildung 4.6b zeigt das zugehörige Amplitudenspektrum der abgestrahlten THz-Wellenformen. Bei den ersten beiden Anregungsfeldstärken liefert die Fouriertransformation die erwartete schmalbandige Resonanz bei der Zentralfrequenz $\nu_c = 1,45$ THz. Für $\mathcal{E}_0 \geq 2,9$ kV/cm spiegelt sich die feldstärkenabhängige Phasenverzögerung in einer Rotverschiebung der Zentralfrequenz wider. Zusätzlich wird die Polarisationsantwort spektral ver-

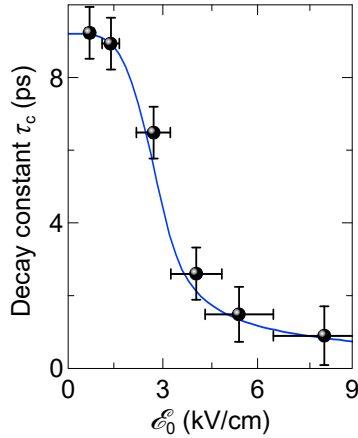


Abbildung 4.7: Bestimmung der Zerfallszeit der induzierten Inter-Landau-Polarisation als Funktion der maximalen Anregungsfeldstärke \mathcal{E}_0 der THz-Impulse. Die Dephasierungszeit der Kohärenz ist für THz-Feldstärken $\mathcal{E}_0 \leq 1,4 \text{ kV/cm}$ ungefähr $\tau_c \approx 9 \text{ ps}$. Für Felder oberhalb von 3 kV/cm zeigt sich eine stufenartige Reduzierung, die für stärkste Anregungen zu einer Zerfallszeit der Kohärenz von $\tau_c = 0,5 \text{ ps}$ führt. Die blaue Linie zeigt die Dephasierungsdynamik, die im Rahmen der Vielteilchen-Quantentheorie berechnet wird (Abschnitt 4.8).

breitert und nimmt für $\mathcal{E}_0 = 8,7 \text{ kV/cm}$ die Form des treibenden THz-Spektrums an (Abbildung 3.6). Die Dephasierungszeit der angeregten Elektronen im Magnetfeld wird wie im letzten Abschnitt als Funktion von \mathcal{E}_0 durch eine numerische Anpassung an eine sinusförmige, gedämpfte Schwingung quantitativ ausgewertet. Das Ergebnis ist in Abbildung 4.7 dargestellt. Hier zeigt sich, dass für niedrige THz-Feldstärken mit einer Spitzenfeldstärke von $2,9 \text{ kV/cm}$ die Dephasierung der makroskopischen Polarisation $\tau_{\text{CR}} \approx 9 \text{ ps}$ beträgt. Diese stimmt mit den Messungen bei schwacher THz-Anregung überein. Die Dephasierung wird in diesem Regime durch superradiante Abstrahlung bestimmt [Zha14]. Für Felder oberhalb von $\mathcal{E}_0 > 3 \text{ kV/cm}$ setzt dagegen eine stufenartige Reduzierung der Kohärenzzeit ein, die für die stärksten angelegten THz-Felder zu einer Zerfallszeit der induzierten Polarisation von $\tau_{\text{CR}} = 0,5 \text{ ps}$ führt.

Zusammenfassend ist festzuhalten, dass die Polarisationsantwort von Landau-quantisierten Elektronen stark von der Amplitude der eingestrahlten THz-Impulse abhängt. Das anharmonische und damit nichtlineare Verhalten ist ein klares Indiz dafür, dass eine Beschreibung des Systems in Form eines harmonischen Oszillators ungenügend ist. Im Folgenden soll nun ausgehend von den klassischen Bewegungsgleichungen für Elektronen im Magnetfeld der Ursprung der beobachteten THz-Nichtlinearitäten und der damit verbundenen Ungültigkeit des Kohn-Theorems analysiert werden.

4.5 Dynamik Landau-quantisierter Elektronen in GaAs-Quantentöpfen

In diesem Abschnitt werden die Hamilton-Bewegungsgleichungen für Elektronen in einem statischen Magnetfeld aufgestellt. Damit kann die nichtlineare Dynamik der makroskopischen Polarisation unter dem Einfluss starker Lichtfelder untersucht werden. Beginnend mit einem klassischen Einteilchenbild mit nichtparabolischer Energiedispersion wird in dem darauffolgenden Abschnitt eine Vielteilchen-Quantentheorie vorgestellt, die alle essentiellen Wechselwirkungsmechanismen berücksichtigt. Das Konzept dieser vollständigen Quantentheorie wurde in der Forschungsgruppe von Prof. Dr. Mackillo Kira und Prof. Dr. Stephan W. Koch an der Universität Marburg entwickelt [Kir11]. Die quantenmechanischen Simulationen in dieser Arbeit basieren auf diesen Modellen und wurden von Dr. Martin Mootz für das Landau-System weiterentwickelt [Maa16]. Die klassischen Bewegungsgleichungen wurden ebenfalls von Dr. Martin Mootz in Kollaboration mit Prof. Dr. John Sipe, Universität Toronto, herausgearbeitet. Alle theoretischen Berechnungen werden am Ende dieses Abschnitts mit den experimentellen Beobachtungen quantitativ verglichen.

4.5.1 Klassisches Modell mit nichtparabolischer Energiedispersion

Die anharmonische THz-Antwort eines einzelnen Elektrons mit Impuls \mathbf{p} im Magnetfeld kann durch eine Reihenentwicklung des kanonischen Impulses hergeleitet werden. Die Stärke dieser Nichtlinearität wird mit dem nichtparabolischen Faktor η aus Gleichung (2.1) bestimmt. Die Masse des Elektrons ist hier eine Naturkonstante. Die Hamiltonfunktion lautet

$$H = \frac{(\mathbf{p} + |e|\mathbf{A}(\mathbf{r},t))^2}{2m_e} - \eta \frac{(\mathbf{p} + |e|\mathbf{A}(\mathbf{r},t))^4}{4m_e^2}, \quad (4.18)$$

wobei das elektromagnetische Feld durch das Vektorpotenzial $\mathbf{A}(\mathbf{r},t)$ definiert ist. Im Anschluss werden die Hamilton-Bewegungsgleichungen $\dot{x}_i = \partial H / \partial p_i$ und $\dot{p}_i = -\partial H / \partial x_i$ unter Berücksichtigung der Lorentzkraft $\mathbf{F}(\mathbf{r},t) = -|e|(\mathbf{v}(t) \times \mathbf{B}(\mathbf{r}) + \mathcal{E}(t))$ gelöst. Als Ergebnis erhält man für die Dynamik der Stromdichte $\mathbf{J}(t)$ einen Satz von geschlossenen Differentialgleichungen

$$\frac{\partial J_x(t)}{\partial t} = \frac{|e|^2 \rho_e}{m_e} \bar{\eta}(t) \mathcal{E}_x(t) - \omega_c \bar{\eta}(t) J_y(t) \quad (4.19)$$

$$\begin{aligned}
 & + \eta \frac{2m_e}{\rho_e} \frac{1}{\bar{\eta}^2(t)} J_x(t) (J_x(t) \mathcal{E}_x(t) + J_y(t) \mathcal{E}_y(t)) - i\gamma_{cl} J_x(t), \\
 \frac{\partial J_y(t)}{\partial t} & = \frac{|e|^2 \rho_e}{m_e} \bar{\eta}(t) \mathcal{E}_y(t) + \omega_c \bar{\eta}(t) J_x(t)
 \end{aligned} \tag{4.20}$$

$$+ \eta \frac{2m_e}{\rho_e} \frac{1}{\bar{\eta}^2(t)} J_y(t) (J_x(t) \mathcal{E}_x(t) + J_y(t) \mathcal{E}_y(t)) - i\gamma_{cl} J_y(t), \tag{4.21}$$

$$\frac{\partial \bar{\eta}(t)}{\partial t} = \eta \frac{2m_e}{\rho_e} \frac{1}{\bar{\eta}(t)} (J_x(t) \mathcal{E}_x(t) + J_y(t) \mathcal{E}_y(t)),$$

bei der $\bar{\eta}$ die mittlere Nichtparabolizität beschreibt. Der phänomenologische Dämpfungsfaktor $\gamma_{cl} = 9,0 \text{ ps}^{-1}$ ist in diesem Szenario eine Konstante. Die Integration der Stromdichte $\mathbf{J}(t) = \frac{\partial \mathbf{P}(t)}{\partial t}$ ergibt die makroskopische Polarisierung. Daraus wird die elektrische THz-Antwort $\mathcal{E}_{\text{THz,trans}}(t)$ in Transmission berechnet [Kir06]:

$$\mathcal{E}_{\text{THz,trans}}(t) = \mathcal{E}(t) - \mu_0 \frac{c}{2\sqrt{\epsilon_r}} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{P}(t). \tag{4.22}$$

Hier bezeichnet $\mathcal{E}(t)$ den zeitlichen Feldverlauf der eingestrahnten THz-Impulse, μ_0 die magnetische Feldkonstante, ϵ_r die Permittivität des Materials und c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum. Die berechnete Polarisationsantwort für Anregungen mit THz-Spitzenfeldstärken der Lichtimpulse von $\mathcal{E}_0 \leq 0,7 \text{ kV/cm}$ und $\mathcal{E}_0 \leq 5,7 \text{ kV/cm}$ wird am Ende dieses Abschnitts in Abbildung 4.8 dargestellt. Im weiteren Verlauf soll nun der Vielteilchencharakter des Elektronensystems berücksichtigt werden, um eine vollständige Quantentheorie zu entwickeln.

4.5.2 Vielteilchen-Quantentheorie

Für die Beschreibung der Vielteilchen-Wechselwirkung der Elektronen ist es sinnvoll, den Hamiltonoperator in zweiter Quantisierung aufzustellen. Beginnend werden dazu die fermionischen Feldoperatoren $\hat{\Psi}^\dagger(\mathbf{r}_\parallel)$ und $\hat{\Psi}(\mathbf{r}_\parallel)$ in der Basis der Landau-Eigenzustände $\phi_{n,l}(\mathbf{r}_\parallel)$ aus Gleichung (4.5) eingeführt:

$$\hat{\Psi}(\mathbf{r}_\parallel) = \sum_{n,l} a_{n,l} \phi_{n,l}(\mathbf{r}_\parallel), \quad \hat{\Psi}^\dagger(\mathbf{r}_\parallel) = \sum_{n,l} a_{n,l}^\dagger \phi_{n,l}^*(\mathbf{r}_\parallel). \tag{4.23}$$

Hier vernichtet (erzeugt) der Operator $a_{n,l}$ ($a_{n,l}^\dagger$) ein Elektron am Ort \mathbf{r}_\parallel im Landau-Niveau mit den Quantenzahlen n und l . Der vollständige Hamiltonoperator im Vielteilchenbild der zweiten Quantisierung lautet:

$$\hat{H} = \hat{H}_{\text{LL}} + \hat{H}_{\text{ee}} + \hat{H}_{\text{ion}} + \hat{H}_{\text{lm}}, \tag{4.24}$$

und setzt sich aus den einzelnen Termen zusammen:

$$\begin{aligned}\hat{H}_{\text{LL}} &= \sum_{n,l} E_n^\eta a_{n,l}^\dagger a_{n,l}, \quad \hat{H}_{\text{ee}} = \frac{1}{2} \sum_{\substack{n,l,n',l' \\ m,j,m',j'}} V_{m'j',n'l'}^{nl,mj} a_{n,l}^\dagger a_{m,j}^\dagger a_{m',j'} a_{n',l'}, \\ \hat{H}_{\text{ion}} &= -\rho_{\text{ion}} \pi r_c^2 \sum_{n,l,n',l',j} V_{0j,n'l'}^{nl,0j} a_{n,l}^\dagger a_{n',l'}, \quad \hat{H}_{\text{Im}} = \sum_{n,l,n',l'} \mathcal{E}(t) \cdot \mathbf{d}_{n',l'}^{n,l} a_{n,l}^\dagger a_{n',l'}.\end{aligned}\quad (4.25)$$

Der erste Term \hat{H}_{LL} beschreibt die Besetzung der Landau-Niveaus. Hier ist anzumerken, dass die Energiedispersion der Leitungsbandelektronen in Galliumarsenid nur in der Nähe des Bandminimums am Γ -Punkt parabolisch ist. Mit ansteigendem Wellenvektor \mathbf{k} flacht die Energiedispersion zunehmend ab (Abbildung 2.1). In der Landau-Quantisierung bildet sich dadurch eine anharmonische Verteilung der Energie-Niveaus aus. Experimentell lässt sich diese Situation zum Teil an der zunehmenden Rotverschiebung der CR-Frequenz mit größeren THz-Feldstärken festmachen (Abbildung 4.6). In den theoretischen Betrachtungen wird in \hat{H}_{LL} die Nichtparabolizität des Bandes durch E_n^η aus Gleichung (2.1) berücksichtigt. Die Terme \hat{H}_{ee} und \hat{H}_{ion} beschreiben Coulomb-induzierte Vielteilchen-Korrelationen. \hat{H}_{ee} definiert die Elektron-Elektron-Wechselwirkung zwischen zwei Teilchen mit Quantenzahlen n,l beziehungsweise m,j . \hat{H}_{ion} beschreibt die Korrelation zwischen den Elektronen und den ionisierten Siliziumatomen in der Si- δ -Dotierschicht (Abbildung 2.4). Es wird dabei angenommen, dass die Ionen einen homogenen, positiven Ladungsträgerhintergrund mit der Flächenladungsdichte ρ_{ion} bilden (Anhang B). Diese ist identisch zur Ladungsträgerdichte der Elektronen ρ_e der 2DEGs im Experiment. Beide Korrelationsterme \hat{H}_{ee} und \hat{H}_{ion} beschreiben die Wechselwirkung über das Coulomb-Matrixelement:

$$V_{m'j',n'l'}^{nl,mj} \equiv \int d^2 r_\parallel \int d^2 r'_\parallel \phi_{n,l}^*(\mathbf{r}_\parallel) \phi_{m,j}^*(\mathbf{r}'_\parallel) \sum_{\mathbf{q}} V_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{r}_\parallel - \mathbf{r}'_\parallel)} \phi_{m',j'}(\mathbf{r}'_\parallel) \phi_{n',l'}(\mathbf{r}_\parallel). \quad (4.26)$$

Generell kann $V_{m'j',n'l'}^{nl,mj}$ analytisch berechnet werden [MS10]. Im Fall der Landau-Quantisierung der Elektronen ist das allerdings nicht mehr möglich. Aufgrund der endlichen Ausdehnung des Anregung durch den Lichtfokus am Ort der Probe und großer Entartung eines Landau-Niveaus muss die Anzahl von n - und l -Zuständen sinnvoll abgeschätzt werden. Dies ist möglich, da der Radius der Wellenfunktion einer Elementaranregung mit $r \sim \sqrt{l} r_c$ skaliert (Abschnitt 4.1). Gleichzeitig hängt die Stärke der Anregung explizit nur von der Quantenzahl n ab. So genügt es als Berechnungsgrundlage für die numerischen Simulationen Quantenzahlen bis zu $n = 15$ und $l = 100$ zu verwenden. Damit wird die Dynamik des Landau-Systems auch unter starker optischer Anregung physikalisch korrekt wiedergeben [Maa16]. Ausgehend von insgesamt $(10 \times 100)^2 = 2,24 \times 10^6$ möglichen Zuständen werden für jeden Zeitschritt Coulomb-Matrixelemente $V_{n_3 l_3, n_4 l_4}^{n_1 l_1, n_2 l_2}$ berechnet, die

aus mehr als 10^{10} Elementen bestehen. Die dynamische Impulsänderung jedes einzelnen Elektrons im Vielteilchensystem zu berechnen ist mit heutiger Rechenleistung nicht realisierbar. Theoretische Berechnungsmethoden wie die der Dichtefunktionaltheorie, die eine mesoskopisch genäherte Wellenfunktion des Gesamtsystems annimmt, erlauben keinen direkten Einblick in die Dynamik des kohärenten Vielteilchensystems. Mit dem Ansatz der sogenannten „cluster expansion“ [Kir11] ist es dennoch möglich, die Quantenkinetik eines stark angeregten Vielteilchen-Landau-Systems physikalisch korrekt zu beschreiben. Mit dieser Technik wird das Vielteilchenproblem in ein hierarchisches System von Korrelationstermen (englisch: clusters) verschiedener Ordnungen zerlegt, deren nichtlineare Dynamik als Funktion der Zeit ausgewertet wird [Kir06, Kir11]. Meist genügt es dabei Ein- (Singlets), Zwei- (Doublets) oder Dreiteilchen-Korrelationen (Triplets) zu berücksichtigen und deren nichtlineare Kopplungsdynamik zu studieren. Die hierarchische Ordnung ermöglicht es, das Vielteilchenproblem sequentiell zu berechnen [Bog46]. Die Anzahl der Zustände und die Stärke der nichtlinearen Cluster-Kopplung kann sukzessiv zugeschaltet werden, bis die Hamilton-Bewegungsgleichungen eine konvergente, nicht-triviale Lösung liefern. Im Anschluss kann das Ergebnis mit den experimentellen Beobachtungen quantitativ verglichen werden. In den theoretischen Berechnungen dieser Arbeit ist es für die Beschreibung der Coulomb-induzierten Korrelationen zwischen Elektronen und der Elektron-Phonon-Wechselwirkung ausreichend, Zweiteilchen-Korrelationen zu berücksichtigen.

Die Kopplung der Materieanregung im 2DEG an das Strahlungsfeld der THz-Impulse erfolgt über den Hamiltonoperator \hat{H}_{lm} in elektrischer Dipolnäherung $d \sim \mathcal{E} \cdot r$ [Kir11]. Wie im Experiment ist das klassische THz-Feld $\mathcal{E}(t)$ linear in x -Richtung polarisiert und propagiert in z -Richtung. Im THz-Anrege-THz-Abfrage-Experiment (Abschnitt 4.6) sind die Polarisierungen der beiden Lichtimpulse gekreuzt. Die möglichen Dipolmatrixelemente in \hat{H}_{LL} lauten für beide Polarisationsrichtungen (x, y):

$$\begin{aligned} d_{n',l'}^{n,l}|_x &= -\frac{|e|r_c}{2} \left[\delta_{l,l'} \left(\delta_{n',n-1} \sqrt{n} + \delta_{n',n+1} \sqrt{n+1} \right) + \delta_{n,n'} \left(\delta_{l',l-1} \sqrt{l} + \delta_{l',l+1} \sqrt{l+1} \right) \right], \\ d_{n',l'}^{n,l}|_y &= -i \frac{|e|r_c}{2} \left[\delta_{l,l'} \left(\delta_{n',n+1} \sqrt{n+1} - \delta_{n',n-1} \sqrt{n} \right) + \delta_{n,n'} \left(-\delta_{l',l+1} \sqrt{l+1} + \delta_{l',l-1} \sqrt{l} \right) \right]. \end{aligned} \quad (4.27)$$

4.5.3 Halbleiter-Blochgleichungen

Um den Einfluss der Elektron-Ionenfeld-Wechselwirkung \hat{H}_{ion} und der Elektron-Elektron-Wechselwirkung \hat{H}_{ee} quantitativ beschreiben zu können, berechnet man innerhalb der Vielteilchen-Quantentheorie die zeitabhängigen Erwartungswerte des Operators $p_{n',l'}^{n,l} \equiv \langle a_{n,l}^\dagger a_{n',l'} \rangle$. Dieser stellt in der Operatormechanik des Heisenberg-Bildes gerade die mikroskopische Polarisation des Systems dar. Genauer, für die Diagonalelemente $n = n'$ und

$l = l'$, liefert $p_{n,l}^{n,l}$ die elektronische Besetzung der Eigenzustände $\phi_{n,l}$. Die Summation über die Besetzungszahl ergibt zeitabhängige Werte, die der Besetzung einzelner Energieniveaus $f(n)$ entsprechen. Daraus lässt sich die gesamte Elektronendichte ρ_e berechnen:

$$f(n) = \sum_l p_{n,l}^{n,l}, \quad \rho_e = \frac{\sigma N_{2\text{DEG}}}{S} \sum_n f(n), \quad (4.28)$$

wobei $N_{2\text{DEG}}$ die Anzahl der 2DEGs, σ die Spinartung und S die Anregungsfläche definiert. Terme $p_{n',l'}^{n,l}$, für die $n \neq n'$ oder $l \neq l'$ zutrifft, beschreiben die mikroskopische Polarisation zwischen den Landau-Niveaus. Die Addition aller $p_{n',l'}^{n,l}$ ergibt die makroskopische Polarisation, die einen direkten und quantitativen Vergleich mit der experimentellen optischen Antwort des Systems erlaubt.

Die Probe ist chemisch dotiert, sodass sich bei einer Temperatur von $T = 4.3 \text{ K}$ eine effektive Ladungsträgerdichte $\rho_e = 2 \times 1,6 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ von Elektronen am Γ -Punkt einstellt, die sich homogen entlang der beiden Quantentöpfe verteilt. Beim Anlegen eines Magnetfeldes ($B = 3.5 \text{ T}$) kondensieren die im \mathbf{k} -Raum verteilten Ladungen in den Grundzustand des Landau-Niveaus $n = 0$ (Füllfaktor $f_0 = 0.95$). Theoretisch wird die Elektronendichte $\rho(\mathbf{r}_{\parallel})$ der Landau-Niveaus als Funktion des Ortes über den Operator $p_{n',l'}^{n,l}$ eingeführt und lautet:

$$\rho(\mathbf{r}_{\parallel}) = \langle \Psi^\dagger(\mathbf{r}_{\parallel}) \Psi(\mathbf{r}_{\parallel}) \rangle = \sum_{n,l,n',l'} p_{n',l'}^{n,l} \phi_{n,l}^*(\mathbf{r}_{\parallel}) \phi_{n',l'}(\mathbf{r}_{\parallel}). \quad (4.29)$$

Die konstante Besetzung des Grundzustandes mit $n = 0$ wird über $p_{n',l'}^{n,l} = \delta_{n,n'} \delta_{l,l'} f_0$ beschrieben. Daraus ergibt sich innerhalb des 2DEGs eine gleichmäßige Ladungsträgerverteilung von $\rho(\mathbf{r}_{\parallel}) = \frac{\sigma N_{2\text{DEG}}}{\pi r_c} f_0$ (Anhang B).

Nach Beschreibung der Heisenberg-Bewegungsgleichung und der Besetzung der Landau-Niveaus mit Ladungsträgern, wird die zeitliche Änderung der mikroskopischen Polarisation mit den Halbleiter-Blochgleichungen (englisch: semiconductor Bloch equations) berechnet [Kir11]. Für das 2DEG im statischen Magnetfeld folgt für die Dynamik der mikroskopischen Polarisation:

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} p_{N',L'}^{N,L} &= (E_{N'}^\eta - E_N^\eta) p_{N',L'}^{N,L} \\ &+ \sum_{n,l} \left(H_{n,l}^{N',L'} p_{n,l}^{N,L} - H_{N,L}^{n,l} p_{N',L'}^{n,l} - F_{n,l}^{N',L'} p_{n,l}^{N,L} + F_{N,L}^{n,l} p_{N',L'}^{n,l} \right) \\ &+ \rho_{\text{ion}} \pi r_c^2 \sum_{n,l,l'} \left(V_{0l',NL}^{nl,0l'} p_{N',L'}^{n,l} - V_{0l',nl}^{N'L',0l'} p_{n,l}^{N,L} \right) \\ &+ \mathcal{E}_x(t) \left[d_{N'} p_{N'-1,L'}^{N,L} + d_{N'+1} p_{N'+1,L'}^{N,L} + d_{L'} p_{N',L'-1}^{N,L} + d_{L'+1} p_{N',L'+1}^{N,L} \right] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & -d_N p_{N',L'}^{N-1,L} - d_{N+1} p_{N',L'}^{N+1,L} - d_L p_{N',L'}^{N,L-1} - d_{L+1} p_{N',L'}^{N,L+1} \\
 & + i\mathcal{E}_y(t) \left[d_{N'+1} p_{N'+1,L'}^{N,L} - d_{N'} p_{N'-1,L'}^{N,L} + d_{L'} p_{N',L'-1}^{N,L} - d_{L'+1} p_{N',L'+1}^{N,L} \right. \\
 & \left. + d_{N+1} p_{N',L'}^{N+1,L} - d_N p_{N',L'}^{N-1,L} + d_L p_{N',L'}^{N,L-1} - d_{L+1} p_{N',L'}^{N,L+1} \right] + D_{N',L'}^{N,L} \quad (4.30)
 \end{aligned}$$

mit

$$H_{N',L'}^{N,L} \equiv \sum_{n,l,n',l'} V_{n'l',N'L'}^{NL,nl} p_{n',l'}^{n,l}, \quad F_{N',L'}^{N,L} \equiv \sum_{n,l,n',l'} V_{n'l',N'L'}^{nl,NL} p_{n',l'}^{n,l}, \quad d_N \equiv \frac{|e|r_c}{2} \sqrt{N}. \quad (4.31)$$

Der erste Summand beschreibt die Besetzung der Landau-Niveaus. Coulomb-Korrelation zwischen unterschiedlichen elektronischen Quantenzuständen werden im zweiten Summanden zusammengefasst (siehe Gleichung (4.26)). Die dritte Zeile der Bewegungsgleichung definiert die Elektron-Ionenfeld-Wechselwirkung. Das elektrische Dipolmoment wird über d_N eingeführt. Bei starker Anregung des 2DEGs im Magnetfeld beobachtet man als Funktion der Spitzenfeldstärke einen stufenartigen Zerfall der kohärenten Polarisationsantwort (Abbildung 4.7). Streuprozesse mit dieser Dynamik werden über den Dämpfungsterm $\gamma_{N,N'}$ beschrieben. Dazu zählen die Dephasierung durch schnelle Elektron-Phonon-Wechselwirkung und die sogenannte anregungsinduzierten Dephasierung (englisch: excitation-induced dephasing) [Kir06]. In den Halbleiter-Blochgleichungen besitzt der Streuterm die Form $D_{N',L'}^{N,L} = -i\gamma_{N,N'} p_{N',L'}^{N,L}$. Beide Effekte treten vor allem bei THz-Spitzenfeldstärken $\mathcal{E} \geq 4 \text{ kV/cm}$ auf. Im folgenden Abschnitt wird der physikalische Ursprung diskutiert.

Streumechanismen der Ladungsträger bei starker THz-Anregung

Ladungsträger im Festkörper können bei hinreichender Energie an optischen Gitterschwingungen inelastisch streuen. Im Fall von GaAs führt dies zur resonanten Emission eines longitudinal optischen Phonons (LO-Phonon) mit der Energie $\hbar\nu_{\text{LO}} = 36 \text{ meV}$. Im Experiment tritt diese Situation bei einer magnetischen Feldstärke von $B = 3,5 \text{ T}$ ein, wenn hinreichende THz-Feldstärken eine Polarisation zwischen den Landau-Niveaus $n = 5$ und $n = 6$ induzieren. Die Elektronen besitzen dann genügend Energie, um mit dem dispersionsarmen LO-Phonon zu wechselwirken. Die zeitliche Dauer dieses resonanten Streuprozesses skaliert mit der inversen Phononresonanzfrequenz $\tau \approx 1/\nu_{\text{LO}}$ [Hub01, Hub04]. Nach Streuung geht die Energie in das Kristallgitter über und ein optisches Phonon wird emittiert. Während des Prozesses dephasiert der angeregte Quantenzustand und das Elektron relaxiert in den Grundzustand. Experimentell ist dies am stufenartigen Verhalten der Kohärenzzeit als Funktion der angelegten THz-Feldstärke zu erkennen (Abbildung 4.7). In den theoretischen Berechnungen wird die feldinduzierte Dephasierung der Elektronen-

zustände durch eine phänomenologische Dephasierungskonstante γ_n berücksichtigt. Für niedrige Anregungsenergien dominiert, wie in Abschnitt 4.3 beschrieben, der Prozess des superradianten Zerfalls [Zha14]. Bei stärkerer optischer Anregung überwiegt die schnelle Wechselwirkung mit dem LO-Phonon. Somit kann für Zustände mit Quantenzahlen $n \leq 5$ eine Dephasierungszeit von $1/\gamma_n = 9,0$ ps angenommen werden. Für Quantenzahlen $n > 5$ beträgt $1/\gamma_n = 0,8$ ps.

