

Subzyklen-Sättigungsdynamik von Intersubband-Polaritonen



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

vorgelegt von
JÜRGEN RAAB
aus Regensburg
im Jahr 2020

Das Promotionsgesuch wurde eingereicht am: 15.01.2020.
Die Arbeit wurde angeleitet von: Prof. Dr. Rupert Huber.

Prüfungsausschuss: Vorsitzender: Prof. Dr. Klaus Richter
1. Gutachter: Prof. Dr. Rupert Huber
2. Gutachter: Prof. Dr. Sergey Ganichev
weiterer Prüfer: Prof. Dr. Dominique Bougeard

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	5
2	Ultraschnelle, nichtlineare THz-Spektroskopie	13
2.1	Träger-Einhüllenden-Phase und elektro-optische Detektion	14
2.2	Femtosekunden-Laserverstärkersystem	17
2.3	Generation phasenstarrer und hochintensiver THz-Impulse durch optische Gleichrichtung	20
2.4	Aufbau des Messplatzes	31
2.5	Zweidimensionale THz-Spektroskopie	37
3	Kohärente THz-Hochfeldkontrolle von Intersubband-Übergängen	45
3.1	Sättigbare Absorption im THz-Bereich	46
3.2	Intersubband-Übergänge in Mehrfachquantentrogstrukturen	48
3.3	Aufbau der Mehrfachquantentrogstruktur	53
3.4	Feldaufgelöste, zweidimensionale THz-Spektroskopie von Intersubband-Übergängen	57
3.5	Rabi-Oszillationen auf Subzyklen-Zeitskalen	63
4	Dynamik von Intersubband-Polaritonen unter intensiver THz-Anregung	75
4.1	Regime der ultrastarken Licht-Materie-Kopplung	77
4.2	Experimentelle Umsetzung ultrastark gekoppelter Intersubband-Übergänge	82
4.3	Intersubband-Polaritonen unter hochintensiver Anregung	86
4.4	Zeitabhängige Beschreibung von Intersubband-Polaritonen	90

4.5	Hochfelddynamik von Intersubband-Polaritonen	95
5	Hochfeldspektroskopie an Quantenkaskadenlasern	107
5.1	Sättigung der Verstärkung	108
5.2	2D-THz-Spektroskopie am Quantenkaskadenlaser	112
5.3	Quantitative Analyse der Verstärkungs-Relaxationsdynamik	115
6	Zusammenfassung und Ausblick	117

Einleitung

Ultrakurze Impulse elektromagnetischer Strahlung mit nur wenigen Femtosekunden (fs) Dauer bieten Spitzenleistungen von mehreren Petawatt und ermöglichen die Untersuchung der elektronischen Dynamik in Materie auf Zeitskalen einzelner Lichtschwingungen. Insbesondere in Festkörpern mit ihrer enormen technologischen und wissenschaftlichen Bedeutung existiert eine Vielzahl niederenergetischer Elementaranregungen, wie beispielsweise Exzitonen [Poe15, Ste18], Phononen [Kim12, Por14a] oder Magnonen [Bai16a, Bai16b, Sch19], die Gegenstand intensiver Forschung sind. Der Schlüssel zu einem grundlegenden Verständnis dieser Prozesse in Festkörpern stellt ihre mikroskopische Dynamik dar, welche allein mittels ultrakurzer Lichtimpulse zugänglich ist.

Die Beobachtung dieser Freiheitsgrade verlangt zugleich nach kleinen Photonenenergien (0,4 meV bis 400 meV), welche selektiv niederenergetische Anregungen möglich machen. Quantenenergien in dieser Größenordnung liegen im fern- bis mittelinfraroten Spektralbereich, der aufgrund der entsprechenden Frequenzen der elektromagnetischen Wellen von etwa 0,1 THz bis 100 THz auch als THz-Spektralbereich bezeichnet wird. Studien an neuartigen Materialien wie beispielsweise Graphen [Gla14, Olb16, Pla19] oder topologischen Isolatoren [Pla16a, Pla16b, Sei18, Pla18] demonstrieren die vielseitigen Möglichkeiten, die der THz-Spektralbereich für die Grundlagenforschung bietet.

Die lineare THz-Spektroskopie stellt ein bereits seit längerem etabliertes Verfahren dar, bei dem schwache, häufig inkohärente THz-Strahlung verwendet wird, um die dielektrischen Eigenschaften von Festkörpern, Flüssigkeiten und Gasen zu untersuchen

[Ton07, Dhi17]. Im Gegensatz dazu kombinieren nichtlineare Spektroskopieverfahren die niedrigen Photonenenergien der THz-Strahlung mit den Vorteilen ultrakurzer Lichtimpulse und bieten so einzigartige Einblicke in die Dynamik von Festkörpern. THz-Impulse mit Feldstärken von einigen kV cm^{-1} können bereits eine stark nichtlineare Anregung von Landau-Elektronen treiben und so deren Dynamik auf Femtosekunden-Zeitskalen abbilden [Maa16]. Ungleich höhere Feldstärken von einigen 100 kV cm^{-1} machen nichtlineare Spinanregungen [Bai16b, Bai16a] in Festkörpern zugänglich und sind in der Lage, Elektronenspins dauerhaft zu schalten [Sch19]. Darüber hinaus ermöglichen die geringen Photonenenergien der THz-Strahlung die Beobachtung neuartiger, feldgetriebener Dynamik, die das oszillierende Feld elektromagnetischer Strahlung als Antrieb der Elektronenbewegung nutzt. So kann die Trägerwelle ultrakurzer THz-Impulse als Vorspannung für Rastertunnelmikroskope genutzt werden, was die Grundlage für atomar aufgelöste Mikroskopie mit zuvor unerreichter zeitlicher Auflösung bildet [Coc13, Coc16]. Das elektrische Feld von THz-Wellenformen lässt sich auch in Festkörpern als ultraschnelle Vorspannung verwenden und ermöglicht Interband-Tunnelströme [Lan14] und ballistischen Transport von Elektronen in Festkörpern auf fs-Zeitskalen [Rei18], bis hin zu nicht-perturbativen, nichtlinearen Effekten wie der Generation hoher Harmonischer [Sch14, Hoh15]. Die dargelegten Beispiele zeigen das enorme Potenzial, das intensive THz-Strahlung für die Grundlagenforschung bietet und erklären die umfassenden Bestrebungen vieler Arbeitsgruppen, neuartige THz-Quellen zu entwickeln.

Freie-Elektronen-Laser (FEL) [Mad71] stellen eine solche Quelle mit großer spektraler Reinheit dar. In diesen durchlaufen Elektronen mit relativistischer Geschwindigkeit eine Anordnung von Magneten und emittieren dabei elektromagnetische Strahlung, deren Frequenz allein durch die kinetische Energie der Elektronen und die genaue Geometrie der Magneten bestimmt ist. Der technische und finanzielle Aufwand hierfür ist jedoch enorm, weshalb FELs für viele Anwendungen nicht in Frage kommen.

Im Vergleich dazu bieten THz-Quellen, die auf Ultrakurzpulslasern im nahinfraroten (NIR) Spektralbereich basieren, höhere Spitzenleistungen bei gleichzeitig wesentlich kürzeren Impulsen und sind daher aus vielen Laboren nicht mehr wegzudenken [Dhi17]. Elektrisch vorgespannte, photoleitfähige Antennen [Aus80, She04, Die14], beispielsweise, emittieren nach resonanter Anregung mittels Femtosekunden-Laserimpulsen THz-Impulse mit Bandbreiten von mehreren THz und finden bereits heute praktische Anwendung in kommerziell erhältlichen Spektrometern [Bur17]. Eine

weitere Klasse leistungsfähiger THz-Quellen nutzt Verfahren der Frequenzkonversion in nichtlinear optischen Medien, um hochintensive, breitbandige THz-Wellenformen zu erzeugen [Bla07, Sel08, Bod08, Jun10]. Die Entwicklung immer leistungsstärkerer NIR-Lasersysteme erlaubt schließlich die Erzeugung ultrabreitbandiger THz-Impulse in laser-induzierten Gas-Plasmen [Ros07, Kar08, Ho10], was die Limitierungen durch Phononabsorption in den zur THz-Generation verwendeten Festkörperkristallen vermeidet.

All den vorgestellten Generationsverfahren ist gemein, dass sie auf meist komplexen optischen Aufbauten beruhen, was die praktische Anwendung der THz-Technologie bisher auf entsprechend spezialisierte Labore beschränkt. Elektrisch gepumpte Quantenkaskadenlaser (QCLs) [Fai94] stellen eine sehr kompakte, effiziente Alternative dar. Sie basieren auf präzise gewachsenen Abfolgen von Halbleitern mit unterschiedlicher Bandlücke, sogenannten Halbleiter-Heterostrukturen. Die periodische Modulation des elektronischen Potentials führt zu einer Aufspaltung des Leitungsbandes in mehrere sogenannte Minibänder, deren energetischer Abstand von der genauen Form des Übergitters abhängt und im Bereich weniger THz liegen kann. Eine elektrische Vorspannung verkippt die Bandstruktur, sodass Elektronen durch die Minibänder fließen können und zwischen den Laserniveaus eine Besetzungsinversion entsteht [Wil07, Bel09, Kum11]. In aktuellen Veröffentlichungen konnten so Durchschnittsleistungen von über 1 W bei einer Zentralfrequenz von 3,4 THz [Val14] demonstriert, sowie QCL-basierte Frequenzkämme mit Bandbreiten von mehreren 100 GHz gezeigt werden [Bur14, Kaz17, Con19a, Lu19].

Die Erzeugung kurzer Impulse aus QCLs stellt nach wie vor eine große Herausforderung dar. Der gepulste Betrieb eines Lasers ist generell nur möglich, wenn der Dauerstrichbetrieb (engl.: continuous wave, cw) unterbunden wird und die konstruktive, zeitliche Interferenz möglichst vieler Resonatormoden (sogenannte Modenkopplung) der bevorzugte Betriebszustand ist. Kurze Relaxationszeiten der Verstärkung im aktiven Medium wirken dem jedoch entgegen, da sie nach Durchlaufen des Impulses rasch wieder eine Besetzungsinversion herstellen und so unausweichlich zusätzlich zu einzelnen Laserimpulsen eine cw-Mode anschwingt [Kel03].

Insbesondere in QCLs begünstigt die effiziente, elektrische Pumpe sowie die kurze Lebensdauer im oberen Laserniveau diese Tendenz zum Dauerstrichbetrieb [Wan09, Tze18]. Aktuelle Arbeiten [Bar11, Wan15] schlagen als mögliche Lösung hierfür eine aktive Modulation der elektrischen Vorspannung vor, welche die Verstärkung nur in

den Bereichen des aktiven Mediums aufrechterhält, in denen die Intensität des THz-Impulses am höchsten ist. Mit diesem Verfahren konnten bereits Impulsdauern von 5 ps aus QCLs demonstriert werden [Mot17, Wan17]. Die hierfür nötige aufwendige Hochfrequenz-Elektronik erhöht jedoch die Komplexität des Systems auf das Niveau bereits existierender Quellen gepulster THz-Strahlung.

Einen möglichen Ausweg stellt die passive Modenkopplung von QCLs mittels geeigneter sättigbarer Absorber dar, die zusätzlich zu einer kompakten Systemintegration eine weitere Verkürzung der Impulsdauern verspricht [Tze18]. Hierfür wird eine Struktur in den Laserresonator integriert, welche die schwache cw-Strahlung absorbiert, für intensive Impulse jedoch transparent ist. Dies stellt sicher, dass der gepulste Betrieb des QCL mit geringeren Verlusten behaftet ist und somit bevorzugt anläuft. Während derartige sättigbare Absorber bereits seit längerer Zeit für die Modenkopplung von NIR-Lasern zur Anwendung kommen [Kel03], fehlen im THz-Bereich bislang passende Materialsysteme. Zwar existieren einige Demonstrationen von sättigbarer Absorption, basierend auf dotierten Halbleitern [Hof10], supraleitenden Metamaterialien [Kei16b] oder Graphen [Bia15, Bia17], aber alle vorgestellten Systeme weisen entweder zu hohe Sättigungsintensitäten auf oder erweisen sich als zu komplex für die Integration in QCL-Resonatoren.

Um diese Lücke zu schließen und so eine realistische Perspektive für die passive Modenkopplung von QCLs aufzuzeigen, werden in der vorliegenden Arbeit sättigbare Absorber auf der Grundlage von Übergängen zwischen quantisierten Energieniveaus in Mehrfachquantentrogstrukturen vorgeschlagen und eingehend experimentell sowie theoretisch untersucht. Sie erlauben eine einfache Integration in den Resonator eines QCL und zeigen unter Anregung mit intensiven THz-Impulsen ein stark nichtlineares Verhalten bis hin zur vollständigen Sättigung der Absorption. Um die Dynamik dieser Prozesse verstehen zu können, ist es essenziell, die individuellen kohärenten und inkohärenten Nichtlinearitäten unterscheiden zu können. Feldaufgelöste zweidimensionale (2D) THz-Spektroskopie [Kue09, Jun12, Woe13, Maa16, Hou19] stellt hierfür das ideale Verfahren dar. Mittels zweier phasenstarrer THz-Impulse kann die nichtlineare Antwort mit Subzyklen-Zeitauflösung direkt in der Zeitdomäne beobachtet werden, was die getrennte Untersuchung kohärenter und inkohärenter Beiträge zur Sättigung des Absorbers erlaubt.

Dieses Messprinzip verlangt jedoch nach einem maßgeschneiderten Messplatz, der neben einer präzisen Kontrolle über die relative Phase der THz-Impulse auch ih-

re feldaufgelöste Detektion mit Subzyklen-Zeitauflösung erlaubt. Daher wird im Rahmen dieser Arbeit eine neue, hochrepetierende Quelle hochintensiver, phasenstarrer THz-Impulse entwickelt und realisiert, die auf die speziellen Anforderungen der 2D-THz-Spektroskopie zugeschnitten ist. Sie ermöglicht 2D-THz-Spektroskopie mit bislang unerreichter Wiederholrate und macht so kohärente und inkohärente nichtlineare Prozesse in sättigbaren Absorbern mit hohem Signal-Rausch-Verhältnis zugänglich.

In einer ersten Reihe von Experimenten wird die nichtlineare Antwort von Interband-Übergängen (ISB-Übergängen) zeitaufgelöst beobachtet und deren Dynamik unter intensiver THz-Anregung untersucht. Zusammen mit einem speziell entwickelten, numerischen Modell, welches die beobachteten Signaturen vollständig reproduziert, kann das Sättigungsverhalten der Struktur quantitativ erklärt werden. Die Simulationen beweisen, dass das nichtlineare Verhalten auf ultraschnelle Rabi-Oszillationen des ISB-Übergangs zurückzuführen ist und zeigen so eine Perspektive für kohärente Impulsformung auf Basis der vorgeschlagenen sättigbaren Absorber auf [Raa19].

Die ultrastarke Kopplung des ISB-Übergangs an das elektrische Feld eines Mikroresonators führt zur Ausbildung neuer Zustände, sogenannter Resonator-Polaritonen, deren Dispersion stark von der Population des ISB-Übergangs abhängt und die so einen schnellen, effizienten sättigbaren Absorber darstellen. Die erstmalige Untersuchung der nichtlinearen Antwort der Polaritonen liefert faszinierende Einblicke in das nichtlineare Verhalten ultrastark gekoppelter Licht-Materie-Systeme und erlaubt zugleich die quantitative Bestimmung wichtiger Parameter des sättigbaren Absorbers. Ein vollständig neu entwickeltes semiklassisches Modell unterstützt die Analyse der Daten und liefert tiefgreifende Einblicke in die Subzyklen-Dynamik von ISB-Polaritonen. Die Ergebnisse zeigen eine vielversprechende Perspektive für die Verwendung von ultrastark gekoppelten ISB-Übergängen als sättigbare Absorber auf und leisten einen wichtigen Beitrag auf dem Weg hin zur Entwicklung elektrisch gepumpter, halbleiterbasierter Quellen hochintensiver THz-Impulse.

Neben optimierten sättigbaren Absorbern spielt auch die Dynamik des aktiven Mediums eine wichtige Rolle bei der Modenkopplung von QCLs. Daher wird das Konzept der 2D-THz-Spektroskopie abschließend auch auf einen elektrisch vorgespannten, frei laufenden QCL angewandt. Erste exemplarische Untersuchungen der nichtlinearen Dynamik und Sättigung eines QCL geben Aufschluss über die Zeitskalen der Verstärkungsdynamik bei verschiedenen Stromstärken und versprechen erste Einblicke in

die kohärente Licht-Materie-Wechselwirkung in QCLs. Die vorgestellten Messungen ebneten so den Weg für ein umfassendes Verständnis der kohärenten und inkohärenten Transportprozesse in elektrisch vorgespannten Halbleiter-Heterostrukturen.

Der erste Teil der vorliegenden Arbeit stellt den neu aufgebauten Messplatz vor, der die 2D-THz-Spektroskopie und die Untersuchung der Subzyklen-Dynamik sättigbarer Absorber überhaupt erst möglich macht (**Kapitel 2**). Er basiert auf einer Quelle phasenstarrer, 620 fs kurzer THz-Impulse mit einer Spitzenfeldstärke von 55 kV cm^{-1} bei einer Wiederholrate von 50 kHz und ermöglicht deren hochaufgelöste Detektion in Amplitude und Phase. Eine speziell auf die hohen Wiederholraten der verwendeten Laserquelle abgestimmte Elektronik liefert die Voraussetzung für eine hintergrundfreie Messung der nichtlinearen Antwort der Probe mit hohem Signal-Rausch-Verhältnis. Eine eingehende Einführung und Diskussion der kollinearen 2D-THz-Spektroskopie am Ende des Kapitels macht dieses Messverfahren verständlich und liefert die Grundlagen zur Auswertung der experimentellen Ergebnisse.

Kapitel 3 stellt ISB-Übergänge in Halbleiter-Heterostrukturen als sättigbare Absorber im THz-Bereich vor. An eine kurze Vorstellung des Materialsystems schließt sich eine umfassende experimentelle Untersuchung der nichtlinearen Dynamik bei verschiedenen Spitzenfeldstärken an. Diese zeigen, dass bereits bei einer Spitzenfeldstärke von 11 kV cm^{-1} eine ausgeprägte Sättigung der nichtlinearen Antwort eintritt, welche bei höheren Spitzenfeldstärken wieder deutlich abnimmt. Die quantitative Analyse der Daten erlaubt es, die Lebensdauer zu $T_1 = 5,0 \text{ ps}$ und die Kohärenzzeit des ISB-Übergangs zu $T_2^* = 2,2 \text{ ps}$ zu bestimmen. Der Vergleich der Daten mit einem semiklassischen Modell ermöglicht es, die Sättigung auf eine ultraschnelle Rabi-Oszillation zurückzuführen, die innerhalb von 300 fs, kürzer als die Oszillationsperiode der elektrischen Trägerwelle, stattfindet. Die Beobachtung dieser kohärenten Prozesse liefert wichtige Erkenntnisse über die Dynamik von ISB-Übergängen auf ultrakurzen Zeitskalen und legt so den Grundstein für die Entwicklung von sättigbaren Absorbern im THz-Spektralbereich auf der Grundlage von Halbleiter-Heterostrukturen.

Kapitel 4 gibt vielfältige Einblicke in die Dynamik ultrastark gekoppelter ISB-Übergänge. Hierfür wird dieses Regime anhand theoretischer Überlegungen vorgestellt und auf diesen aufbauend ein Modell entwickelt, welches den Einfluss der räumlich inhomogenen Verteilung des Nahfeldes von Mikroresonatoren auf die Ausbildung von Polaritonen abbildet. An die Vorstellung der untersuchten Probe schließt sich eine umfassende, experimentelle Untersuchung der Hochfeld-Dynamik von ISB-

Polaritonen an, welche den dynamischen Zusammenbruch der ultrastarken Kopplung beleuchtet. Diese Experimente belegen eine zehnmal niedrigere Sättigungsintensität der ISB-Polaritonen im Vergleich zu schwach gekoppelten ISB-Übergängen. 2D-THz-Spektroskopie enthüllt erstmalig die Dynamik dieser Sättigung mit Subzyklen-Zeitauflösung, welche auf Zeitskalen von etwa 900 fs eintritt. Das im Rahmen dieser Arbeit dezidiert für ultrastark gekoppelte ISB-Übergänge entwickelte numerische Modell reproduziert die experimentellen Daten vollständig und erlaubt Einblicke in den ultraschnellen, periodischen Austausch von Energie zwischen Lichtfeld und Materie. Die vorgestellten Ergebnisse liefern eine realistische Perspektive für die Verwendung von ISB-Polaritonen als sättigbare Absorber in QCLs und eröffnen damit die Möglichkeit zur Entwicklung neuartiger, gepulster THz-Quellen.

Die Beobachtung kohärenter und inkohärenter nichtlinearer Licht-Materie-Wechselwirkung in QCLs in der Zeitdomäne (**Kapitel 5**) stellt ein direktes Verfahren zur Untersuchung der Subzyklen-Dynamik von QCLs vor. So ist es möglich, mittels hochintensiver THz-Impulse die Verstärkungs-Relaxationszeit des untersuchten Lasers am Schwellpunkt der Lasertätigkeit zu 2,3 ps zu bestimmen und dessen Abhängigkeit vom Pumpstrom quantitativ zu analysieren. Darüber hinaus verspricht die Vielzahl kohärenter, nichtlinearer Signaturen im Rahmen zukünftiger experimenteller und theoretischer Arbeiten weitere Erkenntnisse über den zeitlichen Verlauf des elektronischen Transports in Quantenkaskaden-Strukturen.

Die Zusammenfassung der Ergebnisse in **Kapitel 6** rundet die vorliegende Arbeit ab und zeigt Perspektiven auf, wie die hier dargestellten Ergebnisse in die Entwicklung passiv modengekoppelter QCLs einfließen können.

Ultraschnelle, nichtlineare THz-Spektroskopie

Um Halbleiterheterostrukturen erfolgreich als sättigbare Absorber zur Modenkopplung von elektrisch gepumpten, halbleiterbasierten THz-Quellen einzusetzen, muss insbesondere deren nichtlineares Verhalten unter hochintensiver Anregung im Detail bekannt und verstanden sein. Dies schließt nicht nur eine genaue Kenntnis der nötigen Sättigungsintensitäten ein, sondern insbesondere auch kohärente und inkohärente Beiträge zur Sättigung des Absorbers, da diese erheblichen Einfluss auf Impulsform und Impulsdauer der generierten THz-Impulse haben [Kol13]. Ein lineares Spektroskopieverfahren, beispielsweise die Fourier-Transformations-Infrarotspektroskopie [Koe01], wäre nicht in der Lage, diese Informationen in vollem Umfang zu liefern, da es keine Beobachtung der entscheidenden nichtlinearen Antwort des sättigbaren Absorbers erlaubt.

Die Untersuchung kohärenter Dynamik ultraschneller Prozesse erfordert vielmehr eine Zeitauflösung von wenigen Femtosekunden und zudem einen Detektionsmechanismus, der die elektromagnetische Welle sowohl in ihrer Amplitude als auch ihrer Phase aufzulösen vermag [Wu97a, Lei99, Hub00, Küb04, Por14b]. Eine direkte Umsetzung all dieser Anforderungen stellt die 2D-THz-Spektroskopie dar [Kue09, Jun12, Woe13, Maa16, Hou19]: Zwei hochintensive THz-Impulse mit einer relativen, zeitlichen Verzögerung τ zueinander werden kollinear durch eine Probe transmittiert und anschließend feldaufgelöst detektiert. Dabei erlaubt es die feste, aber als Funktion von τ frei einstellbare, Phasenbeziehung der beiden Impulse, die durch den ersten Impuls

induzierte, nichtlineare Polarisation phasenaufgelöst zu detektieren. Im Gegensatz zu konventionellen Anrege-Abtast-Experimenten wird so auch die nichtlineare Antwort sichtbar, die nur durch die zusätzliche Phasenauflösung der 2D-THz-Spektroskopie zugänglich wird.

Diese Methode zur Messung nichtlinearer Dynamik in Festkörpern erfordert einen dezidierten Messplatz zur ultraschnellen THz-Spektroskopie, welcher mehrere technologische Anforderungen erfüllen muss. Zunächst ist eine Quelle erforderlich, die ultrakurze, phasenstarre THz-Impulse mit Impulsdauern von unter 1 ps erzeugt, welche Spitzenfeldstärken im Bereich mehrerer 10 kV cm^{-1} erreichen. Zudem müssen diese Impulse mittels eines Interferometers auf Subzyklen-Zeitskalen gegeneinander verzögert werden, um die vollständige Information nichtlinearer Prozesse hoher Ordnung ausnutzen zu können. Schließlich ist es erforderlich, die THz-Impulse mit Subzyklen-Zeitauflösung abzutasten, um die vollständige Phaseninformation der elektromagnetischen Wellen zu erhalten. Der im Folgenden vorgestellte Messaufbau, basierend auf einem kommerziellen Laserverstärkersystem, erfüllt all diese Anforderungen und erlaubt die Untersuchung nichtlinearer Dynamik mithilfe ultraschneller 2D-THz-Spektroskopie.

2.1 Träger-Einhüllenden-Phase und elektro-optische Detektion

Die vollständige Information über Amplitude und Phase aller beteiligten elektromagnetischen Wellen stellt eine grundlegende Voraussetzung zur Beobachtung der kohärenten nichtlinearen Antwort sättigbarer Absorber mittels 2D-THz-Spektroskopie dar. Einen denkbar direkten Zugang hierzu bietet die elektro-optische Detektion. Seit der ersten Demonstration dieses Verfahrens durch D. Auston [Aus88] bei Frequenzen von wenigen THz konnte das Verfahren bei immer kürzeren Wellenlängen angewandt werden, sodass mittlerweile selbst mittel- und nahinfrarote Wellenformen direkt in der Zeitdomäne beobachtet werden können [Wu97b, Lei99, Hub00, Liu04, Küb04, Sel08, Por14b, Kei16a, Kno18].

Das Verfahren basiert auf dem linearen elektro-optischen Effekt, auch Pockels-Effekt genannt [Poc94]. Dabei induziert ein elektrisches Feld, angelegt an einem nichtlinearen Kristall, eine Doppelbrechung, welche die Polarisation einer durch

den Kristall propagierenden elektromagnetischen Welle dreht. Entscheidend dabei ist, dass die Stärke dieses Effekts und damit der Grad an Polarisationsdrehung proportional mit dem angelegten Feld skaliert.

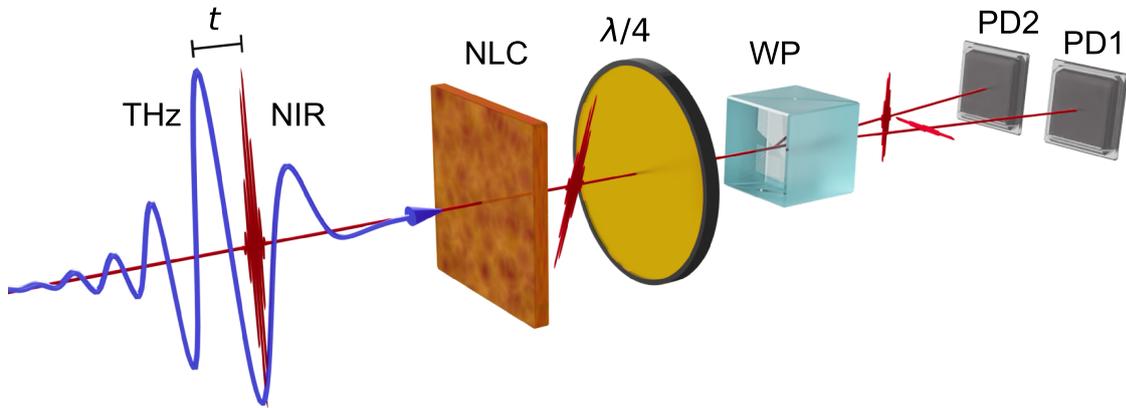


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der elektro-optischen Detektion. Ein ultrakurzer Nahinfrarotimpuls (NIR) propagiert kollinear mit einem THz-Impuls (THz) durch einen nichtlinearen optischen Kristall (NLC), in dem die Polarisation des NIR-Lichts proportional zum THz-Feld gedreht wird. Eine Anordnung aus $\lambda/4$ -Wellenplatte und Wollaston-Prisma (WP) analysiert diese Drehung der Polarisation nach dem nichtlinearen Kristall. Balancierte Photodioden (PD1, PD2) detektieren schließlich die Intensität in den beiden Polarisationsrichtungen.

Diese Polarisationsdrehung kann auch durch das elektrische Feld einer THz-Wellenform ausgelöst werden. Propagiert zeitgleich zu dieser Welle ein ultrakurzer NIR-Lichtimpuls durch den Kristall, so erfährt dieser eine Polarisationsdrehung proportional zum momentanen Feld der THz-Welle. Ein entsprechender experimenteller Aufbau ist schematisch in Abb. 2.1 gezeigt. Der NIR-Laserimpuls wird um eine Verzögerungszeit t gegen den THz-Transienten verzögert in einen elektro-optischen Kristall (NLC) eingestrahlt, wo er eine Polarisationsdrehung erfährt. Die gedrehte Polarisation wird mittels einer Wellenplatte ($\lambda/4$) auf zwei senkrecht zueinander orientierte Polarisationsrichtungen projiziert, die dann mittels eines Wollaston-Prismas räumlich getrennt werden. Detektiert man die beiden Komponenten mittels zweier Photodioden, so ist das Differenzsignal ein direktes Maß für die THz-induzierte Polarisationsdrehung und damit auch für die Feldstärke der untersuchten THz-Wellenform.

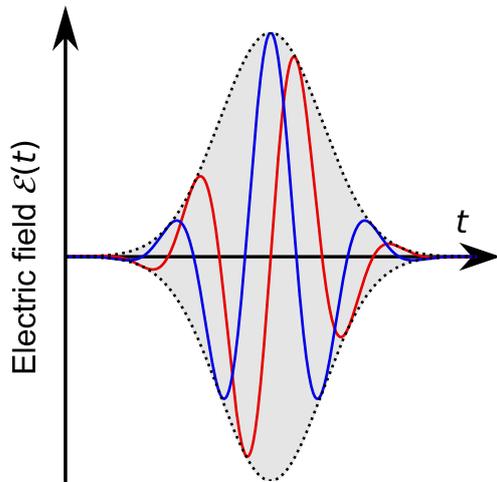


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der Träger-Einhüllenden-Phase. Zwei Lichtimpulse besitzen die gleiche Feld-einhüllende (grau hinterlegt) und Trägerfrequenz, weisen jedoch Trägerwellen mit unterschiedlicher Phase auf (nach [Cun02]).

Dieses Verfahren funktioniert nur, wenn sich der Abtastimpuls mit einer Gruppengeschwindigkeit durch das nichtlineare Medium bewegt, welche gleich der Phasengeschwindigkeit der THz-Welle ist. Andernfalls würde der Abtastimpuls an verschiedenen Stellen entlang der Wechselwirkungslänge unterschiedliche Polarisationsdrehungen erfahren, welche sich schließlich zu einer verschwindenden Drehung aufsummieren. Diese als Phasenanpassung bezeichnete Bedingung soll hier jedoch vorerst außen vor bleiben und in Abschnitt 2.3.1 ausführlicher diskutiert werden.

Führt man diese Messung nicht nur einmal, sondern viele Male durch und variiert dabei die Verzögerungszeit t , so lässt sich, ähnlich der stroboskopischen Aufnahme einer Bewegung, der gesamte THz-Transient rekonstruieren. Dies setzt jedoch voraus, dass sich die Phase der THz-Wellenform von einem Impuls zum nächsten nicht verändert, denn im Fall einer fluktuierenden Phase wäre das Messsignal aufeinander folgender Impulse nicht wohldefiniert. Vielmehr würde sich über die Integrationszeit der Messung das Signal zu null aufsummieren und lediglich ein zur Impulseinhüllenden proportionales Rauschen aufweisen. Abb. 2.2 zeigt eine Veranschaulichung dieser Problematik. Für ein und dieselbe Einhüllende des elektrischen Feldes gibt es unendlich viele mögliche Feldverläufe, wie exemplarisch für zwei Wellenformen mit einer Träger-Einhüllenden-Phase (engl.: carrier-envelope phase, kurz CEP) von 0 bzw. $\frac{\pi}{2}$ in Abb. 2.2 gezeigt ist [Dav00].

Lichtimpulse, deren CEP von einem Impuls zum nächsten konstant bleibt, werden als phasenstarre Impulse bezeichnet und stellen eine essenzielle Voraussetzung für Experimente mit Subzyklen-Zeitauflösung dar. Für Laserimpulse aus Femtosekunden-

Laserverstärkern ist diese Bedingung im Allgemeinen jedoch nicht erfüllt, da sich Gruppen- und Phasengeschwindigkeit im Lasermedium unterscheiden. Es ist vielmehr so, dass sich die CEP von einem Impuls zum nächsten um einen Betrag $\Delta\Phi_{\text{CEP}}$ unterscheidet. Die im Rahmen dieser Arbeit generierten und für Experimente verwendeten THz-Impulse sind jedoch, wie später gezeigt wird, intrinsisch phasenstarr, da sie mittels nichtlinearer Frequenzkonversion aus ultrakurzen NIR-Laserimpulsen erzeugt werden [Bal02].

2.2 Femtosekunden-Laserverstärkersystem

Das kommerziell verfügbare Lasersystem „Pharos“ des Herstellers „Light Conversion“ dient als Quelle der zur Generation phasenstarrer, hochintensiver THz-Impulse nötigen NIR-Femtosekunden-Laserimpulse. Abb. 2.3a zeigt eine Schemadarstellung der verwendeten Laserquelle. Ein diodengepumpter, passiv modengekoppelter Laseroszillator mit einem Verstärkermedium aus Ytterbium-dotiertem Kalium-Gadolinium-Wolframat (Yb:KGW) erzeugt 100 fs kurze Impulse mit einer Energie von 12 nJ bei einer Zentralwellenlänge von 1034 nm mit einer Repetitionsrate von 75,4 MHz. Diese werden zeitlich durch einen Gitterkompressor gestreckt und dann mit einer frei wählbaren Repetitionsrate in einen regenerativen Verstärker eingekoppelt. Die Verlängerung der Impulsdauer ist dabei notwendig, um eine sonst unausweichliche Beschädigung der Optiken durch die hohen Spitzenintensitäten in der Verstärkerstufe zu vermeiden [Str85].

Nach der Verstärkung in einem weiteren, diodengepumpten Yb:KGW Kristall durchlaufen die Impulse nochmals den Gitterkompressor, wo sie wieder komprimiert werden. Nach der Verstärkung und Kompression weisen die Impulse eine Impulsdauer von 220 fs bei einer Zentralwellenlänge von 1025 nm auf. Der Laser erlaubt es, die Repetitionsrate in weiten Bereichen frei zu wählen, ohne dabei Einbußen bei der Durchschnittsleistung des Systems hinnehmen zu müssen. Entsprechend liegen die verfügbaren Impulsenergien im Bereich von 10 μJ bis 200 μJ und verhalten sich invers proportional zur Repetitionsrate, welche zwischen 50 kHz und 1,0 MHz variiert werden kann.