Ein weiterer Streukanal, der im Rahmen der intensiven THz-Anregung von Landau-quantisierten Elektronen berücksichtigt werden muss, ist die anregungsinduzierte Dephasierung [Kir06]. Dieser Effekt basiert auf der paarweisen Coulomb-Korrelation zwischen den Elektronen und soll nun kurz skizziert werden. Im Grundzustand besitzen alle Ladungsträger im Magnetfeld die Quantenzahl $n = 0$, alle l -Zustände werden gleichmäßig besetzt. Nach dem Kohn-Theorem ist es nicht möglich, dass Elektron-Elektron-Wechselwirkung die Resonanzfrequenz der Inter-Landau-Übergänge beeinflusst. Die Coulomb-Korrelation zwischen den Teilchen ist aber a priori nicht abgeschaltet. Bei schwachen Anregungsenergien und homogener Verteilung entlang der Quantenzahl l ist die Streuung in höhere und niedrigere l -Zustände symmetrisch: Beide Streupfade sind durch die einheitliche Besetzung gleich wahrscheinlich und kompensieren sich effektiv. Bei stärkerer THz-Anregung werden Elektronenzustände besetzt, bei denen die Verteilung der Quantenzahl l nicht mehr homogen verläuft. Die Coulomb-induzierten Streuprozesse heben sich nicht mehr gegenseitig auf. Dieser Mechanismus korreliert also mit der Dichte der angeregten Elektronen und induziert bei großen Spitzenfeldstärken eine Depolarisierung des Gesamtsystems. Solche anregungsinduzierten Prozesse konnten bereits in einer Vielzahl von Vielteilchensystemen beobachtet werden [Smi10, AH14, Kir15, Kir15, Lan16]. Auch im Rahmen dieser Arbeit entsteht vor allem bei starker optischer Anregung ein nicht vernachlässigbarer nichtlinearer Effekt. Die Dephasierung in $D_{N',L'}^{N,L}$ wird daher um den Parameter γ_{EID} erweitert und lautet insgesamt:

$$\gamma_{n,n'} = \frac{\Gamma_n + \Gamma_{n'}}{2} \quad \text{mit } \Gamma_n = \gamma_n(1 + \gamma_{\text{EID}}) . \quad (4.32)$$

Der Koeffizient γ_{EID} wird aus den Messdaten der Zweistrahl-Experimente extrahiert (Abschnitt 4.6). Dies ist möglich, da sich die anregungsinduzierte Dephasierung direkt auf die nichtlineare Polarisationsantwort der Anrege-Abfrage-Signale auswirkt, die bei der feldaufgelösten kollinearen zweidimensionalen THz-Spektroskopie gleichzeitig zu allen anderen auftretenden Nichtlinearitäten gemessen werden kann (Abschnitt 4.6).

4.5.4 Das Theorem von Kohn im Bild der Ionenfeld-Wechselwirkung

Zur Überprüfung, ob Mehrteilchen-Korrelationen einen Einfluss auf die Linearität des Systems haben, ist es sinnvoll das zeitliche Verhalten der makroskopischen Polarisation

und des makroskopischen Teilchenstroms $\hat{\mathbf{J}}$ eines Landau-quantisierten Elektronengases zu betrachten. Der Operator $\hat{\mathbf{P}}$ beschreibt die Polarisation, die im Experiment durch das Anlegen eines THz-Impulses erzeugt wird [Kir11]:

$$\hat{\mathbf{P}} = \frac{\sigma N_{2\text{DEG}}}{\varepsilon_0 S L_{2\text{DEG}}} \sum_{n,l,n',l'} \mathbf{d}_{n',l'}^{n,l} a_{n,l}^\dagger a_{n',l'}, \quad (4.33)$$

hier bezeichnet $L_{2\text{DEG}}$ die endliche Dicke des Potenzialtopfes, in dem sich die Elektronen befinden. Der makroskopische Teilchenstrom-Operator lautet:

$$\hat{\mathbf{J}} = -\frac{\sigma N_{2\text{DEG}}}{\varepsilon_0 S L_{2\text{DEG}}} \int d^2 r_{\parallel} \hat{\Psi}^\dagger(\mathbf{r}_{\parallel}) \frac{|e|}{m_e} (\hat{\mathbf{p}} + |e| \mathbf{A}(\mathbf{r})) \hat{\Psi}(\mathbf{r}_{\parallel}). \quad (4.34)$$

Da eine anharmonische Verteilung der Landau-Niveaus eine triviale nichtlineare Antwort des Systems induzieren würde, wird im Folgenden davon ausgegangen, dass die Bandstruktur von GaAs parabolisch ist. Für E_n^η in Gleichung (4.25)) gilt somit $\eta = 0$. Im nächsten Schritt wird die Heisenberg-Bewegungsgleichung für die Operatoren $\hat{\mathbf{P}} = (\hat{P}_x, \hat{P}_y)$ und $\hat{\mathbf{J}} = (\hat{J}_x, \hat{J}_y)$ aufgestellt. Zur Verifikation des Kohn-Theorems wird zuerst nur die Elektron-Elektron-Wechselwirkung als Mehrteilchen-Korrelation berücksichtigt:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \hat{\mathbf{P}}|_{\text{w/o ion}} &\equiv \frac{i}{\hbar} [\hat{H}_{\text{LL}} + \hat{H}_{\text{ee}} + \hat{H}_{\text{lm}}, \hat{\mathbf{P}}]_{\eta=0} = \hat{\mathbf{J}}, \\ \frac{\partial}{\partial t} \hat{J}_x|_{\text{w/o ion}} &\equiv \frac{i}{\hbar} [\hat{H}_{\text{LL}} + \hat{H}_{\text{ee}} + \hat{H}_{\text{lm}}, \hat{J}_x]_{\eta=0} = -\omega_c \hat{J}_y + \omega_{\text{pl}} \mathcal{E}_x, \\ \frac{\partial}{\partial t} \hat{J}_y|_{\text{w/o ion}} &\equiv \frac{i}{\hbar} [\hat{H}_{\text{LL}} + \hat{H}_{\text{ee}} + \hat{H}_{\text{lm}}, \hat{J}_y]_{\eta=0} = \omega_c \hat{J}_x + \omega_{\text{pl}} \mathcal{E}_y. \end{aligned} \quad (4.35)$$

Hier bezeichnet $\omega_{\text{pl}}^2 = \frac{|e|^2 \rho_{3\text{D}}}{\varepsilon_0 m_e}$ die Plasmafrequenz des freien Elektronengases mit einer Dichte $\rho_{3\text{D}} = \rho_e / L_{2\text{DEG}}$. Ein Blick auf Gleichung (4.35) zeigt, dass $\hat{\mathbf{P}}$ und $\hat{\mathbf{J}}$ ein geschlossenes lineares System von Operatoren bilden. Die Elektron-Elektron-Wechselwirkung hat hier keinen Einfluss auf die zeitliche Entwicklung der Operatoren. Die obige Bewegungsgleichung ist damit zu der eines klassischen harmonischen Oszillators identisch, der von einem äußeren elektrischen Feld getrieben wird. Die Resonanz ist unabhängig von der externen THz-Amplitude genau mit $\omega_c = 2\pi\nu_c$ definiert. Diese Aussage ist identisch zum Kohn Theorem [Koh61]: Reine Elektron-Elektron-Wechselwirkung induziert keine Nichtlinearitäten in Landau-quantisierten Elektronengasen. Das Vielteilchensystem kann weiterhin in einer Einteilchen-Näherung behandelt werden.

Die Situation ändert sich allerdings, wenn man die Wechselwirkung zwischen den Elektronen und dem positiven Ladungshintergrund mit einbezieht. Die Heisenberg-Bewegungs-

gleichungen,

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial}{\partial t} \hat{P}_x|_{\text{ion}} &\equiv \frac{i}{\hbar} [\hat{H}_{\text{ion}}, \hat{P}_x] = i \frac{|e| \rho_{\text{ion}} \pi r_c^3}{2 \hbar S} \sum_{\substack{n_1, l_1, \\ n_2, l_2, l_3}} \left(\sqrt{n_1 + 1} V_{0, l_3, n_2, l_2}^{n_1+1, l_1, 0, l_3} - \sqrt{n_2} V_{0, l_3, n_2-1, l_2}^{n_1, l_1, 0, l_3} \right. \\
 &\quad \left. + \sqrt{l_1 + 1} V_{0, l_3, n_2, l_2}^{n_1, l_1+1, 0, l_3} - \sqrt{l_2} V_{0, l_3, n_2, l_2-1}^{n_1, l_1, 0, l_3} \right) a_{n, l}^\dagger a_{n', l'} + \text{c.c.}, \\
 \frac{\partial}{\partial t} \hat{P}_y|_{\text{ion}} &\equiv \frac{i}{\hbar} [\hat{H}_{\text{ion}}, \hat{P}_y] = \frac{|e| \rho_{\text{ion}} \pi r_c^3}{2 \hbar S} \sum_{\substack{n_1, l_1, \\ n_2, l_2, l_3}} \left(\sqrt{n_1 + 1} V_{0, l_3, n_2, l_2}^{n_1+1, l_1, 0, l_3} - \sqrt{n_2} V_{0, l_3, n_2-1, l_2}^{n_1, l_1, 0, l_3} \right. \\
 &\quad \left. - \sqrt{l_1 + 1} V_{0, l_3, n_2, l_2}^{n_1, l_1+1, 0, l_3} + \sqrt{l_2} V_{0, l_3, n_2, l_2-1}^{n_1, l_1, 0, l_3} \right) a_{n, l}^\dagger a_{n', l'} + \text{c.c.}, \quad (4.36)
 \end{aligned}$$

zeigen, dass die Observablen jetzt mit einer neuen Klasse von Coulomb-Termen verknüpft werden, die sich nicht in der Basis der ursprünglichen makroskopischen Operatoren $\hat{\mathbf{P}}$ und $\hat{\mathbf{J}}$ darstellen lassen. Damit ist klar, dass die Elektron-Ionenfeld-Wechselwirkung die Linearität des Oszillators unterwandert und somit bei hinreichend großen THz-Feldstärken eine dynamische Modifikation der Zyklotronresonanz ν_c induziert.

Für eine theoretische Beschreibung der experimentell beobachteten nichtlinearen optischen Antwort ist es damit unerlässlich, diese Coulomb-Korrelation innerhalb des Vielteilchen-Quantenmodells zu berücksichtigen.

4.5.5 Theoretische Ergebnisse

In Abbildung 4.8 werden die experimentellen Beobachtungen (Bild oben) den berechneten makroskopischen Polarisationsantworten (Bild unten) aus den verschiedenen Theorien gegenübergestellt. Das Ergebnis aus der vollständigen Vielteilchen-Quantentheorie mit nichtparabolischer Energiedispersion ist für schwache Feldstärken $\mathcal{E}_0 = 0,7 \text{ kV/cm}$, blaue Kurve, und starke THz-Anregungen, $\mathcal{E}_0 = 5,7 \text{ kV/cm}$, rote Kurve, gezeigt. Die gestrichelte Wellenform repräsentiert die Reemission der Polarisation für ein Vielteilchensystem ohne Berücksichtigung der Ionenfeld-Wechselwirkung, $\hat{H}_{\text{ion}} \equiv 0$. Die graue Fläche zeigt die Antwort, die mit der klassischen anharmonischen Bewegungsgleichung im Einteilchenbild aus Abschnitt 4.5.1 berechnet wurde. Für schwache Anregungsfeldstärken, $\mathcal{E}_0 = 0,7 \text{ kV/cm}$, erkennt man, dass alle theoretischen Modelle identische Ergebnisse liefern. Die Resonanzfrequenz der getriebenen Inter-Landau-Übergänge beträgt wie erwartet $\nu_c = 1,45 \text{ THz}$. Die vertikale blaue Linie stellt den Zeitpunkt eines lokalen Minimums in der Polarisationsantwort dar. Für Feldstärken der THz-Impulse bis $\mathcal{E}_0 = 700 \text{ V/cm}$ greift somit noch das Theorem von Kohn. Die schwache externe Störung induziert eine harmonische Kreisbewegung der Elektronen.

Für THz-Spitzenfeldstärken von $5,7 \text{ kV/cm}$ ergibt sich eine Phasenverzögerung der Pola-

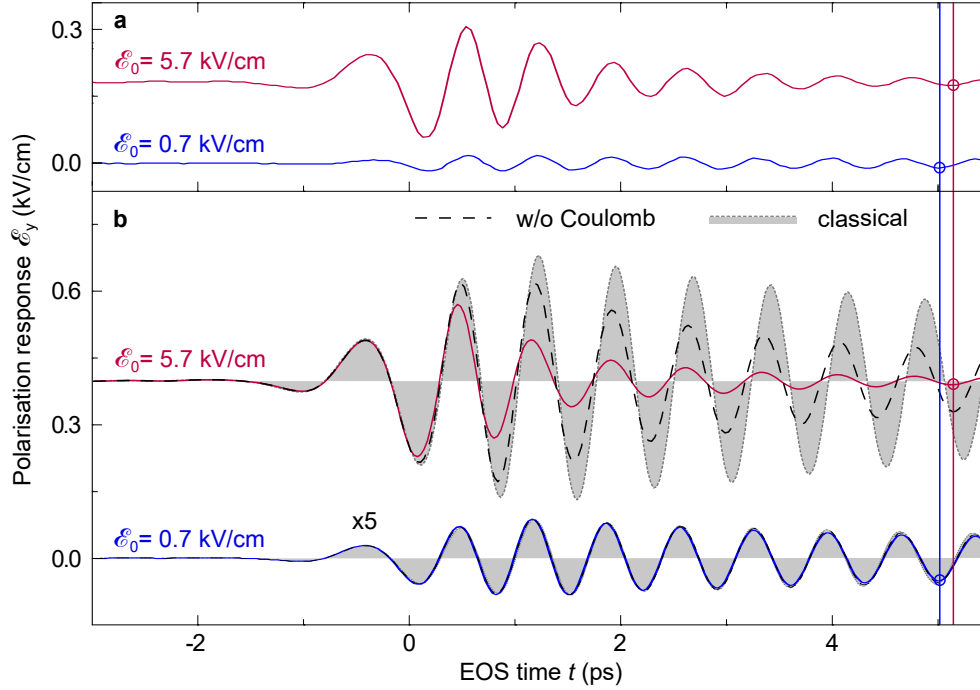


Abbildung 4.8: Analyse der nichtlinearen Dynamik der Elektronen im Magnetfeld unter dem Einfluss intensiver, phasenstarrer THz-Felder. **a**, Experimentelle Ergebnisse aus Abbildung 4.6 für schwache ($\mathcal{E}_0 = 0,7 \text{ kV/cm}$) und starke THz-Anregungen ($\mathcal{E}_0 = 5,7 \text{ kV/cm}$). **b**, Berechnete CR-Reemissionen für identische THz-Feldstärken wie in **a**. Vollständige Vielteilchen-Quantentheorie für schwache (blaue Wellenform) und starke THz-Felder (rote Kurve). Schattierte Fläche: Klassisches Modell mit anharmonischer Verteilung der Landau-Niveaus. Gestrichelte Linie: Quantentheorie ohne Coulomb-Korrelationen. Das Minimum, das im Rahmen des Kohn Theorems bei einer Frequenz $\nu_c = 1,45 \text{ THz}$ bei $t \approx 5,0 \text{ ps}$ erwartet wird, ist durch die vertikale blaue Linie gekennzeichnet. Die vertikale rote Linie zeigt die Verschiebung des Oszillationsminimums um $0,1 \text{ ps}$ bei $\mathcal{E}_0 = 5,7 \text{ kV/cm}$.

risationsantwort von 100 fs (vertikale rote Linie), die nicht mehr mit einer harmonischen Bewegung im Rahmen des Kohn-Theorems [Koh61] vereinbar ist. Des Weiteren lassen die theoretischen Modelle hier drei unterschiedliche Ergebnisse erkennen. So zeigt die Beschreibung der Elektronendynamik im Rahmen der Quantentheorie ohne Coulomb-Wechselwirkung (gestrichelte Kurve), dass die nichtparabolische Energiedispersion zu einer Rotverschiebung der Zyklotronresonanz führt, die den experimentellen Daten gleicht. Allerdings stellt sich ein deutlicher Unterschied in der Dephasierungszeit zwischen den theoretischen und experimentellen Ergebnissen ein. Die klassische Bewegungsdynamik kann zum Beispiel die experimentelle Beobachtung überhaupt nicht mehr nachbilden, da hier keine dynamische Dephasierung implementiert werden kann, die Prozessen wie der Elektron-Phonon-Streuung Rechnung tragen würde. Nur die vollständige Vielteilchen-

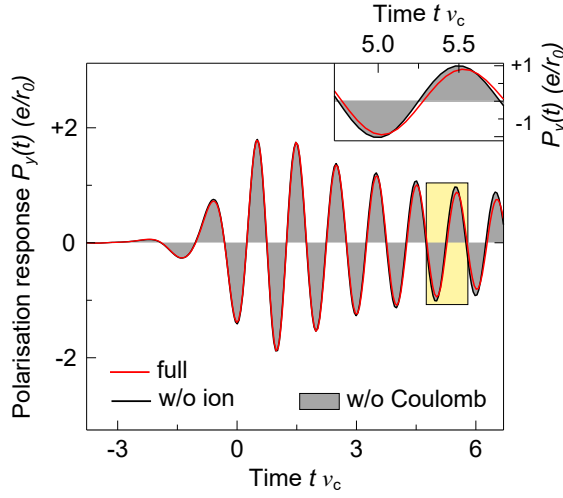


Abbildung 4.9: Auswirkung der Coulomb-Effekte auf die makroskopische THz-Antwort. Für alle Berechnungen wird hier eine parabolische Dispersion der Elektronen angenommen. Die Polarisationsantwort $P_y(t)$ bei THz-Anregung mit fester Spitzenfeldstärke von $\mathcal{E}_0 = 5,7 \text{ kV/cm}$ wird für unterschiedliche Szenarien der Vielteilchen-Korrelationen berechnet. Modelle ohne Coulomb-Korrelationen (graue Fläche) oder mit Berücksichtigung der Elektron-Elektron-Wechselwirkung (schwarze Linie) liefern identische Ergebnisse. Die Berechnung mit einer vollständigen Quantentheorie (rote Linie) lässt eine Nichtlinearität in Form einer Phasenverzögerung erkennen. Oben rechts im Bild ist eine Oszillationsperiode (gelber Kasten) vergrößert dargestellt.

Quantentheorie mit den Coulomb-Termen $\hat{H}_{ee}, \hat{H}_{ion} \neq 0$ ist in der Lage, die gemessene Polarisationsantwort mit quantitativer Übereinstimmung in der Zerfallszeit und der Resonanzfrequenz zu beschreiben.

Ein besonderer Vorteil der Vielteilchen-Quantentheorie ist, dass die einzelnen Wechselwirkungsmechanismen im Landau-System, die zu einer Nichtlinearität führen, isoliert untersucht werden können. Abbildung 4.9 zeigt dazu die makroskopische Polarisationsantwort $P_y(t)$ für verschiedene Szenarien der Vielteilchen-Wechselwirkung als Funktion der elektro-optischen Abtastzeit t bei fester THz-Spitzenfeldstärke $\mathcal{E}_0 = 5,7 \text{ kV/cm}$. Der Einschub am oberen rechten Rand verdeutlicht die Unterschiede in der Polarisationsantwort für eine gewählte Oszillationsperiode (gelber Kasten). Da die nichtparabolische Dispersionsrelation in trivialer Weise zu Nichtlinearitäten in der Polarisierbarkeit des Landau-Systems führen würde, wird hier für alle Berechnungen $\eta = 0$ in Gleichung (4.25) gewählt. Man erkennt, dass die Berechnungen ohne Elektron-Ionenfeld-Wechselwirkung (schwarze Kurve) und die als Ensemble unabhängiger Elektronen (graue Fläche) identisch sind und das Kohn-Theorem erhalten. Berücksichtigt man nun den positiven Ladungshintergrund und die Elektron-Elektron-Wechselwirkung im Hamiltonoperator, zeigt sich auch bei konstanter effektiver Masse der Elektronen eine Phasenverzögerung in der Polarisationsantwort (Abbildung 4.9 rote Wellenform). Allein diese Nichtlinearität führt zu einer nichtlinearen Änderung der Frequenz ν_c der Inter-Landau-Übergänge und zeigt, dass starke THz-Anregung den harmonischen Quasiteilchencharakter der Elektronen im Landau-System aufhebt.

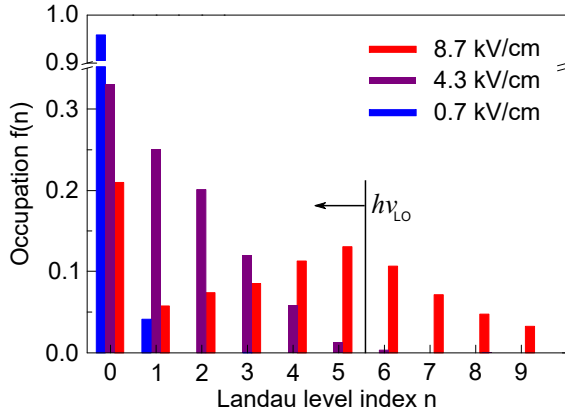


Abbildung 4.10: Balken-Diagramm der Besetzung der Landau-Niveaus für verschiedene Anregungsfeldstärken. Berechnete Besetzung der Landau-Niveaus n bei fester Verzögerungszeit $t = 0,6$ ps für THz-Feldstärken $\mathcal{E}_0 = 0,7$ kV/cm (blaue Balken), $\mathcal{E}_0 = 4,3$ kV/cm (violette Balken) und $\mathcal{E}_0 = 8,7$ kV/cm (rote Balken). Elektron-Phonon-Streuung setzt ein, wenn die Elektronen den Zustand $|n = 6\rangle$ bevölkern. Dann besitzen sie Elektronen genügend Energie ($n\hbar\nu_c \geq \hbar\nu_{LO} = 36$ meV) um resonant mit optischen Gitterschwingungen zu wechselwirken.

Mit der Vielteilchen-Quantentheorie ist es zudem möglich, die dynamische Population der Landau-Niveaus als Funktion der angelegten THz-Feldstärke und der Verzögerungszeit t auszuwerten. Dazu berechnet man die zeitabhängigen Erwartungswerte des Operators $p_{n',l}^{n,l}$ für die Diagonalelemente mit $n = n'$ und $l = l'$ aus. Abbildung 4.10 zeigt das Ergebnis als Funktion der Hauptquantenzahl n bei einer festen Verzögerungszeit von $t = 0,6$ ps für verschiedene THz-Spitzenfeldstärken. Während bei $\mathcal{E}_0 = 0,7$ kV/cm (blaue Balken) nur ein geringer Anteil von 4 % der Elektronen in den Zustand $|1\rangle$ des Landau-System angeregt werden, zeigt sich für $\mathcal{E}_0 = 4,3$ kV/cm (violette Balken) eine völlig andere Situation. Hier tritt durch die starken THz-Impulse ein Ladungsträgertransfer ein, bei dem mehr als 70 % der Elektronen in höhere Zustände angeregt werden. Das Besondere daran ist, dass dieser Prozess kohärent abläuft. Erst bei der Mindestenergie des longitudinal optischen Phonons ($\hbar\nu_{LO} = 36$ meV) wird der Streuprozess wahrscheinlich. Dann setzt eine schnelle Dephasierung der angeregten Elektronenzustände ein und die Ladungsträger relaxieren in den Grundzustand. Da die Anregungsrate durch die THz-Transienten die Relaxation durch Elektron-Phonon-Wechselwirkung übertrifft, können bei starken THz-Feldern sogar Landau-Niveaus oberhalb der Phononenergie bevölkert werden. Diese Situation ergibt sich für $\mathcal{E}_0 = 8,7$ kV/cm (rote Balken). Hier erkennt man einen stark entvölkerten Grundzustand sowie eine kompakte Überlagerung angeregter elektronischer Zustände, die ihr Besetzungsmaximum im Zustand $|n = 5\rangle$ haben. Sobald allerdings die treibenden THz-Impulse den Bereich des 2DEGs verlassen haben, setzt Streuung ein und das elektronische Wellenpaket dephasiert auf der Zeitskala der inversen Phononfrequenz [Hub04]. Bei einer Spitzenfeldstärke von 8,7 kV/cm tritt dies für etwa 25 % der Elektronen ein.

Trägt man die berechnete Dephasierungszeit als Funktion der THz-Spitzenfeldstärke auf (Abbildung 4.7, blaue Linie), zeigt sich, dass für Felder mit $\mathcal{E}_0 > 3$ kV/cm die schnelle Elektron-Phonon-Streuung der dominante Effekt ist, der zum stufenartigen Abfall der

Kohärenzzeit im Landau-System führt. Unterhalb dieser Schwelle ist es umgekehrt möglich, eine kohärente Überlagerung eines Vielteilchensystems mit 10^{11} geladenen Teilchen pro cm^2 zu präparieren. Die Ionenfeld-Wechselwirkung kann also effektiv genutzt werden, um über die THz-Amplitude eine wohldosierte Nichtlinearität im Landau-System zu induzieren. In Verbindung mit der langen Streuzzeit τ_{CR} der angeregten Elektronenzustände ist es damit erstmals möglich, ein konventionelles Elektronengas im Magnetfeld nichtlinear kohärent zu kontrollieren.

4.6 Kohärente THz-Nichtlinearitäten Landau-quantisierter Elektronen

In diesem Abschnitt soll nun analysiert werden, ob das Vielteilchen-Elektronensystem nichtlinear und gleichzeitig kohärent antwortet. Dazu wird die dynamische Polarisation des Landau-Systems mittels zweidimensionaler THz-Spektroskopie auf ihre unterschiedlichen optischen Nichtlinearitäten untersucht. Im Experiment werden zwei phasenstarre THz-Impulse A und B mit einer relativen Verzögerungszeit τ kollinear auf die Probe fokussiert. Das elektrische Feld des Anrege-Impulses A ist linear in x -Richtung polarisiert und wird für verschiedene Messungen zwischen $\mathcal{E}_A = 1,4 \text{ kV/cm}$ und $5,7 \text{ kV/cm}$ eingestellt. Der Abfrage-Impuls B ist in y -Richtung polarisiert und besitzt eine konstante Spitzenfeldstärke von $\mathcal{E}_B = 90 \text{ V/cm}$. Die gekreuzte Polarisation der Lichtfelder dient im Experiment der Verbesserung des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses und induziert eine feste Phasenverzögerung von $\pi/2$ zwischen den induzierten Polarisation von Impuls A und B. Während der Licht-Materie-Wechselwirkung in der Probe wird der elektrische Feldverlauf der transmittierten Strahlung $\mathcal{E}_{\text{AB}}(t, \tau)$ elektro-optisch detektiert. Die Polarisationsantwort besteht zum einen aus linearen und nichtlinearen Beiträgen in $\mathcal{E}_A(t, \tau)$ und $\mathcal{E}_B(t)$, die nur durch einen der Laserimpulse A beziehungsweise B hervorgerufen werden. Zum anderen werden auch Signalanteile $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ detektiert, die durch die nichtlineare Wechselwirkung beider THz-Impulse induziert werden. Sämtliche Terme tragen additiv zur Gesamtantwort $\mathcal{E}_{\text{AB}}(t, \tau) = \mathcal{E}_A(t, \tau) + \mathcal{E}_B(t) + \mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ des Systems bei und können durch gezielte Subtraktion individuell untersucht werden [Kue09, Jun12, Nar16]. Für technische Details wird auf Abschnitt 3.3 verwiesen.

Das Signal $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ beinhaltet alle nichtlinearen Anteile, die durch eine Korrelation zwischen den beiden Lichtfeldern im Medium induziert wurden. Diese zeitaufgelöste nichtlineare Systemantwort erlaubt es im Anschluss, direkte Rückschlüsse auf eine kohärente Wechselwirkung im Vielteilchensystem zu ziehen. Abbildung 4.11 zeigt die gemessene THz-Antwort $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ für verschiedene Anregungsfeldstärken \mathcal{E}_A . Bei allen Messungen

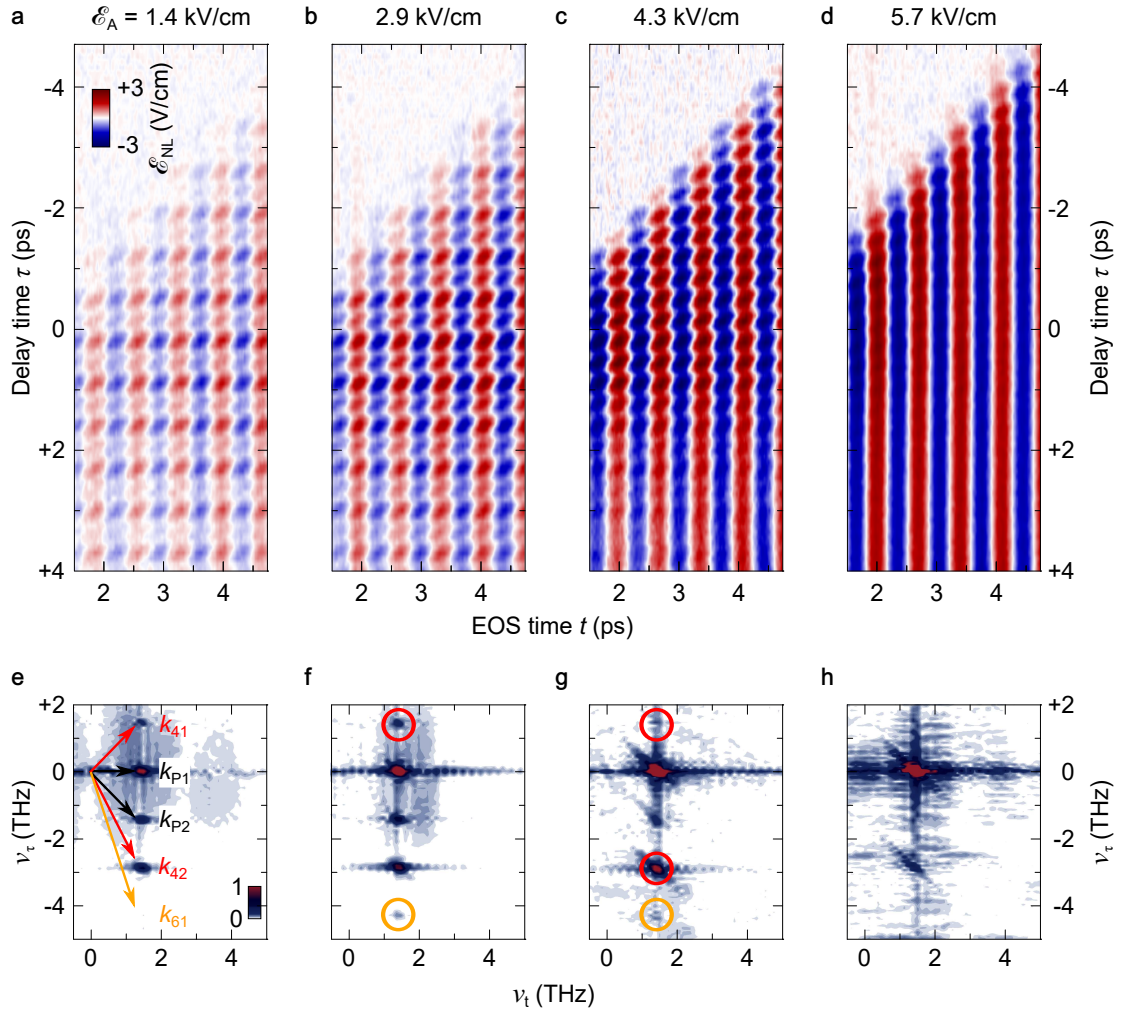


Abbildung 4.11: Kollineare feldaufgelöste Zwei-Zeit-THz-Spektroskopie. Starke THz-Transients mit einer Amplitude von \mathcal{E}_A generieren eine kohärente Superposition zwischen Inter-Landau-Niveaus. Ein zweiter THz-Impuls mit konstant gehaltener Amplitude $\mathcal{E}_B = 90$ V/cm tastet zu einer relativen Verzögerungszeit τ die dynamische Polarisation des Landau-Systems ab. **a - d**, Gemessene nichtlineare Polarisationsantworten $\mathcal{E}_{NL}(t, \tau)$ mit unterschiedlichen THz-Amplituden \mathcal{E}_A von 1,4 kV/cm bis 5,7 kV/cm. **e - h**, Zweidimensionale Fouriertransformation von $\mathcal{E}_{NL}(t, \tau)$ aus **a - d**. Die Pfeile und Kreise zeigen die Orte der unterschiedlichen kohärenten nichtlinearen Prozesse im Fourier-Raum. Anrege-Abfrage-Signale (k_{P1}, k_{P1}) sind mit schwarzen Pfeilen gekennzeichnet. Vier-Wellen-Mischsignale (k_{41}, k_{42}) und Sechs-Wellen-Mischen (k_{61}) sind durch rote beziehungsweise gelbe Pfeile und Kreise markiert.

mit Spitzenfeldstärken \mathcal{E}_A von 1,4 kV/cm bis 5,7 kV/cm zeigt sich in $\mathcal{E}_{NL}(t, \tau)$ eine starke Modulation entlang der beiden Zeitachsen τ und t (Abbildung 4.11a–d). Photonen, die während der nichtlinearen Licht-Materie-Wechselwirkung entstehen und die gleichen Wellenvektoren wie Photonen aus Impuls A aufweisen, zeigen sich als diagonale Oszillationen

in den Messdaten. Sind die Wellenvektoren der nichtlinearen Polarisationsantwort zu denen aus Impuls B identisch, verlaufen die Wellenfronten parallel zur Zeitachse τ . Für $\mathcal{E}_A = 1,4 \text{ kV/cm}$, Abbildung 4.11a, erkennt man entlang der relativen Verzögerungszeit τ eine starke Modulation der Polarisationsantwort. Die zugehörige Periodendauer $\Delta\tau_1 = 1/\nu_c = 0,69 \text{ ps}$ ist invers zur Frequenz der Zyklotronresonanz ν_c und zeigt, dass die nichtlineare Antwort des Landau-Systems kohärent moduliert wird. Da bei solchen THz-Feldstärken die Landau-quantisierten Elektronen hauptsächlich in niedrige Quantenzustände mit $n < 5$ angeregt werden, existiert kein schneller Dephasierungskanal und die nichtlineare Polarisation bleibt sogar bestehen, wenn die beiden THz-Impulse keinen zeitlichen Überlapp ($\tau > 3 \text{ ps}$) im Medium mehr besitzen. Des Weiteren heben sich vor allem für stärkere Amplituden \mathcal{E}_A Signale deutlich vom Hintergrund ab, die mit der halben Periodendauer der Zyklotronresonanz $\Delta\tau_2 = 1/2\nu_c = 0,34 \text{ ps}$ oszillieren (Abbildungen 4.11b–e). Für $\mathcal{E}_A = 4,3 \text{ kV/cm}$ ist diese Signatur sogar der dominante Anteil in der nichtlinearen Polarisationsantwort. Bei THz-Spitzenfeldstärken $\mathcal{E}_A = 5,7 \text{ kV/cm}$ ist eine deutliche Dephasierung der induzierten Polarisation beobachtbar, da nur noch eine leichte kohärente Modulation entlang des zeitlichen Überlapps ($\tau + t \approx 0$) mit dem treibenden Feld des Abfrage-Impulses erkennbar ist (Abbildung 4.11d). Es ist hier sinnvoll zu erwähnen, dass die Anzahl der 2DEGs und die nichtlineare Dynamik im System keine Korrelation aufweist. Verwendet man eine Probe, die aus einem einzelnen dotierten Quantentopf besteht, zeigt sich eine analoge Polarisationsantwort (Anhang A).

Die auftretenden nichtlinearen Prozesse können in den Messdaten in der Zeitdomäne nicht unterschieden werden. Abhilfe schafft hier eine zweidimensionale Fouriertransformation der gemessenen nichtlinearen Signale entlang der Zeitachsen t und τ (siehe Abschnitt 3.3). In Abbildung 4.11e–h sind die zugehörigen Amplitudenspektren als Funktion von ν_t und ν_τ dargestellt [Kue09]. Im Frequenzraum treten die nichtlinearen Prozesse als Maxima an Punkten (ν_t, ν_τ) aus ganzzahligen Vielfachen der Frequenz der Zyklotronresonanz ν_c auf. Es zeigen sich Anrege-Abfrage-Signale (k_{P1} , schwarze Pfeile) am Punkt $(\nu_t, \nu_\tau) = (\nu_c, 0)$ beziehungsweise bei $(\nu_c, -\nu_c)$. Bei diesen Prozessen regt Impuls A (B) das System an, während Impuls B (A) die momentane Polarisation im System abfragt. Höhere nichtlineare Wechselwirkung wie Vier-Wellen-Mischen (k_{41}, k_{42} ; englisch: four-wave mixing, kurz: FWM) oder Sechs-Wellen-Mischen (k_{61}), bei denen mehrere Photonen aus den Impulsen A und B die Elektronen gleichzeitig anregen und dabei miteinander mischen, werden durch rote beziehungsweise gelbe Pfeile markiert. Für die niedrigste Anregungsfeldstärke im Experiment ($\mathcal{E}_A = 1,4 \text{ kV/cm}$, Abbildung 4.11e)) ist die induzierte Polarisation bereits so stark nichtlinear, dass neben starken Anrege-Abfrage-Signalen auch Vier-Wellen-Mischen gemessen wird. Verdoppelt man die Anregungsfeldstärke, ergeben sich sogar Sechs-Wellen-Mischsignale (Abbildung 4.11f, gelber Kreis) und die Amplitu-

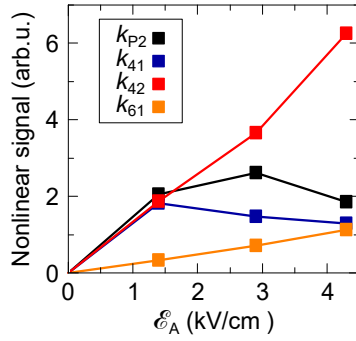


Abbildung 4.12: Nichtperturbative THz-Anregung des Landau-Systems mit starken phasenstabilen THz-Feldern. Amplituden der kohärenten Nichtlinearitäten aus Abbildung 4.11 als Funktion der THz-Spitzenfeldstärke \mathcal{E}_A .

de des Signals k_{41} (roter Kreis) steigt weiter an. Bei $\mathcal{E}_A = 4,3 \text{ kV/cm}$ wird die gesamte nichtlineare kohärente THz-Antwort von Vier-Wellen-Mischen dominiert. Daher oszilliert die nichtlineare Antwort in der Zeitdomäne für alle gemessenen Zeiten τ und t mit der halben Periodendauer der Zyklotronresonanz. Ab dieser Feldstärke setzt zudem schnelle LO-Phonon-Dephasierung ein, die eine starke Dämpfung der Polarisationsantwort für späte Verzögerungszeiten von $\tau > 3 \text{ ps}$ verursacht. Für $\mathcal{E}_A = 5,7 \text{ kV/cm}$, Abbildung 4.11h, hebt sich daher hauptsächlich der inkohärente k_{P1} -Prozess vom Hintergrund ab.

Wertet man die Stärke der nichtlinearen kohärenten Prozesse als Funktion der THz-Spitzenfeldstärke \mathcal{E}_A aus (Abbildung 4.12), erkennt man, dass Landau-quantisierte Elektronen bereits bei moderater optischer Anregung nichtperturbativ reagieren. Vergleicht man dazu die Amplituden der nichtlinearen Signale im Bereich von $\mathcal{E}_A = 2,9 \text{ kV/cm}$ bis $4,3 \text{ kV/cm}$, wo auch die stärksten kohärenten Nichtlinearitäten nachgewiesen werden, zeigen alle gemessenen Signale eine unterschiedliche Dynamik. Für $\mathcal{E}_A = 2,9 \text{ kV/cm}$ wird eine reduzierte Amplitude der k_{P1} - und k_{41} -Signale gemessen, während schneller oszillierende Polarisierungen mit Wellenvektor k_{42} und k_{61} mit steigender THz-Spitzenfeldstärke weiter ansteigen. Diese vielschichtige nichtlineare Dynamik wird am besten deutlich, wenn man die optischen Nichtlinearitäten einzeln in der Zeitdomäne betrachtet. Dazu müssen lediglich die Prozesse, die in den 2D-Spektren (Abbildung 4.11e–g) durch Kreise markiert sind, isoliert und rücktransformiert werden. Abbildung 4.13 zeigt das Ergebnis für k_{P2} und k_{42} als Funktion der THz-Amplitude \mathcal{E}_A in der Zeitdomäne. Das Anrege-Abfrage-Signal k_{P2} zeigt wie erwartet bereits bei moderaten THz-Feldstärken ($\mathcal{E}_A = 2,9 \text{ kV/cm}$) die maximale Amplitude. Für $\mathcal{E}_A = 4,3 \text{ kV/cm}$ und Verzögerungszeiten von $\tau \leq 0$ erkennt man eine reduzierte Amplitude des nichtlinearen Signals k_{P2} (Abbildung 4.13c, schwarze Pfeile). In diesem Zeitbereich wurde das System vom schwachen Impuls bereits angeregt, während die Hauptmaxima des treibenden elektrischen Feldes von Impuls A gerade abgeklungen sind. Das angeregte elektronische System bleibt bei diesen THz-Spitzenfeldstärken dennoch weitgehend kohärent. Man misst für $\tau > 1 \text{ ps}$ sogar wieder eine leicht erhöhte THz-Amplitude des k_{P2} -Signals. Der Einbruch des k_{P2} -Signals bei maximal

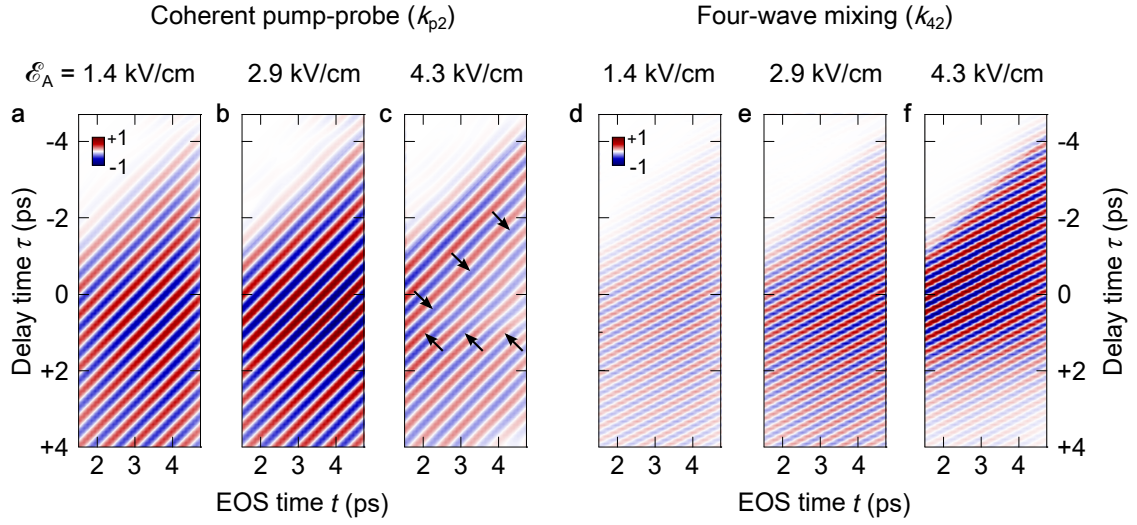


Abbildung 4.13: Kohärente Nichtlinearitäten im Landau-quantisierten Elektronengas. Durch inverse Fouriertransformation von k_{p2} und k_{42} an den jeweiligen Orten in den 2D-Spektren (Abbildung 4.11e–g, Kreise) wird die nichtlineare THz-Antwort als Funktion der Anregungsfeldstärke \mathcal{E}_A in der Zeitdomäne dargestellt. Die Signale sind auf die jeweiligen maximalen Werte der nichtlinearen Amplitude in **b** beziehungsweise **f** normiert. **a–f**, Kohärentes Anrege-Abfrage-Signal. **d–c**, Vier-Wellen-Mischen mit Wellenvektor k_{42} .

großen Verzögerungszeiten von τ und t (Abbildung 4.13c, rechte untere Ecke) stammt von einer weiteren THz-Anregung, verursacht durch einen optischen Rückreflex von Impuls A im Eingangsfenster des Magnetkryostaten.

Diese beiden Beobachtungen verdeutlichen den Sachverhalt, dass Anrege-Abfrage-Signale stark von der anregungsinduzierten Dephasierung im Landau-System (Abschnitt 4.5.3) abhängen, da der Zeitpunkt der Wechselwirkung beider Lichtimpulse die nichtlineare Polarisationsantwort wesentlich beeinflusst. Im Fall des Vier-Wellen-Mischens ist die Situation völlig anders. Zum einen steigt die Amplitude des Signals für alle gezeigten THz-Anregungen linear an (Abbildung 4.12). Des Weiteren lässt sich in für den gesamten Zeitbereich keine anregungsinduzierte Dynamik feststellen. Für THz-Spitzenfeldstärken bis $\mathcal{E}_A = 2,9 \text{ kV/cm}$, Abbildungen 4.13d und e, erkennt man vielmehr eine homogene Polarisationsantwort, die für $\tau > 2 \text{ ps}$ langsam abklingt. Für die stärkste Anregung (Abbildung 4.13f), steigt die globale Amplitude des k_{42} -Signals weiter an. Ist der zeitliche Überlapp der Impulse in der Probe nicht mehr vorhanden, tritt schnelle Dephasierung der angeregten Zustände ein.

Die dynamischen Nichtlinearitäten im Landau-System sind im Rahmen einer perturbativen Anregung nicht beschreibbar. Im perturbativen Regime geht man von einer minimalen Störung des Grundzustandes aus. In Analogie zur Beschreibung der nichtlinearen Polarisationsantwort eines Mediums, das mit einem starken Laserfeld bestrahlt wird, wer-

den perturbative Störungen in Form einer Reihenentwicklung beschrieben. Diese ist nach Potenzen der einfallenden elektrischen Feldamplitude $\mathcal{E}^{(i)}(t)$ aufgebaut. Da für eine physikalische Interpretation das Konvergenzkriterium der Störungsreihe erfüllt sein muss, ist es notwendig, dass dort höhere Ordnungen einen geringeren Beitrag für die nichtlineare Antwort liefern als Terme niedriger Ordnung. Diese Methode der Beschreibung ist für Kristallelektronen im Magnetfeld schon bei moderaten THz-Anregungen nicht mehr ausreichend. Hier weist die feldaufgelöste Polarisationsantwort (Abbildung 4.11c) der Licht-Materie-Wechselwirkung mit THz-Spitzenfeldstärken oberhalb von 4 kV/cm bereits dominante Vier-Wellen-Mischsignale auf. In diesem Szenario werden hohe Landau-Zustände bevölkert, für noch größere Impulsenergien entsteht sogar eine Besetzungsinversion (Abbildung 4.10). Das vollständig besetzte Landau-Niveau $|0\rangle$ im Grundzustand ist zum Zeitpunkt $t = 600$ fs, nachdem das THz-Treiberfeld das Elektronengas maximal polarisiert hat, nur noch zu etwa 30 % bevölkert (Abbildung 4.10, lila Balken). Die Grundvoraussetzung einer geringen Störung ist in diesem extremen Nichtgleichgewichtszustand nicht mehr gegeben. Die optische Anregung Landau-quantisierter Elektronen mit Lichtimpulsen mit Spitzenfeldstärken im Bereich von einigen kV/cm stellt also bereits ein nichtperturbatives Vielteilchenproblem dar.

4.7 Das Zwei-Impuls-Experiment in der Vielteilchen-Quantentheorie

Jetzt wird die Vielteilchen-Quantentheorie herangezogen, um die Messreihe aus dem vorangegangenen Abschnitt mit zum Experiment identischen Wellenformen und Feldstärken der Impulse A und B zu simulieren. In den Abbildungen 4.14a und 4.14b ist die berechnete nichtlineare Antwort $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ des getriebenen Landau-Systems in der Zeitdomäne für zwei verschiedene Spitzenfeldstärken dargestellt. Für $\mathcal{E}_A = 1,4$ kV/cm und $\mathcal{E}_A = 4,3$ kV/cm werden sämtliche nichtlinearen Modulationen, die hauptsächlich mit Periodendauern $\Delta\tau_1$ oder $\Delta\tau_2$ oszillieren, in Amplitude und Zerfallszeit quantitativ wiedergegeben. In den zugehörigen Amplitudenspektrum von $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$, Abbildung 4.14c und 4.14d beobachtet man die gleiche Verteilung und Gewichtung der Multi-Wellen-Mischprozesse wie im Experiment (Abbildung 4.11e und 4.11g). Der Ursprung der auftretenden nichtlinearen Effekte, die zu einem Zusammenbruch des Theorems von Kohn führen, ist über die makroskopische Antwort des Systems nicht zu erfassen. In der Vielteilchen-Quantentheorie können jedoch einzelne Terme in der Bewegungsgleichung gezielt abgeschaltet werden (englisch: switch-off analysis), um den mikroskopischen Ursprung der induzierten Nichtlinearitäten genau zu studieren.

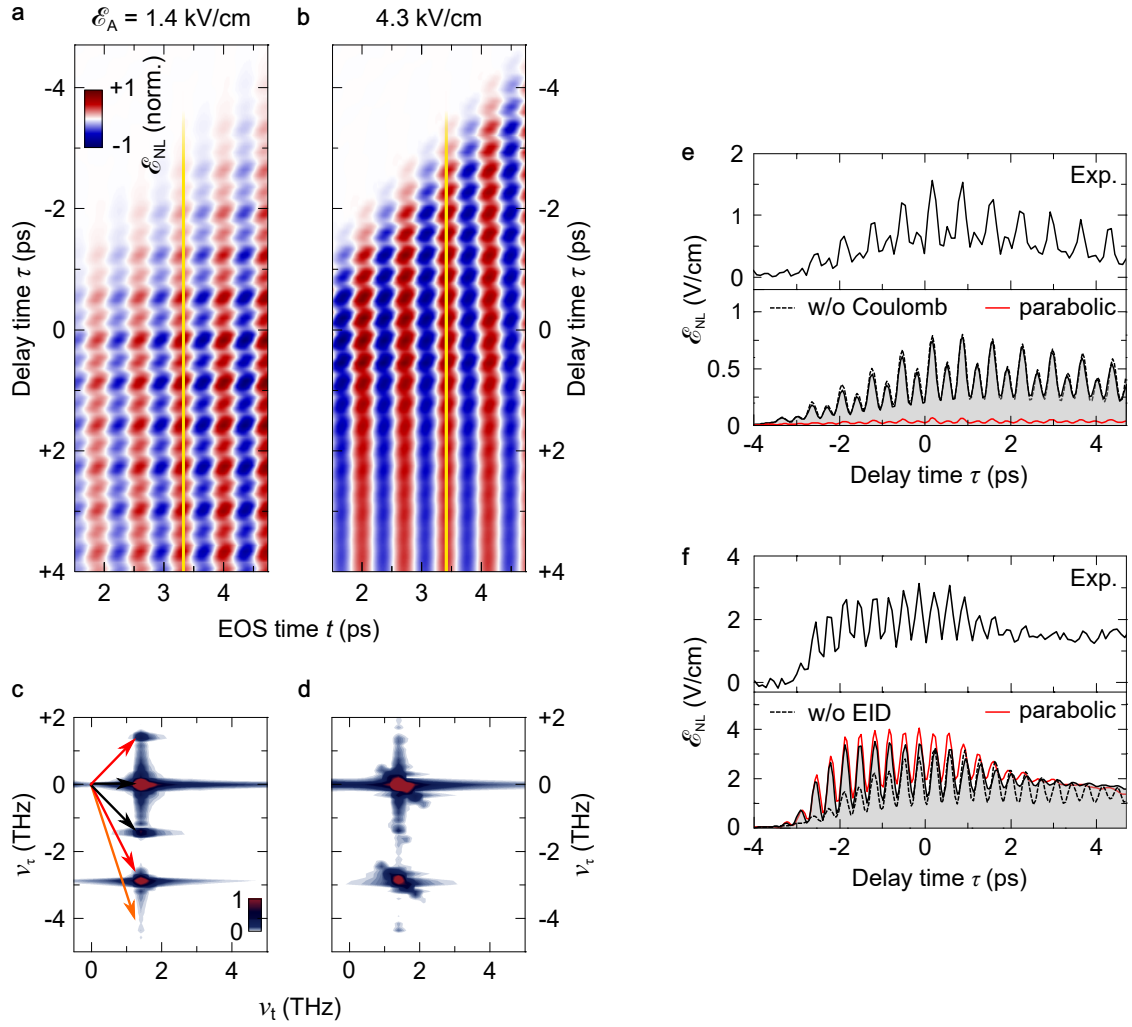


Abbildung 4.14: Berechnete Polarisationsantwort des Landau-Systems bei optischer Anregung mit zwei THz-Lichtfeldern in der Vielteilchen-Quantentheorie. a und b, Nichtlineare Polarisationsantwort $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ induziert durch die Wechselwirkung mit den Impulsen A und B mit THz-Wellenformen wie im Experiment (siehe Abbildung 4.11a und c). Die vertikalen gelben Linien bei $t = 3,3$ ps zeigen die Position, an der theoretische und experimentelle Ergebnisse verglichen werden. c und d, Zugehörige 2D-Amplitudenspektren. e und f, Untersuchung der nichtlinearen Beiträge im Experiment durch eine gezielte Abschaltanalyse einzelner Wechselwirkungsterme. e, Oben: Gemessene nichtlineare Antwort \mathcal{E}_{NL} bei fester Verzögerungszeit $t = 3,3$ ps und $\mathcal{E}_A = 1,4$ kV/cm (Exp.). Unten: Berechnung mit Vielteilchen-Quantentheorie (schwarze durchgezogene Kurve). Die theoretische Antwort ohne Coulomb-Korrelationen verläuft fast identisch (schwarze gestrichelte Wellenform). Die rote Kurve zeigt das Szenario, wenn eine parabolische Energiedispersion der Elektronen angenommen wird. f, Vergleich der Theorien mit den experimentellen Daten für $\mathcal{E}_A = 4,3$ kV/cm. Oben: Experimentelle Messdaten (Exp.). Unten: Volle Vielteilchen-Quantentheorie (schwarze durchgezogene Linie) und identische Theorie mit parabolischer Elektronendispersion (rote Kurve). Die gestrichelte schwarze Linie zeigt die THz-Antwort, wenn anregungsinduzierten Dephasierung (EID) nicht berücksichtigt wird.

In Abbildung 4.14e wird die experimentell gemessene nichtlineare Polarisationsantwort $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ für eine feste Verzögerungszeit von $t = 3,3 \text{ ps}$ und $\mathcal{E}_0 = 1,4 \text{ kV/cm}$ den theoretischen Ergebnissen (Abbildung 4.14a, gelbe Linie) gegenübergestellt. Im Experiment erkennt man, dass die Oszillationen mit der Periodendauer $\Delta\tau_1$ die nichtlineare Antwort dominieren. Schaltet man die nichtparabolische Dispersion der Elektronen in der Hamiltonfunktion ab, ergibt sich eine Polarisationsantwort, die in der Amplitude um fast eine Größenordnung geringer ausfällt (Abbildung 4.14e, rote Kurve). Vernachlässigt man hingegen nur die Coulomb-Korrelationen (gestrichelte Wellenform), ergeben sich im Vergleich zur vollen Quantentheorie kaum Unterschiede (schwarze Kurve). Die nichtlineare Polarisation wird bei niedrigen THz-Feldstärken wesentlich durch die anharmonische Verteilung der Landau-Niveaus bestimmt. Für maximale Anregungsamplituden von $\mathcal{E}_A = 4,3 \text{ kV/cm}$ ergibt sich eine völlig andere Situation (Abbildung 4.14f). Zum einen fällt die nichtlineare Antwort knapp dreimal stärker als bei $\mathcal{E}_A = 1,4 \text{ kV/cm}$. Zum anderen zeigt die quantenmechanische Bewegungsgleichung mit parabolischer Energiedispersion (rote Kurve) eine fast identische nichtlineare Dynamik wie die vollständige Rechnung (Abbildung 4.14f, schwarze Wellenform). Dies beweist, dass schon bei einer Verdreifachung der THz-Amplitude triviale Bandeffekte keinen nennenswerten Einfluss auf die optische Antwort des Landau-Systems mehr haben. Vielmehr dominieren intrinsische Coulomb-Korrelationen die Dynamik der Elektronen vollständig. Des Weiteren kann die Zerfallsdynamik der Polarisation nur dann quantitativ wiedergegeben werden, wenn anregungsinduzierte Dephasierungsmechanismen berücksichtigt werden.