Eine Kombination aus Pockels-Zelle und Polarisator erlaubt es, nur einzelne Impulse auszukoppeln und so die Durchschnittsleistung bei gleicher Impulsenergie zu reduzieren. Zudem ist es möglich, die Impulsenergie kontinuierlich abzuschwächen, indem

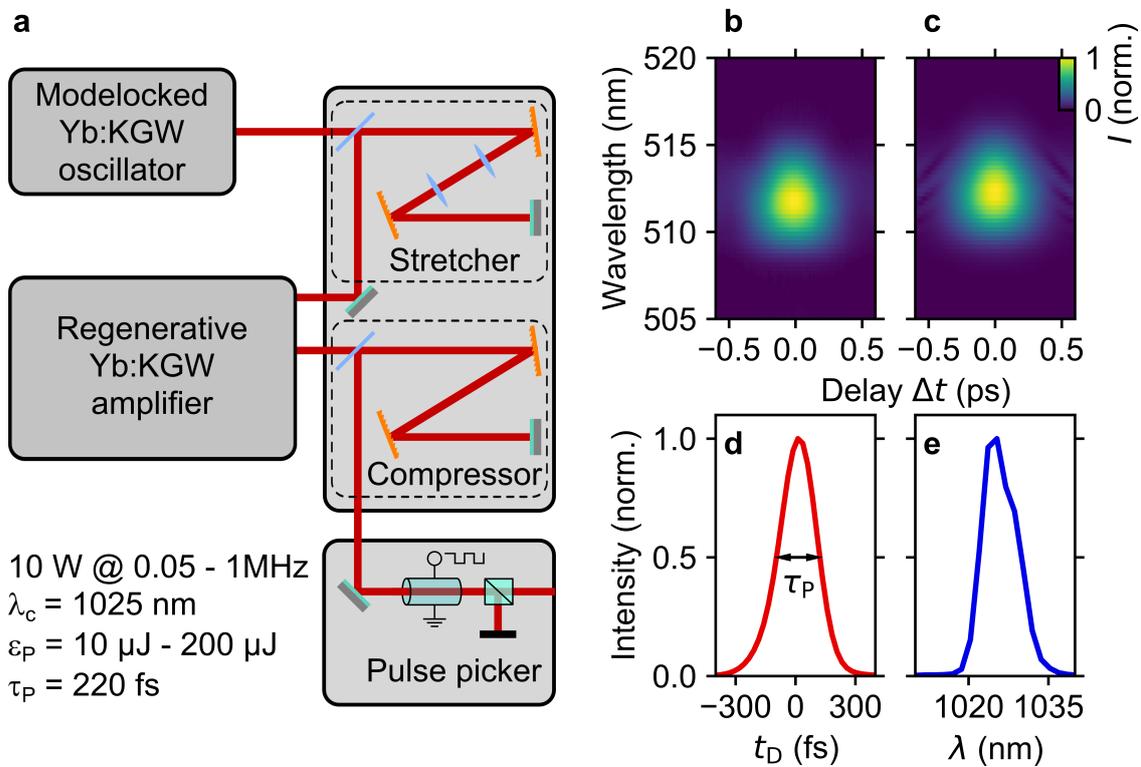


Abbildung 2.3: Technische Details des verwendeten Nahinfrarotlasersystems. **a**, Die 100 fs kurzen Impulse des modengekoppelten Yb:KGW-Oszillators werden zunächst durch spektrale Dispersion zeitlich gestreckt („Stretcher“) und dann in einem diodengepumpten Yb:KGW-Laserverstärker verstärkt. Nach der folgenden Kompression („Compressor“) weisen die Impulse Energien zwischen 10 μJ und 200 μJ bei einer Zentralwellenlänge von 1025 nm und einer Impulsdauer von 220 fs auf. Die Durchschnittsleistung beträgt 10 W. Eine Anordnung aus Pockels-Zelle und Polarisator („Pulse picker“) erlaubt es, die Repetitionsrate um ganzzahlige Teiler zu reduzieren. **b**, Spektral aufgelöste, nichtlineare Autokorrelation der Laserimpulse als Funktion der Wellenlänge des Autokorrelationssignals sowie der relativen Verzögerungszeit Δt der beiden Impulse. **c**, Numerische Rekonstruktion der Messung aus **b**. **d**, Zeitliches Intensitätsprofil der Laserimpulse des gezeigten Verstärkersystems als Funktion der Verzögerungszeit t_D , ermittelt aus der Rekonstruktion in **c**. Aufgrund der Symmetrie der experimentellen Anordnung ist das Vorzeichen der Zeitachse nicht eindeutig bestimmt, sondern für die Abbildung frei gewählt. **e**, Intensitätsspektrum der Laserimpulse als Funktion der NIR-Wellenlänge λ .

die an der Pockels-Zelle angelegte Spannung variiert wird. Das Zusammenspiel aus flexibler Repetitionsrate und wählbarer Impulsenergie erlaubt es im weiteren Verlauf der Experimente, intensitätsabhängige Messungen durchzuführen, ohne dabei weitere Eingriffe in den experimentellen Aufbau vornehmen zu müssen.

Insbesondere die Impulsdauer der verwendeten Laserquelle stellt einen entscheidenden Parameter für Experimente mit Subzyklen-Zeitauflösung dar, da sie sowohl die Bandbreite (und damit die Impulsdauer) der generierten THz-Impulse, als auch die zeitliche Auflösung der elektro-optischen Detektion begrenzt. Aus diesem Grund wurde die Impulsdauer der Laserquelle mittels einer spektral aufgelösten, nichtlinearen Autokorrelationsmessung bestimmt (engl.: Second harmonic frequency resolved optical gating, SHG-FROG) [Kan93]. Dazu durchläuft der Impulszug einen dünnen Strahlteiler, wo er zu je gleichen Teilen transmittiert und reflektiert wird. Die beiden Impulszüge werden anschließend an einem identischen Strahlteiler nicht-kollinear überlagert, wobei einer der beiden Wege mechanisch verkürzt oder verlängert werden kann, sodass eine variable Verzögerung Δt zwischen den beiden Impulszügen entsteht. Durch Fokussierung auf einen Kristall aus Beta-Bariumborat lässt sich die Summenfrequenz aus beiden Impulsen erzeugen, welche als Funktion der Wellenlänge und der Verzögerungszeit detektiert wird.

Die so gemessenen, zeitabhängigen Spektren sind in Abb. 2.3b gezeigt. Mittels eines numerischen Algorithmus kann iterativ die tatsächliche zeitliche Impulsform bestimmt und das gemessene Summenfrequenzsignal rekonstruiert werden (Abb. 2.3c). Der Intensitätsverlauf der NIR-Laserimpulse ist in Abb. 2.3d gezeigt und weist eine volle Halbwertsdauer von 220 fs auf, was bei einer spektralen Bandbreite von 8 nm (siehe Abb. 2.3e) lediglich 15% über der fourierlimitierten Impulsdauer liegt. Damit besitzen die Impulse eine ideale Bandbreite, die es erlaubt, ultrakurze THz-Impulse mit Frequenzkomponenten bis zu 3 THz zu generieren. Zudem sind die Impulse kurz genug (siehe Abschnitt 2.1), um gleichzeitig als Abtastimpulse für die Subzyklen-Detektion Verwendung zu finden.

2.3 Generation phasenstarrer und hochintensiver THz-Impulse durch optische Gleichrichtung

Um die in Abschnitt 2.1 diskutierten, phasenstarreren THz-Impulse zu erzeugen, wurden in den letzten Jahren verschiedene Generationsmechanismen entwickelt. Photoleitfähige Antennen beispielsweise [Aus80, She04, Die14], die für Anwendungen in der THz-Zeitdomänenspektroskopie häufig Verwendung finden, erzeugen bei geringem technischem Aufwand stabile, phasenstarre Impulszüge. Ein Ausschlusskriterium für die Verwendung dieser Technologie zur Untersuchung der Dynamik sättigbarer Absorber stellen jedoch die geringen erreichbaren Feldstärken beziehungsweise niedrigen Zentralfrequenzen der emittierten THz-Impulse dar. Eine weitere Möglichkeit besteht in der Generation von THz-Impulsen aus laserinduzierten Plasmen [Ros07, Kar08, Ho10], die zwar ausgesprochen breitbandige THz-Spektren erzeugt, jedoch erst bei hohen Impulsenergien der NIR-Impulse ausreichende THz-Feldstärken erreicht und deshalb sehr unflexibel auf die Sättigungsschwellen der untersuchten sättigbaren Absorber anzupassen ist.

2.3.1 Nichtlineare Polarisation und optische Gleichrichtung

Eine etablierte Alternative zu den beschriebenen Generationsmechanismen stellen Verfahren auf Basis der nichtlinearen Optik dar. Diese bieten bei Zentralfrequenzen von 1 THz gleichzeitig hohe Spitzenfeldstärken von bis zu 1 MV cm^{-1} , große Bandbreiten bei maximaler Flexibilität in Bezug auf die verwendeten NIR-Laserimpulse und zudem inhärente Phasenstabilität [Xu92, Sel08, Jun10, Fül10, Neg11, Hir11, Ruc12]. Nichtlineare, optische Frequenzmischung ist ein Phänomen, welches auftritt, wenn die Polarisation der Elektronen in einem Festkörper aufgrund der hohen elektrischen Felder des anregenden NIR-Impulses nicht mehr in harmonischer Näherung beschrieben werden kann. Allgemein lässt sich die induzierte Polarisation $P(t)$ als Funktion der Feldstärke entwickeln [Boy19]:

$$P(t) = \epsilon_0 \left[\chi^{(1)} E(t) + \chi^{(2)} E(t)^2 + \chi^{(3)} E(t)^3 + \dots \right] \quad (2.1)$$

Die Koeffizienten $\chi^{(i)}$ werden dabei als nichtlineare Suszeptibilitäten bezeichnet und sind aufgrund der Vektornatur des elektrischen Feldes Tensoren höherer Ordnung.

Terme, die in dritter Ordnung vom elektrischen Feld abhängen, sind für Effekte wie beispielsweise Selbstphasenmodulation, Selbstfokussierung oder die Generation der dritten Harmonischen verantwortlich. Von weitaus größerer Bedeutung für die THz-Generation ist die nichtlineare Polarisationskomponente zweiter Ordnung, wie man schnell erkennt, wenn man ein elektrisches Feld $E(t) = E_1 e^{i\omega_1 t} + E_2 e^{i\omega_2 t} + c.c.$ mit zwei unterschiedlichen Frequenzkomponenten ω_1 und ω_2 mit ihren jeweiligen Amplituden E_1 und E_2 in Gleichung 2.1 einsetzt. Durch den quadratischen Term in $P(t)$ ergeben sich unter anderem Beiträge zur Polarisation, welche proportional zu $\exp(\pm i(\omega_2 - \omega_1))$ oder $\exp(\pm i(\omega_2 + \omega_1))$ sind, also mit der Differenz- bzw. Summenfrequenz aus ω_1 und ω_2 oszillieren. Diese Prozesse werden deshalb auch als Differenz- bzw. Summenfrequenzgeneration bezeichnet.

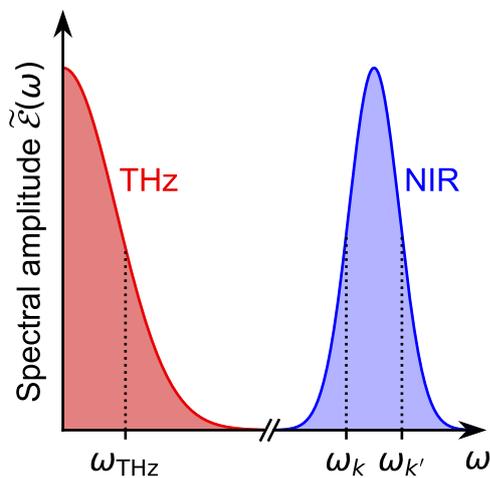


Abbildung 2.4: Optische Gleichrichtung als Differenzfrequenzgeneration. Zwei Frequenzkomponenten ω_k und $\omega_{k'}$ im Spektrum des NIR-Laserimpulses (blau) erzeugen mittels Differenzfrequenzgeneration nichtlineare Polarisationskomponenten bei $\omega_{\text{THz}} = \omega_{k'} - \omega_k$. Über das gesamte NIR-Spektrum integriert entsteht eine nichtlineare Polarisation im THz-Bereich (rot).

Betrachtet man das breite Frequenzspektrum eines ultrakurzen NIR-Impulses (siehe Abb. 2.4), so sind darin eine Vielzahl von Frequenzen ω_k enthalten, welche miteinander wechselwirken können. Dabei liegen die Differenzfrequenzen, je nach Bandbreite des Impulses, im Bereich weniger THz. Differenzfrequenzgeneration dieser Art wird häufig auch als optische Gleichrichtung bezeichnet, um sie von Verfahren zur Generation von Multi-THz-Impulsen (typischerweise 10 THz bis 100 THz) zu unterscheiden, welche sich der Differenzfrequenzgeneration zwischen zwei verschiedenen NIR-Impulsen bedienen. Dies soll auch im weiteren Verlauf dieser Arbeit so gehandhabt werden. Neben der Generation von Frequenzen im Bereich zwischen 0,1 THz und 3 THz bietet die optische Gleichrichtung zudem den herausragenden Vorteil, dass die generierten Impulse ohne weitere Maßnahmen intrinsisch phasenstarr sind. Diese Eigenschaft

ergibt sich als direkte Konsequenz der Mischung von Frequenzkomponenten innerhalb des gleichen NIR-Impulses. Im NIR-Spektrum trägt jede Frequenzkomponente ω_k die gleiche Fluktuation der Träger-Einhüllenden-Phase $\Delta\Phi_{\text{CEP}}$, entsprechend einem oszillierenden Feld $E_k(t) = E_k \exp(-i(\omega_k t + \Delta\Phi_{\text{CEP}})) + c.c.$ Für die spektrale Komponente mit Frequenz $\omega_{\text{THz}} = \omega_{k'} - \omega_k$ im Spektrum der nichtlinearen Polarisation P_{NL}^- ergibt sich durch die Differenzfrequenzgeneration:

$$P_{\text{NL}}^-(t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} E_k^* E_{k'} e^{-i(\omega_{k'} - \omega_k)t + i(\Delta\Phi_{\text{CEP}} - \Delta\Phi_{\text{CEP}})} = \epsilon_0 \chi^{(2)} E_k^* E_{k'} e^{-i\omega_{\text{THz}}t} \quad (2.2)$$

Fluktuationen der CEP, $\Delta\Phi_{\text{CEP}}$, von einem Impuls zum nächsten, spielen für die CEP des erzeugten THz-Transienten folglich keine Rolle, da sie im Prozess der optischen Gleichrichtung identisch verschwinden. Es sei hier angemerkt, dass bei der Differenzfrequenzgeneration zwischen zwei verschiedenen Impulsen im Allgemeinen ein erheblich größerer Aufwand nötig ist, um phasenstarre Wellenformen zu erzeugen, da sichergestellt sein muss, dass die Fluktuationen der CEP der beteiligten Impulse gleich sind [Kno17].

Die optische Gleichrichtung als Prozess der nichtlinearen Optik wurde hier bislang als transiente Polarisation beschrieben, welche durch intensive Lichtfelder in einem nichtlinearen Medium angeregt wird. Grundsätzlich emittiert diese zeitabhängige Polarisation gemäß den Maxwellgleichungen eine elektromagnetische Welle, die mit der gleichen Frequenz oszilliert wie die Polarisation. Neben der Energieerhaltung $\omega_{\text{THz}} = \omega_2 - \omega_1$ muss hierfür jedoch zusätzlich auch der Wellenvektor $k = n\omega/c$ mit der Lichtgeschwindigkeit c und dem Brechungsindex des Mediums n erhalten bleiben [Boy19]:

$$k_{\text{THz}} = k_2 - k_1. \quad (2.3)$$

Eine Taylorentwicklung dieses Ausdrucks um die Zentralfrequenz ω_{NIR} des NIR-Lichts bis zur ersten Ordnung führt zu der sogenannten Phasenanpassungsbedingung [Bon95]:

$$\frac{k_{\text{THz}}}{\omega_{\text{THz}}} = \left(\frac{\partial k}{\partial \omega} \right)_{\text{NIR}} \Leftrightarrow v_{\text{THz}}^{\text{phase}} = v_{\text{NIR}}^{\text{gr}} \quad (2.4)$$

Die Phasengeschwindigkeit $v_{\text{THz}}^{\text{phase}}$ der neu erzeugte THz-Welle muss also mit der Gruppengeschwindigkeit $v_{\text{NIR}}^{\text{gr}}$ des NIR-Lichtimpulses übereinstimmen. Im Allgemeinen unterscheiden sich jedoch diese beiden Geschwindigkeiten aufgrund der Dispersion des Brechungsindex $n(\omega)$, sodass entlang der Propagationsrichtung neu erzeugte Elementarwellen eine Phasendifferenz zu zuvor abgestrahlten Wellen aufweisen. Diese Phasenverschiebung führt im Laufe der Kristalldicke zu destruktiver Interferenz, was eine effiziente Frequenzkonversion unmöglich macht.

Bedingung 2.4 lässt sich in kollinear Geometrie nur in wenigen, geeigneten Kristallen erfüllen, in denen zufälligerweise die passende Dispersion vorliegt. Für hinreichend dünne Kristalle von wenigen 100 μm Dicke bleibt die Phasendifferenz dann klein genug, um destruktive Interferenz über einen weiten Bereich von THz-Frequenzen zu minimieren. Man spricht dann von sogenannter Quasi-Phasen Anpassung. Dies schränkt jedoch nicht nur die mögliche Kristalldicke und damit die Konversionseffizienz ein, sondern reduziert die Auswahl möglicher Kristalle zusätzlich.

Eine nicht-kollineare Geometrie, wie sie in Abschnitt 2.3.3 vorgestellt wird, bietet darüber hinaus eine weitere Möglichkeit, trotz großer Unterschiede von $v_{\text{THz}}^{\text{phase}}$ und $v_{\text{NIR}}^{\text{gr}}$ Phasen Anpassung zu erreichen. Dies hat den entscheidenden Vorteil, dass weitaus dickere Kristalle verwendet werden können und so die Generationseffizienz nicht durch die Kristalldicke begrenzt wird.

2.3.2 Nichtlineare Kristalle

Die Generation phasenstarrer THz-Impulse mittels optischer Gleichrichtung setzt voraus, dass der Tensor $\chi^{(2)}$ in Gl. 2.1 von Null verschieden ist, was bisher stillschweigend angenommen wurde. Diese Bedingung ist jedoch im Allgemeinen nicht erfüllt, da beispielsweise inversionssymmetrische Kristalle aus Symmetriegründen keine quadratischen Nichtlinearitäten zulassen. Die Auswahl eines adäquaten, nichtlinearen Kristalls ist also eine Grundvoraussetzung für die erfolgreiche THz-Generation mittels nichtlinearer Optik. Dabei spielt nicht nur der nichtlineare Koeffizient d_{eff} eine wichtige Rolle, der mit dem entsprechenden Eintrag r_{eff} des Tensors $\chi^{(2)}$ über $d_{\text{eff}} = -\frac{n^4 r_{\text{eff}}}{4}$ verknüpft ist und ein Maß für die Stärke der Nichtlinearität darstellt [Heb04]. Auch die Zerstörschwelle und der Absorptionskoeffizient für die erzeugte THz-Strahlung haben großes Gewicht bei der Auswahl des geeigneten Kristalls.

Galliumarsenid (GaAs) weist mit $d_{\text{eff}} = 65,6 \text{ pm V}^{-1}$ eine vergleichsweise hohe optische Nichtlinearität und einen außerordentlich geringen Absorptionskoeffizient von $\alpha_{\text{THz}} = 0,5 \text{ cm}^{-1}$ bei 1 THz auf. Die Bandlücke dieses Halbleiters liegt mit 1,4 eV nahe an der Photonenenergie des verwendeten Lasersystems, was Zweiphotonenabsorption begünstigt und damit die Zerstörschwelle senkt. Bei langwelligeren Pumpimpulsen hingegen bietet GaAs aufgrund der geringen Absorption Vorteile [Bak11, Bla14].

Zinktellurid (ZnTe) wurde bereits erfolgreich zur Generation hochintensiver THz-Impulse verwendet [Bla07], wobei Kristalle mit mehreren Zentimetern Kantenlänge zur Anwendung kamen. Aufgrund der ähnlichen Werte von Gruppenbrechungsindex bei 800 nm ($n_{\text{gr}} = 3,31$) und Brechungsindex bei 1 THz ($n_{\text{THz}} = 3,17$) eignet sich dieser Kristall sehr gut für Ti:Saphir-basierte Lasersysteme und wird dort häufig als nichtlinearer Kristall zur elektro-optischen Detektion verwendet. Die relativ niedrige Frequenz eines transversal optischen (TO) Phonons bei 5,3 THz in ZnTe schränkt dessen Verwendbarkeit auf THz-Frequenzen unterhalb von 3 THz ein. Aufgrund der Wellenlänge des in dieser Arbeit verwendeten Lasersystems von 1025 nm kommt ZnTe hier trotz des hohen nichtlinearen Koeffizienten von $d_{\text{eff}} = 68,5 \text{ pm V}^{-1}$ [Lei99] nicht zum Einsatz, da eine Quasi-Phasenanpassung nur für wenige 10 μm dicke Kristalle möglich wäre.

Ähnlich wie ZnTe wurde auch Galliumphosphid (GaP) schon zur Generation von THz-Impulsen verwendet [Din04, Cha06] und bietet trotz der geringeren optischen Nichtlinearität von $d_{\text{eff}} = 24,8 \text{ pm V}^{-1}$ [Nel68] einige Vorteile. Das TO-Phonon liegt mit 11 THz sehr hoch und verursacht damit im Bereich niedriger THz-Frequenzen kaum Absorption ($\alpha_{\text{THz}} = 0,5 \text{ cm}^{-1}$). Zudem liegen der Gruppenbrechungsindex bei 1025 nm ($n_{\text{gr}} = 3,33$) und der Brechungsindex bei 1 THz ($n_{\text{THz}} = 3,34$) sehr nahe beisammen [Pal03], was eine Quasi-Phasenanpassung auch bei relativ dicken ($\sim 1 \text{ mm}$) Kristallen ermöglicht (siehe Abschnitt 2.1). Damit eignet sich GaP außerordentlich gut als nichtlineares Medium zur elektro-optischen Detektion [Wu97a], bei der die geringe Komplexität einer kollinearen Geometrie entscheidende Vorteile bietet.

Lithiumniobat (LiNbO_3) besticht durch seinen außerordentlich hohen nichtlinearen Koeffizienten von $d_{\text{eff}} = 168 \text{ pm V}^{-1}$ [Heb04] sowie eine Zerstörschwelle, die im Bereich mehrerer 100 GW cm^{-2} [Bac17] liegt, was beides die effiziente Generation hochintensiver THz-Impulse begünstigt. LiNbO_3 zeigt einen starken photorefraktiven Effekt, der durch Umverteilung erzeugter Ladungsträger zu einer lokalen Änderung des Brechungsindex führt, wenn der Kristall mit intensivem Laserlicht

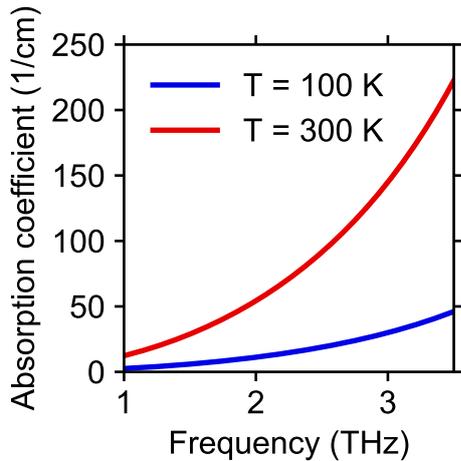


Abbildung 2.5: Temperaturabhängigkeit des Absorptionskoeffizienten von Lithiumniobat. Der Absorptionskoeffizient von Lithiumniobat als Funktion der Frequenz bei Raumtemperatur (300 K, rot) sowie bei kryogener Temperatur (100 K, blau). Parameter aus [Pál05].

bestrahlt wird. Dieser für die optische Gleichrichtung unerwünschte Effekt kann jedoch durch eine Dotierung mit etwa 1% MgO stark verringert werden. Ein wesentlicher Nachteil von LiNbO_3 gegenüber den zuvor angesprochenen nichtlinearen Kristallen ist die starke Absorption ($\alpha_{\text{THz}} = 16 \text{ cm}^{-1}$) der erzeugten THz-Strahlung, die von einem TO-Phonon bei 7,44 THz verursacht wird [Heb04]. Die Breite dieser Phononresonanz ist jedoch stark von der Temperatur abhängig, sodass sich die Absorption im relevanten Frequenzbereich (d.h. 0-3 THz) durch Kühlung des Kristalls auf kryogene Temperaturen stark reduzieren lässt. Abb. 2.5 zeigt die mittels eines Lorentzoszillator-Modells und Parametern aus Referenz [Pál05] berechneten Absorptionskoeffizienten bei Temperaturen von 100 K und 300 K. Die Kühlung mit flüssigem Stickstoff lässt also eine etwa fünffach niedrigere Absorption erwarten, was insbesondere bei Frequenzen oberhalb von 1 THz einen erheblichen Gewinn an Generationseffizienz verspricht. Ein wesentliches Problem, welches lange Zeit den Einsatz von LiNbO_3 zur THz-Generation verhinderte, ist die große Diskrepanz zwischen dem Gruppenbrechungsindex im Nahinfraroten ($n_{\text{gr}} = 2,34$ bei 1025 nm) [Gay08] sowie dem Brechungsindex im THz-Bereich ($n_{\text{THz}} = 5,2$ bei 1 THz) [Heb04]. Wie im nächsten Abschnitt gezeigt wird, kann dieses Problem jedoch sehr elegant mittels einer nicht-kollinearen Geometrie umgangen werden.

2.3.3 Phasenanpassung durch verkippte Impulsfronten

Um Kristalle mit hoher optischer Nichtlinearität trotz großer Unterschiede von THz-Phasen- und NIR-Gruppengeschwindigkeit nutzen zu können, wurde von *Hebling et al.* eine Methode zur Phasenanpassung entwickelt, die sich verkippte Impulsfronten [Heb02, Heb04, Yeh07, Heb08, Fül10, Bak11, Hir11] des anregenden Laserimpulses zu Nutze macht. Die Phasenanpassung mittels verkippter Impulsfronten erlaubt eine hocheffiziente THz-Generation in nicht-kollinearere Geometrie, wobei die Dispersion lediglich Einfluss auf geometrische Parameter nimmt und keine Bedingung an die verwendete Laserwellenlänge stellt.

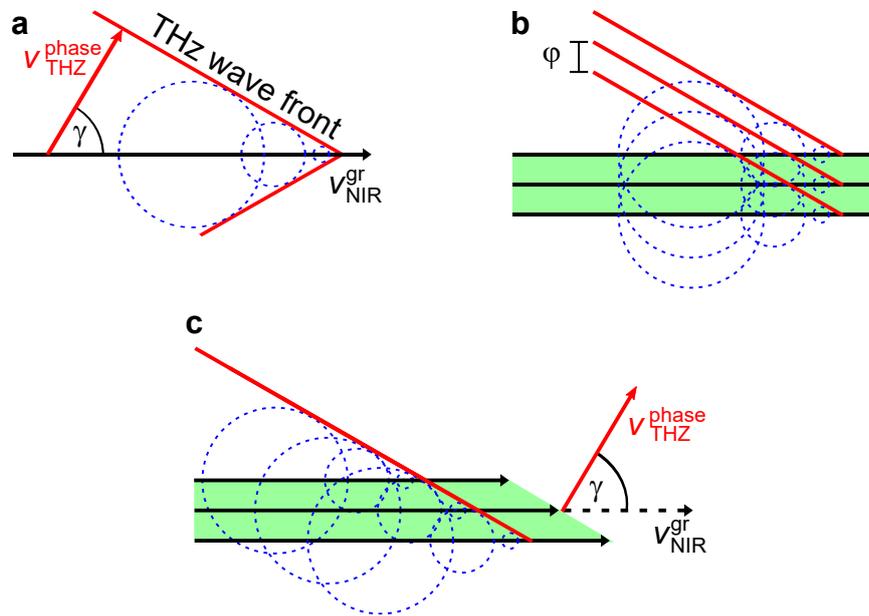


Abbildung 2.6: Phasenanpassung durch Verkipfung der Impulsfronten. **a**, Durchläuft ein scharf fokussierter Laserimpuls ein nichtlineares Medium, so bewegt sich auch die erzeugte nichtlineare Polarisation mit seiner Gruppengeschwindigkeit $v_{\text{NIR}}^{\text{gr}}$ fort. Ist diese größer als die Phasengeschwindigkeit $v_{\text{THZ}}^{\text{phase}}$ der emittierten THz-Strahlung, so bilden die abgestrahlten Elementarwellen (blaue Kreise) Wellenfronten in Form eines Kegels (rote Phasenfronten). **b**, Ist der Durchmesser der Lasermode (grün) vergleichbar mit der Wellenlänge der emittierten Strahlung, so entsteht eine Phasendifferenz φ zwischen den einzelnen Wellenfronten, die zu destruktiver Interferenz der abgestrahlten Wellen führt. **c**, Verkippt man die Impulsfronten des NIR-Impulses jedoch um einen Winkel γ , sodass $v_{\text{THZ}}^{\text{phase}} = v_{\text{NIR}}^{\text{gr}} \cos(\gamma)$, wird die Phasendifferenz zwischen den Wellenfronten kompensiert und es kommt zu konstruktiver Interferenz zwischen den erzeugten Elementarwellen.

Abbildung 2.6a zeigt die grundsätzliche Problemstellung: Propagiert ein scharf fokussierter Laserimpuls mit der Gruppengeschwindigkeit $v_{\text{NIR}}^{\text{gr}}$ durch das nichtlineare Medium, so werden entlang des Weges Huygensche Elementarwellen von der nichtlinearen Polarisation abgestrahlt, welche sich mit ihrer Phasengeschwindigkeit $v_{\text{THz}}^{\text{phase}}$ im Kristall ausbreiten. Da $v_{\text{THz}}^{\text{phase}}$ deutlich kleiner ist als $v_{\text{NIR}}^{\text{gr}}$, entstehen Wellenfronten in Form eines Kegels, der in Anlehnung an die Cherenkov-Strahlung hochenergetischer, geladener Teilchen als Cherenkov-Kegel bezeichnet wird. Der Winkel γ zwischen den Ausbreitungsrichtungen der THz-Wellenfront und des NIR-Impulses lässt sich durch die Ausbreitungsgeschwindigkeiten der beteiligten Wellen ausdrücken als

$$\cos(\gamma) = \frac{v_{\text{THz}}^{\text{phase}}}{v_{\text{NIR}}^{\text{gr}}} \quad (2.5)$$

Es gibt bereits Publikationen, die effiziente und breitbandige THz-Generation auf Basis der Cherenkov-Geometrie zeigen [Bod08, Bod09, Bak10, Bod12]. Die nötige, starke Fokussierung der Lasermode begrenzt jedoch die maximal mögliche Impulsenergie auf die Zerstörschwelle des Kristalls, sodass ein Generationsverfahren auf Basis der Cherenkov-Emission auf geringe NIR-Impulsenergien beschränkt ist.

Verwendet man höhere Impulsenergien der NIR-Impulse und verbreitert dazu die Lasermode wie in Abb. 2.6b gezeigt, so weisen die zu gleichen Zeitpunkten an verschiedenen Stellen der Impulsfront generierten THz-Wellen eine Phasendifferenz zueinander auf, wie an den schematisch (rot) eingezeichneten Maxima der THz-Phasenfronten zu erkennen ist. Es bildet sich also nicht ein einzelner Cherenkov-Kegel, sondern es kommt ab einer Breite der Lasermode, die die halbe THz-Wellenlänge übersteigt, zu destruktiver Interferenz. Die einzelnen Wellenfronten können jedoch in Phase gebracht werden, indem die Impulsfront der NIR-Mode um den Winkel γ verkippt wird, wie in Abb. 2.6c gezeigt ist. Die zeitliche Verzögerung der einzelnen Punkte auf der Impulsfront aufgrund der Verkipfung gleicht gerade die geringere Phasengeschwindigkeit der THz-Wellenfronten aus, sodass diese konstruktiv interferieren können und eine effiziente Abstrahlung der erzeugten nichtlinearen Polarisation ins Fernfeld möglich wird. Vergleicht man Gl. 2.5 mit Gl. 2.4 so erkennt man, dass sich die beiden Ausdrücke lediglich um den Faktor $\cos(\gamma)$ unterscheiden. Durch die Verkipfung der Impulsfronten kann also in nicht-kollinearer Geometrie Phasen Anpassung erreicht werden, da nur mehr die Projektion von $v_{\text{NIR}}^{\text{gr}}$ auf $v_{\text{THz}}^{\text{phase}}$ mit der THz-Phasengeschwindigkeit übereinstimmen muss, was leicht durch Einstellen

des Winkels γ zu bewerkstelligen ist. Damit entfällt auch die Einschränkung auf bestimmte Wellenlängenbereiche, wie es beispielsweise bei GaP der Fall ist, da die passende Wahl des Verkippungswinkels die Dispersion des nichtlinearen Kristalls ausgleicht.

Diese Methode zur Phasenanpassung erlaubt es, trotz des großen Unterschieds zwischen $v_{\text{NIR}}^{\text{gr}}$ und $v_{\text{THz}}^{\text{phase}}$, das Material LiNbO_3 als nichtlineares Medium zu verwenden und dessen hohe, optische Nichtlinearität auszunutzen. Zudem kann die Breite der Lasermode flexibel an die verfügbare Impulsenergie der NIR-Laserimpulse angepasst werden, ohne dabei den Kristall zu zerstören. Im Gegensatz zur Emission in Cherenkov-Geometrie erhält man durch eine passend gewählte Form der Lasermode eine THz-Emission, deren transversales Profil näherungsweise dem einer Gauß-Kurve entspricht. Dies erlaubt eine nahezu beugungsbegrenzte Fokussierung der THz-Impulse für nachfolgende Experimente.

2.3.4 Verkippung der Impulsfronten durch Beugung am Reflexionsgitter

Die Phasenanpassung mittels verkippter Impulsfronten bietet wesentliche Vorteile bei der Generation ultrakurzer THz-Impulse durch optische Gleichrichtung in Medien mit hoher optischer Nichtlinearität. Allerdings erfordert sie auch eine feine Anpassung des Verkippungswinkels an den nichtlinearen Kristall sowie die verwendete NIR-Wellenlänge. Eine experimentell leicht zu realisierende Methode zur Verkippung der Impulsfront besteht in der Beugung an einem Reflexionsgitter, wie in Abb. 2.7 dargestellt ist [Fül10]. Ein NIR-Laserimpuls mit Wellenvektor \vec{k} trifft unter dem Winkel Θ_i auf ein optisches Gitter mit einer Gitterkonstanten g . Das Licht wird dabei unter dem Winkel Θ_d gebeugt, wobei verschiedene Wellenlängen unterschiedlich starke Beugung erfahren (symbolisiert durch rote und blaue Strahlengänge). Die Beugung führt für zwei exemplarisch herausgegriffene Strahlen mit transversalem Abstand b_0 zu unterschiedlich langen Wegen vor und nach der Beugung, die mit $d_1 = B \sin(\Theta_i)$ und $d_2 = B \sin(\Theta_d)$ bezeichnet sind. Der gesamte Gangunterschied $\Delta x = d_2 - d_1$ zwischen den beiden Strahlen führt zu einer Verkippung der Impulsfront um den Winkel α relativ zur Propagationsrichtung, welcher mit dem Modendurchmesser $b_1 = B \cos(\Theta_d)$ nach der Beugung durch $\tan(\alpha) = \frac{\Delta x}{b_1}$ ausgedrückt werden kann.

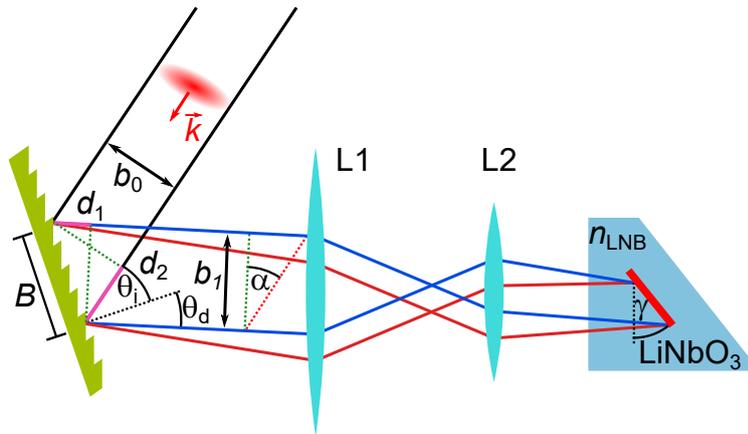


Abbildung 2.7: Verkippung der Impulsfronten durch Beugung an einem Reflexionsgitter. Ein ultrakurzer NIR-Laserimpuls mit Wellenvektor \vec{k} und einem Modendurchmesser b_0 trifft unter dem Einfallswinkel Θ_i auf ein Reflexionsgitter (grün), wo er unter einem Winkel Θ_d gebeugt wird. Die Beugung ist spektral dispersiv, symbolisiert durch rote und blaue Strahlengänge. Zwischen Punkten mit Abstand b_0 auf der Impulsfront tritt ein Gangunterschied von $|\Delta x| = d_2 - d_1$ auf, angedeutet durch die violetten Teilwege d_1 und d_2 . Dieser führt zu einer Verkippung der Impulsfront um den Winkel α . Mittels zweier Linsen L1 und L2 wird das Gitter in den Lithiumniobat-Kristall (LiNbO_3) abgebildet, wobei sich unter Berücksichtigung des Brechungsindex n_{LNB} von LiNbO_3 der Verkippungswinkel γ im Kristall ergibt. Grüne Strichlinien stellen Lote auf die jeweiligen Strahlen dar und dienen der Orientierung. (Nach [Fül10])

Mithilfe dieser Abhängigkeiten lässt sich der Verkippungswinkel α nach dem Gitter als

$$\tan(\alpha) = \frac{\sin(\Theta_d) - \sin(\Theta_i)}{\cos(\Theta_d)} \quad (2.6)$$

alleine durch Einfalls- und Beugungswinkel ausdrücken.

Die Gittergleichung $\lambda = g(\sin(\Theta_d) - \sin(\Theta_i))$ verknüpft schließlich α für die erste Beugungsordnung mit der Gitterkonstanten g und der Wellenlänge λ :

$$\tan(\alpha) = \frac{\lambda}{g \cos(\Theta_d)} \quad (2.7)$$

Die Beugung am Gitter führt jedoch nicht nur zu einer Verkippung der Impulsfront, sondern auch zu einer Winkeldispersion. Diese macht eine effiziente optische Gleich-

richtung unmöglich, da die einzelnen Frequenzkomponenten des Impulses nicht mehr gleichzeitig an der gleichen Stelle im Kristall wechselwirken. Dies kann jedoch durch die Verwendung eines Linsenteleskops kompensiert werden, wie in Abb. 2.7 gezeigt ist. Die erste Linse kollimiert zunächst die spektral aufgespaltenen Wellenlängen, welche dann von der zweiten Linse in den Kristall fokussiert werden, sodass im Kristall die Impulsdauer des ursprünglichen Impulses wiederhergestellt ist. Mit dieser Abbildung verändert sich jedoch unvermeidlich der Verkippungswinkel des Impulses, da durch das Verhältnis der Brennweiten der Linsen $\beta = f_2/f_1$ der Modendurchmesser b_1 verringert wird. Dem wirkt die Verringerung der Gruppengeschwindigkeit des Lichts durch den Gruppenbrechungsindex $n_{\text{LNB}}^{\text{gr}}$ des LiNbO₃-Kristalls entgegen, welche den Gangunterschied Δx um den Faktor $\frac{1}{n_{\text{LNB}}^{\text{gr}}}$ verringert. Insgesamt ergibt sich somit ein Verkippungswinkel γ im Kristall von

$$\tan(\gamma) = \frac{\lambda}{gn_{\text{LNB}}^{\text{gr}}\beta \cos(\Theta_{\text{d}})}. \quad (2.8)$$

Die Bedingung einer minimalen Impulsdauer im Kristall ist jedoch nicht für beliebige Abbildungsverhältnisse β des Linsenteleskops gegeben. Dieses muss vielmehr so ausgelegt werden, dass das Gitter auf die verkippte Impulsfront im Kristall abgebildet wird, der Verkippungswinkel Θ des Bildes also mit dem Winkel der verkippten Impulsfront γ übereinstimmt [Hir11]:

$$\tan(\Theta) = n_{\text{LNB}}^{\text{gr}}\beta \tan(\Theta_{\text{d}}) \stackrel{!}{=} \tan(\gamma) \quad (2.9)$$

Die Gleichungen 2.8 und 2.9 erlauben es, die experimentellen Parameter für eine effiziente THz-Generation mittels verkippter Impulsfronten bei bekannten Materialparametern und gegebener Wellenlänge zu bestimmen. Dafür sind Gitterkonstante g und Abbildungsverhältnis β so zu wählen, dass Gl. 2.8 und 2.9 bei gleichem Beugungswinkel Θ_{d} erfüllt sind. Für LiNbO₃ findet man bei einer Wellenlänge von 1025 nm einen Gruppenbrechungsindex von $n_{\text{LNB}}^{\text{gr}} = 2,34$ [Gay08] sowie einen Phasenbrechungsindex bei 1 THz von $n_{\text{THz}}^{\text{phase}} = 5,2$ [Heb04]. Nach den Überlegungen aus Abschnitt 2.3.3 ergibt sich daraus ein Verkippungswinkel im Kristall von $\gamma = 63^\circ$. Die Wahl von g und β bietet nun gewisse Freiheitsgrade, die zur Optimierung genutzt werden können. Es ist prinzipiell wünschenswert, das Gitter mit einer möglichst großen Lasermode auszuleuchten, um die thermische Belastung des Gitters

gering zu halten und Schäden vorzubeugen. Andererseits lässt die Abbildung mithilfe des Teleskops keine beliebig starke Fokussierung im Kristall zu, was die mögliche Spitzenintensität und damit die Generationseffizienz begrenzt. Um dennoch hohe Intensitäten im Kristall zu erzielen, sollte also β klein gewählt werden, um den großen Modendurchmesser auf dem Gitter zu kompensieren. Dies verlangt jedoch nach einer großen Gitterkonstanten g , was die Beugungseffizienz für die erste Beugungsordnung durch das Auftreten zusätzlicher Ordnungen verringert. Für den im Folgenden beschriebenen Aufbau wurde ein Wert von $g^{-1} = 300 \text{ mm}^{-1}$ mit einem Abbildungsfaktor $\beta = 0,25$ als guter Kompromiss zwischen Beugungseffizienz und kleinem Modendurchmesser im Kristall gewählt.

2.4 Aufbau des Messplatzes

Die praktische Umsetzung der Überlegungen in den vorherigen Kapiteln verlangt einen umfangreichen Aufbau, der einerseits die nötigen optischen Komponenten zur Generation und elektro-optischen Detektion hochintensiver THz-Impulse enthalten aber gleichzeitig auch genügend Raum für Experimente bieten muss. Der Messplatz muss zudem passend für die zweidimensionale THz-Spektroskopie entworfen werden, welche die ultraschnelle Spektroskopie sättigbarer Absorber überhaupt erst möglich macht. Daher unterteilt sich das entwickelte und aufgebaute System im Wesentlichen in einen Teil zur Generation der hochintensiven THz-Impulse sowie einen zweiten Teil, welcher die nichtlineare Spektroskopie enthält.

2.4.1 Quelle zur Generation ultrakurzer THz-Wellenformen

Abbildung 2.8 zeigt schematisch die aufgebaute Quelle zur Generation von THz-Impulsen mittels verkippter Impulsfronten. Die 220 fs langen Impulse aus dem Yb:KGW-Laserverstärkersystem (siehe Abschnitt 2.2) werden zunächst an einem Strahlteiler (BS) im Verhältnis 1:9 aufgespalten, wobei der geringere Anteil als Abtastlicht für die elektro-optische Detektion verwendet wird. Der intensivere Anteil wird weiterhin über eine computergesteuerte, mechanische Verzögerungsstrecke (DL1) geführt, welche für die nötige zeitliche Verzögerung zwischen THz-Impulsen und NIR-Abtastimpulsen für die stroboskopische Rekonstruktion der THz-Wellenform sorgt (siehe Abschnitt 2.1).

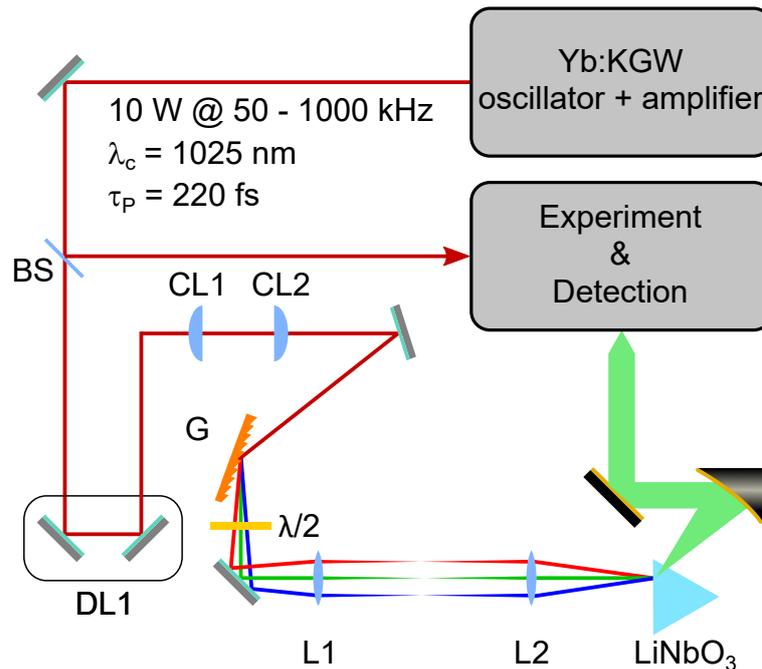


Abbildung 2.8: Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus zur THz-Generation mittels verkippeter Impulsfronten. Die 220 fs NIR-Laserimpulse des Yb:KGW Verstärkersystems werden am Strahlteiler (BS) im Verhältnis 1:9 aufgespalten. Der überwiegende (transmittierte) Teil wird über eine mechanische Verzögerungsstrecke (DL1) verzögert, mittels eines Zylinderlinsenteleskops (CL1 und CL2) in vertikaler Richtung aufgeweitet und an einem optischen Gitter (G) gebeugt. Die Verzögerungsplatte ($\lambda/2$) dreht die Polarisation des Lichts um 90° . Die beiden Linsen L1 und L2 bilden ein Linsenteleskop, welches das vom Gitter gebeugte Licht in den Lithiumniobat-Kristall (LiNbO_3) abbildet. Die erzeugten THz-Impulse werden mithilfe eines Parabolspiegels kollimiert. Der an BS reflektierte Anteil des Laserlichts steht für die elektro-optische Detektion zur Verfügung (siehe Abb. 2.9).

Der Durchmesser der Lasermode beträgt 4,7 mm, was eine zu hohe Intensität auf dem Beugungsgitter zur Folge hätte. Deshalb wird die Mode in vertikaler Richtung mit einem Teleskop aus den Zylinderlinsen CL1 und CL2 ($f_1 = 70$ mm, $f_2 = 140$ mm) aufgeweitet. Mit der nun nicht mehr rotationssymmetrischen Mode geht noch eine weitere wichtige Eigenschaft einher: Zusammen mit der Verkippung der Impulsfront im Kristall entsteht wieder eine in etwa runde Impulsfront, was zu einer runden Mode der abgestrahlten THz-Wellenfront führt. Die so aufgeweitete NIR-Mode fällt nun unter dem Einfallswinkel $\Theta_i = -41^\circ$ in p-Polarisation auf das

Beugungsgitter G mit 300 Linien pro Millimeter, von dem sie unter dem Winkel $\Theta_d = 115^\circ$ gebeugt wird. Eine $\lambda/2$ -Wellenplatte dreht die Polarisation des Lichts um 90° , sodass das größte Element des nichtlinearen Tensors von LiNbO_3 genutzt werden kann. Die Linsen L1 und L2 mit Brennweiten von $f_1 = 20 \text{ cm}$ und $f_2 = 5 \text{ cm}$ bilden das Linsenteleskop, welches die verkippten Impulsfronten nach dem Gitter in den LiNbO_3 -Kristall abbildet. Der Kristall befindet sich in einem mit flüssigem Stickstoff gekühlten Kryostaten, welcher für etwa 12 h die Temperatur auf 77 K konstant hält. Die dort mittels optischer Gleichrichtung generierten THz-Impulse werden mit einem Parabolspiegel mit einer Brennweite von 7,5 cm kollimiert und stehen für die Experimente zur Verfügung.

2.4.2 Messplatz für zweidimensionale THz-Spektroskopie

Die feldaufgelöste 2D-THz-Spektroskopie basiert, wie eingangs bereits kurz dargestellt, auf zwei phasenstarrten THz-Impulsen, welche mit variabler, relativer Zeitverzögerung die Probe anregen und abtasten. Dieses Prinzip wurde im hier beschriebenen Messplatz mithilfe eines Michelson-Interferometers realisiert, wie es in Abb. 2.9 dargestellt ist. Die mittels optischer Gleichrichtung erzeugten THz-Transienten werden von einem 3 mm dicken, hochisolierenden Silizium-Wafer (Si) in zwei gleich intensive Impulse aufgespalten. Der reflektierte Anteil durchläuft den Arm des Interferometers mit fester Länge, während der Endspiegel des zweiten Arms auf einem ebenfalls computergesteuerten, mechanischen Verzögerungstisch steht, sodass der am Silizium-Strahlteiler transmittierte Anteil eine variable Weglänge durchläuft. Nachdem sie das Interferometer durchlaufen haben, werden die beiden Impulse am Silizium-Strahlteiler wieder überlagert. Beide Arme des Interferometers enthalten ein Lichtzerhackerrad, welches mit fester Frequenz periodisch den THz-Strahlengang unterbricht. Rotieren die Lichtzerhacker C1 und C2 mit festen Phasen zueinander, so können nacheinander Transienten aus jedem einzelnen Arm bzw. beiden Armen gleichzeitig detektiert werden, was eine Grundvoraussetzung der nichtlinearen Spektroskopie darstellt. Um die Phasen, in denen die Lichtzerhacker die THz-Mode nur teilweise durchschneiden, zu minimieren, enthalten beide Arme des Interferometers je zwei Parabolspiegel, welche an der Position der Lichtzerhacker einen Fokus der THz-Mode erzeugen. Die beiden THz-Impulse werden nach dem Interferometer durch einen Parabolspiegel

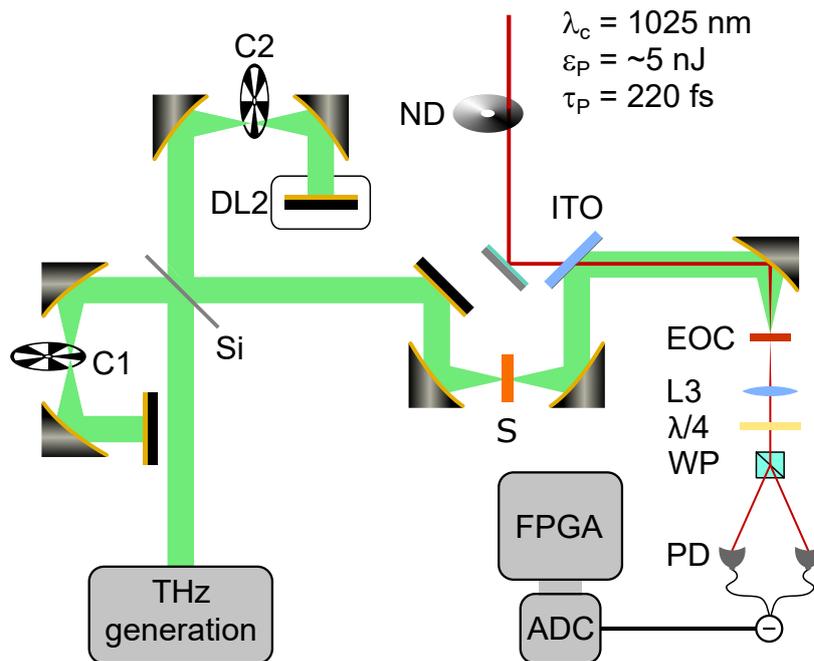


Abbildung 2.9: Schematische Darstellung des Messplatzes zur 2D-THz-Spektroskopie. Ein Silizium-Strahlteiler (Si) spaltet die THz-Impulse in zwei Teile auf, welche in den Armen eines Interferometers mittels Lichtzerhackern (C1 und C2) blockiert werden können. Die an Si transmittierten Impulse durchlaufen einen variablen Weg über die Verzögerungsstrecke DL2. Die beiden Impulse werden dann auf die Probe (S) fokussiert und anschließend an einem mit Indiumzinnoxid beschichteten Fenster (ITO) mit dem vor der THz-Generation abgespaltenen NIR-Impuls überlagert. Ein Filterrad (ND) ermöglicht die Einstellung der Impulsenergie des NIR-Abtastimpulses. Der Polarisationszustand des Abtastlichts wird nach dem elektro-optischen Kristall (EOC) mithilfe einer Kombination von Linse (L3), Wellenplatte ($\lambda/4$), Wollaston-Prisma (WP) und zweier Photodioden (PD) bestimmt. Das Differenzsignal der Photodioden wird in einem Analog-Digital-Wandler (ADC) digitalisiert und anschließend von der Messelektronik (FPGA) verarbeitet.

mit einer Brennweite von $f_{P1} = 7,5$ cm auf die Probe (S) fokussiert und anschließend mit einem weiteren Parabolspiegel ($f_{P2} = 10$ cm) kollimiert.

Für die elektro-optische Detektion müssen die THz-Impulse mit einer wohldefinierten Verzögerungszeit die gleiche Stelle des Detektionskristalls durchlaufen, wie das NIR-Abtastlicht (siehe Abschnitt 2.1). Dies lässt sich präzise erreichen, wenn THz- und NIR-Impuls kollinear geführt und auf den Detektionskristall fokussiert werden. Die Überlagerung der beiden Impulse übernimmt in diesem Fall ein mit Indiumzinnoxid

beschichtetes Glasfenster (ITO). Die ITO-Schicht weist aufgrund der Dotierung eine so niedrige Plasmafrequenz auf, dass THz-Strahlung daran zwar reflektiert wird, sie aber für NIR-Licht transparent ist. Ein weiterer Parabolspiegel fokussiert beide Impulse zusammen auf den elektro-optischen Kristall (EOC, hier Galliumphosphid), in dem der NIR-Impuls aufgrund des elektro-optischen Effekts eine Polarisationsdrehung proportional zur momentanen THz-Feldstärke erfährt (siehe Abschnitt 2.1). Eine Linse (L3) mit einer Brennweite von 7,5 cm kollimiert das NIR-Licht hinter dem Kristall. Eine Anordnung aus $\lambda/4$ -Wellenplatte, Wollaston-Prisma (WP) und balancierten Photodioden (PD) dient schließlich dazu, die vom THz-Feld induzierte Polarisationsdrehung quantitativ als Funktion der von DL1 (Abb. 2.8) eingestellten Verzögerungszeit zu analysieren. Ein Analog-Digitalwandler (ADC) mit 16-bit Auflösung digitalisiert die elektrischen Signale der Photodioden, was die weitere Verarbeitung in einem programmierbaren Logikgatter (FPGA) ermöglicht.

2.4.3 Charakterisierung ultrakurzer THz-Wellenformen

Bei maximaler Transmission des Interferometers und einer Repetitionsrate des NIR-Lasers von 50 kHz beträgt die durchschnittliche THz-Leistung auf der Probe 1 mW, was einer Impulsenergie von 20 nJ entspricht. Die Leistungskonversionseffizienz der optischen Gleichrichtung beträgt somit etwa 0,02%.

Neben der Durchschnittsleistung ist vor allem die Spitzenfeldstärke der THz-Wellenformen ein entscheidender Parameter für die nichtlineare THz-Spektroskopie. Um diese zu quantifizieren, wird zunächst der Durchmesser des THz-Fokus bestimmt, indem eine scharfe Klinge hindurch gefahren und die Leistung dahinter gemessen wird. Abb. 2.10a zeigt das durch die räumliche Ableitung des Verlaufs der Leistung ermittelte Profil der fokussierten THz-Mode, das eine volle Halbwertsbreite von 0,66 mm in horizontaler und 0,74 mm in vertikaler Richtung aufweist. Diese Werte entsprechen dem etwa 1,4-fachen Durchmesser, der bei einer beugungsbegrenzten Fokussierung der 18,5 mm messenden, kollimierten THz-Mode zu erwarten ist.

Mittels elektro-optischer Detektion kann der zeitliche Verlauf des elektrischen Feldes der erzeugten THz-Wellenformen aufgelöst und somit die Feldstärke absolut kalibriert werden. Aus dem räumlichen Integral über das gemessene Modenprofil sowie dem zeitlichen Integral über die gemessene Wellenform ergibt sich ein Wert für die Impulsenergie, welcher durch Vergleich mit der gemessenen Impulsenergie die

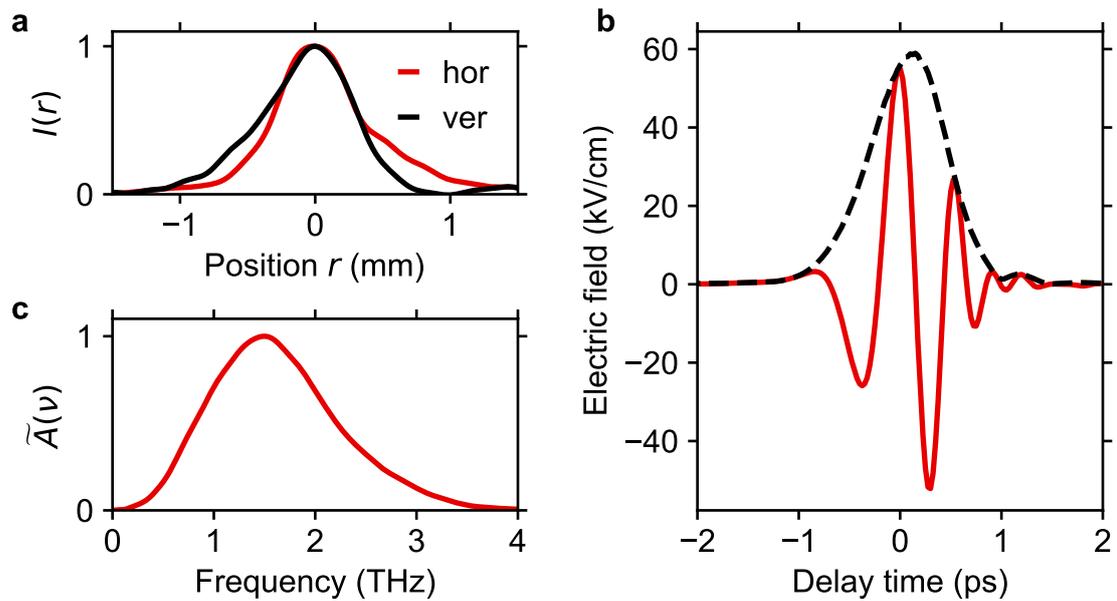


Abbildung 2.10: Wellenform und Spektrum der generierten THz-Impulse. **a**, Horizontales und vertikales Intensitätsprofil $I(r)$ der fokussierten THz-Mode. **b**, Wellenform (rot) sowie Feldeinhüllende (schwarz) der THz-Impulse aus dem LiNbO_3 -Kristall, erzeugt bei einer Temperatur von 77 K. Das elektro-optische Signal des 500 μm dicken Galliumphosphid-Kristalls wurde auf die absolute Feldstärke kalibriert. **c**, Normiertes Amplitudenspektrum $\tilde{A}(\nu)$ der Wellenform aus **b**.

Kalibration der Spitzenfeldstärke erlaubt [Bra00]. Abb. 2.10b zeigt eine gemessene Wellenform mit einer so bestimmten Spitzenfeldstärke von 55 kV cm^{-1} (rot) sowie ihre Feldeinhüllende (schwarz) mit einer vollen Halbwertsdauer von 0,9 ps, was einer Impulsdauer der Intensität von 620 fs entspricht.

Numerische Fourier-Transformation der Wellenform ergibt das in Abb. 2.10c gezeigte Amplitudenspektrum mit einem Maximum bei 1,5 THz und einer vollen Halbwertsbreite von 1,4 THz, was nichtlineare Spektroskopie in Bereiche bis etwa 3 THz mit gutem Signal-Rausch-Verhältnis möglich macht.

2.5 Zweidimensionale THz-Spektroskopie

Für eine optimale Umsetzung maßgeschneiderter sättigbarer Absorber, die in Geschwindigkeit und Bandbreite den Ansprüchen von QCLs entsprechen, ist eine detaillierte Kenntnis über kohärente und inkohärente, nichtlineare Prozesse in der Struktur unerlässlich. Wie eingangs bereits angesprochen, stellt die 2D-Spektroskopie ein universelles Werkzeug dar, welches es erlaubt, die mikroskopische Dynamik in Festkörpern direkt zu beobachten. Das Verfahren wurde in verschiedenen Experimenten sehr erfolgreich eingesetzt, um die Elektronen- und Phonodynamik in Festkörpern [Yan08, Ros11] und Flüssigkeiten [Fec03, Cow05] bis hin zu biologischen Strukturen [Bri05, Kol06] zu untersuchen. Darüber hinaus wurde die Vielseitigkeit der 2D-Spektroskopie mit der Untersuchung der Vielteilchenwechselwirkung exzitonischer Anregungen in Festkörpern unter Beweis gestellt [Li06].

All diesen Demonstrationen der 2D-Spektroskopie ist gemein, dass drei gegeneinander verzögerte Impulse mit Wellenvektoren \vec{k}_1 , \vec{k}_2 und \vec{k}_3 in nicht-kollinearer Geometrie auf die Probe treffen (siehe Abb. 2.11a). In dieser regt der erste Impuls eine kohärente Polarisation an, welche vom zweiten in eine Population oder ein Polarisationsgitter umgewandelt wird. Der dritte Impuls erzeugt schließlich eine nichtlineare Antwort, indem er diese Population abtastet oder am zuvor erzeugten Polarisationsgitter gebeugt wird. Das nichtlineare Signal wird dabei unter einem Wellenvektor $-\vec{k}_1 + \vec{k}_2 + \vec{k}_3$ oder $\vec{k}_1 - \vec{k}_2 + \vec{k}_3$ abgestrahlt, welcher von den Wellenvektoren der anregenden und abtastenden Impulse verschieden ist. Durch räumliche Trennung der Signale lässt sich so das nichtlineare Signal extrahieren.

2.5.1 Zweidimensionale Spektroskopie in kollinear Geometrie

Diese Geometrie lässt sich im niederfrequenten THz-Bereich jedoch schwer implementieren, da aufgrund der großen Modendurchmesser und der schlechten Fokussierbarkeit eine räumliche Unterscheidung verschiedener Signale nur mit großem Platzaufwand möglich ist. Ein alternatives Verfahren [Kue09, Jun12, Woe13, Maa16, Hou19] nutzt kollineare THz-Impulse zur 2D-Spektroskopie, setzt jedoch grundsätzlich eine feldaufgelöste Detektion der durch die Probe transmittierten THz-Wellenformen voraus. Wie in Abb. 2.11b gezeigt ist, treffen zwei phasenstarre, um eine variable Verzögerungszeit τ gegeneinander verzögerte THz-Impulse mit Feldern $\mathcal{E}_A(t)$ und $\mathcal{E}_B(t, \tau)$ kollinear auf die Probe. Der erste Impuls erzeugt eine Polarisation, welche mit der nach der Verzö-

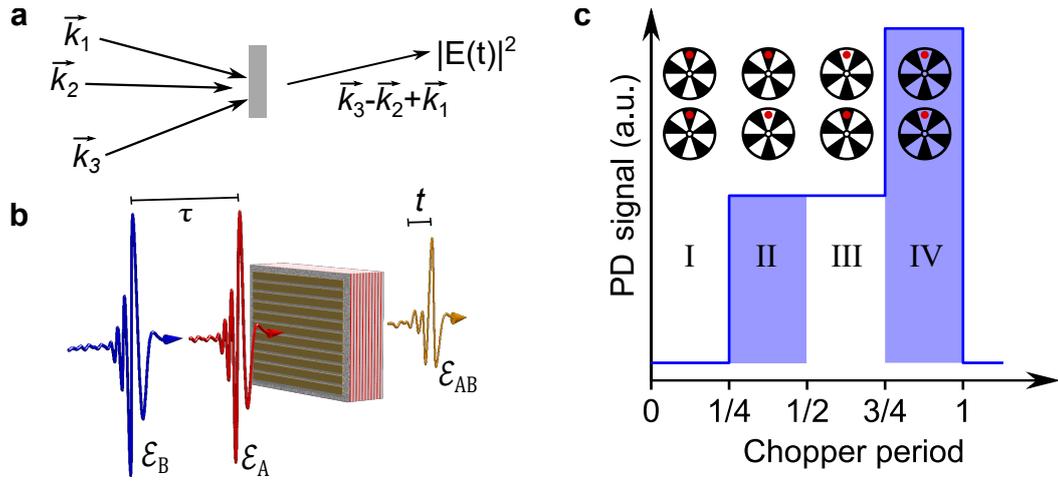


Abbildung 2.11: Prinzip der zweidimensionalen THz-Spektroskopie. **a**, In nicht-kollinearer 2D-Spektroskopie werden drei Impulse mit unterschiedlichen Wellenvektoren \vec{k}_1 , \vec{k}_2 und \vec{k}_3 auf die Probe fokussiert. Das (beispielhaft gezeigte) nichtlineare Signal mit Wellenvektor $\vec{k}_{\text{NL}} = \vec{k}_3 - \vec{k}_2 + \vec{k}_1$ wird durch räumliche Trennung selektiert und anschließend inkohärent detektiert. **b**, 2D-THz-Spektroskopie: Ein THz-Impuls (\mathcal{E}_A , rote Wellenform) regt eine nichtlineare Polarisation in der Probe an, welche von einem identischen, um eine variable Zeit τ verzögerten Impuls (\mathcal{E}_B , blaue Wellenform) abgetastet wird. Das transmittierte elektrische Feld (\mathcal{E}_{AB} , gelbe Wellenform) wird als Funktion der Verzögerungszeit t mittels elektro-optischer Abtastung in Amplitude und Phase gemessen. **c**, Die Abbildung zeigt das Photodiodensignal (blau) der elektro-optischen Detektion zu einer festen Phase des THz-Transienten \mathcal{E}_{AB} für die vier verschiedenen möglichen Kombinationen (I-IV) der Lichtzerhacker. Die Position des THz-Fokus auf dem Lichtzerhacker ist mit einem roten Punkt markiert.

gerungszeit τ vom zweiten Impuls induzierten Polarisation nichtlinear wechselwirkt. Die genaue Abhängigkeit dieser Wechselwirkung von der Phasenbeziehung der beiden Impulse und damit der Verzögerungszeit τ erlaubt im Experiment Rückschlüsse auf den Ursprung der nichtlinearen Prozesse in der untersuchten Struktur.

Die erzeugte Polarisation emittiert elektromagnetische Strahlung, die als elektrisches Feld $\mathcal{E}_{\text{AB}}(t, \tau)$ abgestrahlt und schließlich als Funktion der Verzögerungszeit t gemessen wird. Zeigt das untersuchte System eine Nichtlinearität, so enthält das detektierte Feld $\mathcal{E}_{\text{AB}}(t, \tau)$ neben Beiträgen der anregenden Felder $\mathcal{E}_A(t)$ und $\mathcal{E}_B(t, \tau)$

noch einen zusätzlichen Beitrag $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ aus der nichtlinearen Wechselwirkung der beiden Polarisierungen [Kue09]:

$$\mathcal{E}_{\text{AB}}(t, \tau) = \mathcal{E}_{\text{A}}(t) + \mathcal{E}_{\text{B}}(t, \tau) + \mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau) \quad (2.10)$$

Das als nichtlineare Antwort von der Probe abgestrahlte Feld $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ enthält nichtlineare Wechselwirkungen verschiedenster Ordnung und damit die gewünschte Information über die dynamischen Prozesse in der Probe. Um diese Komponente jedoch aus der gemessenen Wellenform zu extrahieren, müssen die Beiträge $\mathcal{E}_{\text{A}}(t)$ und $\mathcal{E}_{\text{B}}(t, \tau)$ einzeln gemessen werden, was mit dem in Abschnitt 2.4 vorgestellten Messplatz möglich ist.

Die Lichtzerhacker in den Armen des Interferometers, welches die beiden Impulse gegeneinander verzögert, werden mit bekannter Frequenz und Phase betrieben. Abb. 2.11c zeigt die vier möglichen Zustände (I-IV) und die dazugehörigen Positionen der beiden Lichtzerhacker, wobei die Position der THz-Mode mit einem roten Punkt markiert ist. Im Zustand I werden beide Arme des Interferometers blockiert, sodass kein THz-Feld detektiert und lediglich der Rauschhintergrund gemessen wird. In den Phasen II und III ist jeweils einer der beiden Strahlengänge blockiert und die anregenden THz-Felder $\mathcal{E}_{\text{A}}(t)$ und $\mathcal{E}_{\text{B}}(t, \tau)$ können unabhängig voneinander gemessen werden. Im Bereich IV passieren beide Impulse das Interferometer und können einschließlich des Korrelationssignals $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ als $\mathcal{E}_{\text{AB}}(t, \tau)$ gemessen werden. Eine digitale Auswertung der Daten erlaubt es, die einzelnen Phasen I-IV den gemessenen Signalen zuzuordnen und so schließlich die nichtlineare Antwort der Probe $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ zu extrahieren.

2.5.2 Liouvillepfade zur Analyse zweidimensionaler THz-Spektroskopie

Verzögert man die beiden THz-Impulse um die Zeitdifferenz τ gegeneinander, wie in Abb. 2.11b gezeigt ist, und detektiert die resultierende Wellenform als Funktion der Verzögerungszeit t , so erhält man das elektrische Feld in Abhängigkeit von den beiden unabhängigen Zeitskalen t und τ . Trägt man die gemessenen Wellenformen als Funktion dieser Verzögerungszeiten auf, so entsteht eine zweidimensionale Feldkarte. Diese ist für die Phasen I-IV der Lichtzerhacker in den Abbildungen 2.12a-d farbcodiert als

Funktion der Verzögerungszeit τ und der Verzögerungszeit t der NIR-Abtastimpulse der elektro-optischen Detektion dargestellt.¹ Die von τ unabhängige Wellenform $\mathcal{E}_A(t)$ (Teilbild a, Phase II des Lichtzerhackers) erscheint in zweidimensionaler Auftragung als senkrecht verlaufendes Signal, während die Wellenform $\mathcal{E}_B(t, \tau)$ (Teilbild b, Phase III des Lichtzerhackers) aufgrund der zusätzlichen Abhängigkeit von τ unter einem Winkel von 45° zu $\mathcal{E}_A(t)$ verläuft.

Eine zweidimensionale Fourier-Transformation des Feldes $\mathcal{E}_A(t) + \mathcal{E}_B(t, \tau)$ entlang beider Zeitachsen t und τ ergibt das 2D-Amplitudenspektrum des Feldes als Funktion der zu t und τ korrespondierenden Frequenzen ν_t und ν_τ , wie es das Nebenbild von Abb. 2.12c zeigt. Die Beiträge der einzelnen Impulse A und B sind im Frequenzraum bei den Quasi-Wellenvektoren $\vec{k}_A = (\nu_0, 0)$ und $\vec{k}_B = (\nu_0, -\nu_0)$ lokalisiert, wobei ν_0 hier der Resonanzfrequenz des simulierten Zwei-Niveau-Systems entspricht. Während in der nichtkollinearen 2D-Spektroskopie die Signaturen einzelner Impulse räumlich getrennt werden, können sie in kollinear 2D-THz-Spektroskopie also gemäß ihren Quasi-Wellenvektoren im Fourierraum unterschieden werden.