Der Aufbruch des Kohn Theorems durch eine nichtperturbative optische Anregung des Landau-Systems mit phasenstarrer THz-Strahlung eröffnet eine völlig neues Forschungsfeld der nichtlinearen Quantenkontrolle. Bis jetzt wurde die Coulomb-Wechselwirkung immer als ein schädlicher Einfluss eingestuft, der hauptsächlich die Dephasierung der Quantenzustände beeinflusst. In diesem Experiment hat sich jedoch herausgestellt, dass gerade Nichtlinearitäten, die durch Vielteilchen-Korrelation entstehen, genutzt werden können, um Quasiteilchenzustände auf ultrakurzen Zeitskalen kohärent zu kontrollieren. Inter-Landau-Übergänge sind exzellent geeignet, da sie im Vergleich zu den meisten anderen elementaren Anregungen im Festkörper eine Dephasierung auf der Pikosekundenzeitskala aufweisen [Zha14]. Aufgrund des großen Dipolmomentes der Zyklotronresonanz kann bereits bei moderater elektrischer Feldstärke ein großes Spektrum an Nichtlinearitäten induziert werden. Zukünftige Quantenlogikbausteine, die zum Beispiel aus Inter-Landau-Übergängen und Metamaterialien bestehen, werden die nötige THz-Amplitude weiter reduzieren. Zusätzlich grenzt die Resonatorgeometrie das Quantensystem auf einen kleinen räumlichen Bereich ein. Diese Systeme könnten zukünftig für erste Qubits mit THz-Taktraten technologisch genutzt werden. In Kombination mit Chip-basierten THz-Quellen

ist sogar der Weg zu vollständig elektronisch gesteuerten Quantenmodulen geebnet.

Dies Kapitel verdeutlicht die wichtige Rolle der bis jetzt kaum verstandenen ultraschnellen mikroskopischen Dynamik Coulomb-basierter Vielteilchen-Wechselwirkung im Festkörper unter dem Einfluss resonanter Terahertz-Lichtfelder. Im nächsten Kapitel soll nun untersucht werden, welche Auswirkung eine nichtresonante THz-Anregung mit atomar starken elektrischen Feldern auf die Polarisierbarkeit des undotierten Volumenhalbleiter Galliumarsenid ausübt.

Nichtperturbative Interband-Anregung durch höchstintensive THz-Felder

Dieses Kapitel demonstriert, wie der undotierte Volumenhalbleiter Galliumarsenid durch intensive Lichtfelder und resonante Antennenstrukturen auf ultrakurzen Zeitskalen in ein extrem nichtlineares Regime nichtperturbativer Optik angeregt wird. Die THz-Antennen bestehen aus Gold und werden auf das hochreine Substrat aufgebracht. Regt man die strukturierte Probe mit intensiven, niederfrequenten THz-Impulsen an, überhöht sich das elektrische Feld im Nahfeldbereich der Resonatoren auf über 12 MV/cm. Diese extreme Spitzenfeldstärke verbiegt die Bandstruktur des Halbleiters so stark, dass bereits nach wenigen Atomabständen die fundamentale Bandlücke überwunden ist. Im kapazitiven Bereich der Antennen setzt innerhalb einer Lichtschwingung des Treiberfeldes quasistatisches Interband-Zener-Tunneln ein. Durch diesen Prozess entsteht ein heißes Elektron-Loch-Plasma mit mehreren 100 meV Überschussenergie, das im treibenden Feld beschleunigt wird und eine Kaskade von Stoßionisationsprozessen induziert. Die Relaxation dieses extremen Nichtgleichgewichtszustandes erfolgt zum Großteil strahlend über breitbandige Photolumineszenz. Ein weiterer Effekt, der dabei entsteht, ist die feldinduzierte Selbstamplitudenmodulation der THz-Transmission durch die Probe. Dieser Prozess führt bei stärksten Feldern innerhalb einer Lichtschwingung zum Zusammenbruch der Resonatorantwort. Um die Anzahl der generierten Ladungsträger und die Dynamik des hochangeregten Elektron-Loch-Plasmas qualitativ abzuschätzen, werden verschiedene theoretische Modelle und numerische Simulationen herangezogen. Die Ergebnisse dieses Kapitels wurden in der Fachzeitschrift *Physical Review Letters* [Lan14] veröffentlicht.

5.1 Ponderomotives Potenzial

Befindet sich ein Elektron in einem elektrischen Wechselfeld $\mathcal{E}(t) = \mathcal{E}_{\text{THz}} \cdot e^{i\omega_{\text{THz}}t}$, oszilliert es entlang des elektrischen Feldvektors um seine Gleichgewichtsposition. Im zeitlichen Mittel besitzt das Elektron ein sogenanntes ponderomotives Potenzial U_p , welches die mittlere kinetische Energie im intensiven Strahlungsfeld beschreibt:

$$U_p = \frac{e^2 \mathcal{E}_{\text{THz}}^2}{4m_e \omega_{\text{THz}}^2}, \quad (5.1)$$

hier bezeichnet ω_{THz} die Frequenz der THz-Trägerwelle mit einer Amplitude \mathcal{E}_{THz} . Die Ruhemasse der Elektronen im Material ist durch m_e definiert.

Die Einteilung der Licht-Materie-Wechselwirkung in unterschiedliche Regime erfolgt üblicherweise durch den Keldysh-Parameter [Kel65]:

$$\gamma_K = \omega_{\text{THz}} \frac{\sqrt{2m_e E_g}}{e \mathcal{E}_{\text{THz}}}, \quad (5.2)$$

Dieser Parameter beschreibt das Verhältnis zwischen der Bindungsenergie der Elektronen im Material, die hier als Bandlücke E_g eines Halbleiters definiert ist, und ihrer kinetischen Energie im elektrischen Wechselfeld. Für kleine Feldamplituden beziehungsweise großen Kreisfrequenzen der Photonen gilt $\gamma_K \gg 1$. Hier tritt vor allem Multi-Photonen-Absorption auf, da den Elektronen durch das schnell oszillierende elektrische Feld kaum Zeit bleibt, innerhalb einer halben Lichtschwingung durch die Potenzialbarriere zu tunneln. Regt man dagegen ein elektronisches System mit einem intensiven Lichtimpuls an, der gleichzeitig eine sehr niedrige Frequenz ω_{THz} aufweist, werden vor allem Tunnelionisationsprozesse beobachtet. Zusätzlich nimmt das ponderomotive Potenzial für die Elektronen im Band sehr große Werte an (Gleichung (5.1)). Langwellige aber intensiven elektrischen Wechselfelder, die zum Beispiel aus intensiven Infrarotlasern emittiert werden, modulieren den Potenzialverlauf der Teilchen als Funktion der Zeit, sodass gebundene Ladungsträger aus den Störatomen ins Kristallgitter tunneln können [Gan98, Gan06]. Die Potenzialbarriere, die ein Elektron dabei überwinden muss, liegt in der Größenordnung von einigen meV bis wenigen 10 meV (Abbildung 5.1a). Mit gepulsten Infrarotlasern, die Spitzenfeldstärken im kV/cm-Bereich aufweisen und im Spektralbereich um 1 THz arbeiten, konnte zudem erstmals experimentell beobachtet werden, dass das elektrische Feld den gebundenen Elektron-Loch-Zustand eines angeregten Exzitons im Festkörper ionisieren kann [Zak12, Lan16]. Das Elektron wird dabei im treibenden THz-Feld beschleunigt, bis es mit dem ionisierten Ladungsträgerhintergrund, dem Loch, rekollidiert. Die ultraschnelle Quantendynamik des beschleunigten elektronischen Wellenpakets, die durch Vielteilchen-Korrelationen wie Quanteninterferenz, Paarvernichtung und Dephasie-

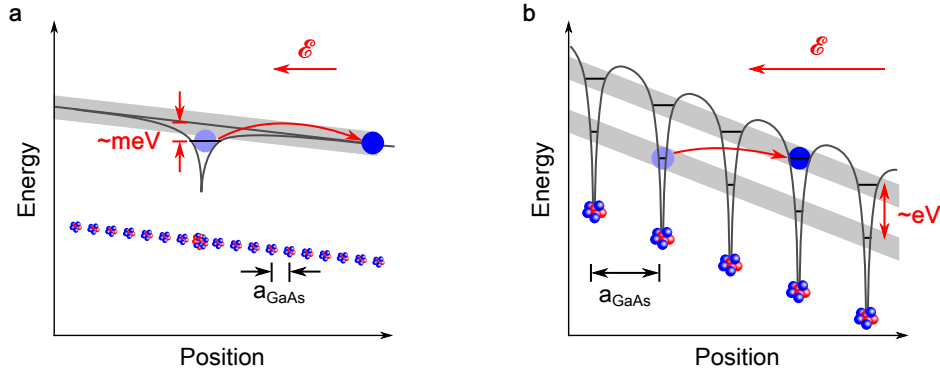


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung der Bandstruktur von Galliumarsenid unter dem Einfluss höchstintensiver THz-Felder. a, Ein elektrisches Wechselfeld mit einer Amplitude von $\mathcal{E}_0 = 500 \text{ kV/cm}$ verkippt das Leitungsband von GaAs mit der Gitterkonstante a_{GaAs} , sodass flache Störstellen (blaue Kugel) mit Bindungsenergien im meV-Bereich ionisieren. b, Erreicht die Amplitude der THz-Transienten elektrische Feldstärken im Bereich von 12 MV/cm , verzerrt sich die Potenziallandschaft so stark, dass Valenz- und Leitungsbandzustände benachbarter Einheitszellen beginnen energetisch zu entarten und starkes Interband-Zener-Tunneln einsetzt.

rung beeinflusst wird, strahlt Licht als Seitenbänder der Nahinfrarot-Strahlung ab.

Mit dem Einzug der intensiven, Tisch-basierten Laserverstärkersysteme können durch optische Gleichrichtung von Nahinfrarotstrahlung im niederenergetischen Spektralbereich um 1 THz weitaus intensivere Lichtimpulse erzeugt werden [Heb04]. Die Wellenform besteht nur aus einzelnen Lichtschwingungen und die Spitzenfeldstärken erreichen Werte bis $1,5 \text{ MV/cm}$. Der phasenangepasste Generationsmechanismus der THz-Strahlung gewährleistet eine inhärente Phasenstabilität zwischen der Trägerwelle und der Impulsenhüllenden (Abschnitt 3.1). Mit solchen Lichtfeldern konnten in dotierten Halbleitersystemen bereits eine Vielzahl von THz-getriebenen Vielteilchen-Stoßprozessen zeit- und feldaufgelöst studiert werden [Hof09, Hir11, Tan12].

Wird ein Halbleitermaterial einem atomar starken THz-Strahlungsfeld ausgesetzt, dann moduliert das elektrische Treiberfeld als Funktion der Zeit die gesamte Bandstruktur des Kristalls. Abbildung 5.1b zeigt schematisch wie sich eine Vorspannung von $\mathcal{E} = 12 \text{ MV/cm}$ auf die elektronische Potenziallandschaft von Galliumarsenid auswirkt. Bei diesen Feldstärken werden die Energiebänder im Festkörper während eines Halbzyklus der Trägerwelle so stark verkippt, dass die fundamentale Energielücke E_g zwischen Valenz- und Leitungsbandern auf einer Längenskala von nur zwei Einheitszellen überwunden ist. Der Prozess des Interband-Zener-Tunnelns wird dadurch stark begünstigt. Quantenmechanisch führt dies zu einer räumlichen Lokalisierung der elektronischen Zustände, also der Modulation der elektronischen Bandstruktur als Funktion der Gitterkonstante a . Diese Dynamik konnte durch Anregung mit höchstintensiven Multi-THz-Impulsen bereits in

Galliumselenid beobachtet werden. Durch die Anwesenheit der starken elektrischen THz-Feldes wird dort ebenfalls eine starke Interband-Polarisation ausgelöst. Dies führt zur Generation von Ladungsträgern über die Bandlücke und darüber hinaus zu dynamischen Bloch-Oszillationen. Diese ultraschnellen Quantenprozesse strahlen kohärente Photonen in den freien Raum ab, die aus hohen harmonischen Frequenzen der fundamentalen THz-Trägerwelle bestehen [Sch14, Hoh15]. Der Keldysh-Parameter beträgt in diesem Szenario nur noch $\gamma_K \approx 0,13$.

In den Experimenten dieses Kapitels wird die feldüberhöhende Wirkung von resonanten Schwingkreisen genutzt [Liu12, Kim15, Bah15, Han16], um eine noch stärkere nichtperturbative optische Anregung zu induzieren. Im nächsten Abschnitt wird zunächst herausgearbeitet, mit welcher Größenordnung an Ladungsträgern zu rechnen ist, wenn man den intrinsischen Volumenhalbleiter Galliumarsenid mit kurzen Lichtblitzen anregt, die THz-Spitzenfeldstärken im Bereich von 12 MV/cm aufweisen.

5.2 Interband-Zener-Tunneln

Um die Rate für Interband-Tunnelprozesse im Halbleiter abzuschätzen, wird die von Kane und Mitarbeitern entwickelte Theorie verwendet [Kan60]. Diese berechnet den feldinduzierten Ladungsträgertransfer aus dem Leichtloch- (Γ_{25}) beziehungsweise Schwerloch-Valenzband (Γ_{15}) in das Leitungsband (Γ_1) von intrinsischem Galliumarsenid ($E_g = 1,42$ eV). Die zugehörige Formel der Tunnelrate r_z lautet:

$$r_z = \frac{e^2 \mathcal{E}_n^2 m_r^{1/2}}{18\pi \hbar^2 E_g^{1/2}} \exp\left(-\frac{\pi m_r^{1/2} E_g^{3/2}}{2\hbar \mathcal{E}_n}\right). \quad (5.3)$$

Für den Übergang der Ladungsträger aus dem Leichtloch- in das Leitungsband erhält man eine reduzierte effektive Masse von $m_r = 0,037 m_e$. Bei einem elektrischen Feld von $\mathcal{E}_n = 12$ MV/cm, wie es im Nahfeldbereich der Metamaterialien des Experimentes im nächsten Abschnitt abgeschätzt wird, beträgt die Tunnelrate $r_z = 5 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3} (100) \text{ fs}^{-1}$. Die Leitungsbänder werden also massiv mit Ladungsträgern besetzt. Die Rate reicht bereits aus, um in Galliumarsenid während eines einzelnen Halbzyklus der THz-Trägerwelle ein entartetes Elektronengas mit mehreren 100 meV Überschussenergie zu erzeugen.

Abbildung 5.5 zeigt die Tunnelrate pro 100 fs als Funktion des elektrischen Nahfeldes \mathcal{E}_n für beide möglichen Übergänge aus dem Valenzband ins Leitungsband. Erhöht man die Amplitude des elektrischen Feldes von 1 MV/cm um den Faktor 10, steigt die Tunnelwahrscheinlichkeit um 10 Größenordnungen. Oberhalb von 10 MV/cm flacht die Rate aufgrund der geringeren Anzahl möglicher Endzustände zunehmend ab. Hier ist anzumerken, dass

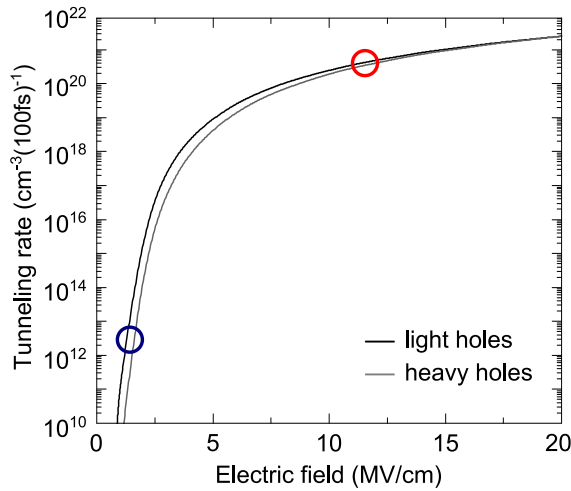


Abbildung 5.2: Zener-Tunneln in Galliumarsenid. Tunnelrate der Interband-Übergänge aus dem Leichtloch- (light holes) und Schwerlochband (heavy holes). Die Rate erhöht sich um 10 Größenordnungen, wenn das elektrische Feld von 1 MV/cm (blauer Kreis) auf atomar starke Größen steigt (roter Kreis). Aufgrund der begrenzten Anzahl von Endzuständen flacht oberhalb von 10 MV/cm die Tunnelrate ab.

Sättigungseffekte, die durch das Pauli-Verbot im entarteten Elektron-Loch-Plasma bedingt werden, nicht berücksichtigt werden.

5.3 Überhöhung des elektrischen Nahfeldes in THz-Metamaterialien

Die Beugungsbegrenzung elektromagnetischer Strahlung im Frequenzbereich von 1 THz hat es bis jetzt verhindert, hinreichend große ponderomotive Potenziale in kondensierter Materie zu erzeugen, um in ein extremes Regime nichtperturbativer Optik ($\gamma_K \ll 1$) vorzudringen. Maßgeschneiderte Metamaterialien, die genau auf die Zentralfrequenz der verwendeten THz-Transienten angepasst sind, überhöhen das elektrische Feld lokal, ohne dabei von der Beugungsbegrenzung beschränkt zu werden [Kim15, Bah15, Han16]. In Untersuchungen an Vanadiumdioxid (VO_2) konnte so erfolgreich demonstriert werden, dass im Nahfeldbereich der Metamaterialien ein feldinduzierter Metall-Isolator-Übergang getrieben wird [Liu12]. Weitere Experimente an dotierten Volumenhalbleitern mit resonanten Antennenstrukturen zeigen ebenfalls starke optische Nichtlinearitäten [Jeo13, Fan13].

In den Experimenten dieser Arbeit soll es mit Hilfe der Metamaterialien und niederfrequenter THz-Strahlung gelingen in intrinsischen Volumenhalbleitern nichtperturbative Prozesse zu treiben. Um die Goldantennen genau auf die Substrateigenschaften und den Spektralbereich der THz-Impulse anzupassen, werden zunächst die optischen Eigenschaften der Gold-Metamaterialien anhand von numerischen Modellen berechnet. Diese nutzen die Methoden der finiten Elemente, um die zeitabhängigen Maxwell-Gleichungen zu lösen [Joa08]. Die lokale Überhöhung des elektrischen Nahfeldes wird in der Frequenzdomäne (englisch: finite-difference frequency domain, kurz: FDFD) modelliert. Die FDTD-

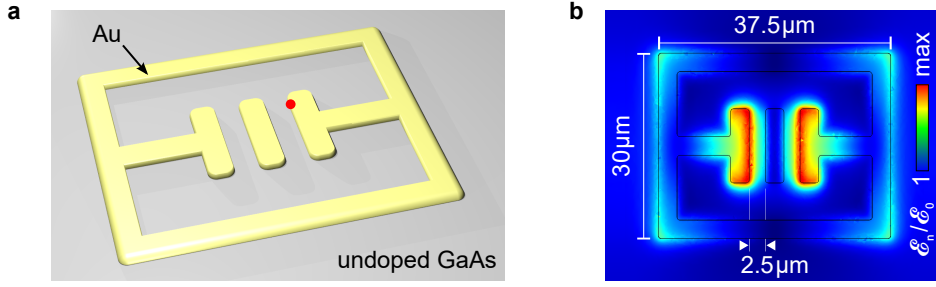


Abbildung 5.3: FDFD-Simulationen des räumlichen Verstärkungsprofils der Metamaterialien. **a**, Schematische Skizze eines Resonators aus Gold (Au) auf undotiertem GaAs-Substrat mit konstanter dielektrischer Funktion $\varepsilon_{\text{GaAs}} = 12,9$. Die zeitliche Wellenform aller anschwingenden photonischen Moden wird am Rand des kapazitiven Bereichs (rot markiert) zeitlich ausgewertet (siehe Abbildung 5.4). **b**, Abmessungen und berechnete Überhöhung der Grundmode ε_n in Resonanz bei der Frequenz $\nu = 0,88$ THz. Die Polarisationsrichtung des resonanten Lichtfeldes verläuft parallel zur langen Seite der Einheitszelle.

Methode (englisch: finite-difference time domain, kurz: FDTD) wird herangezogen, um die THz-Antwort des Nahfeldbereiches zeitaufgelöst zu analysieren.

Die Einheitszelle einer Antennenstruktur, Abbildung 5.3a, besteht aus einem planaren Goldresonator, der sich aus zwei kapazitiven Elementen mit einer Breite von je $2,5 \mu\text{m}$ und zwei geschlossenen induktiven Stromkreisen zusammensetzt. Die äußeren geometrischen Abmessungen betragen $37,5 \mu\text{m} \times 30,0 \mu\text{m}$ (Abbildung 5.3b). Die Höhe der Goldschicht beträgt wie im Experiment 150 nm . Jede Struktur lässt sich äquivalent zu einem elektrischen Schwingkreis beschreiben, der einen ohmschen Widerstand R , eine Induktivität L und eine Kapazität C besitzt (RLC-Schwingkreis). Die geometrische Form der Goldstruktur wird in drei Dimensionen mit der dielektrischen Funktion $\varepsilon_{\text{Au}} = 10^5 + 10^5 i$ wiedergegeben [Olm12]. Der Realteil der dielektrischen Funktion von undotiertem Galliumarsenid wird als fester Wert $\varepsilon_r = 12,9$ angenommen [Pal97]. Generierte Ladungsträger werden im Rahmen der Drude-Theorie über die elektrische Leitfähigkeit als quasistatisches, freies Elektronengas mit mittlerer Streuzeit τ eingeführt:

$$\sigma(\omega) = \frac{i\varepsilon_0\omega_p^2}{\omega + i/\tau}, \quad (5.4)$$

hier bezeichnet $\omega_p = \sqrt{n_e e^2 / \varepsilon_0 \varepsilon_r m_e^*}$ die Plasmafrequenz der Elektronen, m_e^* die effektive Masse, n_e die Ladungsträgerdichte und ε_0 , die elektrische Feldkonstante im Vakuum.

In einer FDFD-Simulation wird das räumliche Verstärkungsprofil der Metamaterialien auf undotiertem Substrat bestimmt. Für eine optimale Kopplung der THz-Strahlung an die Grundmode der Resonatoren muss die Polarisationsrichtung senkrecht auf den kapaziti-

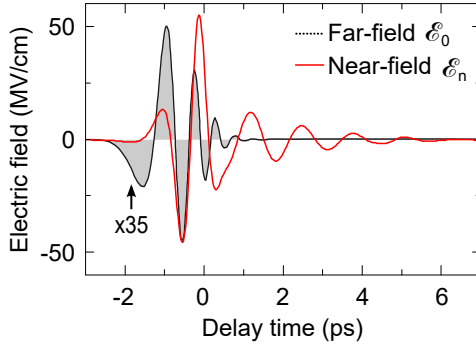


Abbildung 5.4: FDTD-Simulationen. Das Verstärkungsprofil des elektrischen Nahfeldes \mathcal{E}_n (rote Kurve) wird am Rand des kapazitiven Elementes (Abbildung 5.3a, roter Punkt) ausgewertet. Die schwarze Wellenform beschreibt den Feldverlauf des eingestrahlten THz-Transienten im Fernfeld.

ven Elementen stehen. Die berechnete elektrische Feldverteilung \mathcal{E}_n der Grundmode des Resonators ($\nu = 0,88$ THz) wird in Abbildung 5.3b dargestellt. Die lokale Überhöhung der elektrischen Feldamplitude zeigt sich im Zentrum der Einheitszelle. Tatsächlich ergeben die Rechnungen, dass die größten Amplituden an den Rändern der Goldstreifen beobachtet werden. Dies folgt aus der Tatsache, da in diesen Bereichen die kleinsten Krümmungsradien an der Goldoberfläche auftreten und damit auch die dichteste Formation an elektrischen Feldlinien existiert. Die magnetische Feldüberhöhung ist um mehr als zwei Größenordnungen geringer und spielt in diesem Experiment keine Rolle.

Die Überhöhung des elektrischen Nahfeldes wird besonders deutlich, wenn man den zeitlichen Verlauf der Polarisationsantwort in der FDTD-Methode verfolgt. Die Auswertung findet in Abbildung 5.3a am rot markierten Ort statt. Abbildung 5.4a zeigt das Ergebnis der Polarisationsantwort aus dem Nahfeld (rote Wellenform), die anhand des zeitlichen Verlaufs der THz-Wellenform im Fernfeld (schwarze Kurve) berechnet wurde. Hier erkennt man ebenfalls, dass eine optische Anregung von Metamaterialien mit intensiver THz-Strahlung eine lokale Überhöhung des elektrischen THz-Nahfeldes induziert. In den Berechnungen betragen die erreichten Spitzenfeldstärken zum Zeitpunkt $t \approx 0$ über 50 MV/cm, wenn keine feldinduzierten Nichtlinearitäten die Oszillatorstärke beeinflussen. Der Verstärkungsfaktor liegt bei 35. Zwei Halbzyklen später ist die Nahfeldamplitude um nur etwa 10% gesunken. Die oszillierenden Nachläufer, die bis zu Verzögerungszeiten von etwa 5 ps reichen, resultieren aus dem schmalen spektralen Transmissionsband des Resonators, das stark von der charakteristischen geometrischen Form abhängt und mit den experimentellen Beobachtungen der THz-Antwort der Metamaterialien in Abschnitt 5.5 gut übereinstimmt.

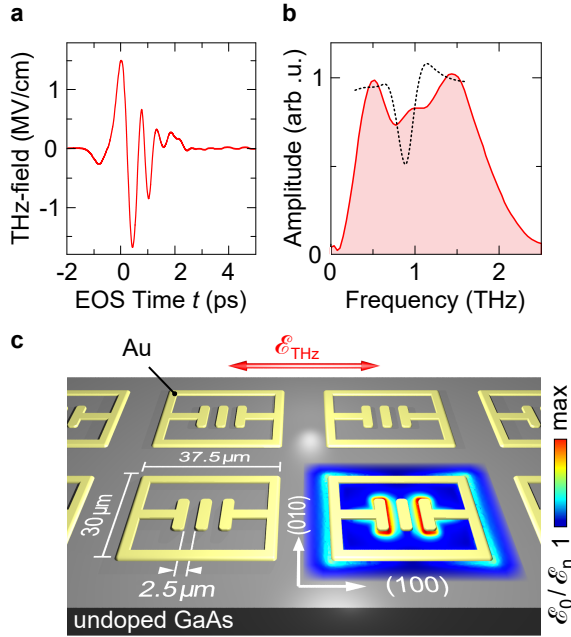


Abbildung 5.5: Wellenform der THz-Quelle und Probenstruktur **a**, Zeitliches Profil der phasenstabilen THz-Transienten. Die elektrische Spitzenfeldstärke beträgt $\mathcal{E}_0 = 1,5 \text{ MV/cm}$. **b**, Zugehöriges Amplitudenspektrum (rote Fläche). Normierte, lineare THz-Transmission der optischen Antwort der Metamaterialien im Fernfeld (gepunktete Kurve). **c**, Resonator aus Gold (Au) auf undotiertem, (100)-orientiertem GaAs. Der rote Doppelpfeil zeigt die Polarisation der einfallenden THz-Impulse, die optimal an die Grundmode der Metamaterialresonanz aus **b** koppelt. Das berechnete Verstärkungsprofil des Nahfeldes ist beim rechten unteren Resonator in Falschfarbendarstellung illustriert. Das Ergebnis stammt aus FDFD-Simulationen, bei denen die Metamaterialien direkt auf das GaAs-Substrat aufgebracht wurden (Probe A).

5.4 THz-Anregung von Galliumarsenid mit atomar starken Lichtfeldern

Die THz-Impulse (siehe Abschnitt 3.2.2) werden beugungsbegrenzt auf die Probe fokussiert und weisen im freien Raum eine Spitzenfeldstärke von $\mathcal{E}_0 = 1,5 \text{ MV/cm}$ auf. Die transmittierte Strahlung wird mit einem schwachen NIR-Impuls in einem $50 \mu\text{m}$ dünnen ZnTe-Detektorkristall räumlich überlagert und elektro-optisch abgetastet. Abbildung 5.5 zeigt den zeitlichen Verlauf der THz-Wellenform. Das zugehörige Amplitudenspektrum der THz-Wellenform ist in Abbildung 5.5b dargestellt und reicht von $0,2 \text{ THz}$ bis etwa $2,5 \text{ THz}$. Um Rückreflexe im Detektorkristall zu vermeiden, ist der dünne ZnTe-Kristall auf einen 1 mm dicken optisch inaktiven, in $[100]$ -Richtung orientierten ZnTe-Kristall aufgebracht.