Können beide Impulse $\mathcal{E}_A(t)$ und $\mathcal{E}_B(t, \tau)$ das Interferometer passieren (Phase IV des Lichtzerhackers), so enthält das von der Probe abgestrahlte Feld $\mathcal{E}_{AB}(t, \tau)$ Beiträge beider Impulse sowie eine gegebenenfalls vorhandene Wechselwirkung der beiden induzierten Polarisierungen, welche als nichtlineare Antwort sichtbar wird. Teilbild c zeigt den Verlauf des elektrischen Feldes $\mathcal{E}_{AB}(t, \tau)$, enthält also sowohl die Felder der Teilbilder a und b, als auch die nichtlineare Antwort $\mathcal{E}_{NL}(t, \tau)$. Diese ergibt sich aus den gemessenen Feldern $\mathcal{E}_A(t)$, $\mathcal{E}_B(t, \tau)$ sowie $\mathcal{E}_{AB}(t, \tau)$ gemäß Gleichung 2.10 und ist in Teilbild d gezeigt.

Aufgrund des vorgestellten Verfahrens ist sichergestellt, dass alle in $\mathcal{E}_{NL}(t, \tau)$ enthaltenen Beiträge auf eine nichtlineare Wechselwirkung der Polarisierungen der beiden Impulse in der Probe zurückzuführen sind, was anhand eines Kausalitätsarguments am Feldverlauf deutlich wird. Für Verzögerungszeiten $\tau > 0$ regt Impuls B die Probe an und Impuls A tastet die vorliegende nichtlineare Polarisation ab, sodass für Verzögerungszeiten $t > 0$ eine nichtlineare Antwort messbar ist. Für Zeiten $\tau < 0$ tauschen Impuls A und B ihre Rollen und die nichtlineare Antwort tritt erst ab einer Verzögerungszeit $t = -\tau$ auf.

¹Die gezeigten Feldkarten wurden mithilfe des in Abschnitt 3.5 näher vorgestellten numerischen Modells für den modellhaften Fall eines Zwei-Niveau-Systems berechnet.

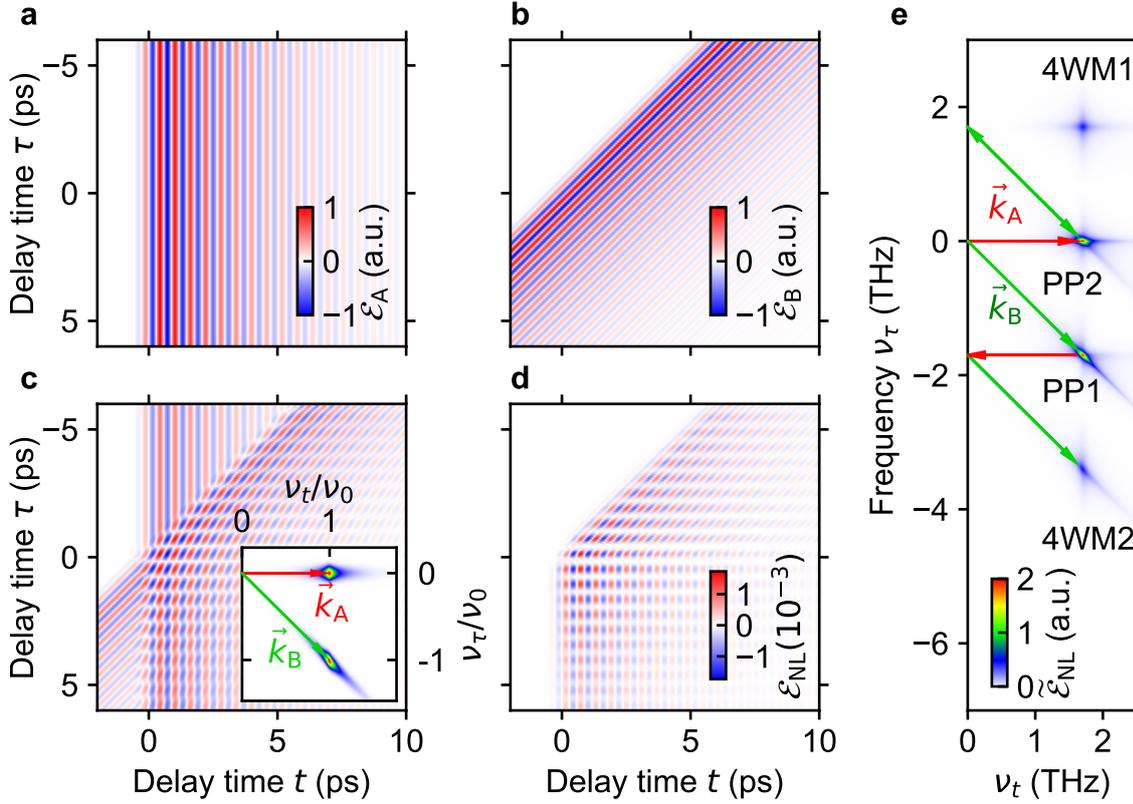


Abbildung 2.12: Liouvillepfad-Analyse der nichtlinearen Licht-Materie-Wechselwirkung. Die Teilbilder zeigen die von einem Zwei-Niveau-System abgestrahlten Felder, simuliert mit dem numerischen Modell aus Abschnitt 3.5. **a**, Das Feld des nicht verzögerten Transienten $\mathcal{E}_A(t)$ erscheint in zweidimensionaler Auftragung als senkrechte Wellenfronten, unabhängig von τ . **b**, Das elektrische Feld $\mathcal{E}_B(t, \tau)$ des verzögerten THz-Impulses ergibt hingegen diagonale Wellenfronten mit einer Verkipfung um 45° . **c**, Das Feld $\mathcal{E}_{AB}(t, \tau)$ enthält die lineare Superposition der beiden Impulse sowie, mit wesentlich geringerer Feldstärke, die abgestrahlte, nichtlineare Polarisation der Probe $\mathcal{E}_{NL}(t, \tau)$. Das Nebenbild zeigt die mittels zweidimensionaler Fourier-Transformation erhaltene Frequenzdarstellung von $\mathcal{E}_A(t) + \mathcal{E}_B(t, \tau)$ als Funktion der zu t und τ korrespondierenden Frequenzen ν_t und ν_τ , normiert auf die Zentralfrequenz ν_0 . \vec{k}_A und \vec{k}_B bezeichnen die zu $\tilde{\mathcal{E}}_A(\nu_t, \nu_\tau)$ und $\tilde{\mathcal{E}}_B(\nu_t, \nu_\tau)$ gehörenden Quasi-Wellenvektoren. **d**, Durch Subtraktion der linearen Beiträge $\mathcal{E}_A(t)$ und $\mathcal{E}_B(t, \tau)$ vom Gesamtsignal $\mathcal{E}_{AB}(t, \tau)$ erhält man die nichtlineare Antwort der Probe $\mathcal{E}_{NL}(t, \tau)$. **e**, Zweidimensionales Amplitudenspektrum $\tilde{\mathcal{E}}_{NL}(\nu_t, \nu_\tau)$, berechnet mittels numerischer Fourier-Transformation der 2D-Feldkarte $\mathcal{E}_{NL}(t, \tau)$. Die Pfeile symbolisieren die Liouvillepfade aus ganzzahligen Linearkombinationen der Quasi-Wellenvektoren \vec{k}_A und \vec{k}_B . Die nichtlineare Antwort des Systems zerfällt damit direkt in Anrege-Abtast-Signale (engl.: Pump-Probe, PP1 und PP2) sowie Vier-Wellen-Mischsignale (4WM1 und 4WM2).

$\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ enthält prinzipiell eine Vielzahl nichtlinearer Wechselwirkungen, welche von verschiedenen Prozessen innerhalb der Probe herrühren [Kue09, Woe13]. Um diese unterscheiden zu können, führt man eine zweidimensionale Fourier-Transformation des Feldes $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ durch. Das resultierende 2D-Amplitudenspektrum $\tilde{\mathcal{E}}_{\text{NL}}(\nu_t, \nu_\tau)$ ist als Funktion der Frequenzen ν_t und ν_τ in Abb. 2.12e dargestellt. Es treten klar getrennte Maxima in der Frequenzdomäne auf, welche entlang der ν_t -Achse bei der Resonanzfrequenz ν_0 und entlang der ν_τ -Achse bei ganzzahligen Vielfachen von ν_0 lokalisiert sind.

Die Position der Signale im Frequenzraum kann direkt mit den Quasi-Wellenvektoren \vec{k}_A und \vec{k}_B in Verbindung gebracht werden, was zu Auswahlregeln für die einzelnen nichtlinearen Wechselwirkungen in der Frequenzdarstellung führt. Diese können durch sogenannte Liouvillepfade verknüpft werden, welche als ganzzahlige Linearkombinationen der Frequenzvektoren \vec{k}_A und \vec{k}_B dargestellt werden. Diese Überlegung wird anschaulich klar, wenn man das Nebenbild in Abb. 2.12c betrachtet: Lineare Beiträge der einzelnen Impulse sind im Frequenzraum bei \vec{k}_A und \vec{k}_B lokalisiert, sodass nichtlineare Wechselwirkungen von mehreren Photonen aus den Impulsen A und B bei ganzzahligen Vielfachen dieser Vektoren zu finden sein müssen. Damit lassen sich die Beiträge der beteiligten elektrischen Felder zum Gesamtsignal eindeutig unterscheiden. Die nichtlineare Wechselwirkung der hier diskutierten Signale muss mindestens von dritter Ordnung sein, da aufgrund der Inversionssymmetrie der später untersuchten Mehrfachquantentrogstrukturen Nichtlinearitäten zweiter Ordnung ausgeschlossen sind.

Der Zusammenhang zwischen unterschiedlichen Wellenvektoren in einer nichtkollinearen Geometrie und den einzelnen Maxima im Frequenzraum kollinearer Anordnung wird deutlich, wenn man die nichtlineare Polarisation dritter Ordnung betrachtet. Dazu werden die elektrischen Felder mit einer langsam veränderlichen Einhüllenden $\mathcal{E}(t, \tau)$ und einer Zentralfrequenz von ν_0 ausgedrückt durch

$$E_A(t) = \mathcal{E}_A(t)e^{2\pi i\nu_0 t} + \text{c.c.} \quad (2.11)$$

$$E_B(t, \tau) = \mathcal{E}_B(t - \tau)e^{2\pi i\nu_0(t-\tau)} + \text{c.c.} \quad (2.12)$$

wobei c.c. das komplex Konjugierte bezeichnet. Die nichtlineare Polarisation dritter Ordnung $P^{(3)}(t, \tau)$ enthält per Konstruktion des nichtlinearen Signals in Gl. 2.10 nur Beiträge, in denen entweder Impuls A zweimal mit der Probe wechselwirkt

und Impuls B nur einmal oder umgekehrt. Dementsprechend lässt sich $P^{(3)}(t, \tau)$ als Produkt der Felder $E_A(t)$ und $E_B(t, \tau)$ ausdrücken als $P_I^{(3)}(t, \tau) = E_A(t)^2 E_B(t, \tau)$ oder $P_{II}^{(3)}(t, \tau) = E_A(t) E_B(t, \tau)^2$. Durch Einsetzen der Felder erhält man im ersten Fall für $P_I^{(3)}(t, \tau)$ den Ausdruck [Kue09]

$$P_I^{(3)}(t, \tau) = \mathcal{E}_A^2 e^{6\pi i \nu_0 t} \mathcal{E}_B e^{-2\pi i \nu_0 \tau} + \mathcal{E}_A^{*2} e^{-6\pi i \nu_0 t} \mathcal{E}_B^* e^{2\pi i \nu_0 \tau} \quad (2.13)$$

$$+ \mathcal{E}_A^2 e^{2\pi i \nu_0 t} \mathcal{E}_B^* e^{2\pi i \nu_0 \tau} + \mathcal{E}_A^{*2} e^{-2\pi i \nu_0 t} \mathcal{E}_B e^{-2\pi i \nu_0 \tau} \quad (2.14)$$

$$+ 2 |\mathcal{E}_A|^2 \mathcal{E}_B e^{2\pi i \nu_0 (t-\tau)} + 2 |\mathcal{E}_A|^2 \mathcal{E}_B^* e^{-2\pi i \nu_0 (t-\tau)}. \quad (2.15)$$

Diese nichtlineare Polarisation enthält drei verschiedene Gruppen von nichtlinearen Wechselwirkungen, welche sich aus je zwei zueinander komplex konjugierten Beiträgen zusammensetzen. Da es sich stets um reelle elektrische Felder handelt, sind die Fourier-Komponenten bei negativen Frequenzen $-\nu_t$ zu denen bei positiven ν_t äquivalent und es reicht aus, den Bereich $\nu_t > 0$ zu betrachten. Die erste Zeile enthält ein kohärentes Signal bei der dritten Harmonischen von ν_0 , das im Frequenzraum bei $(3\nu_0, -\nu_0)$ lokalisiert ist, wie aus den Frequenzen der komplexwertigen Exponentialfunktion hervorgeht. Da es zwei Photonen aus Impuls A enthält, lässt sich der zugehörige Liouvillepfad leicht aus zwei Quasi-Wellenvektoren \vec{k}_A und einem Quasi-Wellenvektor \vec{k}_B zu $\vec{k}_{\text{THG}} = 2\vec{k}_A + \vec{k}_B$ angeben.

Die zweite Zeile enthält ein ebenfalls kohärentes Signal, welches als Vier-Wellen-Mischsignal bezeichnet wird. Dieses ist entsprechend der beteiligten Wellen im Frequenzraum bei (ν_0, ν_0) zu finden und in der Frequenzkarte in Abb. 2.12e mit „4WM1“ bezeichnet. Diese Position lässt sich über den Liouvillepfad $\vec{k}_{4\text{WM1}} = 2\vec{k}_A - \vec{k}_B$ erreichen, wobei verschiedene zeitliche Abfolgen der Wechselwirkungen mit den Impulsen denkbar sind [Kue09].

Beim dritten Beitrag zu $P_I^{(3)}(t, \tau)$ handelt es sich um ein Anrege-Abtast-Signal, welches in der Frequenzdarstellung bei den Koordinaten $(\nu_0, -\nu_0)$ liegt und in Abb. 2.12e mit PP1 bezeichnet ist. Der zugehörige Liouvillepfad lässt sich durch $\vec{k}_{\text{PP1}} = \vec{k}_A - \vec{k}_A + k_B$ ausdrücken, wobei auffällt, dass der Quasi-Wellenvektor \vec{k}_A keinen Beitrag leistet. Dies spiegelt sich auch in dem entsprechenden Beitrag zu $P_I^{(3)}(t, \tau)$ wider, welcher proportional zu $|\mathcal{E}_A|^2$ skaliert und somit von der Phase des anregenden Impulses unabhängig ist. Diese Beobachtung hilft auch, das Auftreten dieses Signals zu verstehen. Das Betragsquadrat des elektrischen Feldes $|\mathcal{E}_A|^2$ kann als die Intensität des anregenden Impulses interpretiert werden, welche direkt eine

Population im untersuchten System anregt. Der nachfolgende Impuls erzeugt eine Polarisation, welche dann entsprechend der vorhandenen Population im System in das Fernfeld abstrahlt. Im Gegensatz zu Vier-Wellen-Mischsignalen, welche die kohärente Polarisation abtasten, bieten Anrege-Abtast-Signale einen direkten Zugang zur Dynamik der Population eines Systems. Die weiteren in Abb. 2.12e dargestellten Signale lassen sich auf gleiche Weise rekonstruieren, wenn man die nichtlineare Polarisation $P_{\text{II}}^{(3)}(t, \tau)$ untersucht, in der die Impulse A und B ihre zeitliche Abfolge vertauschen.

Kohärente THz-Hochfeldkontrolle von Intersubband-Übergängen

Eine Grundvoraussetzung für die Erzeugung ultrakurzer Impulse aus Laserresonatoren besteht darin, den bevorzugt anschwingenden Dauerstrichbetrieb zu unterdrücken, ohne dabei jedoch zu große Verluste im Resonator einzuführen. Eine Verstärkung im Lasermedium darf nur bei konstruktiver Interferenz möglichst vieler Resonatormoden möglich sein, sodass ein Zug kurzer und intensiver Lichtimpulse entsteht. Um den Modus dieser sogenannten Modenkopplung gegenüber dem Dauerstrichbetrieb zu bevorzugen, werden im nahinfraroten Spektralbereich bereits seit längerem sättigbare Absorber eingesetzt [Kel96, Kal98, Kur98, Pas01], welche sich einer inhärenten Eigenschaft nahezu aller optischen Materialien bedienen: Die Absorption elektromagnetischer Strahlung erfolgt nur für geringe Anregungsdichten mit einem konstanten Absorptionskoeffizienten. Bei hohen Intensitäten hingegen wird der absorbierende Übergang gesättigt und die Absorption bleicht aus. Für kurze, intensive Laserimpulse führt dieser nicht-perturbative, nichtlineare Effekt zu einer erhöhten Transmission, sodass sie gegenüber dem Dauerstrichbetrieb geringere Verluste erleiden und entsprechend verstärkt werden. Der sättigbare Absorber macht so den modengekoppelten Betrieb zum bevorzugten Arbeitspunkt des Resonators [Kel96].

Ein weit verbreitetes Materialsystem für diese Anwendung stellen Halbleiter dar [Jun97, Sut99, Kel03, Gra06, Die13], welche einfach herzustellen, günstig und auf die Anforderungen des jeweiligen Lasersystems flexibel anzupassen sind. Der Sättigungsmechanismus beruht dabei auf dem Pauli-Verbot. Durch die endliche Zustandsdichte

im Leitungsband stehen mit zunehmender Anregungsintensität immer weniger freie Zustände zur Verfügung, was zu einer reduzierten Absorptionswahrscheinlichkeit für Photonen und somit zu einer Sättigung der Absorption führt [Oud85, Mal06]. Halbleiter-Heterostrukturen erlauben es zudem, die Bandlücke frei einzustellen und damit den sättigbaren Absorber auf die jeweilige Laserwellenlänge anzupassen. Weitere Arbeiten konnten Impulsdauern von bis zu 114 fs demonstrieren [Lag07], wobei Quantenpunkte als sättigbare Halbleiterstrukturen zum Einsatz kamen [Lag04, Res16].

3.1 Sättigbare Absorption im THz-Bereich

Im Bereich weniger THz ist die Auswahl an möglichen Materialsystemen, welche als sättigbare Absorber in Frage kommen, bislang sehr begrenzt, was eine wesentliche Einschränkung für die Entwicklung passiv modengekoppelter QCLs darstellt. Eine grundlegende Arbeit auf diesem Gebiet [Hof10] verwendet n-dotierte Halbleiter (GaAs, Ge, GaP), welche unter Anregung mit intensiven THz-Wellenformen eine deutlich erhöhte Transmission zeigen. Die Autoren nutzen dabei aus, dass die Elektronen im Leitungsband durch die hohen Feldstärken so stark beschleunigt werden, dass sie sich bereits in Bereichen der Bandstruktur mit geringerer Krümmung aufhalten. Dies reicht sogar so weit, dass die Elektronen bei ausreichend hoher Feldstärke Nebenminima der Bandstruktur bevölkern. Die mit der kleineren Bandkrümmung einhergehende verringerte Beweglichkeit führt zu geringeren dielektrischen Verlusten durch das Elektronenplasma und entsprechend zu einer erhöhten Transmission. Bei Spitzenfeldstärken von bis zu $0,3 \text{ MV cm}^{-1}$ konnte so eine Verdoppelung der Transmission von n-GaAs demonstriert werden. Wenngleich dieser Ansatz vielversprechende Bandbreiten und Modulationstiefen verspricht, so sind die nötigen Feldstärken mit aktuell verfügbaren QCLs kaum erreichbar. Zudem bringt die nötige Dotierung unausweichliche, nicht-sättigbare Verluste mit sich, welche die Verwendung in QCLs erheblich erschweren.

Ein weiterer vielversprechender Ansatz beruht auf der Verwendung supraleitender Metamaterialien [Kei16b]. Hierzu wird in einen supraleitenden Film aus Yttrium-Barium-Kupferoxid (YBCO) eine periodische Anordnung von Resonatoren geätzt, deren Dimension an die gewünschte Resonanzfrequenz angepasst ist. In Kombination mit einem Goldfilm, welcher im Abstand von wenigen μm isoliert von den Resonatoren

angebracht ist, ergibt sich ein perfekter Absorber, der bei seiner Resonanzfrequenz nahezu alle einfallende Strahlung absorbiert. Die Resonanz führt bei ausreichend hohen Feldstärken der anregenden THz-Impulse lokal zu Strömen, die die kritische Stromstärke übersteigen und zu einem Zusammenbrechen der Supraleitung führen [Kur11, Kur12]. Damit geht auch eine starke Dämpfung des Resonators und folglich eine verringerte Absorption einher. Auf diese Weise konnte eine transiente Modulation der Absorption von 43% bei einer Spitzenfeldstärke von 200 kV cm^{-1} demonstriert werden. Auch hier sind die nötigen Sättigungsintensitäten mit QCLs aktuell und in naher Zukunft wohl kaum zu erreichen. Zudem tritt eine deutliche Modulation der Absorption erst bei Temperaturen unter 40 K auf, was eine kryogene Kühlung mit flüssigem Helium zwingend erforderlich macht und somit die praktische Anwendung erschwert.

Graphen ist ein Materialsystem, das in den letzten Jahren große Aufmerksamkeit erlangen konnte und bereits erfolgreich als sättigbarer Absorber in NIR-Lasersystemen eingesetzt wurde [Pop10, Bao11, Zap16]. Eine solche atomar dünne Kohlenstofflage kann auch im THz-Bereich als sättigbarer Absorber eingesetzt werden, wie bereits in zwei Arbeiten gezeigt wurde [Bia15, Bia17]. Dabei führt, ähnlich wie eingangs für Halbleiter im nahinfraroten Spektralbereich diskutiert, das Pauli-Prinzip dazu, dass bei ausreichend hohen Intensitäten keine weiteren Elektronen mehr angeregt werden können [Mar17a]. Die fehlende Bandlücke von Graphen sowie die annähernd lineare Dispersion des Materials erlauben eine Verwendung in einem sehr breiten Spektralbereich, der von THz-Frequenzen bis ins Nahinfrarote reicht. Graphen zeigt bereits bei Intensitäten von 7 W cm^{-2} eine Transmissionsänderung von 80%, was von QCLs leicht erreicht werden kann. Die Implementierung von Graphen in den Resonator eines QCL, welcher in der Regel aus den Endfacetten der Halbleiter-Heterostruktur (also des aktiven Mediums selbst) gebildet wird, stellt sich jedoch als kompliziert dar. Vielmehr wäre ein externer Resonator nötig, was die Komplexität des Systems erheblich erhöht. Zudem bietet Graphen wenig Spielraum zur Einstellung der Modulationstiefe oder Relaxationszeit, was es zu einem relativ unflexiblen Materialsystem macht.

Eine vielversprechende Alternative zu den dargestellten Demonstrationen stellen ISB-Übergänge in Mehrfachquantentrogstrukturen dar. Diese Halbleiter-Heterostrukturen können durch Variation der verwendeten Materialien sowie der geometrischen Parameter leicht an die Frequenz des QCL angepasst werden. Zudem erlauben es die sehr

ähnlichen oder gar gleichen Materialeigenschaften, ISB-basierte Absorber direkt als sättigbaren Endspiegel in den Laserresonator einzubauen. Zwar wurde die Dynamik von ISB-Übergängen und ihre Wechselwirkung mit elektromagnetischer Strahlung unterschiedlichster Intensität und Wellenlänge bereits in mehreren Arbeiten untersucht [Hey96, Eic01, Mül04, Luo04, Die12, Fol15], aber die für eine Verwendung als sättigbarer Absorber essenzielle nichtlineare, kohärente und inkohärente Dynamik ist bislang unverstanden. Daher wird im Rahmen dieser Arbeit mittels nichtlinearer 2D-THz-Spektroskopie die ultraschnelle, kohärente Antwort eines ISB-Übergangs auf die Anregung mit hochintensiven THz-Impulsen auf Subzyklen-Zeitskalen untersucht. Wie in den folgenden Kapiteln dargestellt, zeigen ISB-Übergänge bereits bei Feldstärken von wenigen kV cm^{-1} stark nichtlineares Verhalten, welches bei Feldstärken von mehr als 11 kV cm^{-1} wieder unterdrückt werden kann. Numerische Simulationen, basierend auf einem semiklassischen Modell, unterstützen die Auswertung der experimentellen Resultate und helfen, das Sättigungsverhalten zu verstehen. Die gute Übereinstimmung mit dem theoretischen Modell erlaubt es schließlich, die beobachteten Nichtlinearitäten auf die ultraschnelle, kohärente Kontrolle der Population des ISB-Übergangs zurückzuführen.

3.2 Intersubband-Übergänge in Mehrfachquantentrogstrukturen

Halbleiterbasierte, elektronische Bauteile ebneten den Weg für bahnbrechende Technologien wie beispielsweise hocheffiziente Leuchtdioden [Pim09] oder Transistoren für Computer mit Gigahertz-Taktraten [Kim10]. Eine für diese Technologien grundlegende Entwicklung stellen sogenannte Heterostrukturen dar [Cap87], welche aus einer Kombination verschiedener Halbleiter bestehen und so maßgeschneiderte optische und elektronische Eigenschaften bieten. Der Ursprung dieser reichhaltigen Gestaltungsmöglichkeiten liegt in der Potenziallandschaft, die sich durch die Wahl der Materialkombination und der geometrischen Parameter ergibt. Dieses Prinzip lässt sich am einfachsten anhand des eindimensionalen Potenzialtopfs erklären [Nol14], welcher in Abb. 3.1a gezeigt ist.

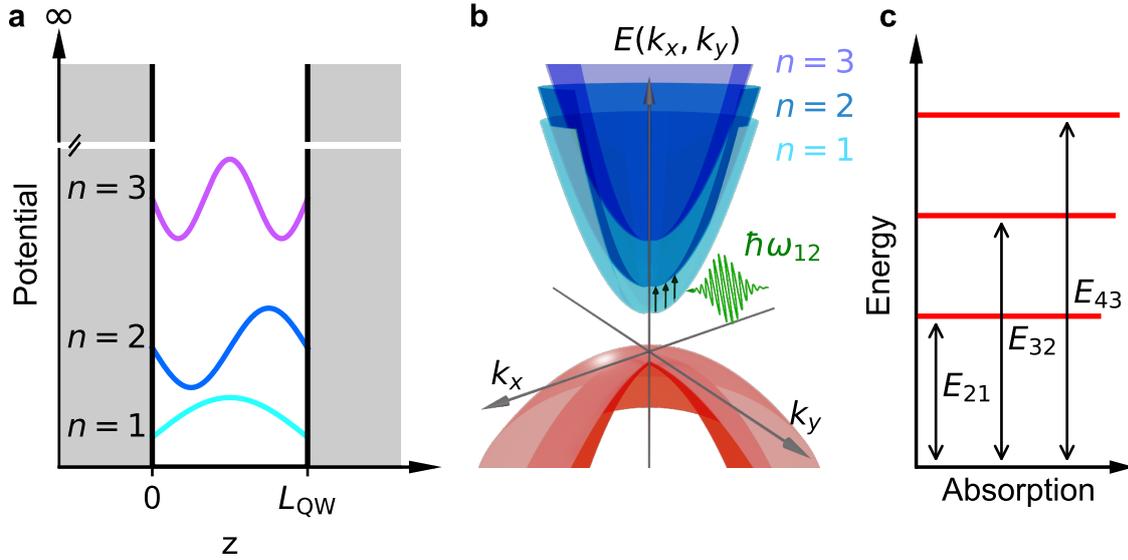


Abbildung 3.1: Energiedispersion der Mehrfachquantentrogstruktur. a, Im Modell des unendlich tiefen Potenzialtopfs nimmt ein Teilchen diskrete Energien an, die sich als Funktion ihrer Hauptquantenzahl n ausdrücken lassen. Die dazugehörigen Ortswellenfunktionen (Blautöne) fallen aufgrund der Randbedingung an den Potenzialwänden auf null ab. b, Die Energiedispersion im unendlich tiefen Potenzialtopf hat als Funktion der Wellenvektoren k_x und k_y die Form von Parabeln ($n = 1, 2, 3$). Optische Übergänge zwischen angrenzenden Niveaus n und m sind möglich, wenn die eingestrahlte Photonenenergie dem Energieabstand $E_{mn} = E_m - E_n = \hbar\omega_{mn}$ entspricht. c, Das Absorptionsspektrum besteht aus deltaförmigen Linien bei diskreten Energien, die den optischen Übergängen zwischen einzelnen Subbändern entsprechen.

Ein Teilchen der Masse m befindet sich in einem Kasten der Breite L_{QW} , welcher in z -Richtung durch unendlich hohe Potenzialwände begrenzt wird. Die Wellenfunktion Ψ des Teilchens erfüllt dann im Inneren des Kastens die eindimensionale, zeitunabhängige Schrödingergleichung

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2\Psi}{dz^2} = E\Psi, \quad (3.1)$$

mit dem reduzierten Planckschen Wirkungsquantum \hbar und der Eigenenergie E .

Die Potenzialwände stellen einen für das Teilchen verbotenen Bereich dar, sodass die Wellenfunktion an den Stellen $z = 0$ und $z = L_{\text{QW}}$ auf null abfallen muss. Unter dieser Randbedingung lassen sich Lösungen der Form

$$\Psi_n(z) = A \sin\left(n\pi \frac{z}{L_{\text{QW}}}\right) \quad (3.2)$$

mit $n = 1, 2, 3, \dots$ finden. Die Normierungskonstante $A = \sqrt{\frac{2}{L_{\text{QW}}}}$ ergibt sich aus der Bedingung $\int |\Psi(z)|^2 dz = 1$. Es existieren also aufgrund des Potenzials nur diskrete Zustände mit Energien E_n , welche durch

$$E_n = \left(\frac{\hbar^2 \pi^2}{2mL_{\text{QW}}^2}\right) n^2 \quad (3.3)$$

gegeben sind und quadratisch von der Quantenzahl n abhängen. In der xy -Ebene besteht für das Teilchen keinerlei Einschränkung und es kann sich frei bewegen. Folglich lässt sich die Gesamtenergie des Teilchens mit den Wellenvektoren k_x und k_y unter der Annahme einer parabolischen Dispersion schreiben als

$$E_n(k_x, k_y) = \left(\frac{\hbar^2 \pi^2}{2mL_{\text{QW}}^2}\right) n^2 + \frac{\hbar^2(k_x^2 + k_y^2)}{2m}. \quad (3.4)$$

Als Funktion der Wellenvektoren k_x und k_y innerhalb der Ebene ergibt sich eine Dispersion aus Parabeln, wie in Abb. 3.1b gezeigt ist. Optische Übergänge zwischen einzelnen Intersubband-Niveaus n und m sind möglich (schwarze Pfeile in der Dispersion in Abb. 3.1b), wenn die Frequenz ω_{mn} der anregenden elektromagnetischen Welle gerade der Übergangsfrequenz $\frac{E_m - E_n}{\hbar}$ entspricht. Das Absorptionsspektrum der Intersubband-Übergänge besteht also aus deltaförmigen Resonanzen, wie sie in Abb. 3.1c gezeigt sind.

Besteht der Potenzialtopf aus zwei Halbleitern mit unterschiedlicher Bandlücke, so ergeben sich für die Anwendung dieser Halbleiter-Heterostruktur bereits aus diesem einfachen Modell zwei wesentliche Folgerungen. Markiert die Bandlücke in einem einzelnen Halbleiter einen Energiebereich, in dem keine elektronischen Zustände existieren, so ist dieser Bereich nun durch die Quantisierung um die Energie E_n^e von Elektron und E_n^h des Lochs im Leitungsband vergrößert. Diese zusätzliche Energieaufspaltung kann durch Variation des Parameters L_{QW} (innerhalb gewisser

Grenzen) angepasst werden. Auf diesem Weg kann beispielsweise die Wellenlänge der Emission von Leucht- oder Laserdioden eingestellt werden, ohne auf verschiedene Materialien zurückgreifen zu müssen [Cap87].

Für diese Arbeit von größerer Bedeutung sind jedoch die einzelnen Energieniveaus E_n , welche sich innerhalb des Leitungsbandes befinden. Sättigbare Absorber müssen in jedem Fall eine Resonanzfrequenz aufweisen, welche der Frequenz des QCL angepasst ist, was ebenfalls mittels Halbleiter-Heterostrukturen erreicht werden kann. So kann mit GaAs-basierten Quantentrögen allein durch Variation der geometrischen Parameter der Spektralbereich bis etwa 7 THz abgedeckt werden, wo die Phononabsorption von GaAs eine obere Grenze darstellt. Wählt man beispielsweise einen $L_{\text{QW}} = 32$ nm breiten Potenzialtopf, so erhält man einen Energieabstand $E_2 - E_1 = 11$ meV (siehe Abb. 3.1c), was einer Frequenz von 2,7 THz entspricht. Die diskreten Resonanzen der ISB-Übergänge erlauben so eine einfache Anpassung des Arbeitspunktes eines sättigbaren Absorbers an die Frequenz des QCL.

Um jedoch überhaupt als sättigbarer Absorber in Frage zu kommen, ist eine möglichst starke Wechselwirkung der Heterostruktur mit dem elektrischen Feld der THz-Strahlung wichtig. Diese Wechselwirkung lässt sich im Regime der minimalen Kopplung durch den Hamiltonoperator

$$H = \frac{1}{2m} [\mathbf{p} + |e|\mathbf{A}(\mathbf{r})]^2 \quad (3.5)$$

beschreiben [Sch07], mit dem Impulsoperator $\mathbf{p} = -i\hbar\nabla$ und dem Vektorpotenzial des elektromagnetischen Feldes $\mathbf{A}(\mathbf{r})$. In Coulomb-Eichung und unter Vernachlässigung des in \mathbf{A} quadratischen Terms lässt sich das äußere elektrische Feld als kleine Störung betrachten und die Übergangsrates $W_{n,m}$ zwischen zwei Zuständen n und m im Quantentrog mittels Fermis Goldener Regel [Sch07] bestimmen:

$$W_{n,m} \propto e \int |\Psi_m^* \mathbf{A} \nabla \Psi_n|^2 d\mathbf{r}. \quad (3.6)$$

In Dipolnäherung, wenn also die Wellenlänge der anregenden elektromagnetischen Strahlung groß gegenüber der Ausdehnung der Wellenfunktion ist, lässt sich der Ausdruck im Integral weiter vereinfachen. Man erhält so einen Ausdruck für das sogenannte Dipolmoment μ_{nm} [Sch07] des Übergangs zwischen den Zuständen Ψ_n

und Ψ_m , das ein Maß für die Stärke der Wechselwirkung mit dem elektromagnetischen Feld darstellt. Es lässt sich gemäß

$$\mu_{nm} = e \int |\Psi_m^* \epsilon \mathbf{r} \Psi_n|^2 d\mathbf{r} \quad (3.7)$$

mit dem Polarisationsvektor ϵ des anregenden elektrischen Feldes ausdrücken. Durch Einsetzen der Wellenfunktionen für den unendlich tiefen Potenzialtopf aus Gl. 3.2 lassen sich daraus zwei Schlussfolgerungen für die praktische Verwendung von ISB-Übergängen ableiten. Die Quantisierung in z -Richtung führt dazu, dass das Dipolmoment nur für solche elektrische Felder nicht verschwindet, die ebenfalls eine Polarisationskomponente in z -Richtung aufweisen. Für eine effiziente Anregung des Übergangs ergeben sich so zwei Möglichkeiten: Entweder wird die elektromagnetische Welle senkrecht zur Ebene des zweidimensionalen Elektronengases polarisiert eingestrahlt oder aber das Nahfeld einer metallischen Struktur ausgenutzt, das eine Polarisationskomponente in z -Richtung erzeugt. Aufgrund der im Vergleich zu den Quantentrögen großen Wellenlänge der THz-Strahlung bietet sich die zweite Variante an, da sie nicht nur praktisch leichter zu realisieren ist, sondern auch die THz-Mode räumlich vollständig ausnutzt.

Neben der notwendigen Polarisation des Lichts lässt sich ein zweiter, wichtiger Aspekt für die Nutzung von ISB-Übergängen als sättigbare Absorber ableiten. Je größer das Dipolmoment ist, desto effektiver koppelt das elektrische Feld an die Materieresonanz und die nötigen Intensitäten zur Sättigung des Übergangs sind entsprechend geringer. Löst man das Integral in Gl. 3.7 für die Wellenfunktionen Ψ_2 und Ψ_1 , also für eine Anregung vom ersten in das zweite Subband in einem unendlich tiefen Potenzialtrog, so erhält man ein Dipolmoment von

$$\mu_{21} = \frac{16}{9\pi^2} e L_{\text{QW}}. \quad (3.8)$$

Dieser Ausdruck ergibt für den oben beispielhaft angenommenen Quantentrog mit einer Breite von $L_{\text{QW}} = 32 \text{ nm}$ eine Abschätzung des Dipolmoments von $\mu_{21}/e = 5,8 \text{ nm}$, was um etwa eine Größenordnung über dem Dipolmoment der Interbandanregung in GaAs liegt [Kal99].

Die aufgeführten Überlegungen am vereinfachten Modell des unendlich tiefen Potenzialtopfs zeigen also bereits die grundsätzliche Verwendbarkeit von ISB-Übergängen

als sättigbare Absorber im THz-Bereich. Einerseits erlaubt der flexible Aufbau von Halbleiter-Heterostrukturen eine weitgehend freie Anpassung möglicher Zentralfrequenzen und Bandbreiten. Andererseits begünstigt das hohe Dipolmoment eine niedrige Sättigungsschwelle, was für die Verwendung in QCLs eine entscheidende Voraussetzung ist.

3.3 Aufbau der Mehrfachquantentrogstruktur

Um die nichtlineare Antwort und Sättigungsdynamik von ISB-Übergängen auf Subzyklen-Zeitskalen untersuchen zu können, wurde eine Probe gewachsen und prozessiert, die optimal auf die Anforderungen kollinear 2D-THz-Spektroskopie auf Subzyklen-Zeitskalen zugeschnitten ist. Die Frequenz des ISB-Übergangs wurde dabei so gewählt, dass sie gut mit bereits realisierten, leistungsfähigen THz-QCLs übereinstimmt, um die gewonnenen Erkenntnisse in weiterführenden Experimenten direkt anwenden zu können. Eine metallische Nanostruktur auf der Oberseite erlaubt es, die erforderlichen Messungen in Transmission durchzuführen. Die Heterostruktur wurde in der Arbeitsgruppe von Prof. E. Linfield (University of Leeds) gewachsen und in der Gruppe von Prof. M. Vitiello (CNR-Nano, Pisa) prozessiert.

Abbildung 3.2a zeigt eine schematische Darstellung der gewachsenen Heterostruktur. Auf ein Substrat aus isolierendem GaAs wurde mittels Molekularstrahlepitaxie eine Abfolge von 35 Quantentrögen aus GaAs gewachsen, welche jeweils eine Dicke von 36 nm aufweisen. Die Quantentröge sind durch 20 nm dicke Barrieren getrennt, welche aus $\text{Al}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}$ bestehen. Dieses weist aufgrund des Aluminiumgehalts von 15% eine um 190 meV höhere Bandlücke auf als reines GaAs und stellt so eine effektive Potenzialbarriere für Elektronen im Quantentrog dar. Die Silizium-Dotierung in einem Abstand von 5 nm nach dem Beginn der Barriere erzeugt eine Elektronenbesetzung von $5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ im unteren Subband des Quantentrogs. Eine 50 nm dicke GaAs-Schicht schützt die Quantentrogstruktur gegenüber der Umgebung. Auf die Oberfläche der Probe wurde mittels optischer Lithographie ein Gitter strukturiert und durch Aufdampfen einer 10 nm dicken Chrom- gefolgt von einer 100 nm dicken Goldschicht aufgebracht. Die Periode des Gitters beträgt $16 \mu\text{m}$ mit einem Füllfaktor von 85%. Abb. 3.2b zeigt eine lichtmikroskopische Aufnahme dieses Gitters (beige Streifen) auf der GaAs-Oberfläche (bläulich).

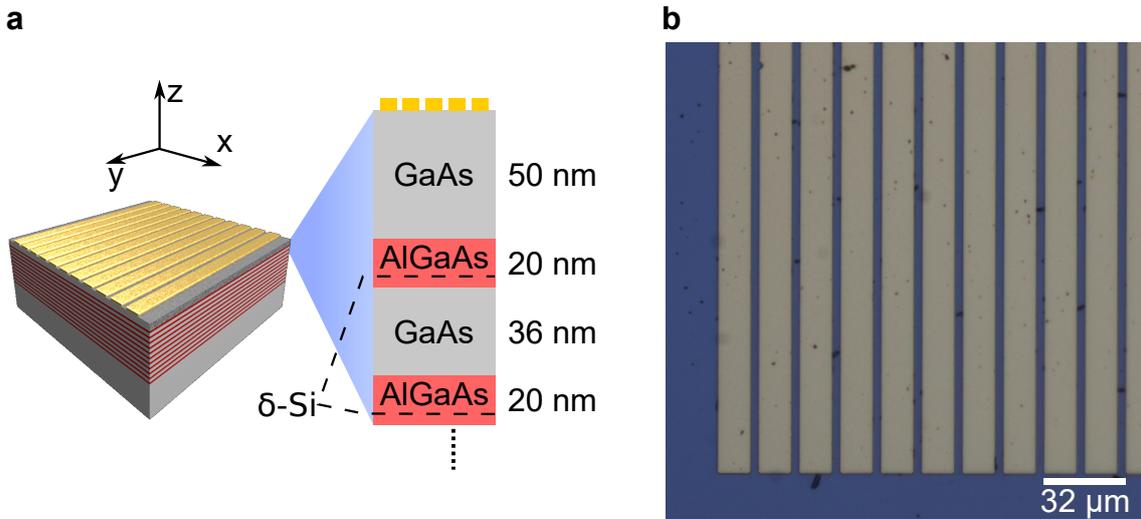


Abbildung 3.2: Probengeometrie der Mehrfachquantentrogstruktur. a, Die untersuchte Probe besteht aus 35 GaAs-Quantentrögen mit einer Dicke von 36 nm (grau), die von 20 nm dicken AlGaAs-Barrieren getrennt sind (rot). Die Barrieren sind in einem Abstand von 5 nm von der GaAs-Schicht entfernt mit einer δ -Dotierung aus Silizium versehen. Die Quantenfilme sind mit einer 50 nm dicken GaAs-Schicht geschützt, auf die das Goldgitter mit einer Periodizität von $16 \mu\text{m}$ aufgebracht ist. b, Lichtmikroskopische Aufnahme des Goldgitters auf der Probe. Die Länge des Maßstabsbalkens entspricht gerade zwei Gitterperioden.

Das Goldgitter erlaubt es dem transversal polarisierten elektromagnetischen Feld des THz-Impulses, an das Dipolmoment des ISB-Übergangs zu koppeln. Wie in der Diskussion in Abschnitt 3.2 gezeigt wurde, ist dies nur für eine Polarisation entlang der Wachstumsrichtung der Quantentröge möglich, welche im Nahfeld der Goldstruktur vorliegt. Zudem führt das Goldgitter zu einer Überhöhung des elektrischen Feldes im Nahfeld, was die nötige Intensität für eine Sättigung verringert. Die Geometrie des Goldgitters wurde zu diesem Zweck mithilfe numerischer Simulationen der Feldverteilung so optimiert, dass sowohl die Feldüberhöhung als auch die Gesamttransmission durch die Probe maximal sind. Die auf das einfallende Feld \mathcal{E}_{in} normierte z -Komponente \mathcal{E}_z des resultierenden Nahfelds in der Umgebung eines Goldstreifens ist in Abb. 3.3a für eine Frequenz von 2,7 THz gezeigt. Man erkennt, dass das äußere Feld nahezu verlustfrei in die Heterostruktur einkoppelt ($\mathcal{E}_z \approx 1$), obwohl durch den hohen Brechungsindex des Halbleiters bestenfalls 50% Feldtransmission zu erwarten wäre. Die effiziente Konversion der Polarisation in die Richtung

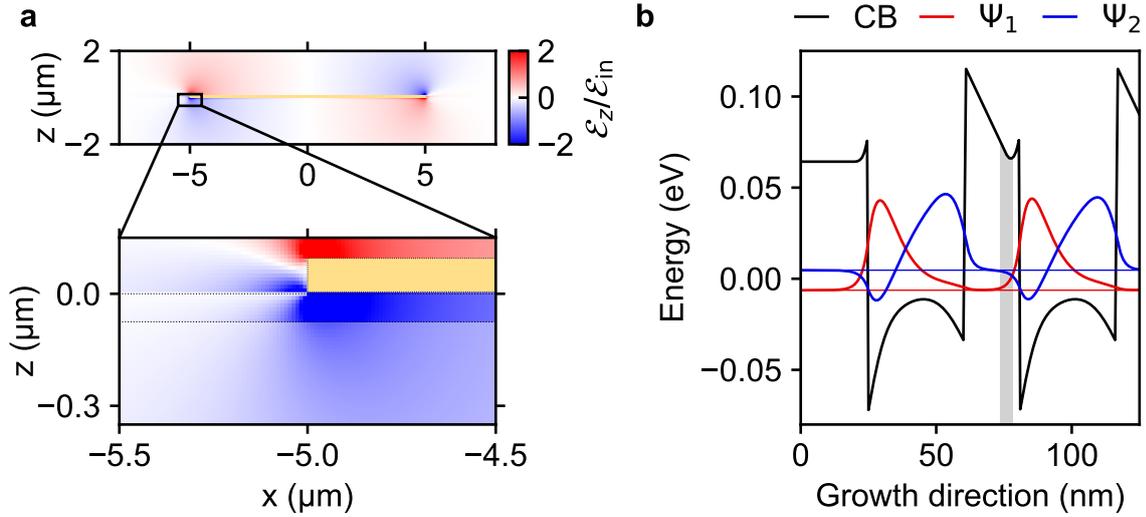


Abbildung 3.3: Feldverteilung und Bandstruktur der untersuchten Probe.

a, Die Abbildung zeigt das Nahfeld der Goldstreifen. Oben: Farbcodierte Darstellung der simulierten z -Komponente des Nahfelds \mathcal{E}_z , normiert auf das einfallende Feld \mathcal{E}_{in} , bei einer Frequenz von 2,7 THz für ein Feldmaximum des treibenden Feldes. Unten: Vergrößerte Darstellung des rechteckig markierten Bereichs in der oberen Teilabbildung. **b**, Ausschnitt des Energieverlaufs des Leitungsbandminimums (schwarz) entlang der Wachstumsrichtung, berechnet durch numerische Lösung von Schrödinger und Poisson-Gleichung. Das chemische Potenzial liegt bei 0 eV. Die rote Wellenfunktion gehört zum Grundzustand des 2D-Elektronengases im Quantentrog, die blaue zum ersten angeregten Zustand (nicht maßstäbliche Darstellung). Im Experiment wurde der Übergang zwischen diesen beiden Energieniveaus mit einer Energiedifferenz von 11 meV (entspricht 2,7 THz) untersucht. Hellgrau: Delta-Dotierung mit Silizium.

des Dipolmoments der Quantentröge demonstriert die essenzielle Bedeutung des Gitters für die Untersuchung der Heterostruktur mithilfe ultrakurzer THz-Impulse. Neben der plasmonischen Struktur auf der Oberfläche kommt auch der Mehrfachquantentrogstruktur entscheidende Bedeutung zu, weshalb auch diese numerisch modelliert wurde. Eine selbstkonsistente Lösung der Schrödinger- und Poisson-Gleichung [Bir07] erlaubt es, die Bandstruktur der eingangs beschriebenen Probe unter Einfluss der Dotierung zu simulieren und eine quantitative Aussage über die Wellenfunktionen zu treffen. Abb. 3.3b (schwarze Linie, CB) zeigt den berechneten Verlauf der Leitungsbandkante am Γ -Punkt entlang der Wachstumsrichtung z . Die grau hinterlegten Bereiche enthalten die Siliziumdotierung. Diese führt zu einer starken Verkrümmung der Bandkante entlang z und damit zu einer asymmetrischen Form des Quantentrogs,

wodurch die Wellenfunktionen nicht mehr vollständig den modellhaften Überlegungen aus Abschnitt 3.2 entsprechen. Trotzdem zeigen die Wellenfunktionen Ψ_1 (rot) und Ψ_2 (blau) der beiden ersten Subbänder qualitativ die gleichen Merkmale. Der energetisch niedrigste Zustand zeigt einen cosinusförmigen Verlauf mit einem Maximum in der Nähe der Dotierschicht, was so durch die zusätzliche Coulomb-Anziehung der ionisierten, positiv geladenen Donatoratome zu erwarten ist. Der erste angeregte Zustand verhält sich entsprechend qualitativ sinusförmig. Beide Wellenfunktionen besitzen einen von null verschiedenen Wert in den Barrieren, was im Gegensatz zum Modell des unendlich tiefen Potenzialtopfs steht. Der endliche Energieabstand zwischen Trog und Barriere erlaubt allerdings eine von null verschiedene Aufenthaltswahrscheinlichkeit ($|\Psi|^2 \neq 0$) für Elektronen in den Barrieren, welche exponentiell abfällt [Sch07].

Der Abstand zwischen den berechneten Eigenenergien beträgt etwa 2,7 THz, was sehr gut mit den experimentellen Befunden übereinstimmt (siehe nächstes Kapitel). Die berechneten Lösungen der Schrödingergleichung erlauben zudem eine quantitative Bestimmung des Dipolmoments des betrachteten Übergangs. Gemäß Gleichung 3.7 erhält man mit den gezeigten Wellenfunktionen einen Wert von $\mu_{21}/e = 3,8 \text{ nm}$ was zusammen mit der bekannten Feldstärke in der Probe eine quantitative Auswertung und numerische Simulation der später gezeigten experimentellen Ergebnisse erlaubt. Abschließend sei nochmals auf die gute, quantitative Übereinstimmung zwischen dem Modell in Abschnitt 3.2 und der hier diskutierten, numerisch simulierten Bandstruktur hingewiesen. Trotz der nur 190 meV betragenden „Tiefe“ des Potenzialtopfs muss die Dicke des experimentell verwendeten Trogs lediglich 4 nm größer gewählt werden als für unendlich hohe Wände. Auch das numerisch ermittelte Dipolmoment liegt mit $\mu_{21}/e = 3,8 \text{ nm}$ trotz der großen Unterschiede in der Form der Wellenfunktionen in der gleichen Größenordnung wie der Wert von $\mu_{21}/e = 5,8 \text{ nm}$ aus Abschnitt 3.2.

3.4 Feldaufgelöste, zweidimensionale THz-Spektroskopie von Intersubband- Übergängen

Die Verwendung von ISB-Übergängen als sättigbare Absorber bietet, wie in den vorangegangenen Kapiteln gezeigt, erhebliche Vorteile gegenüber anderen Materialsystemen und stellt damit einen vielversprechenden Ansatz für die Entwicklung passiv modengekoppelter, halbleiterbasierter THz-Quellen dar. Die dynamischen, kohärenten Prozesse jedoch, welche zu einer Sättigung der Absorption führen, wurden bislang nicht eingehend experimentell untersucht. Sollen ISB-Übergänge in gepulsten QCLs eingesetzt oder gar zur kohärenten Impulsformung verwendet werden, müssen diese detailliert verstanden und beschrieben sein. 2D-THz-Spektroskopie (siehe Abschnitt 2.5) liefert einen direkten Zugang zu diesen nichtlinearen Prozessen auf Subzyklen-Zeitskalen und erlaubt so eine umfassende Beschreibung der Sättigungsdynamik. Im Folgenden werden daher die experimentellen Befunde der Untersuchung der in Abschnitt 3.3 vorgestellten Struktur präsentiert und die nichtlineare Antwort mithilfe der Liouvillepfade analysiert.

3.4.1 Zeitdynamik der nichtlinearen Antwort

Für die Experimente wurde die Probe auf 10 K gekühlt um so sicherzustellen, dass nur das erste Subband der Quantentröge besetzt ist. Zwei kollineare, phasenstarre THz-Impulse A und B mit Spitzenfeldstärken ($\mathcal{E}_A^0, \mathcal{E}_B^0$) von bis zu 27 kV cm^{-1} dienen dazu, eine nichtlineare Polarisierung der quantisierten Elektronenzustände zu erzeugen und diese abzutasten. Dazu werden die senkrecht zu den Gitterlinien der Probe polarisierten THz-Transienten $\mathcal{E}_A(t)$ und $\mathcal{E}_B(t, \tau)$ mithilfe einer Verzögerungsstrecke um eine variable Verzögerungszeit τ gegeneinander verzögert und auf die Probe fokussiert. Das Gesamtsignal $\mathcal{E}_{AB}(t, \tau)$ wird nach der Transmission durch die Probe als Funktion der Verzögerungszeit t elektro-optisch detektiert. Es enthält sowohl Beiträge der einzelnen Felder $\mathcal{E}_A(t)$ und $\mathcal{E}_B(t, \tau)$, als auch nichtlineare Beiträge, welche durch die Wechselwirkung der beiden elektrischen Felder in der Probe induziert werden. Durch individuelle Messung der Komponenten $\mathcal{E}_A(t)$ und $\mathcal{E}_B(t, \tau)$ lässt sich aus $\mathcal{E}_{AB}(t, \tau) = \mathcal{E}_A(t) + \mathcal{E}_B(t, \tau) + \mathcal{E}_{NL}(t, \tau)$ das von der nichtlinearen Polarisierung emittierte

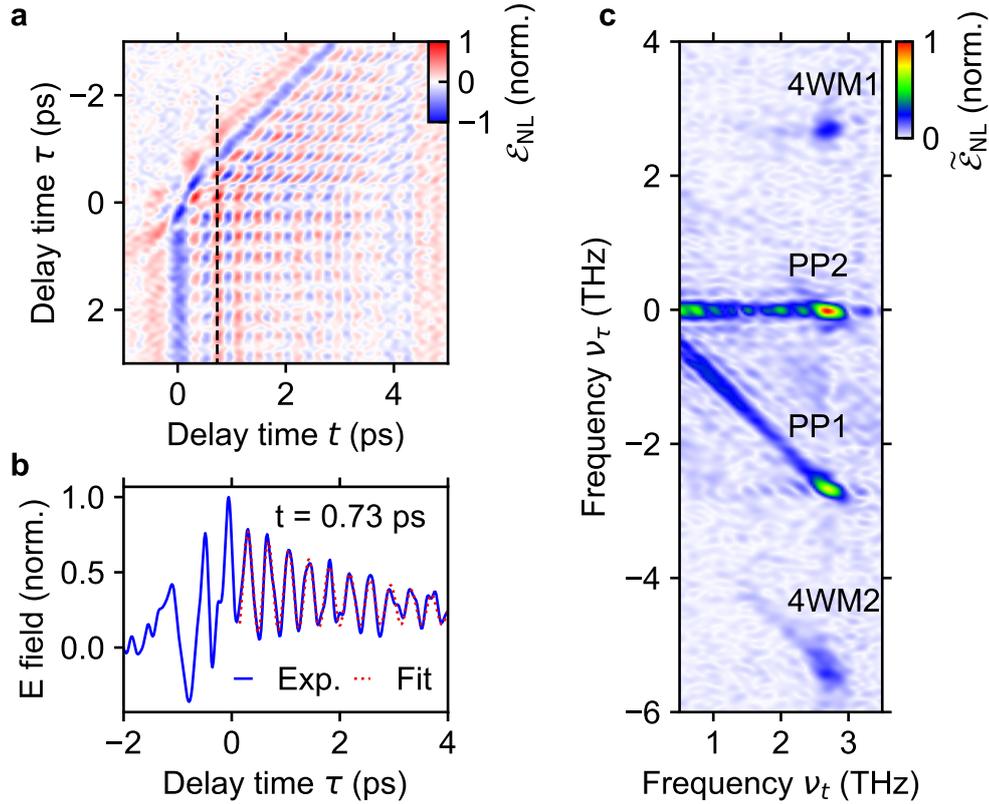


Abbildung 3.4: Nichtlineare Antwort des Intersubband-Übergangs. **a**, Gemessene, nichtlineare Antwort $\epsilon_{NL}(t, \tau)$ des ISB-Systems für eine Anregungsfeldstärke von 11 kV cm^{-1} bei einer Proben temperatur von 10 K. **b**, Schnitt durch $\epsilon_{NL}(t, \tau)$ (siehe schwarze Strichlinie in **a**) für eine Verzögerungszeit $t = 0,73$ ps (blau) sowie numerische Anpassung der Funktion aus Gl. 3.9 (rot punktiert). **c**, Zweidimensionales Fourier-Spektrum $\tilde{\epsilon}_{NL}(\nu_t, \nu_\tau)$ der experimentellen Daten aus **a**.

Signal $\epsilon_{NL}(t, \tau)$ extrahieren. Für weitere Details über die genaue Vorgehensweise hierzu sei an dieser Stelle auf Abschnitt 2.5 verwiesen.

Das nichtlineare Signal $\epsilon_{NL}(t, \tau)$ des ISB-Übergangs ist in Abb. 3.4a für eine Feldstärke $\mathcal{E}_A^0 + \mathcal{E}_B^0 = 11 \text{ kV cm}^{-1}$ als Funktion der Verzögerungszeiten t und τ abgebildet. Die Probe zeigt entlang beider Achsen eine oszillierende, nichtlineare Antwort, welche auch für Verzögerungszeiten $|\tau| > 1$ ps Bestand hat, wenn die beiden THz-Impulse bereits keinen zeitlichen Überlapp mehr aufweisen.

Die zweidimensionale Zeitdomänendarstellung des elektrischen Feldes $\epsilon_{NL}(t, \tau)$ teilt sich in die zwei Bereiche $\tau < 0$ und $\tau > 0$, in denen sich die Rollen der beiden Impulse

unterscheiden. Für negative Werte von τ erzeugt Impuls A eine Polarisation in der Probe, welche solange frei oszillieren kann, bis nach der Verzögerungszeit τ Impuls B eintrifft. Das elektrische Feld von Impuls B wechselwirkt mit der von Impuls A induzierten Polarisation und eine nichtlineare Polarisation entsteht, welche mit der Frequenz $\nu_{\text{ISB}} = 2,7 \text{ THz}$ des ISB-Übergangs oszilliert und für die ausgeprägte Oszillation in $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ entlang der t -Achse verantwortlich ist. Die stärkste, nichtlineare Antwort tritt wie erwartet für $\tau = 0$ auf, wenn die beiden Impulse zeitgleich auf die Probe treffen. Für Verzögerungszeiten $\tau > 0$ vertauschen die Impulse A und B ihre Rollen und die Dynamik ist äquivalent zum Fall $\tau < 0$.

Die ausgeprägte Oszillation entlang der τ -Achse entsteht gemäß den Überlegungen aus Kapitel 2.5 durch eine kohärente Anregung der Probe mittels zweier Photonen des ersten Impulses, wobei die Phase der anregenden Wellenform erhalten bleibt. Die Modulation entlang τ ist also ein Hinweis darauf, dass der ISB-Übergang kohärent angeregt werden kann und diese Kohärenz für eine Zeitspanne T_2^* erhalten bleibt. Nur so kann sie vom zweiten Impuls kohärent abgetastet werden und das nichtlineare Signal modulieren. Die oszillierende Antwort ist zusätzlich mit einem exponentiell abklingenden Signal überlagert, welches seinen Ursprung in einer inkohärenten Anregung des Systems hat. Eine solche entsteht gemäß Gleichung 2.13, wenn durch den ersten Impuls eine dauerhafte Population des ISB-Übergangs erzeugt wird, welche dann entsprechend ihrer Lebensdauer T_1 relaxiert. Diese trägt keine Information über die Phase des anregenden Feldes und führt so durch die Wechselwirkung mit dem zweiten Impuls zu einem abgestrahlten Feld, welches nicht entlang τ moduliert ist.

Die gezeigte nichtlineare Antwort erlaubt eine erste, quantitative Analyse der Zeitskalen, auf denen Kohärenz und Population erhalten bleiben. Zu diesem Zweck betrachtet man einen Schnitt durch $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ für eine feste Verzögerungszeit $t = 0,73 \text{ ps}$ als Funktion der Verzögerungszeit τ , wie in Abb. 3.4b gezeigt ist. Sowohl die Oszillation der kohärenten Polarisation als auch der exponentielle Zerfall der Population sind in der gezeigten Kurve klar erkennbar. Eine numerische Anpassung der Funktion

$$\mathcal{E}_{\text{NL}}(\tau) = A_1 e^{-\frac{\tau}{T_1}} + A_2 \sin(2\pi\nu_{\text{ISB}}(\tau - \tau_0)) e^{-\frac{\tau}{T_2^*}} \quad (3.9)$$

an die experimentellen Daten erlaubt eine direkte Bestimmung der Zeitkonstanten T_1 und T_2^* .

Dabei modelliert der erste Term den exponentiellen Zerfall der Population und der zweite Term trägt dem exponentiell gedämpften, oszillierenden Teil der Antwort Rechnung. Aus der Anpassung (rote Strichlinie in Abb. 3.4b) erhält man die Populationslebensdauer $T_1 = (5,0 \pm 0,3)$ ps sowie die Kohärenzzeit des ISB-Übergangs $T_2^* = (2,2 \pm 0,2)$ ps. Die Lebensdauer der Population ist eine wichtige Kenngröße eines sättigbaren Absorbers. Um als solcher nach der Sättigung durch einen intensiven THz-Impuls wieder das Anschwingen des Dauerstrichbetriebs des Lasers unterdrücken zu können, muss der Absorber schneller in den Grundzustand relaxieren, als sich die Verstärkung wiederaufbaut. Trotz der kurzen Zeitskalen, auf denen dies in QCLs passiert [Der18], ist die hier gemessene Relaxationszeit mit 5 ps kurz genug, sodass sich ISB-Übergänge als Grundlage eines sättigbaren Absorbers hervorragend eignen [Pas01].

3.4.2 Zweidimensionale Fourier- und Liouvillepfad-Analyse

Das Signal $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ setzt sich aus verschiedenen kohärenten und inkohärenten, nichtlinearen Wechselwirkungen zusammen, die bereits im vorangegangenen Kapitel skizziert wurden. Diese lassen sich in der Zeitdomäne nur schwer unterscheiden, können jedoch mithilfe einer zweidimensionalen Fourier-Transformation als getrennte Mechanismen identifiziert werden. Abbildung 3.4c zeigt das zweidimensionale Amplitudenspektrum $\tilde{\mathcal{E}}_{\text{NL}}(\nu_t, \nu_\tau)$ der nichtlinearen Antwort aus Abb. 3.4a als Funktion der zu den Verzögerungszeiten t und τ korrespondierenden Frequenzen ν_t und ν_τ .

In der Frequenzdarstellung zerfällt die gesamte, nichtlineare Antwort in vier ausgeprägte, lokalisierte Signaturen, welche unterschiedlichen Wechselwirkungen zugeordnet werden können. Die beiden Maxima bei $(\nu_t, \nu_\tau) = (\nu_{\text{ISB}}, -\nu_{\text{ISB}})$ (PP1) und $(\nu_{\text{ISB}}, 0)$ (PP2) stammen gemäß den Überlegungen aus Kapitel 2.5 von einer Wechselwirkung, bei der Impuls A (B) eine Population in der Probe anregt und Impuls B (A) diese abtastet. Die in Kapitel 2.5 definierten Quasi-Wellenvektoren \vec{k}_A und \vec{k}_B ermöglichen eine Analyse mithilfe der Liouvillepfade, welche für die einzelnen Maxima durch die Quasi-Wellenvektoren $\vec{k}_{\text{PP1}} = \vec{k}_A - \vec{k}_A + \vec{k}_B$ und $\vec{k}_{\text{PP2}} = \vec{k}_A + \vec{k}_B - \vec{k}_B$ angegeben werden können. Wie anhand der unterschiedlichen Vorzeichen zu erkennen ist, verschwindet jeweils die Phase des anregenden Impulses, wodurch die Maxima PP1 und PP2 eindeutig als Anrege-Abtast-Signale identifiziert werden können. Diese sind

der Ursprung des exponentiell abklingenden, als Funktion von τ nicht oszillierenden Beitrags zur nichtlinearen Antwort in der Zeitdomäne.

Im Gegensatz dazu enthalten Vier-Wellen-Mischsignale Kombinationen von Quasi-Wellenvektoren, welche die Phase beider Impulse erhalten. So lässt sich das Signal bei $(\nu_{\text{ISB}}, \nu_{\text{ISB}})$ (4WM1) durch $\vec{k}_{4\text{WM1}} = 2\vec{k}_{\text{A}} - \vec{k}_{\text{B}}$ ausdrücken und jenes bei $(\nu_{\text{ISB}}, -2\nu_{\text{ISB}})$ (4WM2) durch $\vec{k}_{4\text{WM2}} = 2\vec{k}_{\text{B}} - \vec{k}_{\text{A}}$. Diese Beiträge sind also für den als Funktion von τ oszillierenden Beitrag zu $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ verantwortlich und ermöglichen eine direkte Beobachtung der Polarisation des Systems.

Um die vollständige Sättigungsdynamik zu beobachten und damit auch den Ursprung der beobachteten Nichtlinearitäten zu erklären, wurden mehrere 2D-Messungen mit verschiedenen Spitzenfeldstärken der anregenden Impulse zwischen $4,4 \text{ kV cm}^{-1}$ und 37 kV cm^{-1} durchgeführt, indem die Repetitionsrate des NIR-Lasers für die THz-Generation systematisch variiert wurde. Die Abbildungen 3.5a-c zeigen exemplarisch die gemessenen, zweidimensionalen Amplitudenspektren für die Spitzenfeldstärken $\mathcal{E}_{\text{A}}^0 + \mathcal{E}_{\text{B}}^0 = 4,4 \text{ kV cm}^{-1}$, 11 kV cm^{-1} und 37 kV cm^{-1} . Die gezeigten Spektren wurden auf die spektrale Amplitude des jeweiligen treibenden Feldes bei $2,7 \text{ THz}$ normiert, um mögliche Unterschiede in der Wellenform zu eliminieren. Für die Anregung mit der geringsten Spitzenfeldstärke (Teilabbildung a) sind nur schwache, nichtlineare Signale zu erkennen, was für geringe Anregungsfeldstärken bei einer Nichtlinearität dritter Ordnung auch der Erwartung entspricht. Bei einer mittleren Feldstärke von 11 kV cm^{-1} zeigen sich die bereits oben diskutierten, starken, nichtlinearen Signaturen mit deutlich ausgeprägten Anrege-Abtast- und Vier-Wellen-Mischsignalen. Für die höchste Feldstärke von 37 kV cm^{-1} ist bereits in der 2D-Karte zu erkennen, dass die nichtlineare Antwort schwächer ausfällt. Insbesondere die zuvor deutlich ausgeprägten, kohärenten Signaturen haben stark an Amplitude verloren.

Die Skalierung der nichtlinearen Signale mit der Feldstärke des treibenden Feldes lässt sich quantitativ auswerten, indem man das Amplitudenspektrum in einem Frequenzfenster mit einer vollen Halbwertsbreite von $1,0 \text{ THz}$ entlang beider Frequenzachsen um die jeweiligen Maxima integriert und das Ergebnis als Funktion der Spitzenfeldstärke des anregenden Feldes aufträgt. Diese Analyse wurde beispielhaft für die Signaturen PP1 $((\nu_t, \nu_\tau) = (\nu_{\text{ISB}}, -\nu_{\text{ISB}}))$ und 4WM1 $((\nu_{\text{ISB}}, \nu_{\text{ISB}}))$ durchgeführt und in Abb. 3.5d und e gezeigt. Die roten Kreuze markieren in der Abbildung experimentelle Werte und Stützstellen. Für kleine Spitzenfeldstärken steigt die Amplitude zunächst stark an, erreicht dann bei 11 kV cm^{-1} ein klares Maximum, um

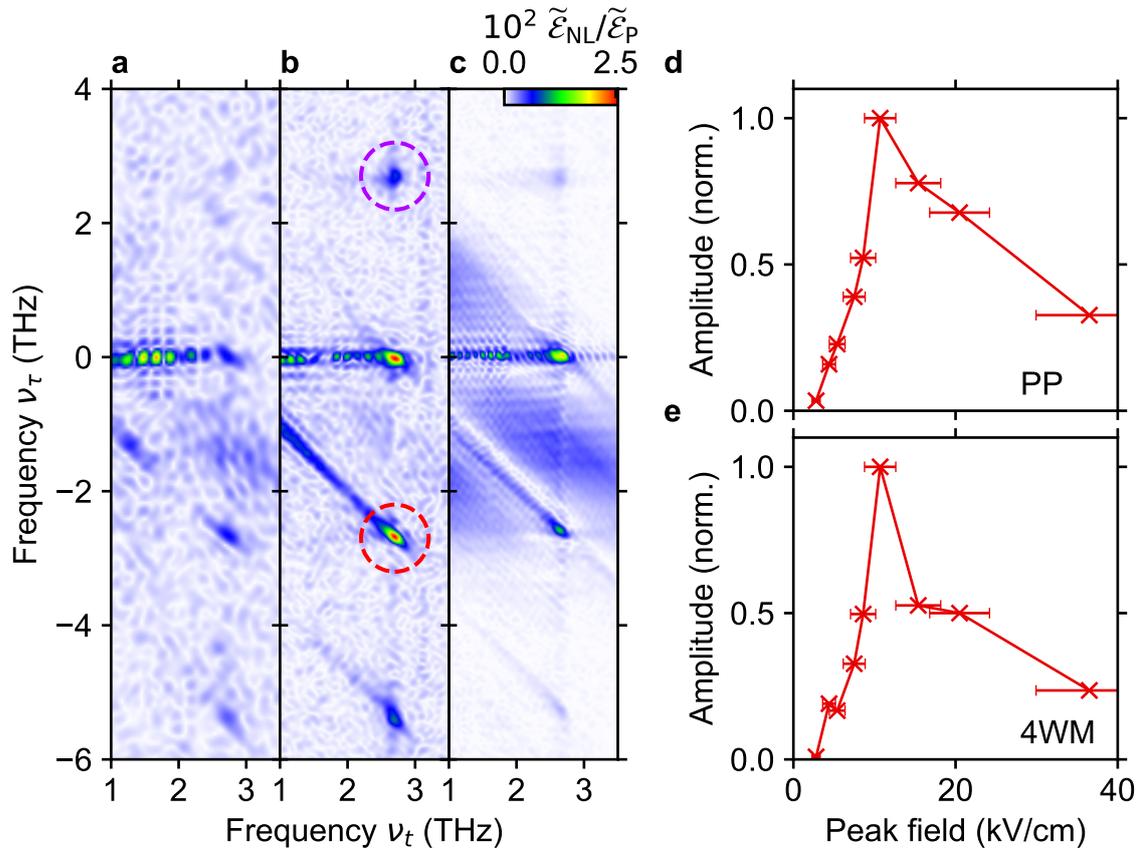


Abbildung 3.5: Feldabhängigkeit der nichtlinearen Antwort des Intersubband-Übergangs. Nichtlineare Antwort des ISB-Übergangs in der Frequenzdomäne bei Feldstärken von **a**, $4,4 \text{ kV cm}^{-1}$ **b**, 11 kV cm^{-1} und **c**, 37 kV cm^{-1} , jeweils normiert auf die spektrale Amplitude des Pumpimpulses bei $2,7 \text{ THz}$. **d**, Rot: Amplitude des Anrege-Abtast-Signals (PP) im Fourier-Spektrum als Funktion der angelegten Spitzenfeldstärke, integriert in einem Frequenzfenster von $1,0 \text{ THz}$ um die jeweiligen lokalen Maxima (siehe roter Kreis in **b**). **e**, Wie in **d**, jedoch für das Vier-Wellen-Mischsignal (4WM, violett markiert in **b**).

dann für noch größere Spitzenfeldstärken wieder abzufallen. Bemerkenswert dabei ist, dass nicht nur das Vier-Wellen-Mischsignal an Amplitude verliert, sondern auch das Anrege-Abtast-Signal für große Spitzenfeldstärken auf ein Drittel des Maximalwerts abfällt.