Die Metamaterialien werden, wie in Abbildung 5.5c dargestellt, als regelmäßige Struktur aus RLC-Schwingkreisen auf eine $500 \mu\text{m}$ dicke Schicht aus intrinsischem Galliumarsenid prozessiert, das in (100) -Richtung orientiert ist. Technisch geschieht dies durch optische Belichtung mittels Elektronenstrahlolithografie einer 300 nm dünnen Photolackschicht (PMMA), die zuvor auf das Substrat aufgebracht wurde. Nach der chemischen Stabilisierung wird zur Adhäsionsunterstützung eine 3 nm dünne Chromschicht thermisch aufgedampft, bevor die 150 nm dünne Goldschicht folgt. Zum Schluss werden die unbelichteten

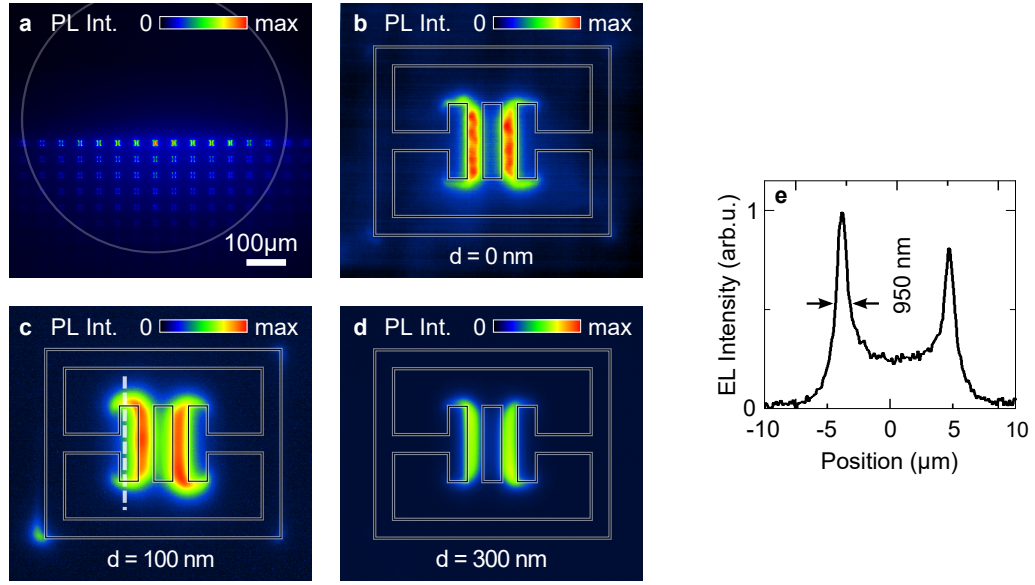


Abbildung 5.6: Photolumineszenzmessungen der Metamaterialstruktur bei Anregung mit intensiven THz-Impulsen. **a**, Die Position des Terahertz-Fokus (volle Halbwertbreite, kurz: FWHM) ist durch einen weißen Kreis markiert. Die obere Halbseite ist nicht strukturiert. Die Spitzenfeldstärke des treibenden THz-Impulses beträgt $\mathcal{E}_0 = 1,5 \text{ MV/cm}$. Im Zentrum des Strahlprofils zeigt sich innerhalb der Resonatoren starke Photolumineszenz (PL). Diese nimmt mit zunehmenden Abstand zum Rand hin ab, im reinen Substrat beobachtet man überhaupt keine Emission von Photonen. **b**, PL-Nahaufnahme einer einzelnen Goldstruktur (Probe A), die direkt auf das GaAs-Substrat aufgebracht wurde (Probe A, $t = 0 \text{ nm}$). Die räumliche Form des Resonators ist mit weißen Linien illustriert. **c**, **d** Aufnahmen mit unterschiedlichen isolierenden Schichten aus Al_2O_3 der Dicke $d = 100 \text{ nm}$ (Probe B) beziehungsweise $d = 300 \text{ nm}$ (Probe C). **e**, Das räumliche Profil der PL Intensität entlang der gestrichelten Linie in **c** demonstriert das Auflösungsvermögen der Photolumineszenz.

Bereiche mechanisch abgelöst. Als Ergebnis erhält man eine Matrix aus identischen optischen Resonatoren mit einer gesamten Kantenlänge von 2 mm. Neben dieser Probe (Probe A), werden zwei weitere Systeme untersucht. In diesen befindet sich zwischen dem GaAs-Substrat und den Antennen eine elektrisch isolierende Schicht aus Aluminiumoxid (Al_2O_3) befindet. Die Dicke d der Isolierschicht beträgt 100 nm (Probe B) beziehungsweise 300 nm (Probe C).

5.4.1 Mikroskopische Photolumineszenzaufnahmen

Im Experiment wird die Probenstruktur mit intensiven THz-Transienten angeregt und die Brennebene, die sich am Ort der Metamaterialgrenzfläche befindet, mit einem Mikrosko-

pobjektiv auf einen Flächensensor abgebildet. Dieser besteht aus einer Matrix aus Siliziumphotodioden (englisch: charged-coupled device, kurz: CCD) (Abschnitt 3.4). Beleuchtet man die Probe mit den THz-Impulsen, erkennt man direkt in den Photolumineszenz-Aufnahmen (PL), dass die Metamaterialien eine Überhöhung des elektrischen Nahfeldes bewirken. Abbildung 5.6a zeigt dazu eine spektral integrierte PL-Aufnahme der angeregten Probenoberfläche. Vor allem im Zentrum des THz-Fokus (weißer Ring) ist klar zu erkennen, dass dort wo sich Resonatoren auf dem Substrat befinden Photonen emittiert werden. Ein Blick auf die Einheitszelle im Zentrum (Abbildung 5.6b) zeigt, dass vor allem an den Rändern der beiden äußeren Streifenelemente, also den Abgrenzungen des kapazitiven Elements zur Leiterschleife, starke Photolumineszenz einsetzt. Diese Beobachtung deckt sich sehr gut mit den theoretischen Berechnungen des Nahfeldes mittels FDFD-Methode. Unstrukturierte Bereiche oder Gebiete, bei denen nur schwache Nahfeldüberhöhung zu erwarten ist, zeigen keine Emission von Strahlung. In den PL-Nahaufnahmen einzelner THz-Antennen, die auf unterschiedlich dicken Isolationsschichten aufgebracht sind (Abbildung 5.6c und d), beobachtet man selbst für den größten Abstand zum GaAs-Substrat ($d = 300 \text{ nm}$) weiterhin starke Photoemission.

5.4.2 Abschätzung der Ladungsträgerdichte

Der mikroskopische Ursprung der Terahertz-induzierten Photoemission wird deutlich, wenn man die spektrale Verteilung der emittierten Photonen betrachtet. Abbildung 5.7a zeigt dazu die PL-Spektren als Funktion der angelegten Spitzenfeldstärke. Für Anregungsfeldstärken bis $\mathcal{E}_0 = 380 \text{ kV/cm}$ beginnt das Emissionsspektrum bei der Energie der Bandlücke von GaAs ($E_g = 1,42 \text{ eV}$) und reicht bis $E = 1,7 \text{ eV}$. Für Feldstärken oberhalb von $\mathcal{E}_0 = 800 \text{ kV/cm}$ werden Photonen detektiert, die eine Energie von $h\nu = 1,9 \text{ eV}$ besitzen. Für noch größere THz-Amplituden bildet sich bei $E = 1,65 \text{ eV}$ eine deutliche Schulter im Spektrum aus (schwarzer Pfeil). Trägt man als nächstes die spektrale Intensität der Photolumineszenz als Funktion der maximalen THz-Amplitude bei fester Photonenenergie auf, lassen sich zwei unterschiedliche Regime der Anregungsdynamik erkennen. Bei einer Energie von 50 meV oberhalb der Bandlücke skaliert die Intensität der Photolumineszenz mit der Spitzenfeldstärke \mathcal{E}_0 des treibenden Feldes wie $I \sim |\mathcal{E}_0|^{1,1}$ (Abbildung 5.6b, schwarze Linie). Bei höheren Energien, $h\nu > 300 \text{ meV}$ erreicht die Potenz den 1,5-fachen Wert (rote Kurve). Unter der Annahme einer perturbativen optischen Anregung wird die Intensität der erzeugten Photonen als Funktion der n -ten harmonischen Ordnung der Grundmode verstanden: $I \sim |\mathcal{E}_0|^{2n}$ [Boy08]. Vergleicht man nun die Energie der Photonen bei $1,72 \text{ eV}$ mit der Energie der Grundmode der Metamaterialresonanz ($E = 3,6 \text{ meV}$), stellt man fest, dass die Interband-Polarisation einem Multi-Photonen-Absorptionsprozess mit mindestens $n \approx 490$ THz-Photonen entspricht. Im perturbativen Regime skaliert da-

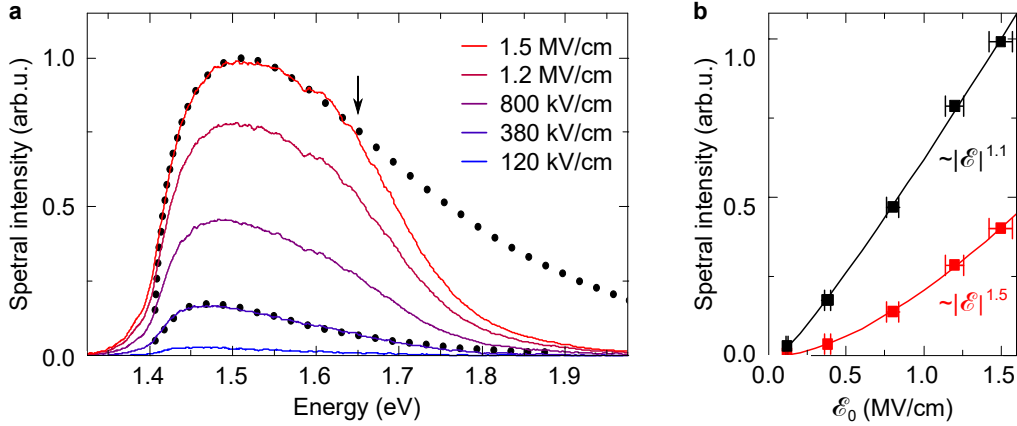


Abbildung 5.7: Spektral aufgelöste Photolumineszenz für verschiedene Anregungsfeldstärken der THz-Impulse. **a**, Messungen der Probe A für verschiedene Amplituden E_0 (durchgezogene Linien). Die schwarz gepunktete Linie zeigt die numerische Anpassung mit einer Drude-Antwort. **b**, Abhängigkeit der PL-Intensität bei einer Photonenenergie von 50 meV (schwarze Linie) und 300 meV (rote Linie) oberhalb der Bandkante von GaAs. Durchgezogene Linien: Skalierung nach Potenzen des treibenden Feldes (siehe Text).

mit die Intensität als Funktion der THz-Amplitude mit einer etwa 1000-fachen Potenz. Der weitaus flacherer Verlauf der spektralen Intensitäten als Funktion der Spitzenfeldstärke im Experiment bestätigt somit, dass eine THz-induzierte Interband-Anregung von Ladungsträgern durch stark nichtperturbative Prozesse beschrieben wird [Sch14, Hoh15].

Die Dynamik der Dichte der Elektron-Loch-Paare, die durch starke THz-Interband-Polarisation im Halbleiter entsteht, kann in drei Stufen eingeteilt werden:

- (i) Generation von Ladungsträgern während das THz-Nahfeld im Substrat anliegt.
- (ii) Thermalisierung und Abkühlen des Elektron-Loch-Plasmas mit anschließender
- (iii) Relaxation der angeregten Ladungsträger durch Interband-Rekombination.

In hochreinen, direkten Halbleitern übersteigt die Rekombinationszeit der Elektron-Loch-Paare auf der Nanosekundenzeitskala die der Ladungsträgergeneration und Thermalisierung um mehrere Größenordnungen. Daher kann die generierte Ladungsträgerpopulation in guter Näherung als quasistatisches, heißes Elektron-Loch-Plasma angenommen werden.

Die Dichte und die mittlere Temperatur des Plasmas werden aus den spektralen Intensitäten der Photolumineszenz abgeschätzt. Dazu wird der Absorptionskoeffizient über die Zustandsdichte $g(E)$ und die Fermi-Dirac-Verteilung $f(E)$ als Funktion der Energie be-

rechnet (Kubo-Martin-Schwinger-Relation [Kub57, Mar59]):

$$\alpha \propto \int g(E)f(E)dE . \quad (5.5)$$

Im Bereich schwacher Anregungsenergien mit THz-Spitzenfeldstärken bis $\mathcal{E}_0 = 380 \text{ kV/cm}$ stimmt diese Annahme sehr gut mit den PL-Messungen überein (Abbildung 5.7a, gepunktete Linie). Die angepasste Kurve ergibt eine Ladungsträgerdichte von $n_e \approx 5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ sowie eine mittlere Temperatur des Plasmas von $T \approx 1200 \text{ K}$. Bei höheren Feldstärken bildet sich oberhalb von 1,65 eV die besagte Schulter aus (Pfeil). Diese experimentelle Beobachtung kann mit der verwendeten Theorie nicht mehr korrekt wiedergegeben werden. Die Annahme einer effektiven Elektronenmasse im Γ -Band sowie eines konstanten elektrischen Dipolmomentes, das unabhängig vom Impuls der Kristallelektronen ist, sind bei diesen Spitzenfeldstärken nicht mehr ausreichend. Tatsächlich erhöht sich bei diesen Feldstärken bereits deutlich die Wahrscheinlichkeit zur Elektronenstreuung ins benachbarte L-Tal [Jeo13, Fan13]. Die numerische Abschätzung durch Gleichung (5.5) kann dennoch herangezogen werden, um eine physikalisch sinnvolle Untergrenze für die erzeugte Ladungsträgerdichte festzulegen. Dazu wird lediglich der Bereich des Photoemissionspektrum bis zur Ausbildung der Schulter bei 1,65 eV in Betracht gezogen. Für die beste Anpassung erhält man bei maximaler Anregung (obere gepunktete Kurve) eine berechnete Ladungsträgerdichte von $1,5 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Das Elektronengas heizt sich dabei auf eine Temperatur von $T \approx 2000 \text{ K}$ auf. Aus den Rechnungen lässt sich zudem schließen, dass bereits 80 Prozent der Zustände am Γ -Punkt besetzt sind. Die PL-Intensität wurde räumlich integriert, daher ist es nicht unwahrscheinlich, dass im Zentrum der Resonatoren bereits eine Besetzungsinversion im Halbleiter vorherrscht. Die ermittelten Ladungsträgerdichten können also mit Sicherheit als untere Grenze angesehen werden.

Quasistatisches Elektron-Loch-Plasma

In den PL-Messungen (Abbildung 5.6) ist klar erkennbar, dass die resonanten Metamaterialien eine starke lokale Überhöhung des elektrischen Feldes verursachen. In Verbindung mit höchstintensiven THz-Transienten entsteht dadurch in intrinsischem Galliumarsenid eine massive Population von Elektron-Loch-Paaren. Die Abschätzung der Ladungsträgerdichte über die Zener-Tunnelwahrscheinlichkeit zeigt zudem, dass innerhalb von nur 100 fs) ein Ladungsträgertransfer in der Größenordnung von 10^{19} cm^{-3} ins Leitungsband stattfindet (Abschnitt 5.2). Im Experiment ist Elektronendichte n_e eine stark zeitabhängige Variable, die im besonderen Maße von der Bandbreite der Resonatorantwort abhängt. Tatsächlich beeinflusst auch die bereits vorhandene Elektronenpopulation die Oszillatorstärke der Resonatorantwort. Werden Ladungsträger über die Bandkante

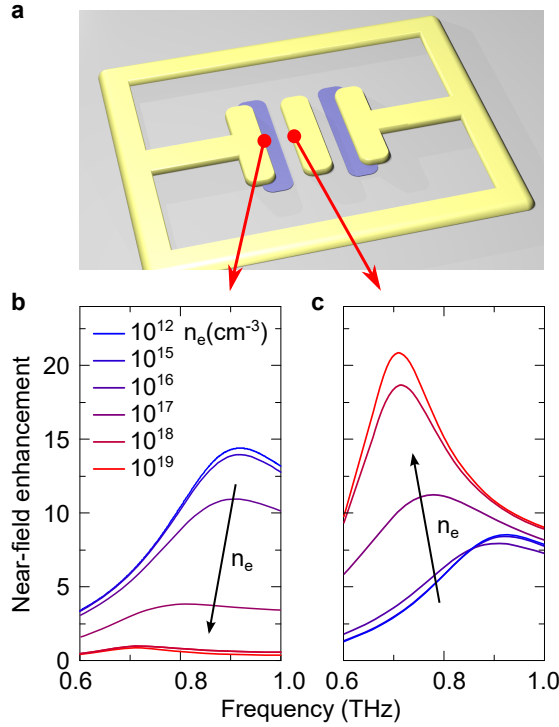


Abbildung 5.8: FDFD-Simulationen der Nahfeldüberhöhung. a, Schema des Metamaterials aus Gold. Zusätzliche leitfähige Bereiche bei denen eine statische Ladungsträgerdichte n_e festgelegt wird, repräsentieren die THz-induzierten Ladungsträger im Substrat. b,c, Spektrales Profil als Funktion der verschiedenen Ladungsträgerdichten n_e , ausgewertet in den rot markierten Bereichen in a.

angeregt, bilden die erzeugten Elektron-Loch-Paare auf einer Zeitskala der inversen Plasmafrequenz ($1/\nu_p$) eine kollektiven Plasmaschwingung [Hub01], die das oszillierende elektrische Feld zwischen den Kondensatorplatten teilweise abschirmt [Bah15, Han16]. Für die ermittelten Ladungsträgerdichten ($n_e \sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) beträgt die Plasmafrequenz etwa 30 THz. Das erzeugte Plasma im Nahfeldbereich oszilliert damit schnell genug, um die Resonanz der Metamaterialien bei der Zentralfrequenz $\nu = 0,88 \text{ THz}$ durch Abschirmung zu unterdrücken.

Die FDFD-Berechnung der lokalen Feldverteilung der Metamaterialien in Anwesenheit eines beweglichen Elektronengases, gestattet es, den Effekt der Abschirmung genauer zu analysieren. In der Rechnung modellieren zwei elektrisch leitfähige Bereiche die Ladungsträgerkonzentration im Substrat. Diese sind in Abbildung 5.8a blau markiert. Die Form und Position wurde dem Intensitätsverlauf der THz-induzierten PL-Messungen nachempfunden. Mit dieser dreidimensionalen Struktur können die FDFD-Simulationen im Anschluss herangezogen werden, um die mögliche lokale Feldüberhöhung als Funktion von n_e zu berechnen. Abbildung 5.8 zeigt zusätzlich die Orte im Resonator (rote Punkte), an denen Berechnungen ausgewertet werden.

In der ersten Simulation werden 10^{12} Ladungsträger pro cm^3 im Substrat platziert. Bereits hier erkennt man, dass die elektrostatische Abschirmung des Elektronengases den Verstärkungsfaktor von 35 auf etwa 15 senkt (Abbildung 5.8b). Für höhere Elektronen-

dichten wird die Feldüberhöhung weiter reduziert und verschiebt zu niedrigeren Frequenzen, bis das elektrische Nahfeld vollständig gedämpft wird. Am Rand des mittleren Stegs ergibt sich in diesem quasistatischen Fall ein anderes Bild (Abbildung 5.8c). Bei niedrigen Ladungsträgerdichten ($n_e \sim 10^{12} \text{ cm}^{-3}$) liegt die spektrale Überhöhung breitbandig unter dem Faktor 10. Neben der ebenfalls auftretenden Rotverschiebung der Resonanzfrequenz, wird bei Dichten im Bereich von 10^{18} cm^{-3} die Überhöhung des eingestrahltten Feldes nicht weiter abgeschwächt, sondern steigt deutlich an. Für $n_e \sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ erreicht diese sogar einen maximalen Wert von 20, und ist damit zweimal stärker als am linken Rand des kapazitiven Elementes.

Die Berechnungen geben allerdings keinen korrekten Einblick in die Dynamik der THz-Antwort der Antennenstruktur, da die numerischen Modelle den ultraschnellen Nichtgleichgewichtszustand im System nicht modellieren können. Zum einen benötigt das angeregte Elektron-Loch-Plasma mit einer Dichte im Bereich von $n_e \sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ etwa 30 fs, um seine abschirmende Wirkung auszubilden [Hub01]. Zum anderen existieren in der Probe a priori keine ungebundenen Ladungsträger, die das externe Feld beim ersten Halbzyklus abschirmen könnten. Dies unterscheidet sich auch deutlich zu den Experimenten der THz-Anregung von dotierten Halbleitersystemen [Nat63, Hir11]. Die Ladungsträgergeneration im Nahfeldbereich kann im Rahmen dieser Arbeit nur durch Interband-Zener-Tunneln gestartet werden (siehe Abschnitt 5.1). Der Wert der Nahfeldamplitude von $\mathcal{E}_n \approx 12 \text{ MV/cm}$, der in Abschnitt 5.2 ermittelt wurde, kann dadurch mit Sicherheit als untere Grenze betrachtet werden. Zusätzlich konnte in Untersuchungen mit intensiven Multi-THz-Lichtimpulsen und ähnlichen Spitzenfeldstärken in Verbindung mit einer mikroskopischen Vielteilchen-Quantentheorie demonstriert werden, dass Ladungsträger in Galliumselenid durch THz-getriebene Interband-Polarisation erzeugt werden [Sch14, Hoh15]. Der Keldysh-Parameter betrug in diesem Szenario $\gamma_K \approx 0,13$. Aufgrund der niedrigeren Frequenz der Trägerwelle fällt der Wert mit $\gamma_K \approx 0,02$ in den Experimenten dieser Arbeit weitaus geringer aus. Damit ist klar bestätigt, dass die THz-getriebene Ladungsträgergeneration in undotierten Halbleitern von Interband-Zener-Tunneln dominiert wird.

Im nächsten Experiment soll nun direkt in der Zeitdomäne analysiert werden, wie sich der THz-induzierte Nichtgleichgewichtszustand der Ladungsträgerpopulation auf die Resonatorantwort auswirkt. Dabei zeigen die Metamaterialien neben der räumlichen Überhöhung des elektrischen Feldes noch eine weitere Funktionalität.

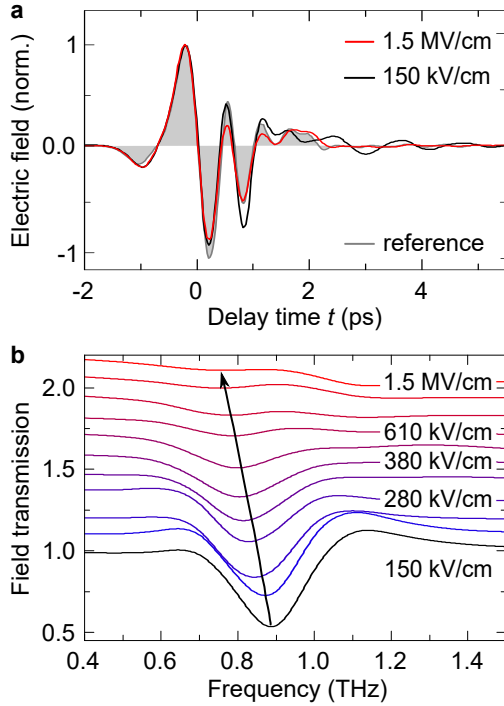


Abbildung 5.9: Nichtlineare THz-Transmission der Metamaterialstruktur. **a**, THz-Wellenform bei maximalen Amplituden von 150 kV/cm (schwarze Kurve) und 1.5 MV/cm (rote Kurve). Beide Transienten wurden auf die Referenzmessung normiert (graue Fläche), die durch die unstrukturierte Probe ermittelt wurde. **b**, Transmissionspektren für verschiedene Spitzenfeldstärken. Zur Übersicht werden diese vertikal versetzt dargestellt. Bei $\mathcal{E}_0 = 150 \text{ kV/cm}$ zeigt sich ein schmalbandiger Einbruch der Transmission mit einem Minimum bei einer Frequenz von 0.88 THz . Für höhere Spitzenfeldstärken setzt eine zunehmende Rotverschiebung ein (Pfeil), bis die Resonatorantwort bei 1.5 MV/cm vollständig ausbleicht.

5.5 Nichtlineare THz-Antwort der Metamaterialien im Fernfeld

Die Metamaterialien koppeln die nichtlineare Antwort, die im mikroskopischen Volumen durch extreme Licht-Materie-Wechselwirkung verursacht wird, wieder in das umgebende Strahlungsfeld [Fan13, Liu12]. Abbildung 5.9 zeigt, dass die Resonatorantwort im Fernfeld für stärkste Felder komplett unterdrückt wird. In den Aufnahmen in der Zeitdomäne äußert sich dieser Prozess als ultraschnelle Selbstamplitudenmodulation. Abbildung 5.6a, schwarze Kurve, zeigt dazu die THz-Transmission im Fernfeld durch Probe A bei einer maximalen Amplitude der fokussierten THz-Impulse von $\mathcal{E}_0 = 150 \text{ kV/cm}$. Zum direkten Vergleich ist die Polarisationsantwort durch das Substrat ohne Metamaterialien (graue Fläche) mit abgebildet. In der schwarzen Kurve erkennt man zu späteren Verzögerungszeiten $t > 2 \text{ ps}$ charakteristische oszillierende Nachläufer, die auf eine resonante Wechselwirkung mit den Gold-Resonatoren zurückzuführen ist. Bei maximaler THz-Feldstärke von 1.5 MV/cm werden dagegen die oszillierenden Nachläufer vollständig unterdrückt (Abbildung 5.9a rote Wellenform). Die Terahertz-Transienten lassen auch die Zeitskala erkennen, auf der sich die Nichtlinearität einstellt. Für schwache Anregungsenergien verläuft die THz-Wellenform der transmittierten Strahlung bis zum Zeitpunkt $t = 0 \text{ ps}$ für beide Spitzenfeldstärken identisch. Im nächsten Halbzyklus wird die Transmission der Amplitude je leicht reduziert. Während dieser Zeit wird in direkter Analogie zu einem elektrischen Schwingkreis, der eine äußere resonante Anregung erfährt, Energie aus dem Strahlungsfeld absorbiert. In der Goldschicht des Schwingkreises nehmen die

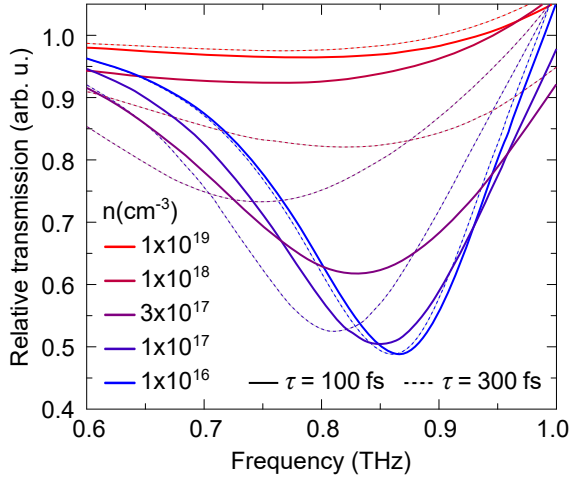


Abbildung 5.10: FDFD-Simulation der Fernfeldtransmission von angeregten Metamaterialstrukturen. Berechnete relative Transmission als Funktion der Ladungsträgerdichte im Substrat für zwei Streuzeiten $\tau = 100$ fs (durchgezogene Kurven) $\tau = 300$ fs (gestrichelte Kurven).

Elektronen dadurch kinetische Energie auf. Der Ladungsträgerstrom wird für $T/4$, mit der Periodendauer $T = 1/0,88 \text{ THz} = 1,12 \text{ ps}$ der Grundmode, in Richtung der kapazitiven Elemente getrieben. Dort baut sich ein Ladungsträgerungleichgewicht und damit eine Polarisierung zwischen den Streifenelementen auf, die mit einem zeitlichen Phasenversatz von 180 Grad zur treibenden Welle der resonanten Strahlung wieder an das Fernfeld abstrahlt. Bei der Transmissionsmessung im MV/cm-Bereich ist diese Dynamik nicht zu erkennen. Hier zeigt sich bis zum Verzögerungszeitpunkt $t = 0 \text{ ps}$ ein identischer Verlauf der THz-Wellenform. Bereits einen Halbzklus später bricht die Amplitude ein und wird ohne Phasenversatz zur Referenzwelle breitbandig gedämpft. An den nächsten Hauptmaxima wird ein stetiger Abfall der THz-Amplitude beobachtet, der durch die feldinduzierte Akkumulation von Ladungsträgern im Substrat hervorgerufen wird. Die Antwort der Metamaterialien ist retardiert und die Mehrzahl der Ladungsträger wird erst dann generiert, wenn der Resonator beginnend mit dem ersten Feldextremum bei $t = -1,1 \text{ ps}$ einschwingt und eine volle Oszillationsperiode T vollzogen hat. In den relativen Transmissionsspektren (Abbildung 5.9b) bestätigt sich die Abhängigkeit der Metamaterialresonanzen von der eingestrahlten THz-Amplitude. Für niedrigste hier verwendete elektrischen Felder ist die Transmissionskurve (schwarze Linie) identisch zur linearen Spektroskopie der Probe (Abbildung 5.6b, gepunktete Linie). Die THz-Antwort zeigt eine schmalbandige Resonanz bei einem Minimum von $0,88 \text{ THz}$. Für höhere THz-Amplituden wird die Polarisationsantwort nichtlinear. Das Minimum verschiebt sich zu niedrigen Frequenzen $\nu = 0,77 \text{ THz}$ und verbreitert sich zunehmend. Bei maximalen Anregungsfeldstärken, $\mathcal{E}_0 = 1.5 \text{ MV/cm}$, bleicht die Metamaterialresonanz komplett aus.

Die Berechnungen der relativen THz-Transmission durch die Metamaterialstruktur mit den FDFD-Methoden zeigen, analog zu Abbildung 5.8a, dass die experimentellen Beobachtungen qualitativ sehr gut wiedergegeben werden. Abbildung 5.10 illustriert die Ergebnisse

als Funktion der eingebetteten Ladungsträgerdichte n_e . Für $n_e \sim 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ zeigt die berechnete Transmissionskurve die gleiche schmalbandige Charakteristik wie im Experiment mit einem Minimum bei einer Frequenz von 0,88 THz. Die Ladungsträgerpopulation übt in diesem Regime noch keine beobachtbare nichtlineare Modulation auf die THz-Antwort aus. Für höhere Ladungsträgerdichten setzt starke Dämpfung ein, die für $n_e \sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ zum vollständigen Verlust der Resonanz führt. Hier zeigt sich, dass auch ohne mikroskopische Kenntnis des räumlichen Ladungsträgerprofils, die THz-Antwort im Fernfeld vorwiegend von der reinen Existenz des schwingungsfähigen Ladungsträgerplasmas im Substrat beeinflusst wird. Man erhält die beste Anpassung der theoretischen Ergebnisse mit den experimentellen Befunden, wenn in der Drude-Antwort (Gleichung (5.4)) eine phänomenologische Streuzeit von $\tau = 100 \text{ fs}$ verwendet wird. Der folgende Abschnitt erläutert den physikalischen Ursprung dieses Parameters genauer.

5.6 Zusammenfassung: Ladungsträgerdynamik

Werden Ladungsträger in einem intrinsischen Halbleiter durch THz-induzierte Interband-Polarisation angeregt, nehmen die erzeugten Elektron-Loch-Paare im elektrischen Wechselfeld kinetische Energie auf und beschleunigen. Während dieser Zeit können die geladenen Teilchen mit Streupartnern wechselwirken und dabei auch weitere freie Ladungsträger erzeugen. Sobald das Nahfeld abgeklungen ist, diffundieren die Teilchen in Bereiche des Substrates mit geringerer Ladungsträgerkonzentration. Im Folgenden werden die einzelnen Prozesse und ihre möglichen Auswirkungen auf die Ladungsträgerdynamik analysiert.

- (i) Direkt nach der Terahertz-Anregung der Elektron-Loch-Paare, und bevor Streuprozesse stattfinden, wird das erzeugte kohärente Wellenpaket durch das elektrische Feld im Kristall beschleunigt. Jeder elektronische Zustand erfährt dabei eine Kraft, die nach dem Bloch-Theorem den zugehörigen Wellenvektor k zeitlich ändert:

$$\hbar \frac{dk}{dt} = -e\mathcal{E}_n \quad (5.6)$$

Dies führt in letzter Konsequenz dazu, dass die Elektronen immer weiter beschleunigt werden, bis sie den Rand der Brillouin-Zone erreichen. Dort wechselt der Elektronenimpuls durch Bragg-Reflexion das Vorzeichen. Dieses Verhalten würde bei einer Amplitude des elektrischen Feldes von 12 MV/cm dazu führen, dass die Elektronen im Realraum auf einer Länge von 2 nm innerhalb von 6 fs hin und her oszillieren. Allerdings erwartet man keine kohärenten Bloch-Oszillationen in Galliumarsenid, da die steile Dispersion im Leitungsband sehr stark Stoßionisationsprozesse fördert, sobald die Überschussenergie der Elektronen größer ist als der Schwellwert

$E_{\text{thr}} = E_g (2m_e^* + m_{\text{hh}}^*/m_e^* + m_{\text{hh}}^*) = 1,6 \text{ eV}$ [Hir11]. Hier bezeichnet m_e^* die Ruhemasse der Elektronen im Leitungsband von GaAs und m_{hh}^* die der schweren Löcher. Bei $\mathcal{E}_n \approx 12 \text{ MV/cm}$ brauchen Elektronen weniger als 10 fs, um genügend Energie aufzusammeln und einen ersten Stoßprozess auszulösen. Ein Halbzyklus des elektrischen Nahfeldes mit 12 MV/cm induziert in GaAs eine Kaskade von etwa 10 Stoßprozessen. Dadurch verstärkt sich die Ladungsträgergeneration während dieser Zeit um den Faktor 10^3 . Der gleiche Faktor wird abgeschätzt, wenn man das ponderomotive Potenzial mit dem Schwellwert E_{thr} der Stoßionisation vergleicht: $U_p = e^2 \mathcal{E}_n / 4m_e \omega_{\text{THz}}^2 \approx 2 \text{ keV} \approx 10^3 E_{\text{thr}}$. Es ist anzumerken, dass diese Art der Ladungsträgergeneration nur dann effizient eintreten kann, wenn man den fermionischen Charakter der Elektronen-Loch-Paare vernachlässigt. In der Realität unterliegen die Elektronen dem Mechanismus der Pauli-Verbot (englisch: Pauli blocking). Der reduzierte Anstieg der PL-Intensität bei größeren Spitzenfeldstärken zeigt bereits einen ersten Hinweis auf Sättigungseffekte bei intensiver optischer Anregung. Des Weiteren unterscheidet sich die nichtperturbative Anregung der Ladungsträger in dieser Arbeit deutlich von den Experimenten, bei denen starke THz-Impulse Ladungsträger aus Störstellen ionisieren [Hir11]. Die schmalbandige PL-Intensität ($\approx 5 \text{ meV}$) skaliert in diesen Experimenten wie $I_{\text{PL}} \sim \mathcal{E}_0^8$. Die beobachteten Ladungsträgerkonzentrationen sind mit 10^{13} cm^{-3} bis 10^{16} cm^{-3} deutlich geringer als in den vorliegenden Messdaten dieser Arbeit.

- (ii) Auf einer Zeitskala von mehreren 10 fs bis einigen 100 fs dominieren Streuprozesse, die die freie Weglänge und die Geschwindigkeit der Elektronen deutlich beschränken. Dies führt dazu, dass sich Elektronen im Kristallgitter auch unter dem Einfluss stärkster elektrischer Felder nicht schneller fortbewegen können als es die Sättigungsgeschwindigkeit $v_{\text{sat}} = 2 \cdot 10^5 \text{ m/s}$ in GaAs vorgibt [Yu05]. Unter dieser Bedingung bewegen sich die Elektronen innerhalb eines Halbzyklus des treibenden Nahfeldes nicht weiter als 20 nm. Wechselt das THz-Feld das Vorzeichen, kehrt auch die Drift-Bewegung aller Elektronen um.
- (iii) Sobald das treibende Feld abgeklungen ist, tritt aufgrund der gleichen Konzentration an Elektronen und Löchern im Substrat ambipolare Ladungsträgerdiffusion ein. Positive und negative Ladungen bewegen sich aus dem angeregten Raumgebiet in Abhängigkeit von ihrer Ladung und Temperatur unterschiedlich schnell weg. Um die Auswirkungen der Diffusion abzuschätzen, wird in erster Näherung die zeitliche Entwicklung der vollen Halbwertbreite Δ_0 einer ursprünglich normal verteilten Ladungsträgerpopulation von Elektronen und Löchern im Substrat untersucht. Die zeitliche Änderung der vollen Halbwertbreite lässt sich mit $\Delta t = \sqrt{16 \ln(2) D t + \Delta_0^2}$ berechnen [Smi88]. Der Parameter $D = 20 \text{ cm}^2/\text{s}$ definiert den ambipolaren Dif-

fusionskoeffizient [Ruz10]. Bei $T = 300\text{ K}$ ergibt sich für den Extremfall, dass alle Ladungsträger räumlich stark konzentriert sind ($\Delta_0 \rightarrow 0$), eine räumliche Ladungsträgerdiffusion, die sich innerhalb von 200 ps auf eine Fläche mit einem Durchmesser von $2,4\text{ }\mu\text{m}$ verteilt.

Nach diesen Überlegungen wird klar, dass Diffusions- und Driftprozesse die räumliche Form der Photolumineszenz leicht ändern können. Für die Dynamik des Interband-Zener-Tunnels spielen Streuprozesse oder Driftströme nur eine geringfügige Bedeutung. Bei der Rotverschiebung der nichtlinearen Selbstamplitudenmodulation der THz-Antwort aus Abschnitt 5.5 zeigt sich dagegen, dass die Ladungsträgerstreuung die Dynamik des Systems deutlich beeinflusst. Daher soll zum Abschluss noch auf die möglichen Streukanäle eingegangen werden, die bei der starken Interband-Anregung eines Halbleiters auftreten können.

Streuprozesse in einem heißen Elektron-Loch-Plasma

Die Kohärenz stark angeregter Ladungsträger im Γ -Tal des Halbleiters wird durch zwei Vielteilchenprozesse begrenzt: Elektron-Elektron- und Elektron-Phonon-Wechselwirkung. Beide Mechanismen hängen wesentlich von der vorhandenen Ladungsträgerkonzentration und der Temperatur des Kristallgitters ab. Diese Faktoren beeinflussen die Anzahl der möglichen Anfangs- und Endzustände der Elektronen und sind maßgeblich für die Wahrscheinlichkeit zur Intrabandstreuung in benachbarte Leitungsbandminima. Für den Verbindungshalbleiter Galliumarsenid findet Elektronenstreuung vorwiegend in das L-Tal statt [Ral96, Heb10].

Möchte man die Dynamik der Ladungsträger als Funktion der angelegten THz-Spitzenfeldstärke verstehen, muss in einem vollständigen Bild die mikroskopische Vielteilchen-Wechselwirkung berücksichtigt werden. Für die experimentelle Beobachtung der Fernfeldantwort der Metamaterialien zeigt sich aber, dass bereits ein statisches Elektronengas im Rahmen der Drude-Theorie mit einer mittleren Streuzzeit τ experimentelle Beobachtungen wie Ausbleichen und Rotverschiebung physikalisch korrekt modelliert. Abbildung 5.10 zeigt FDFD-Berechnungen der relativen THz-Transmission der Probe für verschiedene Ladungsträgerdichten n_e im Bereich von 10^{16} bis 10^{19} pro cm^3 . Die Daten werden für zwei unterschiedliche Streuzzeiten $\tau = 100\text{ fs}$ (durchgezogene Kurven) und $\tau = 300\text{ fs}$ (gestrichelte Linien) ausgewertet. Bei sehr niedrigen und sehr hohen Ladungsträgerdichten verläuft die relative THz-Transmission ähnlich. Für den Bereich dazwischen hängt die Rotverschiebung des Minimums in der Transmission dezidiert von der Streuzzeit ab. Für $\tau = 300\text{ fs}$ und $n_e = 3 \cdot 10^{17}\text{ cm}^{-3}$ wird eine Rotverschiebung bestimmt, die 20 Prozent über dem experimentellen Befund liegt (Abbildung 5.10, lila Kurve). Für $\tau = 100\text{ fs}$

erhält man dagegen für alle Ladungsträgerdichten eine sehr gute Übereinstimmung mit den experimentellen Beobachtungen der THz-Fernfeldantwort. Der schnellste Streuprozess, der in benachbarte Leitungsbandminima möglich ist, geschieht vom Γ - in das L-Tal auf einer Zeitskala der inversen Streurrate $\gamma_{(\Gamma-L)}^{-1} = 500$ fs. Dieser Prozess ist somit fast eine halbe Größenordnung langsamer als Elektron-Phonon-Wechselwirkung innerhalb des Γ -Bandes ($\gamma_{LO}^{-1} \approx 125$ fs) innerhalb des Bandes. Somit ist klar bestätigt, dass optische Gitterschwingungen die dominante Rolle der Streuung bei höchstintensiver THz-Anregung übernehmen [Heb10].

In diesem Kapitel wurde demonstriert, dass die Nahfeldüberhöhung der THz-Metamaterialien genutzt werden kann, um eine neue Klasse von nichtperturbativen Nichtlinearitäten in Halbleitermaterialien zu induzieren. Die elektrischen Nahfelder, die im Bereich der kapazitiven Elemente zerstörungsfrei auftreten, erreichen im einem Frequenzbereich von 1 THz Spitzenfeldstärken von mindestens 12 MV/cm. Die intensiven THz-Felder erzeugen durch Interband-Zener-Tunneln ein stark entartetes Elektron-Loch-Plasma, dass sich in Form einer breitbandigen Photolumineszenz äußert. Die Photonen, die dabei emittiert werden, besitzen eine 500-mal größere Energie als die eingestrahlten THz-Impulse. Des Weiteren trägt die heiße Ladungsträgerpopulation zu einer starken nichtlinearen makroskopischen THz-Antwort der RLC-Schwingkreise bei. Mit steigender THz-Amplitude verschiebt sich die Resonanzfrequenz erst zu niedrigeren Photonenenergien, bis die Resonanz innerhalb einer Lichtschwingung komplett ausbleicht (Selbstamplitudenmodulation). Die extreme Bandverbiegung innerhalb des Resonators, gefolgt von einer massiven Ladungsträgergeneration bis an die Grenze der Besetzungsinversion ermöglicht eine neue Technologie zur Umsetzung einer plasmonischen Laserquelle aus Metamaterialien mit THz-Taktraten. Die starke nichtlineare Antwort eröffnet zusätzlich neue Wege optoelektronische Bauelemente zu konstruieren, die spektralen THz-Schaltern oder niedrigschwelligen sättigbaren Absorbern entsprechen, und mit Femtosekunden-Präzision eingestellt werden können.

Die Experimente dieser Arbeit zeigen wie wichtig feldaufgelöste Studien für das fundamentale Verständnis der komplexen Vielteilchen-Wechselwirkung im Festkörper sind. In zukünftigen Experimenten könnten extreme THz-Wechselfelder in Verbindung mit mehrdimensionaler Spektroskopie genutzt werden, um weitere unerforschte Prozesse im kohärenten Quantenregime auf ultrakurzen Zeitskalen zu studieren. Dazu gehört zum Beispiel die zeitaufgelöste Untersuchung des dynamischen Franz-Keldysh-Effektes oder die Rekollision von Quasiteilchen mit niederenergetischer THz-Strahlung [Zak12] bei Raumtemperatur. In diesen Szenarien wird ebenfalls eine breitbandige Emission von Strahlung erwartet, die einen tiefen Einblick in die ultraschnelle Dynamik der kohärenten

Vielteilchen-Wechselwirkung der Quasiteilchen ermöglicht. Des Weiteren zeigen neueste Experimente, dass mit intensiven THz-Lichtimpulsen auch in Spin-Systemen starke Nichtlinearitäten mit großer Dephasierungszeit ausgelöst werden können [Bai16a, Bai16b]. Damit sind in Zukunft auch nichtlineare Kontrollexperimente von magnetischen Anregungen zur Spin-basierten Quanteninformationsverarbeitung realisierbar.

Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurde die kohärente Vielteilchen-Quantendynamik von Ladungsträgern in Halbleitern in einem Regime nichtperturbativer Optik mit einer Zeitauflösung schneller als eine Lichtschwingung erforscht. Dabei gelingt es erstmals, ein kohärentes Landau-quantisiertes Elektronengas in Galliumarsenid auf ultrakurzen Zeitskalen nichtlinear zu kontrollieren [Maa16]. Des Weiteren wird mit atomar starken THz-Laserimpulsen im hochreinen Volumenmaterial eine extrem nichtperturbative Ladungsträgergeneration ausgelöst [Lan14]. Die gewonnenen Erkenntnisse liefern neue Einblicke in die mikroskopische Dynamik von Elektronen unter dem Einfluss starker THz-Lichtfelder.

In den Experimenten wird eine Hochfeld-Quelle verwendet, die ultrakurze, phasenstarre Lichtimpulse in einem Frequenzbereich um 1 THz mit elektrischen Spitzenfeldstärken bis 1,5 MV/cm zur Verfügung stellt [Bai13]. Diese regen den undotierten Volumenhalbleiter Galliumarsenid, dessen Oberfläche zuvor mit Metamaterialien aus Gold strukturiert wurde, zerstörungsfrei in ein extrem nichtlineares Regime der ultraschnellen THz-Elektronik an. Die Nahfeldüberhöhung der Antennen erzeugt im Halbleiter atomar starke Spannungsimpulse von 12 MV/cm. Die elektronische Bandstruktur verkippt innerhalb einer Lichtschwingung so stark, dass eine Interband-Polarisation über die fundamentale Bandlücke induziert wird und quasistatisches Zener-Tunneln einsetzt. Dieser Prozess regt auf einer Zeitskala von nur 100 fs einen massiven Ladungstransfer ins Leitungsband an. Das ponderomotive Potenzial der Elektronen liegt im keV-Bereich und erhöht die Teilchenzahl durch Stoßionisationen um drei weitere Größenordnungen auf 10^{19} cm^{-3} . Der sehr geringe Keldysh-Parameter $\gamma_K \approx 2 \cdot 10^{-2}$ bestätigt, dass Interband-Zener-Tunneln der dominante Prozess der Ladungsträgergeneration ist. Experimentell äußern sich diese nichtperturbativen Effekte in Form einer breitbandigen Photolumineszenz im kapazitiven Be-

reich der Antennen. Die maximale Energie der emittierten Photonen übersteigt die der eingestrahlten THz-Photonen um einen Faktor von über 500. Numerische Simulationen der Probenstruktur mittels Methoden der finiten Elemente und theoretische Modelle zur Abschätzung der Ladungsträgerdichte zeigen, dass die feldinduzierte Rotverschiebung der Metamaterialresonanz sowie ultraschnelle Abschirmungseffekte durch das erzeugte heiße Ladungsträgerplasma hervorgerufen werden. Zusätzlich zur extrem nichtperturbativen Ladungsträgergeneration beobachtet man bei stärksten THz-Amplituden eine Selbstamplitudenmodulation der THz-Transmission. Innerhalb einer Lichtschwingung der Trägerwelle existiert keine Resonatorantwort der Metamaterialien mehr. Dieses Experiment ist somit ein wichtiger Schritt in die ultraschnelle Hochfeld-Elektronik auf der Pikosekundenzeitskala. Eine THz-induzierte Besetzungsinversion könnte zum Beispiel technologisch genutzt werden, indem man gewisse Bereiche auf optoelektronischen Platinen mit Metamaterialien ausstattet, um diese dann mit THz-Impulsen zu schalten. Damit sind ultraschnelle elektronische Bauteile wie spektrale Schalter oder niedrigschwellige sättigbare Absorber realisierbar [Bah15]. Des Weiteren sind sogar THz-gepumpte, plasmonische Nahinfrarot-nanolaser vorstellbar, die weit unterhalb der Beugungsbegrenzung arbeiten und als Laserquelle direkt auf einer Platine Verwendung finden können.

Eine noch eindrucksvollere nichtlineare Licht-Materie-Wechselwirkung zeigt sich in der Dynamik von Landau-quantisierten Kristallelektronen nach starker THz-Anregung. Entgegen der Voraussage des Kohn-Theorems [Koh61], dass Landau-Systeme als kollektive, harmonische Oszillatoren beschrieben werden können, demonstriert die vorliegende Arbeit, dass THz-Impulse mit Spitzenfeldstärken im Bereich von wenigen kV/cm bereits ausreichen, um die Elektronen in ein kohärentes und gleichzeitig nichtlineares Regime anzuregen. Dadurch ist es erstmals möglich, eine nichtlineare Polarisierung zwischen einzelnen Landau-Niveaus einzustellen, die eine gezielte Anregung von elektronischen Zuständen des Vielteilchensystems erlaubt [Maa16]. Die Nichtlinearität manifestiert sich durch eine Rotverschiebung der Zentralfrequenz und eine spektrale Verbreiterung der Polarisationsantwort der Zyklotronresonanz, die beide nichtlinear von der THz-Feldstärke abhängen. Die Kohärenzzeit beträgt bei Spitzenfeldstärken bis 2 kV/cm etwa $\tau_{CR} = 9$ ps, fällt mit zunehmender Feldstärke stufenartig ab und beträgt bei 9 kV/cm gerade noch 0,8 ps. Die experimentell gemessenen Nichtlinearitäten werden durch eine vollständige Vielteilchen-Quantentheorie, die an der Universität Marburg entwickelt wurde, quantitativ verglichen. Für niedrige THz-Spitzenfeldstärken im Bereich von 1 kV/cm wird die schwache nichtlineare Antwort der Zyklotronresonanz hauptsächlich durch den anharmonischen Verlauf des Leitungsbandes bewirkt. Bei höheren Spitzenfeldstärken zeigt sich dagegen eine starke nichtlineare Dynamik, die durch Coulomb-Korrelation zwischen den Elektronen und der ionisierten Dotierschicht erzeugt wird. Mit feldaufgelöster zwei-

dimensionaler THz-Hochfeld-Spektroskopie ist es dadurch erstmals möglich, eine Vielzahl von kohärenten Quantenzuständen auf der Femtosekundenzeitskala nichtlinear zu kontrollieren. Die Zyklotronresonanz zeigt neben kohärenten Anrege-Abfrage-Signalen und Vier-Wellen-Mischsignalen für Spitzenfeldstärken von nur 3 kV/cm eindeutige Sechswellen-Mischprozesse (χ^5 -Nichtlinearitäten). Bei Spitzenfeldstärken von 4 kV/cm beobachtet man eine dynamische Besetzungsinversion. Die nichtlineare optische Antwort wird in diesem Regime von Vier-Wellen-Mischprozessen dominiert. Für die Nichtlinearität spielt der nichtparabolische Verlauf des Leitungsbandes hier keine Rolle mehr.

Die dynamische Coulomb-Korrelation im Vielteilchensystem bricht das Kohn-Theorem und Landau-quantisierte Elektronen können in ein kohärentes Quantenregime angeregt werden, das präzise über die THz-Wellenform festgelegt wird. Das große elektrische Dipolmoment begünstigt zusätzlich, dass bereits bei moderaten Feldstärken ein großes Spektrum an kohärenten, optisch nichtlinearen Prozessen auftritt und somit erstmals ein Vielteilchenzustand auf einer Zeitskala kürzer als eine Lichtschwingung kohärent kontrolliert werden kann. Bis jetzt war das Feld der nichtlinearen Quantenkontrolle langsamen, aufwendig hergestellten Systemen vorbehalten, die aus einzelnen Zuständen bestehen [Lad10]. In zukünftigen, ultraschnellen Quantenlogikbausteinen könnten zum Beispiel Metamaterialien und Zyklotronresonanzen vereint werden. Die Geometrie der Antennen begrenzt dabei die räumliche Struktur eines Qubits und die Anregungsenergie wird durch die Nahfeldüberhöhung reduziert. Chip-basierte THz-Quellen könnten dann den Weg zu vollständig elektronisch gesteuerten Quantenlogikbausteinen bereiten.

Die hier präsentierten Ergebnisse zeigen, dass die Rolle der Coulomb-basierten Vielteilchen-Wechselwirkung im Festkörper, die für die kohärente Quantenkontrolle bisher als schädlich eingestuft wurde, neu überdacht werden muss. Dynamische Coulomb-Korrelationen gewähren vielmehr einen Zugang in interne Freiheitsgrade von Vielteilchensystemen eines Festkörpers. In Verbindung mit der Lichtwellenelektronik eröffnen sich dadurch völlig neue Perspektiven für unerforschte Quantenphänomene auf der Zeitskala schneller als eine Lichtschwingung [Hoh15, Lan16, Coc16, Hub16] und der künftigen Quanteninformationsverarbeitung mit Terahertz-Taktraten.

Tunnelprozesse und elektronische Kopplung zwischen Elektronengasen

In Kapitel 4 wird zur Untersuchung der kohärenten nichtlinearen Licht-Materie-Wechselwirkung mit starken THz-Impulsen eine Probe bestrahlt, die insgesamt zwei benachbarte 2DEGs beinhaltet. Die GaAs-Potenzialminima sind 30 nm breit und werden durch eine 10 nm dicke Barrierschicht aus AlGaAs räumlich getrennt. Die elektronische Bandstruktur des Leitungsbandes ist in Abbildung 2.4 des Hauptteiles dargestellt. Die Ladungsträgerdichte der chemisch dotierten Quantentöpfe ist identisch und beträgt im Gleichgewichtszustand $n_e = 1,6 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$.

Im Hauptteil wird die Aussage vertreten, dass 2DEGs aus benachbarten Quantenfilmen keine strahlende Wechselwirkung eingehen, die zu einer Verletzung des Kohn Theorems führen könnte. Es wird zudem angenommen, dass weitere Effekte, wie zum Beispiel der Tunneltransport durch die Barriere, keinen Einfluss auf die experimentell gemessenen Nichtlinearitäten ausüben. Die Anzahl der 2DEGs erhöht lediglich das Signal-zu-Rausch-Verhältnis in linearer Form.

Um diesen Sachverhalt zu attestieren, wird zuerst die Zeitkonstante der elektronischen Tunnelwahrscheinlichkeit durch die Barrierschicht abgeschätzt. Der große Energieunterschied zwischen den Leitungsbandextrema von 220 meV führt dazu, dass die Transitzeit der Elektronen von einem Topf zum nächsten auf einer Zeitskala von 1,5 ns liegt. Dieser Prozess ist um drei Größenordnungen langsamer als die beobachteten nichtlinearen Effekte und kann damit vernachlässigt werden.

Durch eine theoretische Berechnung der THz-Antwort im Rahmen der Viel-Teilchen-Quantentheorie, kann die Coulomb-induzierte Wechselwirkung der Elektronengase untereinander ebenso ausgeschlossen werden. In Analogie zum 2D-THz-Experiment, berechnet

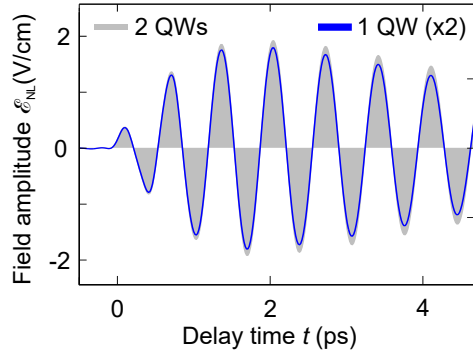


Abbildung A.1: Nichtlineare Antwort aus einem beziehungsweise zwei benachbarten 2DEGs. Die nichtlineare Antwort $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t)$ eines einzelnen Quantentopfes (schattierte Fläche, mit dem Faktor 2 multipliziert) ist dem Signal aus zwei benachbarten 2DEGs gegenübergestellt (blaue Kurve). Das System wird mit einer maximalen Amplitude von $\mathcal{E}_0 = 5.7 \text{ kV/cm}$ angeregt.

man die nichtlineare THz-Antwort für ein elektronisches System, dass aus zwei 2DEGs mit einem räumlichen Abstand von 70 nm zueinander besteht. Abbildung A.1 zeigt die berechnete Polarisationsantwort im Vergleich zur doppelten Amplitude eines einzelnen 2DEG. Der einzige Unterschied in den Signalen findet sich in einer leicht unterschiedlichen Amplitude, die etwa 5% ausmacht. Eine Frequenzverschiebung der CR-Resonanz, die ein sicheres Indiz für eine Nichtlinearität darstellt, kann nicht beobachtet werden. Der Vergleich mit der aufsummierten THz-Antwort aus einem 2DEG (blaue Kurve) bestätigt zudem, dass die elektrostatische Kopplung der 2DEGs in guter Näherung linear verläuft und keine Auswirkung auf die nichtlineare THz-Antwort hat.