Diese Beobachtung ist nicht allein durch inkohärente Sättigung, also Gleichbesetzung von oberem und unterem Subband zu erklären, denn dies hätte auch für hohe Feldstärken ein konstantes Anrege-Abtast-Signal zur Folge, nicht jedoch einen Rückgang der

integrierten Amplitude. Auch erhöhte Streuung oder eine Aufheizung des Elektronengases liefert keine ausreichende Begründung für den gleichzeitigen Rückgang beider Signale, sondern hätte lediglich das Verschwinden des Vier-Wellen-Mischsignals zur Folge.

Die Erklärung des Verhaltens liegt vielmehr in einer kohärenten Kontrolle der Population auf Subzyklen-Zeitskalen, welche durch die Anregung mit hochintensiven THz-Impulsen möglich wird. Um das beobachtete, nichtlineare Verhalten zu interpretieren und die experimentellen Werte quantitativ zu verifizieren, wird im Folgenden ein theoretisches Modell entwickelt, das die Signaturen ausgezeichnet reproduziert und schließlich eine Interpretation der experimentellen Daten auf Grundlage der mikroskopischen Dynamik liefert.

3.5 Rabi-Oszillationen auf Subzyklen-Zeitskalen

Um die experimentellen Befunde richtig einordnen zu können und die beobachtete Dynamik zu verstehen, ist ein theoretisches, zeitaufgelöstes Modell erforderlich, welches die absoluten Phasen von elektrischem Feld und ISB-Übergang berücksichtigt. Diese Beschreibung geht über die stationäre Theorie in Abschnitt 3.2 hinaus und berücksichtigt sowohl die genaue Zeitabhängigkeit des elektrischen Feldes als auch der Elektron-Wellenfunktionen Ψ_n im Quantentrog.

Eine gängige Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung eines oszillierenden elektrischen Feldes mit einem Ensemble aus Zwei-Niveau-Systemen stellen die Maxwell-Bloch Gleichungen [Met99] im Rahmen des Dichtematrix-Formalismus dar. Dabei wird für eine analytische Lösung des Problems jedoch meist eine nahezu resonante Anregung vorausgesetzt (engl. „rotating wave approximation“), welche im Experiment aufgrund des großen spektralen Gewichts nicht-resonanter Anteile im Spektrum des THz-Impulses jedoch nicht erfüllt ist. Zudem geht man von Feldeinhüllenden des treibenden Feldes aus, welche eine im Vergleich zur Trägerwelle langsame Zeitabhängigkeit haben. Diese Näherung ist ebenfalls für Einzelzyklen-THz-Impulse mit lediglich einer Schwingung der Trägerwelle innerhalb der Einhüllenden nicht mehr zu rechtfertigen. Löst man die Maxwell-Bloch-Gleichungen jedoch numerisch, so entfällt die Notwendigkeit dieser Näherungen und man erhält zudem die Möglichkeit, ein beliebiges, treibendes Feld zu verwenden. Die nötigen Schritte zur Entwicklung dieses Modells sind im Folgenden zusammengefasst dargestellt.

3.5.1 Dynamik des Intersubband-Übergangs im Dichtematrix-Formalismus

Der ISB-Übergang kann in guter Näherung als Zwei-Niveau-System aufgefasst werden, da weitere Subbänder aufgrund des δ -förmigen Absorptionsspektrums und der begrenzten spektralen Bandbreite der THz-Impulse nicht mehr angeregt werden können. Der Zustand des Zwei-Niveau-Systems $\Psi(t)$ lässt sich allgemein als Funktion der beiden Basiszustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$ mit den zeitabhängigen Koeffizienten $c_1(t) = c_1 \exp(-i\omega_1 t)$ und $c_2(t) = c_2 \exp(-i\omega_2 t)$ durch

$$\Psi(t) = c_1(t) |1\rangle + c_2(t) |2\rangle, \quad \text{mit } |c_1(t)|^2 + |c_2(t)|^2 = 1 \quad (3.10)$$

ausdrücken. Für ein Ensemble von N Systemen und den Wahrscheinlichkeiten p_n ($\sum p_n = 1$) ein System im Zustand Ψ_n zu messen, lässt sich eine Dichtematrix ρ definieren, wobei

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} \\ \rho_{21} & \rho_{22} \end{pmatrix}. \quad (3.11)$$

Die Einträge $\rho_{jk} = \sum_n p_n c_k^{n*} c_j^n$ mit $j, k \in [1, 2]$ stellen dabei ein Mittel über alle Elemente des Ensembles dar. Die Diagonaleinträge ρ_{11} und ρ_{22} entsprechen der Besetzung des oberen bzw. unteren Energieniveaus, geben also Aufschluss über die Population des ISB-Übergangs. Aus der Konstruktion der Einträge ρ_{jk} folgt für die Diagonalelemente $\rho_{11} + \rho_{22} = 1$, was der Erhaltung der Teilchenzahl Rechnung trägt. Die Außerdiagonalelemente ρ_{12} und ρ_{21} beschreiben die kohärente Superposition von $|1\rangle$ und $|2\rangle$, sind also ein Maß für die Polarisation des Systems. Die Dichtematrix ist hermitesch und folglich erfüllen ihre Einträge die Bedingung $\rho_{j,k} = \rho_{k,j}^*$.

Der Dichtematrix-Formalismus erlaubt nun eine elegante Beschreibung der Wechselwirkung mit dem elektrischen Feld des THz-Impulses. Hierfür wird ein Hamiltonoperator verwendet, welcher sich gemäß

$$H = H_0 + H_1 \quad (3.12)$$

als Summe aus dem Hamiltonoperator H_0 des ungestörten Systems und dem Wechselwirkungsterm zwischen Licht und Materie H_1 darstellen lässt.

In Dipolnaherung lasst sich H_I mit dem Ortsoperator \hat{z} und dem aueren, entlang z polarisierten elektrischen Feld $\mathcal{E}(t)$ durch

$$H_I = -e\hat{z}\mathcal{E}(t) = \left(\sum_{n=1,2} |n\rangle \langle n| \right) (-e\hat{z}\mathcal{E}(t)) \left(\sum_{m=1,2} |m\rangle \langle m| \right) \quad (3.13)$$

$$= -\mathcal{E}(t) \sum_{n,m=1,2} \mu_{nm} |n\rangle \langle m| \quad (3.14)$$

ausdrucken [Met99]. Dabei wurde der Operator zunachst auf beiden Seiten mit dem Einheitsvektor multipliziert und der Ausdruck anschlieend mithilfe des Dipolmoments $\mu_{nm} = \langle n|ez|m\rangle$ aus Kapitel 3.2 vereinfacht. Meist wird an dieser Stelle die Annahme getroffen, dass aufgrund der Symmetrie des Zwei-Niveau-Systems die Terme $\mu_{11} = \mu_{22} = 0$ verschwinden. Wie man allerdings an der Bandstruktur der untersuchten Probe erkennt, fuhren die asymmetrischen Quantentroge zu einer gebrochenen Symmetrie der Wellenfunktion entlang der Wachstumsrichtung. Die Dipolmomente μ_{nn} verschwinden also im vorliegenden Fall nicht, sondern konnen mithilfe der numerisch simulierten Wellenfunktionen berechnet werden (siehe Diskussion von Abb. 3.3b). Um auch die mit diesem permanenten Dipolmoment verbundene Dynamik korrekt abzubilden, wird im Folgenden der allgemeine Fall einschlielich $n = m$ betrachtet.

Die bekannten Eigenenergien der betrachteten Subbander $\hbar\omega_1$ und $\hbar\omega_2$ erlauben es nun, eine allgemeine Form des Hamiltonoperators fur das Zwei-Niveau-System einschlielich der Wechselwirkung mit dem elektrischen Feld aufzustellen:

$$H = \hbar \begin{pmatrix} \omega_1 + \Omega_{11} & \Omega_{12} \\ \Omega_{12} & \omega_2 + \Omega_{22} \end{pmatrix}. \quad (3.15)$$

Die Terme $\hbar\Omega_{nn} = \mu_{nn}\mathcal{E}(t)$ berucksichtigen dabei das oben besprochene, permanente Dipolmoment μ_{nn} aufgrund der asymmetrischen Quantentroge. Die Wechselwirkung mit dem elektrischen Feld wird daruber hinaus durch den Beitrag $\hbar\Omega_{12} = \mu_{12}\mathcal{E}(t)$ in den auerdiagonalen Elementen von H abgebildet.

Die zeitabhängige Entwicklung der Dichtematrix ρ unter Einwirkung des elektrischen Feldes $\mathcal{E}(t)$ lässt sich mithilfe der Von-Neumann Gleichung beschreiben [Sch07], welche die Zeitableitung des Dichteoperators mit dem Kommutator $[H, \rho]$ verknüpft:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \rho = [H, \rho] - i\hbar \gamma \circ (\rho - \rho_0), \quad \text{mit } \gamma = \begin{pmatrix} \frac{1}{T_1} & \frac{1}{T_2^*} \\ \frac{1}{T_2^*} & \frac{1}{T_1} \end{pmatrix}, \quad \rho_0 = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (3.16)$$

Das elementweise Produkt $\gamma \circ (\rho - \rho_0)$ führt eine phänomenologische Dämpfung ein, welche der Relaxation der Population mit der Zeitkonstanten T_1 und der Dephasierung der Polarisation mit der Zeitkonstanten T_2^* Rechnung trägt. Setzt man die elementweise Form der Dichtematrix (Gl. 3.11) und den Hamiltonoperator aus Gl. 3.15 explizit in die Von-Neumann Gleichung ein, so erhält man gekoppelte Differenzialgleichungen, welche die Dynamik des Ensembles von Zwei-Niveau-Systemen beschreiben:

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_{11} = \frac{i}{2} \mu_{12} \mathcal{E}(t) (\rho_{12} - \rho_{12}^*) + \frac{1}{T_1} \rho_{22} = -\frac{\partial}{\partial t} \rho_{22} \quad (3.17)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_{12} = i\rho_{12}(\omega_{21} + \Delta\Omega) + \frac{i}{2} \mu_{12} \mathcal{E}(t) (\rho_{11} - \rho_{22}) - \frac{1}{T_2^*} \rho_{12} = \frac{\partial}{\partial t} \rho_{21}^* \quad (3.18)$$

Hierin bezeichnet $\Delta\Omega = (\mu_{22} - \mu_{11})\mathcal{E}(t)$ den Beitrag der permanenten Dipolmomente und $\omega_{21} = \omega_2 - \omega_1$ die Resonanzfrequenz des Zwei-Niveau-Systems. Die Differenzialgleichungen im Rahmen des Dichtematrix-Formalismus erlauben eine anschauliche, qualitative Interpretation. In Gl. 3.17 koppelt das oszillierende elektrische Feld $\mathcal{E}(t)$ über das Dipolmoment μ_{12} an den Imaginärteil der Polarisation. Je nach Phase des elektrischen Feldes führt dies zu einer An- oder Abregung des Zwei-Niveau-Systems und damit einer Änderung der Population ρ_{11} . Die longitudinale Relaxation führt mit der Zeitkonstanten T_1 zu einem exponentiellen Zerfall der Population im oberen Subband und einem Anwachsen der Population im unteren Subband.

Die Polarisation in Gl. 3.18 oszilliert zunächst mit ihrer Eigenfrequenz ω_{21} . Die permanenten Dipolmomente μ_{nn} führen, solange ein treibendes elektrisches Feld vorliegt, zum Aufbau einer zusätzlichen, transienten Polarisation, deren Änderungsrate von der momentanen Stärke des Feldes abhängt. Das elektrische Feld beeinflusst zudem, vermittelt durch das Dipolmoment μ_{12} des Übergangs, die Polarisation. Je nach Phase des Lichtfeldes $\mathcal{E}(t)$ und Vorzeichen der Besetzungsinversion $\rho_{22} - \rho_{11}$ liefert der zweite Summand in Gl. 3.18 entweder einen positiven oder negativen Beitrag.

Ob die Polarisation dabei auf- oder abgebaut wird, also Absorption oder stimulierte Emission vorliegt, hängt von der relativen Phase zwischen Lichtfeld und Polarisation ab. Dies eröffnet die Perspektive, durch ausreichend intensive elektrische Felder die Population des ISB-Übergangs kohärent zu manipulieren. Der Dämpfungsterm führt zu einer Abnahme der Polarisation mit der transversalen Relaxationszeit T_2^* .

Gemäß den Maxwell-Gleichungen führt eine zeitabhängige Polarisation zu einem oszillierenden elektrischen Feld, welches abgestrahlt wird und auch selbst wieder zu einer Anregung führen kann. Um dies zu berücksichtigen, wird im Rahmen der numerischen Lösung der Differenzialgleichungen das elektrische Feld selbstkonsistent gemäß dem Ausdruck

$$\mathcal{E}(t) = \mathcal{E}_{\text{THz}}(t) + \Lambda \mu_0 \frac{c}{2n} \frac{\partial \rho_{12}}{\partial t} \quad (3.19)$$

berechnet [Kir06]. Dabei sind μ_0 die Vakuumpermeabilität, c die Lichtgeschwindigkeit und n der Brechungsindex des Materials. Die Konstante Λ beschreibt die Kopplung des Elektronenensembles an das Fernfeld und wird den experimentellen Ergebnissen angepasst. Das Feld des eingestrahlten THz-Impulses $\mathcal{E}_{\text{THz}}(t)$ wird separat experimentell bestimmt (siehe Abschnitt 2.4.3) und als treibendes Feld in den Differenzialgleichungen verwendet.

Eine geschlossene Lösung dieser Differenzialgleichungen existiert für ein beliebiges elektrisches Feld nicht, zumindest solange man auf weitere Näherungen verzichtet. Daher wurden die Gleichungen mithilfe eines Runge-Kutta-Verfahrens achter Ordnung durch numerische Integration gelöst. Die Parameter wurden dabei soweit möglich direkt aus den experimentellen Daten übernommen, sodass $T_1 = 5,0$ ps, $T_2^* = 2,2$ ps und $\omega_{21}/2\pi = 2,7$ THz gewählt wurden. Das Dipolmoment $\mu_{12}/e = 3,8$ nm stammt ebenso wie $\mu_{22}/e - \mu_{11}/e = -18,2$ nm aus den in Kapitel 3.3 vorgestellten Bandstrukturechnungen. Für den Brechungsindex wurde der Wert $n = 3,6$ [Heb04] von GaAs verwendet.

Das vorgestellte semiklassische Modell ermöglicht es, die experimentelle Abfolge der THz-Impulse nachzustellen und so die beobachteten Nichtlinearitäten zu rekonstruieren. Die Polarisationsantwort $\mathcal{E}_{\text{AB}}(t, \tau)$ des Systems, definiert über das abgestrahlte Feld (zweiter Summand in Gleichung 3.19), ist das Ergebnis einer Anregung mit einem elektrischen Feld der Form $\mathcal{E}_{\text{THz}}(t, \tau) = \mathcal{E}_0(t) + \mathcal{E}_0(t - \tau)$, wobei die Wellenform $\mathcal{E}_0(t)$ in Abb. 2.10 gezeigt ist. Entsprechend definieren sich auch die linearen Beiträge $\mathcal{E}_A(t)$

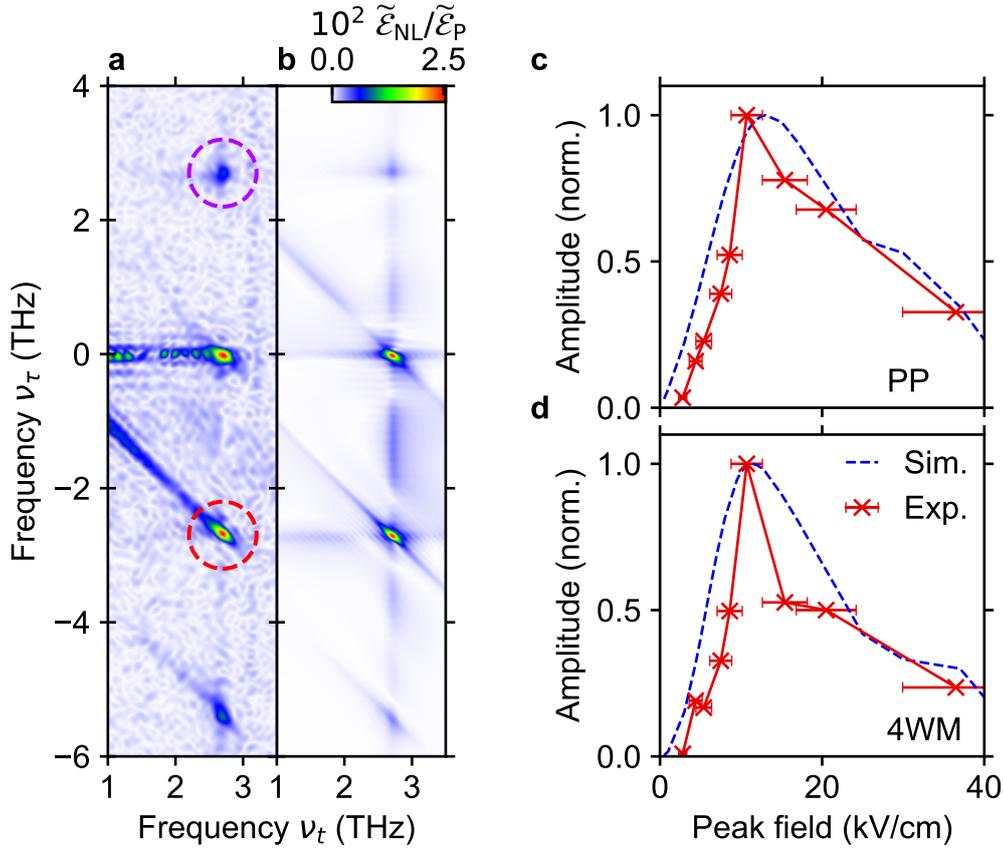


Abbildung 3.6: Numerische Modellierung der 2D-Spektroskopie an ISB-Übergängen. **a**, 2D-Amplitudenspektrum der nichtlinearen Antwort des ISB-Übergangs aus Abb. 3.4. **b**, 2D-Amplitudenspektrum der im Rahmen des Dichtematrix-Formalismus (siehe Text) numerisch berechneten, nichtlinearen Antwort eines Zwei-Niveau-Systems mit einer Übergangsfrequenz von 2,7 THz. **c**, Rot: Verlauf der Amplitude des Anrege-Abtast-Signals (PP) im Fourier-Spektrum als Funktion der angelegten Spitzenfeldstärke (siehe roter Kreis in a). Blau: Entsprechende Werte für das simulierte Zwei-Niveau-System in b. **d**, Wie in c, jedoch für das Vier-Wellen-Mischsignal (4WM, violett markiert in a).

und $\mathcal{E}_B(t, \tau)$. Durch sukzessives Lösen der Gleichungen 3.17 und 3.18 für verschiedene Werte von τ und Subtraktion der individuellen Lösungen für $\mathcal{E}_A(t)$ und $\mathcal{E}_B(t, \tau)$ kann die vollständige, zweidimensionale nichtlineare Antwort des Zwei-Niveau-Systems in der Zeitdomäne rekonstruiert werden.

Für die Spitzenfeldstärke von 11 kV cm^{-1} ist in Abb. 3.6b das auf diesem Weg numerisch berechnete, zweidimensionale Amplitudenspektrum neben den experimentellen

Daten (Teilbild a) aufgeführt. Wie der Vergleich zeigt, ist die Simulation in der Lage, die im Experiment sichtbaren Signaturen hervorragend wiederzugeben. Insbesondere sagt das Modell die spektrale Form sowie die relativen Amplituden von Vier-Wellen-Mischsignalen und Anrege-Abtast-Signalen korrekt vorher.

Die Abbildungen 3.6c und 3.6d geben den bereits in Abschnitt 3.4.2 diskutierten und in Abb. 3.5 aufgeführten Verlauf der integrierten Amplituden von Anrege-Abtast- und Vier-Wellen-Mischsignalen als Funktion der Spitzenfeldstärke des anregenden THz-Transienten wieder. Die blauen Strichlinien zeigen die gleichermaßen bestimmten Amplituden für die simulierten 2D-Amplitudenspektren, welche die experimentellen Befunde sehr gut reproduzieren. Die Kurven weisen jedoch einen leicht unterschiedlichen Verlauf für hohe Feldstärken auf, der am Vier-Wellen-Mischsignal besonders deutlich wird. Während die Amplitude im Experiment nach dem Maximum sehr schnell abfällt, fällt die Reduktion des Signals im Modell moderater aus. Dies ist ein Hinweis darauf, dass der Zerfall des experimentellen Signals in Teilen auf Dephasierungsprozesse zurückzuführen ist, welche erst bei hohen Anregungsdichten auftreten und im Modell nicht berücksichtigt sind. Dies wird insbesondere am Vier-Wellen-Mischsignal deutlich, da dieses aufgrund seiner kohärenten Natur wesentlich anfälliger für Dephasierung ist.

3.5.2 Theoretische Analyse der Subzyklen-Dynamik

Die Gegenüberstellung experimenteller und theoretischer Befunde im vorherigen Abschnitt zeigt eine ausgezeichnete Übereinstimmung, die es erlaubt, weitere, mikroskopische Befunde aus der numerischen Simulation abzuleiten. Im Gegensatz zum Experiment können in der Simulation einzelne Parameter leicht variiert oder ganz ausgeschaltet und so deren Einfluss auf die nichtlineare Antwort untersucht werden. Mithilfe dieses Verfahrens lassen sich die breitbandigen, niederfrequenten Beiträge zu den einzelnen Maxima im Amplitudenspektrum analysieren und erklären. Regt man das Zwei-Niveau-System mit schmalbandigen Impulsen und einer Zentralfrequenz in Resonanz mit dem ISB-Übergang an, so verschwinden die breitbandigen Signaturen vollständig, wie Abb. 3.7a zeigt (Abb. 3.7c zeigt zum Vergleich den gleichen Ausschnitt der vollständigen Simulation). Die niederfrequenten Beiträge stammen also von der sehr breitbandigen und teilweise nicht-resonanten Anregung durch die THz-Impulse. Dabei treiben die hochfrequenten Anteile des THz-Spektrums

eine resonante Anregung des Systems und führen damit auch zu den ausgeprägten Maxima im 2D-Amplitudenspektrum. Die wesentlich stärkeren spektralen Anteile bei der Zentralfrequenz des THz-Impulses von 1,5 THz sind zwar zur Resonanzfrequenz des ISB-Übergangs stark verstimmt, erlauben jedoch trotzdem eine schwache, nicht-resonante Anregung. Diese führt zu keiner vollständigen Besetzungsinversion, induziert jedoch trotzdem eine nichtlineare Antwort, welche zu den niederfrequenten Anteilen beiträgt.

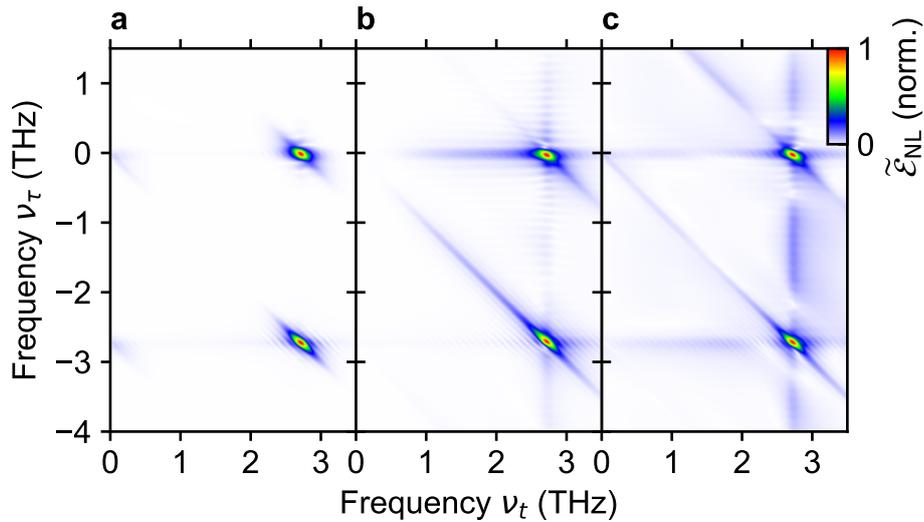


Abbildung 3.7: Detailanalyse der niederfrequenten Anrege-Abtast-Signale. **a**, Ausschnitt der simulierten Antwort des Zwei-Niveau-Systems unter Anregung mit einer schmalbandigen, resonanten Wellenform. **b**, Antwort unter Anregung mit der experimentellen Wellenform, jedoch ohne die permanenten Dipolmomente μ_{11} und μ_{22} . **c**, Die vollständige Simulation als Vergleich (Ausschnitt aus Abb. 3.4d).

Ein zweiter Mechanismus, welcher für die niederfrequenten Anteile verantwortlich ist, lässt sich durch Ausschalten des permanenten Dipolmoments μ_{nn} in Gleichung 3.18 finden. Ohne diesen Term verschwinden jene niederfrequenten Anteile zu den Anrege-Abtast-Signalen, welche nicht auf den Liouvillepfaden zu den Maxima liegen sowie Beiträge in der Nähe von $\nu_t = 0$, wie Abb. 3.7b zeigt. Da der Beitrag $\Delta\Omega \propto \mathcal{E}(t)$ zur Zeitableitung der Polarisation nur während der Anregung eine Rolle spielt, wenn also $\mathcal{E}(t) \neq 0$, ist eine nichtlineare Antwort nur für kleine τ zu erwarten und eine sehr breitbandige Signatur entlang ν_r die Folge. Die in dieser kurzen Zeit induzierte Polarisation kann jedoch nur über das Dipolmoment bei der Frequenz des ISB-

Übergangs abgestrahlt werden, was das Zustandekommen der Signale zwischen den Hauptmaxima bei $\nu_t = 2,7$ THz erklärt. Die verbliebenen Anteile, welche für den Fall $\mu_{nm} = 0$ verschwinden, lassen sich als Differenzfrequenzgeneration zwischen den beiden Impulsen auffassen, die durch die gebrochene Inversionssymmetrie der asymmetrischen Wellenfunktionen in den Quantentrögen ermöglicht wird.

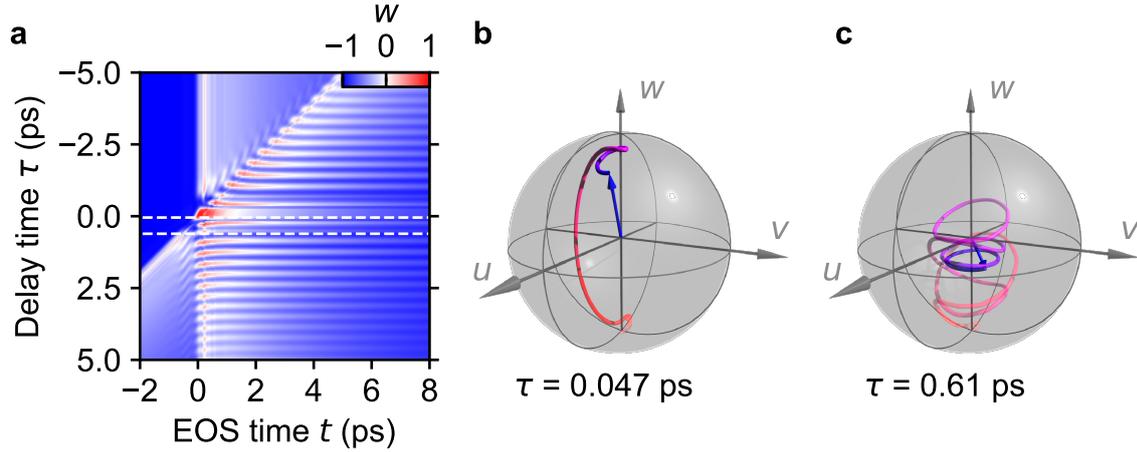


Abbildung 3.8: Rabi-Oszillation auf Zeitskalen der Periodendauer der Trägerwelle. **a**, Simulierte Besetzungsinversion $w = \rho_{22} - \rho_{11}$ des Zwei-Niveau-Systems als Funktion der Verzögerungszeiten t und τ , wie sie im Rahmen der 2D-THz-Spektroskopie in der Probe bei einer Spitzenfeldstärke von 15 kV cm^{-1} angeregt wird. **b**, Trajektorie des Blochvektors $\mathbf{B} = (\text{Re}(\rho_{12}), \text{Im}(\rho_{12}), w)$ für eine Verzögerungszeit $\tau = 0,047$ ps (obere weiße Linie in a), bei der die anregenden Felder konstruktiv interferieren. Der Farbverlauf von rot nach blau symbolisiert die Zeitrichtung von frühen zu späten Verzögerungszeiten. **c**, Blochvektor wie in b, jedoch für eine Verzögerungszeit $\tau = 0,61$ ps (untere weiße Linie in a), was einer Phasenverschiebung der anregenden Felder um π bei der ISB-Frequenz $\nu_{\text{ISB}} = 2,7$ THz entspricht.

Das numerische Modell ermöglicht es, mikroskopische Parameter der Probe zu extrahieren, welche durch das Experiment nicht direkt zugänglich sind. Dies betrifft insbesondere die absoluten Werte der Einträge der Dichtematrix, welche zwar in ihrer Dynamik durch die 2D-THz-Spektroskopie abgebildet aber experimentell nicht in ihrem absoluten Betrag bestimmt werden können. Abb. 3.8a zeigt die simulierte Populationsinversion $w = \rho_{22} - \rho_{11}$ in farbcodierter Darstellung als Funktion der Verzögerungszeiten t und τ für eine Anregung des Systems mit zwei THz-Impulsen und einer Spitzenfeldstärke von 15 kV cm^{-1} . Negative Werte von w (blau) bedeuten

dabei eine überwiegende Population des Grundzustands, während positive Werte (rot) bereits für eine Besetzungsinversion des Systems stehen.

Die starke Modulation der Besetzung entlang beider Zeitachsen auf Zeitskalen kleiner als die Dephasierungszeit T_2^* deutet auf eine kohärente Anregungsdynamik hin, welche zu einer nahezu vollständigen Besetzungsinversion auf Zeitskalen der Periode der optischen Trägerwelle führt. Dies lässt sich geometrisch anhand des Blochvektors $\mathbf{B} = (u, v, w)$ verdeutlichen, wobei die Koordinaten u und v den Real- und Imaginärteil der Polarisation $\rho_{12} = u + iv$ bezeichnen. In Abb. 3.8b ist die Dynamik der Population für eine Verzögerungszeit von $\tau = 0,047$ ps (obere weiße Strichlinie in a) zwischen den beiden anregenden Impulsen anhand der Trajektorie des Blochvektors dargestellt. Der Farbverlauf von rot nach blau symbolisiert dabei verschiedene Zeitpunkte entlang der Zeitachse t . Für die gewählte Verzögerungszeit τ erzeugt der erste Impuls eine Gleichbesetzung des Systems, welche vom darauf folgenden Impuls kohärent zu einer Besetzungsinversion von $w = 0,9$ vergrößert wird. Diese ultraschnelle Rabi-Oszillation geschieht innerhalb von 300 fs, was kürzer ist, als eine Oszillationsperiode des ISB-Übergangs. Im Bild des Blochvektors zeigt sich diese kohärente Anregung auf Subzyklen-Zeitskalen daran, dass der überwiegende Anstieg der Population innerhalb ein und desselben Quadranten der u - v -Ebene stattfindet, ohne dabei vollständig um die w -Achse zu rotieren, wie es bei einer langsamen (kohärenten) Anregung der Fall wäre.

Die Situation stellt sich für eine Verzögerungszeit von $\tau = 0,61$ ps (untere Strichlinie in a) jedoch völlig anders dar, wie in Abb. 3.8c gezeigt ist. Der zweite Impuls weist bei der Resonanzfrequenz von 2,7 THz eine Phasenverschiebung von π gegenüber der vom ersten Impuls erzeugten Polarisation des Systems auf. Die zunächst erzeugte Besetzung des oberen Niveaus wird aufgrund dieses Phasenunterschieds kohärent reduziert und die maximal erreichte Besetzungsinversion bleibt weit hinter dem Wert einer vollständigen Rabi-Oszillation für phasengleiche Anregung zurück. Dies wird auch an der Bahn des Blochvektors deutlich, der während der Wechselwirkung mit dem elektrischen Feld mehrere Umläufe in der u - v -Ebene ausführt, aber dennoch nur kurz den Bereich $w > 0$ überschreitet. Die nach der Anregung verbleibende Population für späte Verzögerungszeiten t (blauer Bereich der Trajektorie) ist auf die Dephasierung des Systems zurückzuführen. Diese erlaubt keine vollständige, kohärente Abregung durch den zweiten Impuls, sodass eine Population im System verbleibt, welche mit der Lebensdauer T_1 relaxiert.

Die unterschiedliche Populationsdynamik der beiden betrachteten Verzögerungszeiten findet auf Zeitskalen statt, welche vergleichbar sind sowohl mit der Oszillationsperiode der elektrischen Trägerwelle als auch mit der Resonanzfrequenz des ISB-Übergangs. Dieses extreme Regime der Licht-Materie-Wechselwirkung, in dem das Zwei-Niveau-System Rabi-Oszillationen auf Zeitskalen ausführt, welche vergleichbar sind mit seiner Resonanzfrequenz (engl. „Carrier-wave Rabi flopping“), wurde so bislang lediglich bei nahinfraroten Wellenlängen beobachtet [Müc01] und in der vorliegenden Arbeit erstmalig an Halbleiter-Heterostrukturen bei THz-Frequenzen demonstriert [Raa19]. Die Beschreibung der Dynamik im Bild des Blochvektors liefert auch eine anschauliche Begründung für das Sättigungsverhalten der vorgestellten Struktur. Ist die Feldstärke des anregenden Transienten hoch genug, so wird der Blochvektor weit über die Ebene $w = 0$ ausgelenkt und die Besetzung des Systems invertiert. Ein darauf folgender Impuls kann den Blochvektor nicht weiter auslenken und erfährt somit geringere Verluste, bei ausreichend langer Lebensdauer des oberen Niveaus sogar eine Verstärkung durch stimulierte Emission. Aufgrund der langen Kohärenzzeiten und Lebensdauern des vorgestellten Systems kann dieser Prozess sogar innerhalb eines einzelnen, hochintensiven Impulses ablaufen. Dieser kohärente Sonderfall der sättigbaren Absorption, die sogenannte selbstinduzierte Transparenz, stellt ein vielversprechendes Konzept zur Realisierung von sättigbaren Absorbern mit minimalen Verlusten im gesättigten Zustand dar, da keine Energie des Laserimpulses durch inkohärente Relaxation verloren geht [Kal99].

3.5.3 Sättigungsfeldstärke bei resonanter Anregung

Die vorstehend beschriebene, kohärente Anregung und Sättigung des ISB-Übergangs auf Subzyklen-Zeitskalen geschieht im Experiment bei Spitzenfeldstärken der anregenden THz-Impulse von etwa 11 kV cm^{-1} , die mittels optischer Gleichrichtung in LiNbO_3 erzeugt wurden. Dieser Generationsmechanismus erlaubt zwar einerseits Transienten mit hohen Spitzenfeldstärken, die eine Sättigung des Zwei-Niveau-Systems möglich machen, jedoch auch großes, spektrales Gewicht außerhalb der Resonanzfrequenz des untersuchten Übergangs aufweisen. Damit trägt nur ein begrenzter Teil der eingestrahnten THz-Leistung überhaupt zur Invertierung des Systems bei und die nötigen Spitzenfeldstärken sind wesentlich höher, als es bei einer resonanten Anregung der Fall wäre. Die Resonanzfrequenz von Mehrfachquantentrogstrukturen

lässt sich jedoch durch Änderung der geometrischen Parameter an die geforderte Frequenz anpassen. Die vorgestellten Simulationen ermöglichen eine Abschätzung der für die Sättigung des Systems nötigen Feldstärken unter resonanter Anregung, die für zukünftige Anwendungen eine wichtige Kenngröße darstellt.

Die kürzesten und damit auch spektral breitesten THz-Impulse aus aktiv modenkoppelten QCLs, die bisher demonstriert wurden, weisen eine Impulsdauer von 4 ps [Wan17] bei einer näherungsweise Gauß-förmigen Feldeinhüllenden auf. Verwendet man eine Wellenform mit diesen Impulsparametern und einer Zentralfrequenz von 2,7 THz als treibendes Feld der Simulation, so erreicht man eine vollständige Sättigung des Systems bereits bei einer Spitzenfeldstärke von etwa 1 kV cm^{-1} . Die resonante Anregung reduziert die Sättigungsfeldstärke also bereits um etwa eine Größenordnung, sodass diese durchaus im Bereich dessen liegt, was moderne QCLs zu erreichen vermögen. Wenngleich das Fernfeld bei beugungsbegrenzter Fokussierung noch im Bereich einiger 10 V cm^{-1} liegt, so kann die Mode im Resonator des Lasers Werte von über 150 V cm^{-1} erreichen [Wan15]. Durch Optimierung von Strukturparametern wie beispielsweise der verwendeten Dotierung, der Barrierendicke oder dem Dipolmoment des Übergangs sollte die Sättigungsschwelle so weit reduziert werden können, dass bereits mit heute verfügbaren QCLs eine für die Modenkopplung ausreichende Sättigung erreicht werden kann. Auch eine maßgeschneiderte Implementierung des Absorbers in den Laserresonator lässt geringere Sättigungsfeldstärken erwarten.

Die beobachteten kohärenten und inkohärenten Beiträge zur Inversion des ISB-Übergangs ermöglichen eine schnelle Sättigung des Absorbers auf Zeitskalen von wenigen 100 fs und versprechen so Impulsdauern von wenigen Schwingungen des elektrischen Trägerfeldes bei gleichzeitig geringen Verlusten im gepulsten Betrieb [Kal98]. Zudem relaxiert der Absorber mit einer Zeitkonstante von 5 ps schneller, als sich die Verstärkung in einem QCL nach dem Durchlaufen eines THz-Impulses wieder erholt [Cho08, Gre09, Bac16, Der18]. Damit kann ein Dauerstrichbetrieb zwischen einzelnen Impulsen effektiv unterdrückt werden. Diese vorteilhaften dynamischen Eigenschaften zusammen mit der Flexibilität der Materialparameter machen ISB-Übergänge zu einem potenziellen sättigbaren Absorber zur passiven Modenkopplung halbleiterbasierter THz-Quellen.

Dynamik von Intersubband-Polaritonen unter intensiver THz-Anregung

ISB-Übergänge in Halbleiter-Heterostrukturen erlauben, wie im vorherigen Kapitel experimentell und theoretisch gezeigt wurde, eine Inversion der Population und damit eine Sättigung der Absorption auf Subzyklen-Zeitskalen. Dies liegt einerseits in ihrem hohen Dipolmoment begründet, welches zu einer starken Wechselwirkung mit dem elektromagnetischen Feld führt. Andererseits erlaubt die lange Dephasierungszeit der Polarisation von 2,2 ps eine kohärente und entsprechend schnelle Erzeugung der Besetzungsinversion, welche kohärent moduliert werden kann. Die weitgehend frei einstellbare Resonanzfrequenz des ISB-Übergangs macht ihn damit zu einem vielversprechenden System auf dem Weg hin zu passiv modengekoppelten QCLs. Die trotz allem hohen Feldstärken, die für eine vollständige Sättigung des Systems erforderlich sind, verlangen jedoch nach weiteren Optimierungen, welche bereits teilweise angesprochen wurden.

Neben Änderungen an der Halbleiterstruktur selbst bietet sich eine Kombination aus mikrostrukturierten, metallischen Resonatoren und ISB-Übergängen als erfolgversprechende Alternative an. Das Nahfeld der Resonatoren überhöht im Resonanzfall das treibende elektrische Feld in direkter Umgebung der plasmonischen Struktur [Zhe12, Lan14] und koppelt an das hohe Dipolmoment des ISB-Übergangs. Folglich reduziert die Feldüberhöhung das externe Feld, welches für eine vollständige

Anregung des Systems nötig ist. Gleichzeitig konzentriert sich das Nahfeld auf ein kleines Volumen der Heterostruktur und reduziert so die Zahl an Elektronen, welche zur vollständigen Sättigung angeregt werden müssen. Die starke Ankopplung des Metamaterials an das Fernfeld stellt dabei zugleich eine hohe Modulationstiefe der gesamten Struktur sicher. Durch Variation der geometrischen Parameter kann die Resonanzfrequenz des Metamaterials frei eingestellt und so an die Zentralfrequenz des ISB-Übergangs angepasst werden, sodass die Struktur weiterhin für die jeweilige Anwendung optimiert werden kann.

Die resonante Kopplung von Lichtfeld und ISB-Übergang eröffnet ein völlig neues Regime, das als ultrastarke Licht-Materie-Wechselwirkung bezeichnet wird. Die ultrastarke Kopplung führt zu einem Austausch von Energie zwischen Lichtfeld und Materie, der mit der sogenannten Vakuum-Rabifrequenz Ω_R periodisch abläuft [For19, Fri19]. Durch diese zusätzliche Dynamik spaltet die einzelne optische Resonanz des Metamaterials in zwei neue Eigenmoden auf, welche einen spektralen Abstand von $2\Omega_R$ aufweisen und als Resonator-Polaritonen (im Weiteren kurz „Polaritonen“) bezeichnet werden [Fri19].

Koppelt man ISB-Übergänge ultrastark an die Mode eines Resonators, so ist unter starker Anregung durch ein externes elektrisches Feld eine Besetzungsinversion zu erwarten. Diese verringert die Oszillatorstärke des ISB-Übergangs so weit, dass die ultrastarke Kopplung zusammenbricht und die beiden Polaritonen auf die Resonanz des reinen Resonators kollabieren. Dieser Mechanismus zur Sättigung von ISB-Polaritonen konnte bereits im nah- und mittelinfraroten Spektralbereich beobachtet werden [Hou95, Zan12, Zan15] und stellt einen vielversprechenden Ansatz für die Verwendung von ISB-Polaritonen als sättigbare Absorber zur Erzeugung ultrakurzer Impulse aus THz-QCLs dar.

Lassen die Ergebnisse des reinen ISB-Übergangs bereits eine schnelle Dynamik erwarten, so verspricht der ultraschnelle Energieaustausch zwischen Resonatormode und Materieanregung eine grundlegend andere Dynamik des ultrastark gekoppelten ISB-Übergangs. Zudem konnte bislang lediglich der inkohärente Zusammenbruch der ultrastarken Licht-Materie-Wechselwirkung beobachtet werden. 2D-THz-Spektroskopie ermöglicht es nun erstmalig, auch die kohärenten Nichtlinearitäten vollständig zu beobachten.

Sie stellt das ideale Werkzeug dar, um sowohl die Population des ISB-Übergangs als auch die Polarisation der gekoppelten Licht-Materie-Zustände zeitaufgelöst zu

untersuchen. Das Verfahren erlaubt eine direkte Beobachtung der Dynamik der Polaritonen und gibt Aufschluss über alle Zeitskalen, welche für eine Verwendung des vorgeschlagenen Systems als sättigbarer Absorber von Bedeutung sind.

Das folgende Kapitel gibt daher zunächst einen kurzen Einblick in die Theorie der ultrastarken Kopplung. An einer dezidiert hergestellten Probe kann der Zusammenbruch der ultrastarken Kopplung mit steigender Spitzenfeldstärke der THz-Impulse demonstriert und die Dynamik der Sättigung mittels 2D-THz-Spektroskopie untersucht werden. Mithilfe eines semiklassischen Modells können die experimentellen Daten vollständig reproduziert werden, was tiefere Einblicke in die mikroskopische Dynamik der ISB-Polaritonen liefert.

4.1 Regime der ultrastarken Licht-Materie-Kopplung

Das Dipolmoment von optischen Übergängen in Atomen und Molekülen ist ein entscheidender Faktor, der die Übergangsrates und damit die Emission elektromagnetischer Strahlung maßgeblich beeinflusst. So ist beispielsweise die Rate der spontanen Emission von Licht einer bestimmten Wellenlänge aus angeregten Atomen direkt proportional zum Dipolmoment und damit zunächst eine intrinsische Größe der betrachteten Emitter [Sch07]. Edward Purcell konnte jedoch bereits 1946 zeigen [Pur46], dass die Umgebung der Lichtquelle erheblichen Einfluss auf die Rate der spontanen Emission nimmt. Ein Resonator, wie in Abb. 4.1a gezeigt, mit einer Frequenz, abgestimmt auf die Wellenlänge des emittierten Lichts, senkt das Modenvolumen des elektrischen Feldes und erhöht damit die Dichte der Endzustände [Pel15]. Fermis Goldene Regel sagt eine Übergangsrates vorher, welche proportional zu dieser Zustandsdichte ist [Sch07], sodass der Resonator effektiv die Wahrscheinlichkeit spontaner Emission elektromagnetischer Strahlung erhöhen kann.

Senkt man die Verlustrate des Resonators und verringert das Modenvolumen weiter, so verlässt man den Bereich schwacher Kopplung zwischen Licht und Materie. Übersteigt die Rate von Emission und Absorption elektromagnetischer Strahlung durch die resonante Materieanregung die Verlustrate, spricht man vom Regime der starken und ultrastarken Kopplung [For19, Fri19]. Das Regime der starken Licht-Materie-Kopplung wurde zum ersten Mal in Rydberg-Atomen demonstriert [Kal83], konnte zwischenzeitlich aber in einer Vielzahl von Systemen beobachtet werden, wie beispielsweise Exzitonen [Wei92], Quantenpunkten [Lod15] oder supraleitenden Qubits [Gu17],

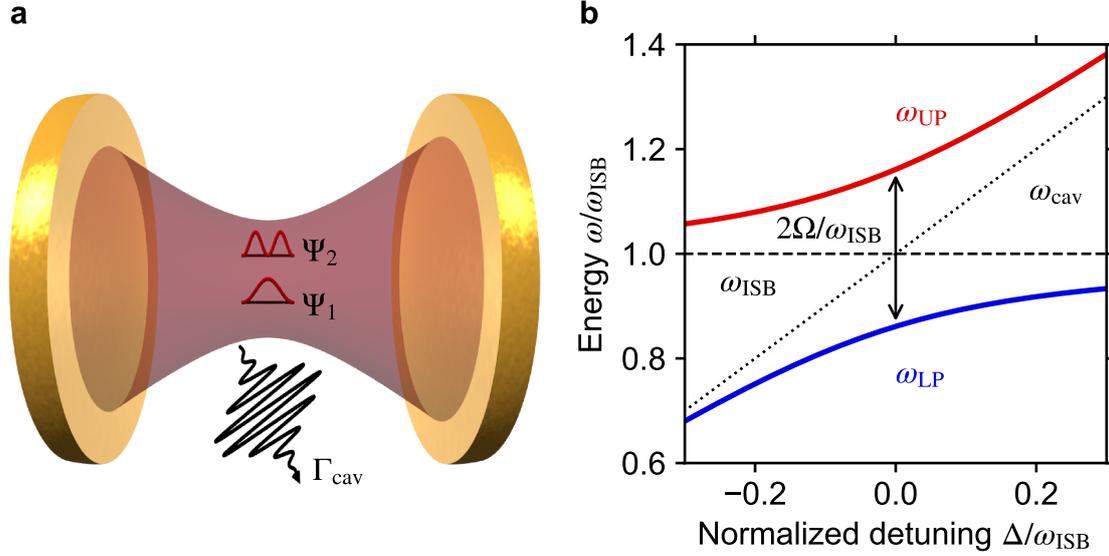


Abbildung 4.1: Ultrastarke Licht-Materie-Kopplung von Intersubband-Übergängen. **a**, Ein Resonator (sphärische Goldspiegel) konzentriert das elektrische Feld einer resonanten Lichtmode (rot, transparent) auf Längenskalen, deutlich kleiner als die Vakuumwellenlänge. Ein Materiesystem (Wellenfunktionen Ψ_1 , Ψ_2) in Resonanz zur Resonanzmode koppelt an das elektrische Feld, was bei ausreichend geringer Dämpfung des Resonators (Γ_{cav}) zu einem periodischen Austausch von Energie zwischen Materie und Lichtmode mit der Vakuum-Rabifrequenz Ω_R führt. **b**, Dieser Austausch hat eine Aufspaltung der Resonanzmode bei der Frequenz ω_{cav} in zwei neue Resonanzen (rot: oberes Polariton, ω_{UP} ; blau: unteres Polariton, ω_{LP}) zur Folge. Im Resonanzfall, d.h. bei einer Verstimmung $\Delta = \omega_{\text{cav}} - \omega_{\text{ISB}} = 0$, ist der energetische Abstand der Polaritonen minimal und beträgt $2\Omega_R$. (Nach [Gün09, Den10])

wo auch bereits ultrastarke Kopplung erzielt wurde. Die Kopplungsstärke $\kappa = \frac{2\Omega_R}{\omega_0}$, definiert über die Vakuum-Rabifrequenz Ω_R und die Frequenz der Materieresonanz ω_0 , erreicht mittlerweile Werte von über 2 [Yos17] mit einem Rekordwert von $\kappa = 2,8$ in ultrastark gekoppelten, Landau-quantisierten, zweidimensionalen Elektronengasen [Bay17].

ISB-Übergänge versprechen aufgrund ihres hohen Dipolmoments ebenfalls hohe Kopplungsstärken und erlauben zudem eine Sättigung der Materiemode, was für die Verwendung als sättigbarer Absorber entscheidend ist. In mehreren Publikationen konnte das Regime der ultrastarken Kopplung von ISB-Übergängen an Mikroresonatoren bereits demonstriert werden [Din03, Ana09, Jou11], wobei Kopplungsstärken von

bis zu $\kappa = 0,9$ [Ask17] realisiert wurden. Ultrakurze NIR-Laserimpulse erlauben es, die Entstehung von ISB-Polaritonen auf fs-Zeitskalen zu beobachten und gleichzeitig die Kopplungsstärke über die Spitzenintensität zu manipulieren [Gün09].

Die folgenden, theoretischen Überlegungen sollen ein grundlegendes Verständnis der ultrastarken Licht-Materie-Kopplung liefern und aufzeigen, dass dieses extreme Regime der Licht-Materie-Wechselwirkung einen wesentlichen Beitrag zur Entwicklung von sättigbaren Absorbern im THz-Bereich leistet. Eine theoretische Beschreibung der ultrastarken Kopplung von ISB-Übergängen an eine Resonatormode kann sich nicht mehr auf eine Betrachtung der Materieanregung allein beschränken, wie es für die Beschreibung der Mehrfachquantentrogstruktur in Kapitel 3 ausreichend war. Vielmehr muss das gekoppelte System aus Lichtmode und Materie beschrieben werden, um die vollständige Dynamik zu erhalten [For19]. Hierzu formuliert man den Hamilton-Operator in Gl. 3.5 im Rahmen der zweiten Quantisierung und erhält den Hopfield-ähnlichen Operator, welcher das Lichtfeld und die elektronische Polarisation enthält [Ciu05]:

$$H = \hbar\omega_{\text{ISB}}\mathbf{b}^\dagger\mathbf{b} + \hbar\omega_{\text{cav}}\mathbf{a}^\dagger\mathbf{a} + \hbar\Omega_{\text{R}}(\mathbf{b} + \mathbf{b}^\dagger)(\mathbf{a} + \mathbf{a}^\dagger) + \hbar D(\mathbf{a} + \mathbf{a}^\dagger)^2 \quad (4.1)$$

Die Operatoren \mathbf{a}^\dagger (\mathbf{a}) und \mathbf{b}^\dagger (\mathbf{b}) in H erzeugen (vernichten) jeweils ein Photon der Resonatormode bzw. eine ISB-Anregung. Der Hamilton-Operator zerfällt in drei Anteile, welche grundsätzlich unterschiedliche Beiträge zur Gesamtenergie liefern. Der erste enthält die Energiebeiträge der ungekoppelten Resonatormode mit der Frequenz ω_{cav} sowie des ISB-Übergangs mit der Frequenz ω_{ISB} , welche proportional zu den Besetzungszahloperatoren $\mathbf{a}^\dagger\mathbf{a}$ und $\mathbf{b}^\dagger\mathbf{b}$ sind.

Der zweite Anteil beschreibt die Licht-Materie-Wechselwirkung mit der Vakuum-Rabifrequenz Ω_{R} und enthält einerseits resonante Anteile ($\mathbf{a}^\dagger\mathbf{b}$, $\mathbf{a}\mathbf{b}^\dagger$), welche die Emission (Absorption) eines Photons bei gleichzeitiger Vernichtung (Erzeugung) einer ISB-Anregung beschreiben. Andererseits enthält er auch anti-resonante Beiträge ($\mathbf{a}^\dagger\mathbf{b}^\dagger$, $\mathbf{a}\mathbf{b}$), welche unter Vernachlässigung schnell rotierender Terme nicht im Hamilton-Operator enthalten wären. Im Regime der ultrastarken Kopplung, wenn die Vakuum-Rabifrequenz von gleicher Größenordnung wie die ISB-Frequenz ist, bricht diese Näherung jedoch zusammen und die antiresonanten Terme müssen berücksichtigt werden. Diese beschreiben die gleichzeitige Erzeugung ($\mathbf{a}^\dagger\mathbf{b}^\dagger$) oder Vernichtung ($\mathbf{a}\mathbf{b}$) von ISB-Anregung und Resonatorphoton.

Der dritte Anteil wird als diamagnetischer Term bezeichnet. Er besteht lediglich aus Beiträgen photonischer Operatoren und entsteht aus dem quadrierten Vektorpotenzial \mathbf{A} im Hamilton-Operator Gl. 3.5 der Licht-Materie-Wechselwirkung. Er führt bei großen Vakuum-Rabifrequenzen zu einer reinen Blauverschiebung der Resonanzfrequenzen, da $D \approx \frac{\Omega_{\text{R}}^2}{\omega_{\text{cav}}}$ stets positiv ist.

Die Vakuum-Rabifrequenz Ω_{R} ist im Allgemeinen von den mikroskopischen Parametern des gekoppelten Systems abhängig. Dabei ist insbesondere entscheidend, wie stark die Feldmode in der Mehrfachquantentrogstruktur lokalisiert und welche individuelle Feldverteilung diese aufweist. Dieser Sachverhalt wird in einem späteren Kapitel nochmals aufgegriffen und mittels theoretischer Überlegungen untersucht. Für einen modellhaft angenommenen Fabry-Perot Resonator mit einem effektiven Abstand der Spiegel von $L_{\text{cav}}^{\text{eff}}$ lässt sich Ω_{R} jedoch als

$$\Omega_{\text{R}} = \sqrt{\frac{2\pi e^2 N_{2\text{D}}}{\epsilon m_0 L_{\text{cav}}^{\text{eff}}} n_{\text{QW}}^{\text{eff}} f_{\text{ISB}}} \quad (4.2)$$

ausdrücken [Ciu05]. Dabei entspricht ϵ der Dielektrizitätszahl des Halbleiters im Resonator, m_0 der Elektronenmasse und $n_{\text{QW}}^{\text{eff}}$ der effektiven Zahl an Quantentrögen, die an das Lichtfeld koppeln. Für den hypothetischen Fall, dass alle Quantentröge gleichermaßen an das Lichtfeld gekoppelt sind und sich an den Maxima der Resonatormode befinden, ist $n_{\text{QW}}^{\text{eff}}$ gleich der tatsächlichen Anzahl an Quantentrögen. Mit der zweidimensionalen Elektronendichte $N_{2\text{D}}$ lässt sich der Quotient $\frac{N_{2\text{D}}}{L_{\text{cav}}^{\text{eff}}}$ als effektive Dichte von Elementaroszillatoren im Resonator interpretieren. Die Oszillatorstärke $f_{\text{ISB}} = 2m_0\omega_{\text{ISB}}\mu_{12}^2/\hbar$ enthält das Dipolmoment des Übergangs und ist somit maßgeblich für die Stärke der Kopplung verantwortlich. Grundsätzlich lässt sich festhalten, dass die Vakuum-Rabifrequenz und damit die Stärke der Licht-Materie-Kopplung mit der Zahl der Quantentröge und der Elektronendichte ansteigt, sofern gewährleistet ist, dass der Überlapp mit der Mode des Resonators dabei nicht kleiner wird.

Gleichzeitig verschwindet jedoch die Vakuum-Rabifrequenz für verschwindende Oszillatorstärke zwischen erstem und zweitem Subband. Wenn also durch ausreichend starke Anregung der ISB-Übergang ausgeblencht ist, so ist $f_{12} \approx 0$ [Hou95] und die ultrastarke Kopplung bricht zusammen. Diese Eigenschaft macht ISB-Polaritonen zu einem erfolgversprechenden System zur Realisierung von sättigbaren Absorbern im THz-Bereich, wie im späteren Teil dieses Kapitels näher untersucht werden soll.

Der Hamilton-Operator in Gl. 4.1 kann diagonalisiert werden, indem neue Operatoren p_j durch

$$\mathbf{p}_j = w_j \mathbf{a} + x_j \mathbf{b} + y_j \mathbf{a}^\dagger + z_j \mathbf{b}^\dagger \quad (4.3)$$

mit $j \in \{\text{LP}, \text{UP}\}$ definiert werden. Mithilfe dieser Operatoren lässt sich H nun in der kompakten Form

$$H = \sum_j \hbar \omega_j \mathbf{p}_j^\dagger \mathbf{p}_j \quad (4.4)$$

ausdrücken. Das gekoppelte System aus Licht- und Materiemode bildet neue Eigenzustände aus, welche eine Superposition aus photonischem und Materieanteil darstellen. Diese neuen Zustände lassen sich als Quasiteilchen des ultrastark gekoppelten Systems auffassen und werden als oberes (UP) sowie unteres (LP) Polariton bezeichnet. Die Koeffizienten $\mathbf{v}_j = (w_j, x_j, y_j, z_j)$ unterliegen der Normierungsbedingung

$$w_j^* w_{j'} + x_j^* x_{j'} - y_j^* y_{j'} - z_j^* z_{j'} = \delta_{j',j} \quad (4.5)$$

und definieren, zu welchen Anteilen Licht und Materie in den neuen Eigenzuständen enthalten ist.

Die Eigenwerte ω_j entsprechen den Eigenenergien der neuen Zustände des ultrastark gekoppelten Systems. Sie lassen sich mithilfe der Hopfieldmatrix

$$M = \begin{pmatrix} 2D + \omega_{\text{cav}} & \Omega_{\text{R}} & 2D & \Omega_{\text{R}} \\ \Omega_{\text{R}} & \omega_{\text{ISB}} & \Omega_{\text{R}} & 0 \\ -2D & -\Omega_{\text{R}} & -2D - \omega_{\text{cav}} & -\Omega_{\text{R}} \\ -\Omega_{\text{R}} & 0 & -\Omega_{\text{R}} & -\omega_{\text{ISB}} \end{pmatrix} \quad (4.6)$$

aus der Eigenwertbedingung $M \mathbf{v}_j = \omega_j \mathbf{v}_j$ bestimmen und ergeben sich zu

$$\omega_j = \sqrt{\omega_{\text{ISB}}(2D + \omega_{\text{ISB}}) \pm 2\omega_{\text{ISB}} \sqrt{D^2 + \Omega_{\text{R}}^2}}. \quad (4.7)$$

Abbildung 4.1b zeigt die so berechneten, normierten Energien der Polaritonen als Funktion der Verstimmung $\Delta = \omega_{\text{cav}} - \omega_{\text{ISB}}$. Oberes (rot) und unteres (blau) Polariton zeigen ein ausgeprägtes Antikreuzungsverhalten für minimalen Abstand von Materie-

und Lichtresonanz. Ihr Energieabstand ist für den Fall $\Delta = 0$ minimal und beträgt für $D \approx \frac{\Omega_R^2}{\omega_{cav}}$ gerade $2\Omega_R$. Mit steigender Verstimmung Δ nähern sich die beiden neuen Resonanzen jedoch schnell der Resonatormode bzw. der Materiemode an.

Das beobachtete Antikreuzungsverhalten stellt einen der Schlüsselaspekte für die Verwendung von ISB-Polaritonen als sättigbare Absorber dar. Wählt man eines der beiden Polaritonen am Antikreuzungspunkt $\Delta = 0$ als Arbeitspunkt des Absorbers, so wandert die Resonanz mit steigender Anregungsdichte des ISB-Übergangs zunehmend in Richtung der Resonanz des ungekoppelten Resonators, bis die Absorption an der ursprünglichen Resonanz des Polaritons schließlich vollständig gesättigt ist. Ein sättigbarer Absorber nach diesem Prinzip verspricht nicht nur extrem kleine Sättigungsfeldstärken aufgrund der ultrastarken Kopplung, sondern bietet zudem den Vorteil geringster Verluste im gesättigten Zustand.

4.2 Experimentelle Umsetzung ultrastark gekoppelter Intersubband-Übergänge

ISB-Polaritonen zeigen, wie bereits in mehreren Arbeiten demonstriert wurde [Hou95, Zan12, Zan15], ein ausgeprägtes Sättigungsverhalten, dessen Ursprung im Verlust an Oszillatorstärke des angeregten ISB-Übergangs begründet ist. Eine Verwendung als sättigbarer Absorber in QCLs steht bislang allerdings noch aus, was nicht zuletzt an fehlenden Einblicken in die Dynamik ultrastark gekoppelter Licht-Materie-Systeme liegt. Um diese Informationen experimentell gewinnen zu können, wurde im Rahmen einer Kooperation mit der Gruppe um Prof. M. Vitiello in Pisa eine Probe realisiert, die sättigbare Absorption im relevanten Spektralbereich erlaubt und zugleich möglichst geringe Sättigungsfeldstärken verspricht.

Die Grundlage der Probe stellt die in Abschnitt 3.3 vorgestellte Mehrfachquantentrogstruktur dar. Dies bietet den entscheidenden Vorteil, die gemessene Sättigungsfeldstärke mit den Experimenten aus Abschnitt 3.4.2 vergleichen und so eine quantitative Aussage über die Vorteile von Polaritonen als sättigbare Absorber treffen zu können. Das vormals verwendete Goldgitter reicht jedoch nicht aus, um einen Resonator zu bilden. Vielmehr muss unter der Quantentrogstruktur eine zusätzliche Goldschicht eingebracht werden (siehe Nebenbild in Abb. 4.2a), welche ähnlich einem zweiten, rückseitigen Spiegel wirkt. Durch das Gitter auf der Oberseite kann das

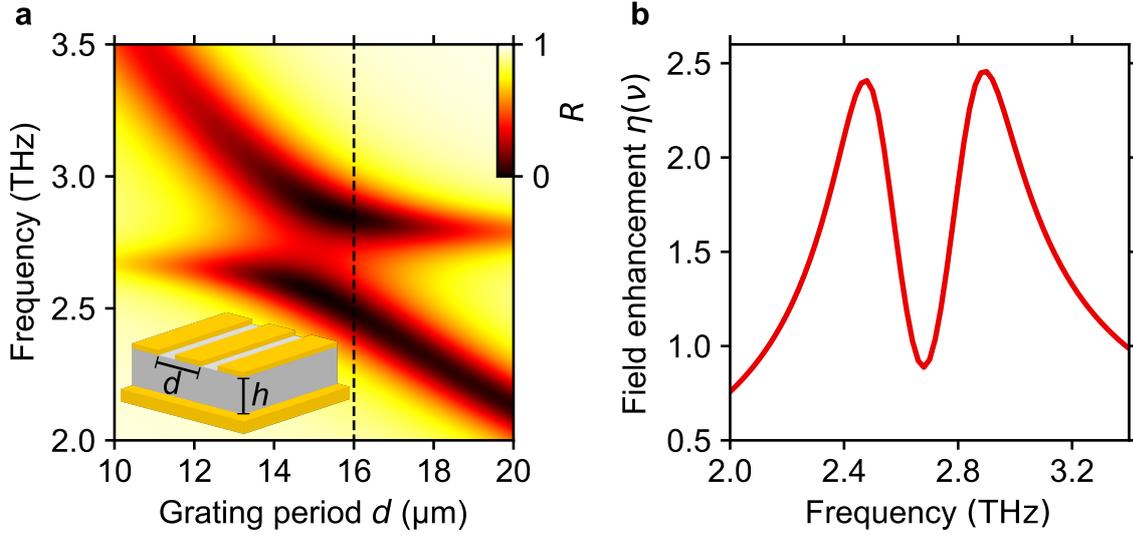


Abbildung 4.2: Feldüberhöhung des Mikroresonators. **a**, Simuliertes Reflexionsspektrum eines Mikroresonators mit Mehrfachquantentrogstruktur (Übergangsenergie: 2,7 THz) für verschiedene Gitterperioden d . Das Nebenbild zeigt eine Schemaskizze des simulierten Mikroresonators aus Gold (gelb) und der Mehrfachquantentrogstruktur (grau). Die Dicke h der Struktur beträgt $2\ \mu\text{m}$. **b**, Die simulierte, räumlich gemittelte z -Komponente der Feldüberhöhung $\eta = E_{\text{in}}/E_{\text{ext}}$ (siehe Gleichung 4.12) eines Mikroresonators mit $d = 16\ \mu\text{m}$, definiert als Verhältnis von internem zu externem Feld als Funktion der Frequenz. Für die numerische Simulation wurden die Quantenfilme als effektives Dielektrikum mit frequenzabhängiger dielektrischer Funktion angenommen.

elektrische Feld in den Resonator eindringen, was eine effiziente Anregung der Struktur durch externe Felder erlaubt. Die Kombination aus Gitter und Spiegel formt den Resonator, dessen Mode an den ISB-Übergang koppelt.

Um die geometrischen Parameter für maximale Kopplung zu bestimmen, wurden numerische Simulationen durchgeführt. Der Abstand zwischen Gitter und Goldfläche ist gleich der Dicke der Mehrfachquantentrogstruktur von $2\ \mu\text{m}$. Die Heterostruktur wird als effektives Dielektrikum betrachtet, dessen dielektrische Funktion $\epsilon(\omega)$ gemäß

$$\frac{1}{\epsilon(\omega)} = \frac{1}{\epsilon_{zz}} - \frac{f_{12}N_{2D}}{2\epsilon L_{\text{MQW}}} \frac{1}{[(\hbar\omega_{\text{ISB}})^2 - (\hbar\omega)^2] - i\hbar\Gamma\omega} \quad (4.8)$$

durch die bekannten Materialparameter gegeben ist [Za199], wobei L_{MQW} die Dicke eines Quantentrog und Γ die Dephasierungsrate ist. ϵ_{zz} berücksichtigt den

zusätzlichen Beitrag der freien Ladungsträger zur dielektrischen Antwort. Mit diesen Parametern konnte in umfassenden Finite-Elemente-Simulationen das Reflexionsspektrum der beschriebenen Struktur für verschiedene Gitterabstände d simuliert werden, wie in Abb. 4.2a als Funktion der Frequenz und des Gitterparameters gezeigt ist. Man erkennt deutlich zwei Reflexionsminima der Struktur, welche für $d \approx 16 \mu\text{m}$ einen minimalen Abstand von 0,34 THz aufweisen und für davon abweichende Gitterabstände voneinander divergieren. Dieses Verhalten entspricht dem Antikreuzungsverhalten von Polaritonen, welches in Abb. 4.1 bereits gezeigt und diskutiert wurde. Durch eine Veränderung des Gitterabstandes verändert sich die Resonanzbedingung des Resonators, weshalb die ultrastarke Kopplung von Licht und ISB-Übergang nur für $\omega_{\text{cav}} \approx \omega_{\text{ISB}}$ im Bereich um $d \approx 16 \mu\text{m}$ möglich ist.

Die durchgeführten Simulationen erlauben bereits eine erste Abschätzung der Feldüberhöhung und damit der erreichbaren Reduktion der nötigen Sättigungsfeldstärke. Abb. 4.2b zeigt die gemäß Gl. 4.12 räumlich gemittelte Feldüberhöhung des Resonators $\eta = \frac{E_{\text{in}}}{E_{\text{ext}}}$ (siehe Abschnitt 4.4.1), definiert als Quotient des Feldes E_{in} im Resonator und des eingestrahnten, externen Feldes E_{ext} . Die beiden Polaritonen manifestieren sich durch zwei ausgeprägte Maxima im Spektrum der Feldüberhöhung. Diese Maxima stellen auch den geplanten Arbeitspunkt des sättigbaren Absorbers dar und lassen eine Überhöhung des externen Feldes um das mindestens 2,5-Fache erwarten. Bei gleicher Mehrfachquantentrogstruktur ist also eine erhebliche Verringerung der Sättigungsfeldstärke zu erwarten.

Die vollständige Geometrie der Probe ist schematisch in Abb. 4.3a gezeigt. Die Textur auf der Vorderseite gibt in farbcodierter Darstellung die Feldüberhöhung η der z -Komponente des elektrischen Feldes wieder, ausgewertet bei der Zentralfrequenz des unteren Polaritons von 2,54 THz. Für eine bessere Darstellung wurde die z -Achse 40-fach gestreckt. Man erkennt deutlich die Lokalisierung des elektrischen Feldes unterhalb der Kanten der Goldstreifen und die damit einhergehende, inhomogene Verteilung des Feldes im Resonator. An der ultrastarken Kopplung ist also überwiegend dieser kleinere, vom Feld durchdrungene Bereich beteiligt und auch nur in diesem Bereich muss der ISB-Übergang für eine vollständige Sättigung der Struktur in Besetzungsinversion gebracht werden. Dies verringert zusätzlich die nötige Sättigungsfeldstärke im Vergleich zum ungekoppelten ISB-Übergang, bei dem das Feld grundsätzlich das gesamte Volumen durchdringt und dieses auch vollständig gesättigt werden muss.