Als ultimativen Test für die Universalität der Elektron-Ionenfeld-Wechselwirkung eines Landau-quantisierten 2DEGs, wurde eine weitere Probe hergestellt. Diese besitzt nur einen Quantentopf. Die räumliche Ausdehnung beträgt in Wachstumsrichtung 25 nm, die statische Dotierung fällt mit $\rho_e = 6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ stärker aus. Die gemessene Beweglichkeit der Ladungsträger beträgt bei statischer elektrischer Vorspannung: $\mu_{\text{DC}} = 1 \times 10^6 \text{ cm}^2/\text{Vs}$. Im Experiment wird an dieser Probe in direkter Analogie zu Abschnitt 4.6 im Hauptteil die zweidimensionale THz-Spektroskopie bei zwei verschiedenen Amplituden $\mathcal{E}_A = 0,7 \text{ kV/cm}$ und $1,4 \text{ kV/cm}$ durchgeführt. Die Amplitude von Impuls B beträgt bei allen Messungen $\mathcal{E}_B = 90 \text{ V/cm}$. Abbildung A.2 zeigt die gemessenen optischen nichtlinearen Signale als Funktion der Verzögerungszeiten τ und t . In den Aufzeichnungen in der Zeitdomäne Abbildung A.2a und b sowie in den zugehörigen Fourierspektren, c und d, lässt sich eine identische nichtlineare Dynamik wie in den Experimenten des Hauptteils beobachten. Bei niedrigen Feldstärken dominiert das Anrege-Abfrage-Signal (Abbildung A.2c, schwarzer Kreis). Bei höheren Amplituden tritt wieder nichtlineares Vier-Wellen-Mischen in den Vordergrund (d, roter Kreis). Es ist des Weiteren anzumerken, dass bei $\mathcal{E}_A = 1,4 \text{ kV/cm}$ die induzierte Polarisation schneller zerfällt als im Experiment des Hauptteils. Für relative Verzögerungszeiten $\tau > 2 \text{ ps}$ ist die Kohärenz bereits vollständig dephasiert. Der experimentelle Befund steht im direkten Einklang mit der Zustandsdichte im Landau-quantisierten 2DEG. Für die gegebene Population sind alle Landau-Niveaus bis zum Zu-

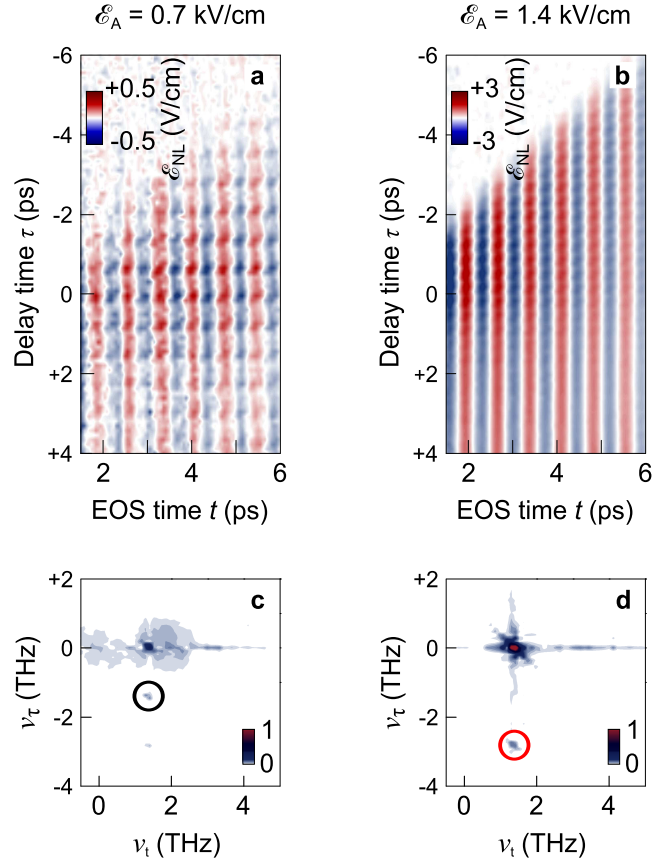


Abbildung A.2: Nichtlineare 2D-THz-Spektroskopie an einem einzelnen hochdotierten Quantentopf. a,b, Nichtlineare 2D-THz-Transmission ε_{NL} bei Anregungsfeldstärken von $\mathcal{E}_A = 0,7 \text{ kV/cm}$ (a) und $1,4 \text{ kV/cm}$ (b). c,d Zugehörige Amplitudenspektren im Fourierraum. Das Anrege-Abfrage-Signale in c ist mit einem schwarzen Kreis markiert, kohärentes Vier-Wellen-Mischen in d mit einem roten Kreis.

stand $|n = 5\rangle$ aufgefüllt. In Kombination mit dem stärkeren elektrischen Dipolmoment $d_{\text{el}} \sim \sqrt{n}$ zwischen den Zuständen mit höheren Quantenzahlen n , reichen bei dieser Probe deutlich schwächere THz-Felder aus, um schnelle Phonon-Wechselwirkung auszulösen.

Zusammenfassend kann daraus geschlossen werden, dass die Elektron-Ionenfeld-Wechselwirkung eine universelle Nichtlinearität darstellt, die in jedem statisch dotierten Elektronengas auftritt. Diese bis jetzt noch unbekannte Coulomb-Korrelation wird dabei weder von unterschiedlichen Ladungsträgerdichten noch von elektronischen Kopplungsmechanismen zwischen den 2DEGs beeinflusst.

Das homogene Elektronengas und die Ionenfeld-Wechselwirkung

Möchte man ein statisches homogenes Elektronengas im Festkörper erzeugen, müssen Störatome in das Halbleitermaterial implantiert werden, die ihr Valenzelektron an das Kristallgitter abgeben [Sze01]. Das ionisierte Elektron kann sich quasifrei bewegen und sucht sich gemäß der umgebenden Potenziallandschaft den energetisch günstigsten, freien Aufenthaltsort. In den Halbleiterheterostrukturen ist dies gerade der Quantentopf.

Gäbe es keine anziehende Kraft zwischen dem „zurückgelassenen“ Ionenrumpf, würde die repulsive elektrostatische Wechselwirkung der Elektronen untereinander im Potenzialtopf bereits ohne Anregung eine räumliche Inhomogenität im Elektronengas induzieren. Die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Ladungsträger erhöht sich als Funktion der Ladungsträgerdichte verstärkt an den Rändern des 2DEGs. Bei sehr niedrigen Ladungsträgerdichten spielen Coulomb-Korrelation der Elektronen sogar eine so große Rolle, dass sich eine kristalline Elektronenphase, der sogenannte Wigner-Seitz-Kristall, ausbildet [Wig34]. In beiden Grenzfällen der Ladungsträgerdotierung ist die nötige Translationssymmetrie und damit das Theorem von Kohn nicht mehr erhalten [Dyk80, Sal91].

Die quantitative Auswertung erläutert den dynamischen Verlauf der Ladungsträgerdichte entlang des Quantenfilmes unter Berücksichtigung der unterschiedlichen elektrostatischen Korrelationen. In Abbildung B.1 ist dazu die Verteilung der Elektronen 4,8 ps nach Initialisierung der Bewegungsgleichung aufgetragen, wenn nur die abstoßende Elektron-Elektron-Wechselwirkung im 2DEG vorhanden ist (schwarze Kurve und Gleichung 4.30, zweiter Term). Hier erkennt man eine deutliche Inhomogenität in der Verteilung, die auch zu späteren Zeitpunkten von 8,8 ps (b) und 35,5 ps (c) weiterhin besteht, und somit der Formation einer inhomogenen Wigner-Phase ähnelt. Im Gegensatz dazu kompensiert die

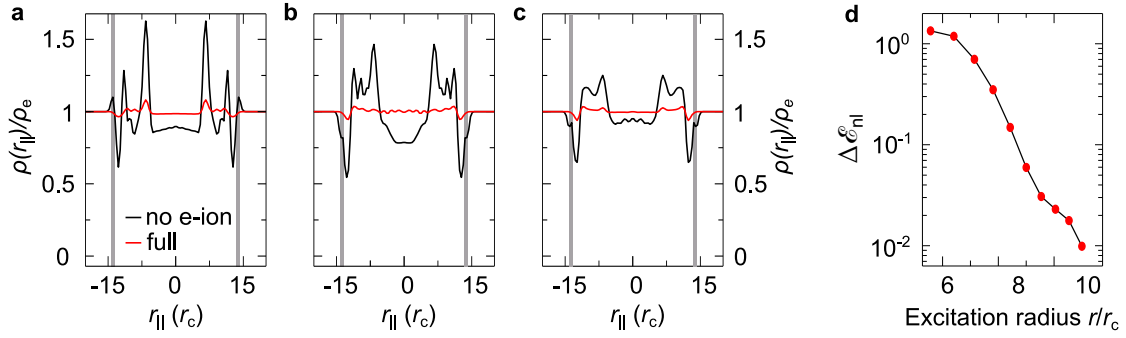


Abbildung B.1: Auswirkungen der Coulomb-Effekte auf das homogene Elektronengas.

a, Dynamische Evolution der Ladungsträgerdichte $\rho(r_{||})$ innerhalb des 2DEGs für eine Zeit 4,8 ps nachdem das homogene Elektronengas mit $\rho(r_{||})/\rho_e \equiv 1$ initialisiert wurde. Das Ergebnis ohne Elektron-Ionenfeld-Wechselwirkung (schwarze Kurve) ist dem unter Berücksichtigung aller auftretenden Coulomb-Korrelationen gegenübergestellt (rote Kurve). Die vertikalen grauen Flächen zeigen die Grenze der berechneten Anregungsfläche. Identische Berechnungen für spätere Zeitpunkte von 8,8 ps (**b**) und 35,5 ps (**c**). **d**, Abweichung der berechneten Polarisationsantwort bei THz-Anregung mit $\mathcal{E}_0 = 5,7 \text{ kV/cm}$ als Funktion der Anregungsfläche.

Elektron-Ionenfeld-Wechselwirkung die repulsive Coulomb-Wechselwirkung, so dass sich für alle Zeiten eine homogene Verteilung der Ladungsträgerverteilung ergibt. Die verbliebenen minimalen Abweichungen von der konstanten Ladungsträgerverteilung haben dabei keinen Einfluss auf die Nichtlinearität des Systems und zeigen, dass schon mit einer konstanten Flächenladungsdichte positiver Atomrümpfe die experimentelle Situation der räumlich entfernten Modulationsdotierung der Quantentöpfe durch Silizumatome richtig Rechnung getragen wird. Dies wird durch die Betrachtung der berechneten Abweichung der makroskopischen Polarisierung als Funktion der Anregungsfläche bewiesen (Abbildung B.1d). Für Radien $r > 6r_c$ zeigt sich ein exponentieller Zerfall in der Abweichung, so dass ab diesen Anregungsradien das Elektronengas alleine keine beobachtbare Nichtlinearität mehr bewirkt und in letzter Konsequenz eben erst durch die Elektron-Ionenfeld-Wechselwirkung eine homogene Verteilung erreicht.

Publikationen

Veröffentlichungen

- T. Maag, A. Bayer, S. Baierl, M. Hohenleutner, T. Korn, C. Schüller, D. Schuh, D. Bougeard, C. Lange, R. Huber, M. Mootz, J. E. Sipe, S. W. Koch and M. Kira, *Coherent cyclotron motion beyond Kohn's theorem*, Nature Physics **12**, 119-123 (2016).
- S. Zanotto, C. Lange, T. Maag, A. Pitanti, V. Miseikis, C. Coletti, R. Degl'Innocenti, L. Baldacci, R. Huber and A. Tredicucci, *Magneto-optic transmittance modulation observed in a hybrid graphene-split ring resonator terahertz metasurface*, Applied Physics Letters **107**, 121104 (2015).
- C. Lange, T. Maag, M. Hohenleutner, S. Baierl, O. Schubert, E. Edwards, D. Bougeard, G. Woltersdorf, and R. Huber, *Extremely nonperturbative nonlinearities in GaAs driven by atomically strong terahertz fields in gold metamaterials*, Physical Review Letters **113**, 227401 (2014).

Vorträge auf internationalen Konferenzen

- T. Maag, A. Bayer, S. Baierl, M. Hohenleutner, T. Korn, C. Schüller, D. Schuh, D. Bougeard, C. Lange, R. Huber, M. Mootz, J. E. Sipe, S. W. Koch and M. Kira, *Nonlinear THZ quantum dynamics of Landau-quantized electrons* (contributed talk), Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO2016), San Jose, USA, June 5 - 10, 2016

- C. Lange, T. Maag, A. Bayer, S. Baierl, M. Hohenleutner, T. Korn, C. Schüller, D. Schuh, D. Bougeard, R. Huber, M. Mootz, J. E. Sipe, S. W. Koch and M. Kira, *Nonlinear THz quantum dynamics beyond Kohn's theorem*, SPIE Defense, Security, and Sensing (SPIE DSS) 2016, Baltimore, USA, April 17 - 21, 2016
- T. Maag, A. Bayer, S. Baierl, M. Hohenleutner, T. Korn, C. Schüller, D. Schuh, D. Bougeard, C. Lange, R. Huber, M. Mootz, J. E. Sipe, S. W. Koch and M. Kira, *Terahertz nonlinear quantum control of Landau electrons* (contributed talk), 3rd Correlation Effects in Radiation Fields (CERF2015), Rostock, September 13 - 19, 2015.
- M. Hohenleutner, F. Langer, O. Schuert, S. S. Baierl, T. Maag, C. Lange, M. Porer, C. Pöllmann, P. Steinleitner, M. Eisele, M. A. Huber, T. L. Cocker, and R. Huber, *Frontiers of sub-cycle terahertz science: the fast, the strong and the small* (invited talk), 40th International Conference on Infrared, Millimeter, and THz Waves (IRMMW-THz2015), Hong Kong, August 22 - 29, 2015.
- C. Lange, T. Maag, A. Bayer, M. Hohenleutner, S. Baierl, D. Bougeard, M. Mootz, S.W. Koch, M. Kira, and R. Huber, *Nonperturbative THz nonlinearities for many-body quantum control in semiconductors* (contributed talk), SPIE Photonics West, San Fransisco, USA, Jan./Feb. 28 - 02, 2016.

Literaturverzeichnis

- [AH14] A. E. Almand-Hunter, H. Li, S. T. Cundiff, M. Mootz, M. Kira, and S. W. Koch, *Quantum droplets of electrons and holes*, Nature **506**, 471 (2014).
- [Ari11] T. Arikawa, X. Wang, D. J. Hilton, J. L. Reno, W. Pan, and J. Kono, *Quantum control of a Landau-quantized two-dimensional electron gas in a GaAs quantum well using coherent terahertz pulses*, Phys. Rev. B **84**, 241307 (2011).
- [Asp00] M. C. Asplund, M. T. Zanni, and R. M. Hochstrasser, *Two-dimensional infrared spectroscopy of peptides by phase-controlled femtosecond vibrational photon echoes*, Proceedings of the National Academy of Sciences **97**, 8219 (2000).
- [Aus83] D. H. Auston, *Subpicosecond electro-optic shock waves*, Applied Physics Letters **43**, 713 (1983).
- [Bah15] Y.-M. Bahk, B. J. Kang, Y. S. Kim, J.-Y. Kim, W. T. Kim, T. Y. Kim, T. Kang, J. Rhie, S. Han, C.-H. Park, F. Rotermund, and D.-S. Kim, *Electromagnetic-saturation of angstrom-sized quantum barriers at terahertz frequencies*, Phys. Rev. Lett. **115**, 125501 (2015).
- [Bai13] S. Baierl, *Hochfeld-THz-Generation mittels verkippter Impulsfronten: Photonik und erste Anwendungen*, Master's thesis, University of Regensburg (2013).
- [Bai16a] S. Baierl, M. Hohenleutner, T. Kampfrath, A. K. Zvezdin, A. V. Kimel, R. Huber, and R. Mikhaylovskiy, *Nonlinear spin control by terahertz-driven anisotropy fields*, Nature Photon. **10** (2016).
- [Bai16b] S. Baierl, J. H. Mentink, M. Hohenleutner, L. Braun, T.-M. Do, C. Lange, A. Sell, M. Fiebig, G. Woltersdorf, T. Kampfrath, and R. Huber, *Terahertz-driven nonlinear spin response of antiferromagnetic nickel oxide*, Phys. Rev. Lett. **117**, 197201 (2016).
- [Bak11] M. I. Bakunov, S. B. Bodrov, and E. A. Mashkovich, *Terahertz generation with tilted-front laser pulses: Dynamic theory for low-absorbing crystals*, J. Opt. Soc. Am. B **28**, 1724 (2011).

- [Bar95] S. E. Barrett, G. Dabbagh, L. N. Pfeiffer, K. W. West, and R. Tycko, *Optically pumped NMR evidence for finite-size skyrmions in GaAs quantum wells near Landau level filling $\nu = 1$* , Phys. Rev. Lett. **74**, 5112 (1995).
- [Bas12] M. G. Bason, M. Viteau, N. Malossi, P. Huillery, E. Arimondo, D. Ciampini, R. Fazio, V. Giovannetti, R. Mannella, and O. Morsch, *High-fidelity quantum driving*, Nature Phys. **8**, 147 (2012).
- [Bir07] S. Birner, T. Zibold, T. Andlauer, T. Kubis, M. Sabathil, A. Trellakis, and P. Vogl, *Nextnano: General purpose 3-D simulations*, IEEE Transactions on Electron Devices **54**, 2137 (2007).
- [Bla07] F. Blanchard, L. Razzari, H.-C. Bandulet, G. Sharma, R. Morandotti, J.-C. Kieffer, T. Ozaki, M. Reid, H. F. Tiedje, H. K. Haugen, and F. A. Hegmann, *Generation of 1.5 μ J single-cycle terahertz pulses by optical rectification from a large aperture ZnTe crystal*, Opt. Express **15**, 13212 (2007).
- [Bla08] R. Blatt and D. Wineland, *Entangled states of trapped atomic ions*, Nature **453**, 1008 (2008).
- [Bla11] F. Blanchard, D. Golde, F. H. Su, L. Razzari, G. Sharma, R. Morandotti, T. Ozaki, M. Reid, M. Kira, S. W. Koch, and F. A. Hegmann, *Effective mass anisotropy of hot electrons in nonparabolic conduction bands of n-doped InGaAs films using ultrafast terahertz pump-probe techniques*, Phys. Rev. Lett. **107**, 107401 (2011).
- [Bla13] F. Blanchard, A. Doi, T. Tanaka, and K. Tanaka, *Real-time, subwavelength terahertz imaging*, Annu. Rev. Mater. Res. **43**, 237 (2013).
- [Blo12] I. Bloch, J. Dalibard, and S. Nascimbene, *Quantum simulations with ultracold quantum gases*, Nature Phys. **8**, 267 (2012).
- [Bog46] N. N. Bogoliubov, *Kinetic equations* (1946), 265–274.
- [Bon95] A. Bonvalet, M. Joffre, A. Migus, T. G. J. K. D. Martin, J.L. ED Deutsch, and G. Valley, *Mid-infrared femtosecond continuum generation through optical rectification of 15-fsec light pulses*, In *OSA Technical Digest*, volume 15, page CPD40. Optical Society of America, Baltimore, Maryland (1995).
- [Boy08] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Elsevier (2008).
- [Bri05] T. Brixner, J. Stenger, H. M. Vaswani, M. Cho, R. E. Blankenship, and G. R. Fleming, *Two-dimensional spectroscopy of electronic couplings in photosynthesis*, Nature **434**, 625 (2005).

-
- [Car02] G. L. Carr, M. C. Martin, W. R. McKinney, K. Jordan, G. R. Neil, and G. P. Williams, *High-power terahertz radiation from relativistic electrons*, Nature **420**, 153 (2002).
- [Cau10] H. J. Caulfield and S. Dolev, *Why future supercomputing requires optics*, Nature Photon. **4**, 261 (2010).
- [Cha14] P. S. Chakraborty, A. S. Cardoso, B. R. Wier, A. P. Omprakash, J. D. Cressler, M. Kaynak, and B. Tillack, *A 0.8 THz f_{\max} SiGe HBT Operating at 4.3 K*, IEEE Electron Device Letters **35**, 151 (2014).
- [Che01] D. S. Chemla and J. Shah, *Many-body and correlation effects in semiconductors*, Nature **411**, 549 (2001).
- [Chi76] K. W. Chiu, T. K. Lee, and J. J. Quinn, *Infrared magneto-transmittance of a two-dimensional electron gas*, Surface Science **58**, 182 (1976).
- [Cho88] M. J. Chou, D. C. Tsui, and G. Weimann, *Cyclotron resonance of high-mobility two-dimensional electrons at extremely low densities*, Phys. Rev. B **37**, 848 (1988).
- [Cho08] M. Cho, *Coherent two-dimensional optical spectroscopy*, Chem. Rev. **108**, 1331 (2008).
- [Cla08] J. Clarke and F. K. Wilhelm, *Superconducting quantum bits*, Nature **453**, 1031 (2008).
- [Clo12] B. Clough, J. Dai, and X.-C. Zhang, *Laser air photonics: Beyond the terahertz gap*, Materials Today **15**, 50 (2012).
- [Coc16] T. L. Cocker, D. Peller, Y. Ping, S. Repp, and R. Huber, *Tracking the ultrafast motion of a single molecule by femtosecond orbital imaging*, Nature **539**, 263 (2016).
- [Coo94] N. R. Cooper and J. T. Chalker, *Theory of spin-split cyclotron resonance in the extreme quantum limit*, Phys. Rev. Lett. **72**, 2057 (1994).
- [CT09] C. Cohen-Tannoudji, D. Bernard, and L. Franck, *Quantenmechanik*, de Gruyter (2009).
- [Cun02] S. T. Cundiff, *Phase stabilization of ultrashort optical pulses*, Journal of Physics D: Applied Physics **35**, R43 (2002).
- [Dav97] J. H. Davies, *The physics of low-dimensional semiconductors: An introduction*, Cambridge university press (1997).
- [Dha90] A. Dhar and A. Mansingh, *Optical properties of reduced lithium niobate single crystals*, Journal of Applied Physics **68**, 5804 (1990).

- [Dor16] C. Dory, K. A. Fischer, K. Müller, K. G. Lagoudakis, T. Sarmiento, A. Rundquist, J. L. Zhang, Y. Kelaita, and J. Vučković, *Complete coherent control of a quantum dot strongly coupled to a nanocavity*, Scientific Reports **6**, 25172 (2016).
- [Dre53] G. Dresselhaus, A. F. Kip, and C. Kittel, *Observation of cyclotron resonance in germanium crystals*, Phys. Rev. **92**, 827 (1953).
- [Dre55] G. Dresselhaus, A. F. Kip, and C. Kittel, *Cyclotron resonance of electrons and holes in silicon and germanium crystals*, Phys. Rev. **98**, 368 (1955).
- [Dre06] A. Dreyhaupt, S. Winnerl, M. Helm, and T. Dekorsy, *Optimum excitation conditions for the generation of high-electric-field terahertz radiation from an oscillator-driven photoconductive device*, Opt. Lett. **31**, 1546 (2006).
- [Du93] R. R. Du, H. L. Stormer, D. C. Tsui, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, *Experimental evidence for new particles in the fractional quantum Hall effect*, Phys. Rev. Lett. **70**, 2944 (1993).
- [Dyk80] M. I. Dykman, *Cyclotron resonance of two-dimensional electrons forming wigner crystal*, Solid State Communications **35**, 753 (1980).
- [Eis14] M. Eisele, T. L. Cocker, M. A. Huber, M. Plankl, L. Viti, D. Ercolani, L. Sorba, M. S. Vitiello, and R. Huber, *Ultrafast multi-terahertz nano-spectroscopy with sub-cycle temporal resolution*, Nature Photon. **8**, 841 (2014).
- [Fü11] J. A. Fülöp, L. Pálfalvi, M. C. Hoffmann, and J. Hebling, *Towards generation of mJ-level ultrashort THz pulses by optical rectification*, Opt. Express **19**, 15090 (2011).
- [Fü12] J. A. Fülöp, L. Pálfalvi, S. Klingebiel, G. Almási, F. Krausz, S. Karsch, and J. Hebling, *Generation of sub-mJ terahertz pulses by optical rectification*, Opt. Lett. **37**, 557 (2012).
- [Fan13] K. Fan, H. Y. Hwang, M. Liu, A. C. Strikwerda, A. Sternbach, J. Zhang, X. Zhao, X. Zhang, K. A. Nelson, and R. D. Averitt, *Nonlinear terahertz metamaterials via field-enhanced carrier dynamics in GaAs*, Phys. Rev. Lett. **110**, 217404 (2013).
- [Fec03] C. J. Fecko, J. D. Eaves, J. J. Loparo, A. Tokmakoff, and P. L. Geissler, *Ultrafast hydrogen-bond dynamics in the infrared spectroscopy of water*, Science **301**, 1698 (2003).
- [Fej92] M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt, and R. L. Byer, *Quasi-phase-matched second harmonic generation: tuning and tolerances*, IEEE Journal of Quantum Electronics **28**, 2631 (1992).

-
- [Fer02] B. Ferguson and X.-C. Zhang, *Materials for terahertz science and technology*, Nat Mater **1**, 26 (2002).
- [Fey82] R. P. Feynman, *Simulating physics with computers*, International Journal of Theoretical Physics **21**, 467 (1982).
- [Gaa07] P. Gaal, W. Kuehn, K. Reimann, M. Woerner, T. Elsaesser, and R. Hey, *Internal motions of a quasiparticle governing its ultrafast nonlinear response*, Nature **450**, 1210 (2007).
- [Gal99] G. Gallot and D. Grischkowsky, *Electro-optic detection of terahertz radiation*, J. Opt. Soc. Am. B **16**, 1204 (1999).
- [Gan98] S. D. Ganichev, E. Ziemann, T. Gleim, W. Prettl, I. N. Yassievich, V. I. Perel, I. Wilke, and E. E. Haller, *Carrier tunneling in high-frequency electric fields*, Phys. Rev. Lett. **80**, 2409 (1998).
- [Gan06] S. D. Ganichev and W. Prettl, *Intense terahertz excitation of semiconductors*, Oxford University Press, New York (2006).
- [Gou07] E. Goulielmakis, V. S. Yakovlev, A. L. Cavalieri, M. Uiberacker, V. Pervak, A. Apolonski, R. Kienberger, U. Kleineberg, and F. Krausz, *Attosecond control and measurement: lightwave electronics*, Science **317**, 769 (2007).
- [Gre16] B. Green, S. Kovalev, V. Asgekar, G. Geloni, U. Lehnert, T. Golz, M. Kuntzsch, C. Bauer, J. Hauser, J. Voigtlaender, B. Wustmann, I. Koesterke, M. Schwarz, M. Freitag, A. Arnold, J. Teichert, M. Justus, W. Seidel, C. Ilgner, N. Awarri, D. Nicoletti, S. Kaiser, Y. Laplace, S. Rajasekaran, L. Zhang, S. Winnerl, H. Schneider, G. Schay, I. Lorincz, A. A. Rauscher, I. Radu, S. Mährlein, T. H. Kim, J. S. Lee, T. Kampfrath, S. Wall, J. Heberle, A. Malnasi-Csizmadia, A. Steiger, A. S. Müller, M. Helm, U. Schramm, T. Cowan, P. Michel, A. Cavalleri, A. S. Fisher, N. Stojanovic, and M. Gensch, *High-field high-repetition-rate sources for the coherent THz control of matter*, Scientific Reports **6**, 22256 (2016).
- [Gün09] G. Günter, A. A. Anappara, J. Hees, A. Sell, G. Biasiol, L. Sorba, S. De Liberato, C. Ciuti, A. Tredicucci, A. Leitenstorfer, and R. Huber, *Sub-cycle switch-on of ultrastrong light-matter interaction*, Nature **458**, 178 (2009).
- [Hag10] D. Hagenmüller, S. De Liberato, and C. Ciuti, *Ultrastrong coupling between a cavity resonator and the cyclotron transition of a two-dimensional electron gas in the case of an integer filling factor*, Phys. Rev. B **81**, 235303 (2010).
- [Hal93] B. I. Halperin, P. A. Lee, and N. Read, *Theory of the half-filled Landau level*, Phys. Rev. B **47**, 7312 (1993).

- [Ham93] H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, W. White, and R. W. Falcone, *Subpicosecond, electromagnetic pulses from intense laser-plasma interaction*, Phys. Rev. Lett. **71**, 2725 (1993).
- [Ham98] P. Hamm, M. Lim, and R. M. Hochstrasser, *Structure of the amide I band of peptides measured by femtosecond nonlinear-infrared spectroscopy*, J. Phys. Chem. B **102**, 6123 (1998).
- [Ham11] P. Hamm and M. T. Zanni, *Concepts and methods of 2D infrared spectroscopy*, Cambridge (2011).
- [Han16] S. Han, J.-Y. Kim, T. Kang, Y.-M. Bahk, J. Rhie, B. J. Kang, Y. S. Kim, J. Park, W. T. Kim, H. Jeon, F. Rotermund, and D.-S. Kim, *Colossal terahertz nonlinearity in angstrom- and nanometer-sized gaps*, ACS Photonics (2016).
- [Heb96] J. Hebling, *Derivation of the pulse front tilt caused by angular dispersion*, Optical and Quantum Electronics **28**, 1759 (1996).
- [Heb02] J. Hebling, G. Almási, I. Z. Kozma, and J. Kuhl, *Velocity matching by pulse front tilting for large-area THz-pulse generation*, Opt. Express **10**, 1161 (2002).
- [Heb04] J. Hebling, A. Stepanov, G. Almási, B. Bartal, and J. Kuhl, *Tunable THz pulse generation by optical rectification of ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts*, Applied Physics B **78**, 593 (2004).
- [Heb10] J. Hebling, M. C. Hoffmann, H. Y. Hwang, K.-L. Yeh, and K. A. Nelson, *Observation of nonequilibrium carrier distribution in Ge, Si, and GaAs by terahertz pump terahertz probe measurements*, Phys. Rev. B **81**, 035201 (2010).
- [Hil12] D. J. Hilton and J. Kono, *Characterization of materials, Second Edition*, John Wiley & Sons, New York (2012).
- [Hir11] H. Hirori, A. Doi, F. Blanchard, and K. Tanaka, *Single-cycle terahertz pulses with amplitudes exceeding 1 MV/cm generated by optical rectification in LiNbO₃*, Applied Physics Letters **98**, 091106 (2011).
- [Hir16] M. Hirose and P. Cappellaro, *Coherent feedback control of a single qubit in diamond*, Nature **532**, 77 (2016).
- [Hoc07] R. M. Hochstrasser, *Two-dimensional spectroscopy at infrared and optical frequencies*, Proceedings of the National Academy of Sciences **104**, 14190 (2007).
- [Hof09] M. C. Hoffmann, J. Hebling, H. Y. Hwang, K.-L. Yeh, and K. A. Nelson, *Impact ionization in InSb probed by terahertz pump-terahertz probe spectroscopy*, Phys. Rev. B **79**, 161201 (2009).

-
- [Hoh15] M. Hohenleutner, F. Langer, O. Schubert, M. Knorr, U. Huttner, S. W. Koch, M. Kira, and R. Huber, *Real-time observation of interfering crystal electrons in high-harmonic generation*, Nature **523**, 572 (2015).
- [Hou12] A. A. Houck, H. E. Tureci, and J. Koch, *On-chip quantum simulation with superconducting circuits*, Nature Phys. **8**, 292 (2012).
- [Hu95a] C. M. Hu, E. Batke, K. Köhler, and P. Ganser, *Interaction coupled cyclotron transitions of two-dimensional electron systems in GaAs at high temperatures*, Phys. Rev. Lett. **75**, 918 (1995).
- [Hu95b] C. M. Hu, T. Friedrich, E. Batke, K. Köhler, and P. Ganser, *Spin-split cyclotron resonance and spatial distribution of interacting electrons*, Phys. Rev. B **52**, 12090 (1995).
- [Hu96] C. M. Hu, E. Batke, K. Köhler, and P. Ganser, *Resonant polaron coupling of high index electron Landau levels in GaAs heterostructures*, Phys. Rev. Lett. **76**, 1904 (1996).
- [Hub00] R. Huber, A. Brodschelm, F. Tauser, and A. Leitenstorfer, *Generation and field-resolved detection of femtosecond electromagnetic pulses tunable up to 41 THz*, Applied Physics Letters **76**, 3191 (2000).
- [Hub01] R. Huber, F. Tauser, A. Brodschelm, M. Bichler, G. Abstreiter, and A. Leitenstorfer, *How many-particle interactions develop after ultrafast excitation of an electron-hole plasma*, Nature **414**, 286 (2001).
- [Hub04] R. Huber, *Ultraschneller Aufbau von Coulomb Korrelationen untersucht mit Femtosekunden-THz-Spektroskopie*, Ph.D. thesis (2004).
- [Hub16] M. A. Huber, F. Mooshammer, M. Plankl, L. Viti, F. Sandner, L. Z. Kastner, T. Frank, J. Fabian, M. S. Vitiello, T. L. Cocker, and R. Huber, *Femtosecond photo-switching of interface polaritons in black phosphorus heterostructures*, Nat Nano. **advance online publication** (2016).
- [Jai89] J. K. Jain, *Composite-fermion approach for the fractional quantum Hall effect*, Phys. Rev. Lett. **63**, 199 (1989).
- [Jeo13] Y.-G. Jeong, M. J. Paul, S.-H. Kim, K.-J. Yee, D.-S. Kim, and Y.-S. Lee, *Large enhancement of nonlinear terahertz absorption in intrinsic GaAs by plasmonic nano antennas*, Applied Physics Letters **103**, 171109 (2013).
- [Jep96] P. U. Jepsen, R. H. Jacobsen, and S. R. Keiding, *Generation and detection of terahertz pulses from biased semiconductor antennas*, J. Opt. Soc. Am. B **13**, 2424 (1996).

- [Joa08] J. D. Joannopoulos, S. G. Johnson, J. N. Winn, and R. D. Meade, *Photonic crystals: Molding the flow of light*, Princeton University Press (2008).
- [Jon00] D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall, and S. T. Cundiff, *Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis*, Science **288**, 635 (2000).
- [Jon03] D. M. Jonas, *Two-dimensional femtosecond spectroscopy*, Annu. Rev. Phys. Chem. **54**, 425 (2003).
- [Jun10] F. Junginger, A. Sell, O. Schubert, B. Mayer, D. Brida, M. Marangoni, G. Cerullo, A. Leitenstorfer, and R. Huber, *Single-cycle multiterahertz transients with peak fields above 10 MV/cm*, Opt. Lett. **35**, 2645 (2010).
- [Jun12] F. Junginger, B. Mayer, C. Schmidt, O. Schubert, S. Mährlein, A. Leitenstorfer, R. Huber, and A. Pashkin, *Nonperturbative interband response of a bulk InSb semiconductor driven off resonantly by terahertz electromagnetic few-cycle pulses*, Phys. Rev. Lett. **109**, 147403 (2012).
- [Kü04] C. Kübler, R. Huber, S. Tübel, and A. Leitenstorfer, *Ultrabroadband detection of multi-terahertz field transients with GaSe electro-optic sensors: Approaching the near infrared*, Applied Physics Letters **85**, 3360 (2004).
- [Kai03] R. A. Kaindl, M. A. Carnahan, D. Hagele, R. Lovenich, and D. S. Chemla, *Ultrafast terahertz probes of transient conducting and insulating phases in an electron-hole gas*, Nature **423**, 734 (2003).
- [Kam11] T. Kampfrath, A. Sell, G. Klatt, A. Pashkin, S. Mahrlein, T. Dekorsy, M. Wolf, M. Fiebig, A. Leitenstorfer, and R. Huber, *Coherent terahertz control of anti-ferromagnetic spin waves*, Nature Photon. **5**, 31 (2011).
- [Kam13] T. Kampfrath, K. Tanaka, and K. A. Nelson, *Resonant and nonresonant control over matter and light by intense terahertz transients*, Nature Photon. **7**, 680 (2013).
- [Kan60] E. O. Kane, *Zener tunneling in semiconductors*, Journal of Physics and Chemistry of Solids **12**, 181 (1960).
- [Kei16] S. Keiber, S. Sederberg, A. Schwarz, M. Trubetskov, V. Pervak, F. Krausz, and N. Karpowicz, *Electro-optic sampling of near-infrared waveforms*, Nature Photon. **10**, 159 (2016).
- [Kel65] L. Keldysh, *Ionization in the field of a strong electromagnetic wave*, Nature Commun. **2**, 594 (1965).

- [Kim15] J.-Y. Kim, B. J. Kang, J. Park, Y.-M. Bahk, W. T. Kim, J. Rhie, H. Jeon, F. Rotermund, and D.-S. Kim, *Terahertz quantum plasmonics of nanoslot antennas in nonlinear regime*, Nano Lett. **15**, 6683 (2015).
- [Kir06] M. Kira and S. W. Koch, *Many-body correlations and excitonic effects in semiconductor spectroscopy*, Progress in Quantum Electronics **30**, 155 (2006).
- [Kir11] M. Kira and S. W. Koch, *Semiconductor quantum optics*, Cambridge Univ. Press (2011).
- [Kir15] M. Kira, *Coherent quantum depletion of an interacting atom condensate*, Nature Commun. **6** (2015).
- [Kit02] C. Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik*, Oldenbourg Wissenschaftsverlag (2002).
- [Kit05] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, John Wiley & Sons, Inc. (2005).
- [Kli80] K. v. Klitzing, G. Dorda, and M. Pepper, *New method for high-accuracy determination of the fine-structure constant based on quantized Hall resistance*, Phys. Rev. Lett. **45**, 494 (1980).
- [Kli86] K. von Klitzing, *The quantized Hall effect*, Rev. Mod. Phys. **58**, 519 (1986).
- [Koh61] W. Kohn, *Cyclotron resonance and De Haas-van Alphen oscillations of an interacting electron gas*, Physical Review **123**, 1242 (1961).
- [Kub57] R. Kubo, *Statistical-mechanical theory of irreversible processes. I. General theory and simple applications to magnetic and conduction problems*, J. Phys. Soc. Jpn. **12**, 570 (1957).
- [Kue09] W. Kuehn, K. Reimann, M. Woerner, and T. Elsaesser, *Phase-resolved two-dimensional spectroscopy based on collinear n-wave mixing in the ultrafast time domain*, The Journal of Chemical Physics **130**, 164503 (2009).
- [Kuk02] I. V. Kukushkin, J. H. Smet, K. von Klitzing, and W. Wegscheider, *Cyclotron resonance of composite fermions*, Nature **415**, 409 (2002).
- [Lad10] T. D. Ladd, F. Jelezko, R. Laflamme, Y. Nakamura, C. Monroe, and J. L. O'Brien, *Quantum computers*, Nature **464**, 45 (2010).
- [Lan30] L. D. Landau, *Diamagnetismus der Metalle*, Zeitschrift für Physik **64**, 629 (1930).
- [Lan57] L. D. Landau, *The theory of a Fermi liquid*, Soviet Physics JETP **3**, 920 (1957).

- [Lan14] C. Lange, T. Maag, M. Hohenleutner, S. Baierl, O. Schubert, E. R. J. Edwards, D. Bougeard, G. Woltersdorf, and R. Huber, *Extremely nonperturbative nonlinearities in GaAs driven by atomically strong terahertz fields in gold metamaterials*, Phys. Rev. Lett. **113**, 227401 (2014).
- [Lan16] F. Langer, M. Hohenleutner, C. P. Schmid, C. Poellmann, P. Nagler, T. Korn, C. Schüller, M. S. Sherwin, U. Huttner, J. T. Steiner, S. W. Koch, M. Kira, and R. Huber, *Lightwave-driven quasiparticle collisions on a subcycle timescale*, Nature **533**, 225 (2016).
- [Lee08] Y.-S. Lee, *Principles of terahertz science and technology*, Springer (2008).
- [Lei08] S. Leinß, T. Kampfrath, K. v. Volkmann, M. Wolf, J. T. Steiner, M. Kira, S. W. Koch, A. Leitenstorfer, and R. Huber, *Terahertz coherent control of optically dark paraexcitons in Cu₂O*, Phys. Rev. Lett. **101**, 246401 (2008).
- [Liu12] M. Liu, H. Y. Hwang, H. Tao, A. C. Strikwerda, K. Fan, G. R. Keiser, A. J. Sternbach, K. G. West, S. Kittiwatanakul, J. Lu, S. A. Wolf, F. G. Omenetto, X. Zhang, K. A. Nelson, and R. D. Averitt, *Terahertz-field-induced insulator-to-metal transition in vanadium dioxide metamaterial*, Nature **487**, 345 (2012).
- [Maa16] T. Maag, A. Bayer, S. Baierl, M. Hohenleutner, T. Korn, C. Schuller, D. Schuh, D. Bougeard, C. Lange, R. Huber, M. Mootz, J. E. Sipe, S. W. Koch, and M. Kira, *Coherent cyclotron motion beyond Kohn's theorem*, Nature Phys. **12**, 119 (2016).
- [Mai14] C. Maissen, G. Scalari, F. Valmorra, M. Beck, J. Faist, S. Cibella, R. Leoni, C. Reichl, C. Charpentier, and W. Wegscheider, *Ultrastrong coupling in the near field of complementary split-ring resonators*, Phys. Rev. B **90**, 205309 (2014).
- [Mar59] P. C. Martin and J. Schwinger, *Theory of many-particle systems, I.*, Phys. Rev. **115**, 1342 (1959).
- [Mat96] O. Matov, O. Meshkov, O. Polishchuk, and V. Popov, *A theory of electromagnetic emission of two-dimensional magneto-plasma and cyclotron oscillations in a semiconductor heterostructure with a periodic screen*, Soviet Phys JETP **82**, 3 (1996).
- [Mat12] E. Matsubara, M. Nagai, and M. Ashida, *Ultrabroadband coherent electric field from far infrared to 200 THz using air plasma induced by 10 fs pulses*, Applied Physics Letters **101**, 011105 (2012).

-
- [Mat14] R. Matsunaga, N. Tsuji, H. Fujita, A. Sugioka, K. Makise, Y. Uzawa, H. Terai, Z. Wang, H. Aoki, and R. Shimano, *Light-induced collective pseudospin precession resonating with Higgs mode in a superconductor*, Science **345**, 1145 (2014).
- [Mik04] S. A. Mikhailov, *Microwave-induced magnetotransport phenomena in two-dimensional electron systems: Importance of electrodynamic effects*, Phys. Rev. B **70**, 165311 (2004).
- [Mou86] P. F. Moulton, *Spectroscopic and laser characteristics of Ti:Al₂O₃*, J. Opt. Soc. Am. B **3**, 125 (1986).
- [MS10] I. Mondragon-Shem, B. A. Rodríguez, and F. E. López, *Efficient calculation of Coulomb matrix elements for bilayers of confined charge carriers with arbitrary spatial separation*, Computer Physics Communications **181**, 1510 (2010).
- [Muk95] S. Mukamel, *Principles of nonlinear optical spectroscopy*, Oxford University Press (1995).
- [Muk00] S. Mukamel, *Multidimensional femtosecond correlation spectroscopies of electronic and vibrational excitations*, Annu. Rev. Phys. Chem. **51**, 691 (2000).
- [Nak99] Y. Nakamura, Y. A. Pashkin, and J. S. Tsai, *Coherent control of macroscopic quantum states in a single-Cooper-pair box*, Nature **398**, 786 (1999).
- [Nar16] G. Nardin, *Multidimensional coherent optical spectroscopy of semiconductor nanostructures: A review*, Semiconductor Science and Technology **31**, 023001 (2016).
- [Nat63] M. I. Nathan, G. Burns, S. E. Blum, and J. C. Marinace, *Electroluminescence and Photoluminescence of GaAs at 77°K*, Phys. Rev. **132**, 1482 (1963).
- [Olm12] R. L. Olmon, B. Slovick, T. W. Johnson, D. Shelton, S.-H. Oh, G. D. Boreman, and M. B. Raschke, *Optical dielectric function of gold*, Phys. Rev. B **86**, 235147 (2012).
- [Pá05] L. Pálfalvi, J. Hebling, J. Kuhl, . Péter, and K. Polgár, *Temperature dependence of the absorption and refraction of Mg-doped congruent and stoichiometric LiNbO₃ in the THz range*, Journal of Applied Physics **97**, 123505 (2005).
- [Pal97] E. D. Palik, *Preface*, In *Handbook of Optical Constants of Solids*. Academic Press, Burlington (1997).
- [Pau59] L. J. Van der Pauw, *A method of measuring specific resistivity and Hall effect of discs of arbitrary shape*, Philips Res. Repts. **1** (1959).

- [Pfe96] P. Pfeffer and W. Zawadzki, *Five-level k - p model for the conduction and valence bands of GaAs and InP*, Phys. Rev. B **53**, 12813 (1996).
- [Pla01] P. C. M. Planken, H.-K. Nienhuys, H. J. Bakker, and T. Wenckebach, *Measurement and calculation of the orientation dependence of terahertz pulse detection in ZnTe*, J. Opt. Soc. Am. B **18**, 313 (2001).
- [Por14] M. Porer, J.-M. Ménard, and R. Huber, *Shot noise reduced terahertz detection via spectrally postfiltered electro-optic sampling*, Opt. Lett. **39**, 2435 (2014).
- [Pre08] D. Press, T. D. Ladd, B. Y. Zhang, and Y. Yamamoto, *Complete quantum control of a single quantum dot spin using ultrafast optical pulses*, Nature **456**, 218 (2008).
- [Ral96] S. E. Ralph, Y. Chen, J. Woodall, and D. McInturff, *Subpicosecond photoconductivity of $\text{In}_{0.53}\text{Ga}_{0.47}\text{As}$: Intervalley scattering rates observed via THz spectroscopy*, Phys. Rev. B **54**, 5568 (1996).
- [Ric04] S. Richard, F. Aniel, and G. Fishman, *Energy-band structure of Ge, Si, and GaAs: A thirty-band method*, Phys. Rev. B **70**, 235204 (2004).
- [Ruz10] B. A. Ruzicka, L. K. Werake, H. Samassekou, and H. Zhao, *Ambipolar diffusion of photoexcited carriers in bulk GaAs*, Applied Physics Letters **97**, 262119 (2010).
- [Sal91] M. Salkola, *Cyclotron resonance in a Wigner crystal: A mean-field approach*, Phys. Rev. B **43**, 1190 (1991).
- [Sca12] G. Scalari, C. Maissen, D. Turčinková, D. Hagenmüller, S. De Liberato, C. Ciuti, C. Reichl, D. Schuh, W. Wegscheider, M. Beck, and J. Faist, *Ultrastrong coupling of the cyclotron transition of a 2D electron gas to a THz metamaterial*, Science **335**, 1323 (2012).
- [Sch14] O. Schubert, M. Hohenleutner, F. Langer, B. Urbanek, C. Lange, U. Huttner, D. Golde, T. Meier, M. Kira, S. W. Koch, and R. Huber, *Sub-cycle control of terahertz high-harmonic generation by dynamical Bloch oscillations*, Nature Photon. **8**, 119 (2014).
- [Sel08] A. Sell, A. Leitenstorfer, and R. Huber, *Phase-locked generation and field-resolved detection of widely tunable terahertz pulses with amplitudes exceeding 100 MV/cm*, Opt. Lett. **33**, 2767 (2008).
- [Sel10] A. Sell, *Nichtlineare Spektroskopie mit einer hochintensiven THz-Lichtquelle*, Ph.D. thesis, University of Konstanz, Germany (2010).

-
- [She07] Y. Shen, T. Watanabe, D. A. Arena, C.-C. Kao, J. B. Murphy, T. Y. Tsang, X. J. Wang, and G. L. Carr, *Nonlinear cross-phase modulation with intense single-cycle terahertz pulses*, Phys. Rev. Lett. **99**, 043901 (2007).
- [Smi88] L. M. Smith, D. R. Wake, J. P. Wolfe, D. Levi, M. V. Klein, J. Klem, T. Henderson, and H. Morkoç, *Picosecond imaging of photoexcited carriers in quantum wells: Anomalous lateral confinement at high densities*, Phys. Rev. B **38**, 5788 (1988).
- [Smi10] R. P. Smith, J. K. Wahlstrand, A. C. Funk, R. P. Mirin, S. T. Cundiff, J. T. Steiner, M. Schafer, M. Kira, and S. W. Koch, *Extraction of many-body configurations from nonlinear absorption in semiconductor quantum wells*, Phys. Rev. Lett. **104**, 247401 (2010).
- [Spe91] D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett, *60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser*, Opt. Lett. **16**, 42 (1991).
- [Spi94] C. Spielmann, P. F. Curley, T. Brabec, and F. Krausz, *Ultrabroadband femtosecond lasers*, IEEE Journal of Quantum Electronics **30**, 1100 (Apr 1994).
- [Sti01] T. H. Stievater, X. Li, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi, and L. J. Sham, *Rabi Oscillations of Excitons in Single Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **87**, 133603 (2001).
- [Str85] D. Strickland and G. Mourou, *Compression of amplified chirped optical pulses*, Optics Communications **55**, 447 (1985).
- [Str90] D. Strauch and B. Dorner, *Phonon dispersion in GaAs*, Journal of Physics: Condensed Matter **2**, 1457 (1990).
- [Sze01] S. Sze, *Semiconductor devices: physics and technology*, Wiley New York (2001).
- [Tan12] S. Tani, F. Blanchard, and K. Tanaka, *Ultrafast carrier dynamics in graphene under a high electric field*, Phys. Rev. Lett. **109**, 166603 (2012).
- [TNI12] G. Timothy Noe II, J.-H. Kim, J. Lee, Y. Wang, A. K. Wojcik, S. A. McGill, D. H. Reitze, A. A. Belyanin, and J. Kono, *Giant superfluorescent bursts from a semiconductor magneto-plasma*, Nature Phys. **8**, 219 (2012).
- [Ton07] M. Tonouchi, *Cutting-edge terahertz technology*, Nature Photon. **1**, 97 (2007).
- [Tsu82] D. C. Tsui, H. L. Stormer, and A. C. Gossard, *Two-dimensional magnetotransport in the extreme quantum limit*, Phys. Rev. Lett. **48**, 1559 (1982).
- [Tur10] D. B. Turner and K. A. Nelson, *Coherent measurements of high-order electronic correlations in quantum wells*, Nature **466**, 1089 (2010).

- [Ulbr11] R. Ulbricht, E. Hendry, J. Shan, T. F. Heinz, and M. Bonn, *Carrier dynamics in semiconductors studied with time-resolved terahertz spectroscopy*, Rev. Mod. Phys. **83**, 543 (2011).
- [Vur01] I. Vurgaftman, J. R. Meyer, and L. R. Ram-Mohan, *Band parameters for III–V compound semiconductors and their alloys*, Journal of Applied Physics **89**, 5815 (2001).
- [Wan07] X. Wang, D. J. Hilton, L. Ren, D. M. Mittleman, J. Kono, and J. L. Reno, *Terahertz time-domain magnetospectroscopy of a high-mobility two-dimensional electron gas*, Opt. Lett. **32**, 1845 (2007).
- [Wan10a] X. Wang, A. A. Belyanin, S. A. Crooker, D. M. Mittleman, and J. Kono, *Interference-induced terahertz transparency in a semiconductor magneto-plasma*, Nature Phys. **6**, 126 (2010).
- [Wan10b] X. Wang, D. J. Hilton, J. L. Reno, D. M. Mittleman, and J. Kono, *Direct measurement of cyclotron coherence times of high-mobility two-dimensional electron gases*, Opt. Express **18**, 12354 (2010).
- [Wei85] R. S. Weis and T. K. Gaylord, *Lithium niobate: Summary of physical properties and crystal structure*, Applied Physics A **37**, 191 (1985).
- [Wie99] C. E. Wieman, D. E. Pritchard, and D. J. Wineland, *Atom cooling, trapping, and quantum manipulation*, Rev. Mod. Phys. **71**, S253 (1999).
- [Wig34] E. Wigner, *On the interaction of electrons in metals*, Phys. Rev. **46**, 1002 (1934).
- [Wu95] Q. Wu and X. Zhang, *Free space electro-optic sampling of terahertz beams*, Applied Physics Letters **67**, 3523 (1995).
- [Wu96] Q. Wu and X. Zhang, *Ultrafast electro-optic field sensors*, Applied Physics Letters **68**, 1604 (1996).
- [Yu05] P. Yu and M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors: Physics and Materials Properties*, Springer Berlin (2005).
- [Zak12] B. Zaks, R. B. Liu, and M. S. Sherwin, *Experimental observation of electron-hole recollisions*, Nature **483**, 580 (2012).
- [Zha90] X. C. Zhang, J. T. Darrow, B. B. Hu, D. H. Auston, M. T. Schmidt, P. Tham, and E. S. Yang, *Optically induced electromagnetic radiation from semiconductor surfaces*, Applied Physics Letters **56**, 2228 (1990).

- [Zha14] Q. Zhang, T. Arikawa, E. Kato, J. L. Reno, W. Pan, J. D. Watson, M. J. Manfra, M. A. Zudov, M. Tokman, M. Erukhimova, A. Belyanin, and J. Kono, *Superradiant decay of cyclotron resonance of two-dimensional electron gases*, Phys. Rev. Lett. **113**, 047601 (2014).

Danksagung

Diese Arbeit und die wundervolle akademische Zeit in Regensburg wären ohne die Unterstützung vieler Menschen nicht möglich gewesen. Ich bin allen Personen dankbar, die am Erfolg meiner Arbeit mitgewirkt haben. Im Speziellen möchte ich folgenden Personen danken:

- **Prof. Dr. Rupert Huber** für die einzigartige Gelegenheit in der Arbeitsgruppe, vom Laboraufbau bis zu den ersten Erfolgen, immer an aktuellster Forschung mitzuwirken. Während des ganzen Doktorstudiums konnte ich stets meine eigenen Ideen einbringen. Unterstützt durch viele erkenntnisreiche wissenschaftliche Diskussionen, entwickelte sich für mich die Ultrakurzzeit-Physik schnell zur Herzensangelegenheit.
- **Dr. Christoph Lange** für die jahrelange Betreuung und die gemeinsame Zeit im Büro mit großartigen Gesprächen und Diskussionen.
- **Prof. Dr. Mackillo Kira, Dr. Martin Mootz** für die gute Zusammenarbeit und die Ausarbeitung des theoretischen Modells zur nichtlinearen THz-Anregung von Elektronen im Magnetfeld.
- **PD Dr. Tobias Korn** and **Prof. Dr. Christian Schüller** für die uneingeschränkte Hilfsbereitschaft und die unbegrenzte Leihgabe ihres Magnetkryostaten.
- **Prof. Dr. John Lupton** für die Begutachtung meiner Arbeit.
- **Andreas Bayer, Marcel Pozimski** für die angenehme und aufopferungsvolle Zusammenarbeit im Labor.
- **Dr. Matthias Hohenleutner, Fabian Langer, Sebastian Baierl, Dr. Christoph Pöllmann, Dr. Michael Porer, Dr. Max Eisele, Dr. Tyler L. Cocker** und **Dr. Olaf Schubert** für die exzellente Arbeitsatmosphäre, den angeregten Diskussionen, das Korrekturlesen meiner Arbeit und den vielen Unternehmungen jenseits des Laboralltags.
- **Martin Furthmeier, Imke Gronwald** und **Peter Müller** für die kompetente Unterstützung in allen technischen Bereichen, von denen *wir* keine Ahnung haben. Und für den stets herzlichen Umgang.

- **Ulla Franzke** für ihr offenes Ohr und ihre schätzenswerte Hilfsbereitschaft.
- **Allen anderen** derzeitigen und ehemaligen Mitarbeitern im Lehrstuhl von Prof. Dr. Huber für den unvergleichlichen Zusammenhalt und die großartige Atmosphäre.
- **Meinen Eltern, meinen Schwestern**, allen **Freunden** und ganz besonders **Evi** für die liebevolle Unterstützung.