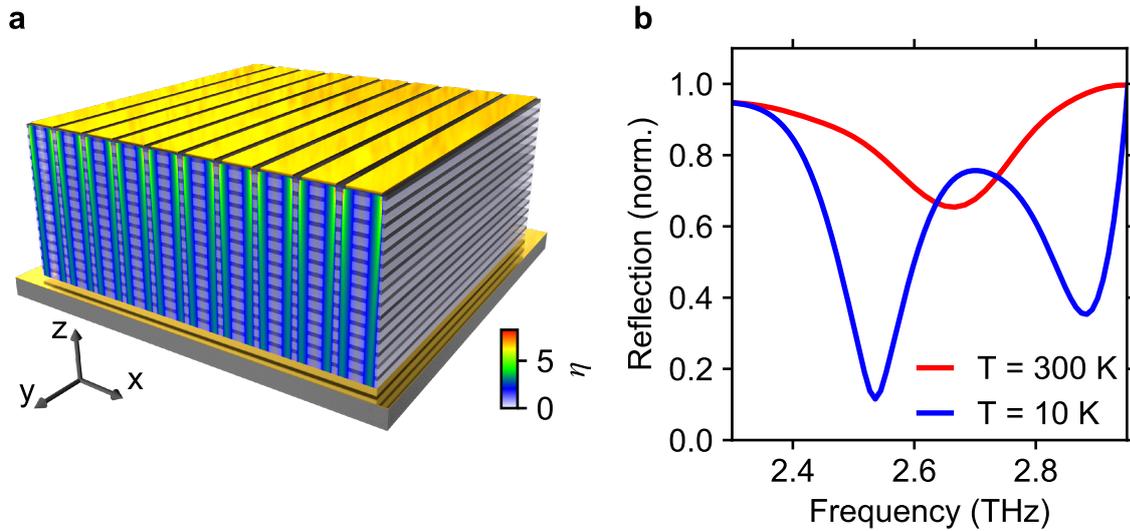


Abbildung 4.3: Charakterisierung der Intersubband-Polaritonen. a, Der hergestellte Mikroresonator (nicht maßstäbliche Darstellung) des sättigbaren Absorbers besteht aus einem Goldgitter mit einer Periode von $16\ \mu\text{m}$ auf der Oberseite der Mehrfachquantentrogstruktur (siehe Abb. 3.2) sowie einem $1\ \mu\text{m}$ dicken Goldfilm darunter. Auf der Vorderseite ist farbcodiert die simulierte Feldüberhöhung $\eta = E_{\text{in}}/E_{\text{ext}}$ im Mikroresonator bei einer Frequenz von $2,54\ \text{THz}$ gezeigt. b, Das normierte Reflexionsspektrum bei $300\ \text{K}$ (rot) zeigt lediglich ein Minimum, wohingegen das Reflexionsspektrum bei einer Temperatur von $10\ \text{K}$ zwei klar unterscheidbare Minima mit einem spektralen Abstand von $0,34\ \text{THz}$ aufweist.

Die Herstellung der Probe gestaltete sich aufwendiger als in Abschnitt 3.3 beschrieben und wurde ebenfalls in Pisa durchgeführt. Dazu wurde die mittels Molekularstrahl-epitaxie gewachsene Mehrfachquantentrogstruktur mit einem $500\ \text{nm}$ dicken Goldfilm bedampft und bei hoher Temperatur mit dieser Oberfläche auf einen ebenso mit Gold bedampften GaAs-Wafer gepresst. Diese Goldschicht stellt den unteren Spiegel des Resonators dar. Durch mechanisches Polieren und nasschemisches Ätzen wurde das Substrat der Heterostruktur anschließend entfernt, wobei der Ätzprozess durch eine unter die Heterostruktur gewachsene Ätzstopp-Schicht aus $\text{Al}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ unterbrochen wurde. Den Abschluss der Probenherstellung bildet die Strukturierung des Goldgitters auf der Oberseite der Struktur, welches durch optische Lithographie und anschließendes Aufdampfen einer Chrom/Gold-Schicht ($10\ \text{nm}$ bzw. $100\ \text{nm}$ dick) hergestellt wurde.

Reflexionsmessungen der Probe erlauben eine erste Charakterisierung der Polaritonen. Abb. 4.3b zeigt die Reflexionsspektren der Probe bei Temperaturen von 300 K (rot) und 10 K (blau). Das Spektrum bei Raumtemperatur zeigt lediglich ein Minimum bei 2,67 THz, welches der Mode des ungekoppelten Resonators zugeordnet werden kann. Dies ist für einen ISB-Übergang mit einer Energie von 2,7 THz auch zu erwarten, da allein die thermische Anregung bereits nahezu eine Gleichbesetzung der beiden Energieniveaus erzeugt und so der Übergang bei Raumtemperatur kaum mehr Oszillatorstärke aufweist. Entsprechend tritt auch keine Vakuum-Rabiaufspaltung ein, da die Rabifrequenz aus Gleichung 4.2 verschwindet. Bei 10 K bietet sich hingegen ein völlig anderes Bild: Man erkennt zwei klar getrennte Minima im Reflexionsspektrum bei 2,54 THz und 2,88 THz, welche eindeutig den Resonanzfrequenzen von unterem und oberem Polariton zugeordnet werden können und mit den in Abb. 4.2a gezeigten Simulationen übereinstimmen. Der spektrale Abstand der beiden Resonanzen beträgt 0,34 THz, was bei einer Frequenz des ISB-Übergangs von $\frac{\omega_{\text{ISB}}}{2\pi} = 2,7$ THz einer Kopplungsstärke von $\kappa = 0,12$ entspricht.

Der Vergleich der Spektren bei verschiedenen Temperaturen zeigt bereits die grundsätzliche Funktionsweise des sättigbaren Absorbers. Während das Ausbleichen des ISB-Übergangs aufgrund der thermischen Anregung lediglich ein parasitärer Effekt ist, sollte auch eine resonante Anregung des Systems durch elektromagnetische Strahlung bei tiefen Temperaturen zum Zusammenbruch der ultrastarken Kopplung führen [Zan12, Zan15]. Das folgende Kapitel gibt einen Überblick über die Experimente, die dieses Verhalten unter Anregung durch ultrakurze THz-Impulse demonstrieren und liefert einen ersten, quantitativen Ausdruck für die zur Sättigung der Struktur nötige Feldstärke.

4.3 Intersubband-Polaritonen unter hochintensiver Anregung

Zur Untersuchung von Sättigungsverhalten und -dynamik der ISB-Polaritonen werden sowohl hohe Feldstärken als auch Subzyklen-Zeitauflösung benötigt, welche beide in dem Messplatz aus Abschnitt 2.4 zur Verfügung stehen. Im Gegensatz zu den Transmissionsmessungen an reinen ISB-Übergängen ergibt sich aus der Resonatorgeometrie, die für die Ausbildung von Polaritonen von entscheidender Bedeutung

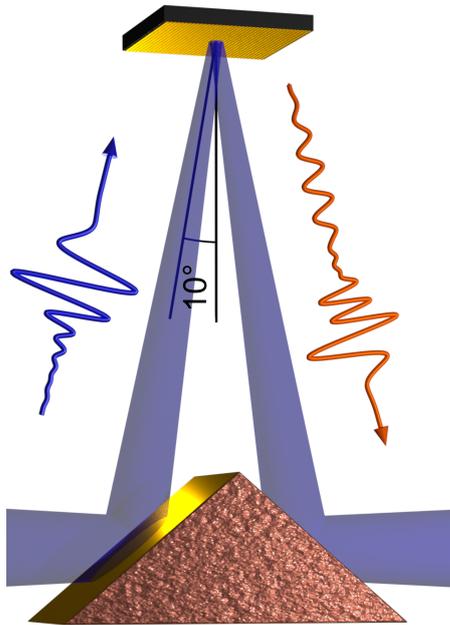


Abbildung 4.4: Experimentelle Geometrie zur Charakterisierung der sättigbaren Absorber in Reflexion. Die THz-Impulse werden mit einem Parabolspiegel in den Kryostaten fokussiert (siehe Abb. 2.9). Dort ist ein goldbeschichtetes Prisma mittig unter der Probe angebracht, das die THz-Mode unter einem spitzen Winkel von 10° auf die am Kaltfinger montierte Probe reflektiert. Das von der Probe unter 10° reflektierte Licht wird von der zweiten Seite des Prismas wieder horizontal gerichtet und anschließend außerhalb des Kryostaten von einem Parabolspiegel rekollimiert.

ist, eine zusätzliche Komplexität der Messgeometrie. Eine Transmissionsmessung ist aufgrund der Goldschicht unter der Mehrfachquantentrogstruktur nicht mehr möglich, sodass lediglich eine Messung in Reflexionsgeometrie in Frage kommt.

Hierfür wurde der verwendete Kryostat so modifiziert, dass er ohne weitere Änderungen am Messplatz THz-Spektroskopie in Reflexion erlaubt. Abbildung 4.4 zeigt eine schematische Darstellung der Geometrie des Messaufbaus. Ein mechanisch poliertes und auf den Oberseiten mit Gold bedampftes Kupferprisma wurde im Abstand von 5,5 mm unterhalb der Probe im Kryostaten befestigt. Die Winkel des Prismas wurden dabei so gewählt, dass eine horizontal einlaufende THz-Mode unter einem Einfallswinkel von 10° auf die Probe trifft. Die zweite Seite des Prismas lenkt das unter einem Winkel von ebenfalls 10° von der Probe reflektierte Licht wieder in die Horizontale um. Der geringe zusätzliche Strahlweg durch diese Geometrie erlaubt es, die außerhalb des Kryostaten stehenden Parabolspiegel für die Fokussierung und Rekollimierung weiter zu verwenden. Die reflektierte Wellenform wird in Amplitude und Phase mittels elektro-optischer Detektion gemessen.

Um den Zusammenbruch der ultrastarken Kopplung unter intensiver Anregung zu beobachten, wurden mehrere Reflexionsspektren bei einer Probentemperatur von 10 K aufgenommen und dabei die Feldstärke der anregenden Transienten systematisch variiert. Abbildung 4.5a zeigt die Feldoszillationen 1,2 ps nach dem Hauptmaximum

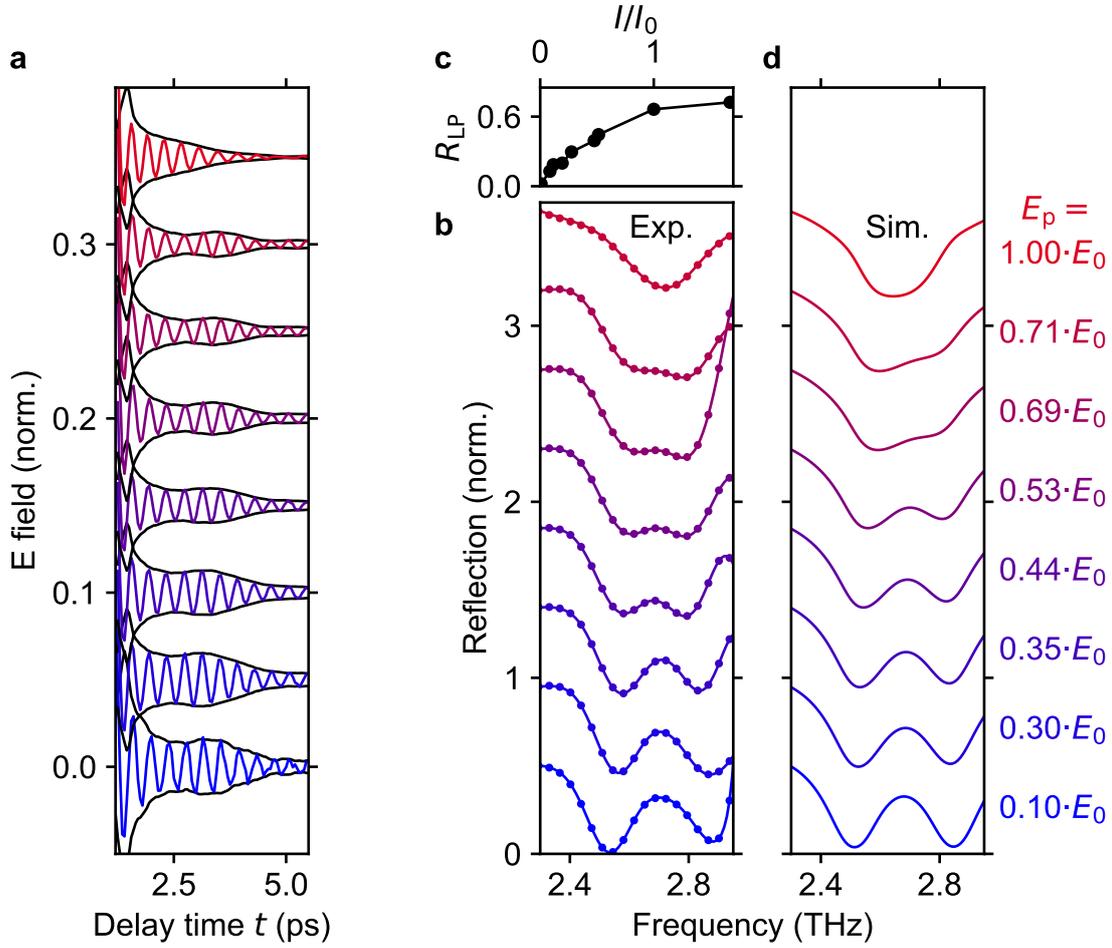


Abbildung 4.5: Zusammenbruch der ultrastarken Kopplung unter gepulster Anregung. **a**, Feldoszillationen und Einhüllende (schwarz) der von der Probe reflektierten Wellenform, gezeigt ab 1,2 ps nach dem Hauptmaximum bei einer Temperatur der Probe von 10 K. Von unten nach oben steigt die Spitzenfeldstärke der anregenden Impulse bis auf einen Wert von $E_0 = 3,4 \text{ kV cm}^{-1}$. **b**, Die Reflexionsspektren des sättigbaren Absorbers, berechnet aus den Wellenformen in **a**. **c**, Reflektivität R_{LP} der Probe, ausgewertet an der Frequenz des unteren Polaritons $\nu_{LP} = 2,54 \text{ THz}$ als Funktion der normierten Anregungsintensität $I/I_0 = \frac{E_p^2}{E_0^2}$. **d**, Reflexionsspektren wie in **b**, jedoch simuliert mit einem semiklassischen Modell (siehe Abschnitt 4.4.2).

des von der Probe reflektierten Transienten für steigende Spitzenfeldstärken E_p bis zu einem Maximum von $E_0 = 3,4 \text{ kV cm}^{-1}$. Für niedrige Anregungsfeldstärken zeigt sich die Antwort der Polaritonen in der ausgeprägten Schwebung auf der Wellenform, welche insbesondere in der schwarz eingezeichneten Feldeinhüllenden deutlich wird.

Mit steigender Spitzenfeldstärke verschwindet die Schwebung zusehends bis schließlich bei der höchsten Feldstärke lediglich die gedämpfte, monochromatische Antwort des ungekoppelten Resonators übrig bleibt.

Dieses Verhalten wird in der Frequenzdomäne besonders deutlich. In Abb. 4.5b sind die zu diesen Messungen gehörenden Reflexionsspektren gezeigt, welche durch numerische Fourier-Transformation aus den Wellenformen in Teilabbildung a gewonnen wurden. In den bei niedrigen Feldstärken gemessenen Spektren erkennt man deutlich die zu den Polaritonen gehörenden Minima in der Reflexion. Mit steigender Spitzenfeldstärke verringert sich der Abstand dieser Minima zunehmend, bis sie schließlich zu einer Resonanz bei 2,7 THz verschmelzen, welche gerade der Resonanzfrequenz des Resonators entspricht. Bei dieser Spitzenfeldstärke ist die Anregung des ISB-Übergangs so hoch, dass die Materieresonanz weitgehend ausgeblencht ist und die ultrastarke Licht-Materie-Kopplung vollständig kollabiert.

Die Änderung der Reflektivität mit steigender Anregungsfeldstärke lässt sich besonders gut an der Resonanzfrequenz des unteren Polaritons von 2,54 THz beobachten, wie Abb. 4.5c als Funktion der normierten Intensität $I/I_0 = \frac{E_p^2}{E_0^2}$ zeigt. Mit steigender Spitzenintensität der THz-Impulse steigt die Reflektivität des Absorbers an und erreicht schließlich einen Wert, der bei etwa 70% sättigt. Wie für einen sättigbaren Absorber notwendig, geht mit steigender Spitzenfeldstärke also eine erhebliche Veränderung der Absorptionseigenschaften einher und es verbleiben lediglich die nicht-sättigbaren Verluste von etwa 30%.

Bemerkenswerterweise lässt sich dieser Prozess sogar in einer Anordnung beobachten, bei der ein und derselbe Impuls sowohl zur Anregung des Systems als auch zur Abtastung der Polarisationsantwort verwendet wird. In diesem Szenario muss die Sättigung bereits direkt während der Anregung durch das elektrische Feld des Transienten eintreten, was Polaritonen zu einem vielversprechenden sättigbaren Absorber macht. Um dieses Verhalten verstehen und die experimentellen Befunde interpretieren zu können, wird im folgenden Kapitel ein neues, theoretisches Modell entwickelt und vorgestellt. Dieses ist in der Lage, den beobachteten Zusammenbruch der ultrastarken Licht-Materie-Kopplung korrekt zu beschreiben und so einen wichtigen Beitrag für das detaillierte Verständnis der experimentellen Ergebnisse zu leisten.

4.4 Zeitabhängige Beschreibung von Intersubband-Polaritonen

Ein genaues Verständnis der Dynamik der Sättigung ist eine essenzielle Voraussetzung für die praktische Anwendung ultrastark gekoppelter ISB-Übergänge. Dieses setzt ein theoretisches Modell voraus, welches sowohl die Materieanregung als auch das elektrische Feld des Mikroresonators mit ihrer jeweiligen Zeitabhängigkeit korrekt beschreibt. Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher die theoretische Beschreibung im Rahmen der Hopfield-Theorie aus Abschnitt 4.1 so modifiziert, dass die Geometrie eines spezifischen Resonators Berücksichtigung findet. Eine dynamische Beschreibung des Systems im Rahmen der Molekularfeldnäherung und des Dichtematrixformalismus erweitert das vorgestellte Modell so, dass es auch die Zeitabhängigkeit von elektrischem Feld und Materiepolarisation korrekt wiedergibt. Der folgende Abschnitt stellt die nötigen Überlegungen dar und präsentiert einen ersten Vergleich von experimentellen sowie mithilfe des vorgestellten Modells numerisch berechneten Daten.

4.4.1 Modell für die inhomogene Feldverteilung im Resonator

Wie bereits angesprochen, ist die Vakuum-Rabiaufspaltung von der Geometrie des Resonators und dessen Feldverteilung abhängig. Um diesen Aspekt ebenfalls korrekt in die theoretische Beschreibung einzubeziehen, wurde das in Abschnitt 4.1 beschriebene Modell weiterentwickelt. Die räumlich inhomogene Resonatormode wird berücksichtigt, indem man das Volumen des Resonators in N gleiche Teilvolumina unterteilt. Diese enthalten jeweils eine Materieanregung, welche mit ihrer spezifischen Vakuum-Rabifrequenz $\Omega_{R,n}$ an die gemeinsame Feldmode gekoppelt ist. Durch die einzelnen $\Omega_{R,n} = \mu_{12}E_n/\hbar$ wird berücksichtigt, dass die Mode des Resonators an der Stelle des Teilvolumens n eine lokale Feldstärke E_n aufweist. Der Hamilton-Operator aus Gleichung 4.1 muss dann um die Summe über alle N Teilvolumina erweitert

werden, wobei die Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren \mathbf{b} und \mathbf{b}^\dagger zur korrekten Normierung den Vorfaktor $1/\sqrt{N}$ erhalten:

$$H = \hbar\omega_{\text{cav}}\mathbf{a}^\dagger\mathbf{a} + \frac{1}{N}\sum_{n=1}^N\hbar\omega_{\text{ISB}}\mathbf{b}_n^\dagger\mathbf{b}_n + \frac{1}{\sqrt{N}}\sum_{n=1}^N\hbar\Omega_{\text{R},n}(\mathbf{b}_n + \mathbf{b}_n^\dagger)(\mathbf{a} + \mathbf{a}^\dagger) + \hbar D(\mathbf{a} + \mathbf{a}^\dagger)^2 \quad (4.9)$$

Dieser modifizierte Hamilton-Operator führt zu einer Hopfieldmatrix M' , die schematisch durch

$$M' = \begin{pmatrix} 2D + \omega_{\text{cav}} & \frac{\Omega_{\text{R},1}}{\sqrt{N}} & \dots & \frac{\Omega_{\text{R},N}}{\sqrt{N}} & 2D & \frac{\Omega_{\text{R},1}}{\sqrt{N}} & \dots & \frac{\Omega_{\text{R},N}}{\sqrt{N}} \\ \frac{\Omega_{\text{R},1}}{\sqrt{N}} & \omega_{\text{ISB}} & 0 & 0 & \frac{\Omega_{\text{R},1}}{\sqrt{N}} & 0 & 0 & 0 \\ \vdots & 0 & \ddots & 0 & \vdots & 0 & 0 & 0 \\ \frac{\Omega_{\text{R},N}}{\sqrt{N}} & 0 & 0 & \omega_{\text{ISB}} & \frac{\Omega_{\text{R},N}}{\sqrt{N}} & 0 & 0 & 0 \\ -2D & -\frac{\Omega_{\text{R},1}}{\sqrt{N}} & \dots & -\frac{\Omega_{\text{R},N}}{\sqrt{N}} & -2D - \omega_{\text{cav}} & -\frac{\Omega_{\text{R},1}}{\sqrt{N}} & \dots & -\frac{\Omega_{\text{R},N}}{\sqrt{N}} \\ -\frac{\Omega_{\text{R},1}}{\sqrt{N}} & 0 & 0 & 0 & -\frac{\Omega_{\text{R},1}}{\sqrt{N}} & -\omega_{\text{ISB}} & 0 & 0 \\ \vdots & 0 & 0 & 0 & \vdots & 0 & \ddots & 0 \\ -\frac{\Omega_{\text{R},N}}{\sqrt{N}} & 0 & 0 & 0 & -\frac{\Omega_{\text{R},N}}{\sqrt{N}} & 0 & 0 & -\omega_{\text{ISB}} \end{pmatrix} \quad (4.10)$$

gegeben ist. Berechnet man die Eigenenergien E_\pm als Eigenwerte dieser Matrix und nimmt dabei den diamagnetischen Beitrag D als vernachlässigbar klein an, so erhält man für den Resonanzfall $\omega_{\text{cav}} = \omega_{\text{ISB}}$ einen Ausdruck der Form

$$\frac{E_\pm}{\hbar} = \sqrt{\omega_{\text{ISB}}^2 \pm 2\omega_{\text{ISB}} \left(\frac{1}{N} \sum_n \Omega_{\text{R},n}^2 \right)^{\frac{1}{2}}}, \quad (4.11)$$

welcher den spektralen Abstand der Polaritonen am Antikreuzungspunkt angibt. Der Vergleich mit dem Ergebnis für lediglich ein effektives Materiesystem (siehe Gl. 4.7) zeigt, dass sich die Rabiaufspaltung als quadratisches Mittel über die Rabifrequenzen $\Omega_{\text{R},n}$ der einzelnen Teilsysteme ergibt. Dies spiegelt auch die Tatsache wider, dass sich trotz inhomogener Feldverteilung genau zwei Polaritonen mit einer effektiven Vakuum-Rabifrequenz ausbilden. Es sei hier angemerkt, dass man für den Spezialfall gleicher Kopplung aller Teilvolumina (also $\Omega_{\text{R},n} = \Omega_{\text{R}}/\sqrt{N}$) wie erwartet den Fall einer einzelnen Materiemode aus Gleichung 4.7 erhält. Der Vorteil der hier eingeführten Betrachtung liegt nun darin, dass die effektive Vakuum-Rabifrequenz mit

der inhomogenen Feldverteilung des Resonators in Verbindung gebracht werden kann, indem man die individuellen $\Omega_{R,n}$ mit der lokalen Feldstärke E_n der Vakuummode ausdrückt:

$$\Omega_R^{\text{eff}} = \frac{1}{\sqrt{N}} \left(\sum_n \Omega_{R,n}^2 \right)^{\frac{1}{2}} = \frac{1}{\sqrt{N}\hbar} \left(\sum_n (\mu_{12} E_n)^2 \right)^{\frac{1}{2}} = \frac{\mu_{12}}{\hbar} \bar{E} \quad (4.12)$$

Der Beitrag eines einzelnen Volumenelements zur Rabiaufspaltung des Ensembles ist proportional zum Quadrat der lokalen elektrischen Feldamplitude im Resonator. Stellen mit besonders großer Feldüberhöhung tragen also stark zur Kopplung der Teilsysteme bei, während solche mit geringer Feldüberhöhung nur einen geringen Beitrag leisten. Gleiches gilt auch, wenn das elektrische Feld nicht allein durch die Vakuummode bestimmt ist, sondern auch Beiträge eines externen Feldes beinhaltet. Für die im Rahmen dieser Arbeit beleuchtete Sättigung der ultrastarken Kopplung durch hohe, externe Felder ist dieser Sachverhalt von besonderer Bedeutung. Durch den überproportionalen Einfluss von Bereichen mit großer Feldüberhöhung auf die resultierende Kopplungsstärke ist bereits ein Zusammenbruch der ultrastarken Kopplung zu erwarten, sobald in den Bereichen größter Feldamplitude eine Sättigung des ISB-Übergangs eintritt. Es ist also nicht mehr nötig, das vollständige Volumen der Mehrfachquantentrogstruktur in Besetzungsinversion zu treiben, wie es beim ungekoppelten ISB-Übergang der Fall ist, was eine erhebliche Verringerung der Sättigungsfeldstärke verspricht.

4.4.2 Dynamische Simulation der ultrastarken Kopplung

Die bisherigen Betrachtungen beziehen sich alle auf den statischen Gleichgewichtsfall des ultrastark gekoppelten Systems, wobei eine Zeitabhängigkeit der Operatoren und insbesondere der Einfluss eines externen treibenden Feldes außen vor blieben. Gerade diese Dynamik unter Anregung durch hochintensive THz-Impulse ist für die Beschreibung von sättigbaren Absorbern jedoch von essenzieller Bedeutung. Dies nicht zuletzt auch, um experimentelle Befunde richtig einordnen und quantitative Vorhersagen über das Verhalten neuer Strukturen treffen zu können. Im Folgenden wird daher das vorgestellte Modell im Rahmen der Molekularfeldnäherung weiterentwickelt und das Materiesystem durch eine sättigbare Dichtematrix beschrieben.

Ausgehend vom Hamilton-Operator Gl. 4.1 lässt sich die Zeitentwicklung eines Operators X durch die Heisenbergsche Bewegungsgleichung

$$\frac{dX}{dt} = \frac{i}{\hbar} [H, X(t)] \quad (4.13)$$

ausdrücken [Sch07], welche die Zeitableitung von $X(t)$ mit dem Kommutator von X mit dem Hamiltonoperator H verknüpft. Da grundsätzlich das gesamte, quantenmechanische Ensemble im Rahmen der Molekularfeldnäherung beschrieben werden soll, werden im weiteren Verlauf der Diskussion die Erwartungswerte $\alpha = \langle \mathbf{a} \rangle$ und $\beta = \langle \mathbf{b} \rangle$ betrachtet. Der Realteil des Erwartungswerts α lässt sich als elektrische Feldamplitude im Resonator interpretieren und durch Lösen des Kommutators in Gleichung 4.13 zu

$$\frac{\partial}{\partial t} \alpha = -i\omega_{\text{cav}} \alpha - i\Omega(\beta + \beta^*) + \mathcal{E}(t) - \gamma_c \alpha - 2iD(\alpha + \alpha^*) \quad (4.14)$$

angeben. Das elektrische Feld oszilliert mit der Eigenfrequenz ω_{cav} des Resonators und wird über die Vakuum-Rabifrequenz Ω_{R} durch den Realteil der Polarisation des Materiesystems β getrieben. Der zusätzliche treibende Term $\mathcal{E}(t)$ erlaubt eine Anregung des Resonatorfeldes durch das elektrische Feld des eingestrahlten THz-Impulses. Die Dämpfungskonstante γ_c führt eine phänomenologische Dämpfung ein, die strahlende und nichtstrahlende Verluste des Resonators berücksichtigt.

Um das Sättigungsverhalten und die Dynamik des ISB-Übergangs korrekt in das Modell zu implementieren, wird das Zwei-Niveau-System erneut im Rahmen des Dichtematrixformalismus beschrieben, welcher bereits in Abschnitt 3.5 eingeführt wurde. Im Gegensatz dazu verwendet das Modell der ultrastarken Kopplung jedoch das in Gl. 4.14 beschriebene Feld des Resonators als treibendes Feld. Die Gleichungen 3.17 und 3.18 lassen sich damit für das gekoppelte System ausdrücken durch:

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_{11} = \frac{i}{2} \Omega_{\text{R}} (\alpha + \alpha^*) (\rho_{12} - \rho_{12}^*) + \frac{\rho_{22}}{T_1}, \quad (4.15)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_{12} = i\omega_{\text{ISB}} \rho_{12} + \frac{i}{2} \Omega_{\text{R}} (\alpha + \alpha^*) (\rho_{11} - \rho_{22}) - \frac{\rho_{12}}{T_2^*}, \quad (4.16)$$

und

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho_{22} = -\frac{\partial}{\partial t} \rho_{11}. \quad (4.17)$$

Identifiziert man die ISB-Polarisation β mit dem Außerdiagonalelement ρ_{12} der Dichtematrix, so erhält man drei gekoppelte Differenzialgleichungen, welche die Dynamik des gekoppelten Systems aus Licht- und Materiemode beschreiben. Die hergeleiteten Gleichungen erlauben weiterhin eine elegante Berücksichtigung der inhomogenen Feldverteilung des Resonators. Ist die effektive Vakuum-Rabifrequenz $\Omega_{\text{R}}^{\text{eff}}$ des Systems bekannt (z.B. aus dem Experiment), so kann man für jedes Teilvolumen des Resonators n eine eigene Dichtematrix ρ_n definieren, welche über die Frequenz $\Omega_{\text{R},n}$ an die Feldmode α gekoppelt ist. Die einzelnen $\Omega_{\text{R},n}$ können gemäß Gl. 4.12 mittels der lokalen Felder E_n durch $\Omega_{\text{R},n} = \Omega_{\text{R}}^{\text{eff}} \frac{E_n}{E}$ ausgedrückt werden. Ergänzt man Gleichung 4.14 entsprechend um die Summe über alle N Beiträge zur Polarisation, so erhält man schließlich einen Ausdruck für das elektrische Feld im Resonator, welcher die lokal unterschiedlich starke Kopplung an die ISB-Resonanz berücksichtigt:

$$\dot{\alpha}(t) = -i\omega_{\text{cav}}\alpha - i \sum_{n=1}^N \Omega_{\text{R},n}(\rho_{n,12} + \rho_{n,12}^*) + \mathcal{E}(t) - \gamma_c\alpha - 2iD(\alpha + \alpha^*) \quad (4.18)$$

Das elektrische Feld im Resonator wird mit einer Phasenverschiebung von $\pi/2$ ins Fernfeld abgestrahlt, wo es schließlich als Superposition mit dem anregenden Feld $\mathcal{E}(t)$ gemessen wird. Das reflektierte Feld, welches schlussendlich mit den experimentellen Daten verglichen werden kann, lässt sich daher durch $e(t) = \mathcal{E}(t) - k\alpha(t)$ ausdrücken, wobei die Konstante k ein Maß für die Stärke der Ankopplung an das Fernfeld darstellt.

Die numerische Lösung dieser Differenzialgleichungen erlaubt einen detaillierten Einblick in die mikroskopische Dynamik sowohl des ISB-Übergangs als auch des elektrischen Feldes im Resonator. So ist das vorgestellte Modell in der Lage, den in Abschnitt 4.3 beschriebenen Zusammenbruch der ultrastarken Kopplung quantitativ zu reproduzieren. Hierfür wurden die Parameter $\Omega_{\text{R}}^{\text{eff}} = 0,17$ THz, $T_1 = 2,5$ ps und $T_2^* = 1,5$ ps aus den experimentellen Reflexionsspektren bestimmt und die bekannten Werte für $\frac{\omega_{\text{ISB}}}{2\pi} = 2,7$ THz und $\frac{\omega_{\text{cav}}}{2\pi} = 2,7$ THz verwendet. Die für steigende Feldstärken berechneten Reflexionsspektren sind in Abb. 4.5d dargestellt und zeigen eine hervorragende Übereinstimmung mit den experimentell gemessenen Spektren. Ähnlich wie im Experiment sinkt zunächst der Kontrast zwischen den beiden Minima und der spektrale Abstand verringert sich. Ab etwa 70% der maximalen Feldstärke sind die Polaritonen kaum mehr getrennt wahrnehmbar bis schließlich die ultrastarke Kopplung bei der höchsten Feldstärke vollständig zusammenbricht.

4.5 Hochfelddynamik von Intersubband-Polaritonen

Wie die experimentellen und theoretischen Befunde erwarten lassen, ist die dynamische Antwort des Systems unter Anregung durch hochintensive, ultrakurze THz-Impulse von kohärenter Polarisationsdynamik des ISB-Übergangs geprägt, welche zu einem Verschwinden der Vakuum-Rabifrequenz führt. 2D-THz-Spektroskopie (siehe Abschnitt 2.5) erlaubt es, kohärente und inkohärente Beiträge zu dieser Dynamik getrennt auf Subzyklen-Zeitskalen zu beobachten und liefert so bisher unbekannte Einblicke in das nichtlineare Verhalten von ISB-Polaritonen.

4.5.1 Zweidimensionale THz-Spektroskopie an Intersubband-Polaritonen

Die Probe wurde für die Messungen wiederum in Reflexionsgeometrie (siehe Abb. 4.4) in einen Helium-Kryostaten eingebaut und auf 10 K gekühlt. Das extrahierte Feld $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$, normiert auf den Maximalwert von $\mathcal{E}_{\text{A}}(t)$, ist für eine Spitzenfeldstärke des anregenden Feldes von $1,1 \text{ kV cm}^{-1}$ in Abb. 4.6a als Funktion der Verzögerungszeiten t und τ gezeigt. Die nichtlineare Antwort ist für Zeiten, zu denen der zweite Impuls mit der Polarisation des ersten zeitlich überlappt (d.h. $t > 0$ und zugleich $t + \tau > 0$) entlang beider Zeitachsen stark moduliert. Dies ist bereits ein erstes Anzeichen dafür, dass die Sättigung des Systems von kohärenten Prozessen dominiert wird. Wie zu erwarten, ist die nichtlineare Antwort für $\tau = 0$, wenn also beide Impulse gleichzeitig auf die Probe treffen, maximal. Vor allem entlang der t -Achse zeigt das Signal eine ausgeprägte Schwebung mit einer Periode von etwa 3 ps. Diese Interferenz ist Ausdruck der nichtlinearen Polarisation der beiden Polaritonen, welche zu Interferenzmustern in der zweidimensionalen Feldkarte führt.

Die in Abschnitt 4.4.2 entwickelte dynamische Theorie bestätigt die experimentellen Ergebnisse hervorragend. In Abb. 4.6b ist das Ergebnis einer Simulation gezeigt, bei der die gekoppelten Differenzialgleichungen 4.15-4.18 für die einzelnen Beiträge $\alpha_{\text{A}}(t)$, $\alpha_{\text{B}}(t, \tau)$ und $\alpha_{\text{AB}}(t, \tau)$ der treibenden Felder $\mathcal{E}(t, \tau) = \mathcal{E}_{\text{A}}(t)$, $\mathcal{E}(t, \tau) = \mathcal{E}_{\text{B}}(t - \tau)$ und $\mathcal{E}(t, \tau) = \mathcal{E}_{\text{A}}(t) + \mathcal{E}_{\text{B}}(t - \tau)$ numerisch gelöst wurden. Wie im Experiment zeigt sich in der Simulation eine Modulation des Feldes entlang beider Zeitachsen. Auch die Schwebung der beiden Polaritonen ist in Form der Interferenzmuster im abgestrahlten Feld quantitativ durch die Rechnung wiedergegeben.

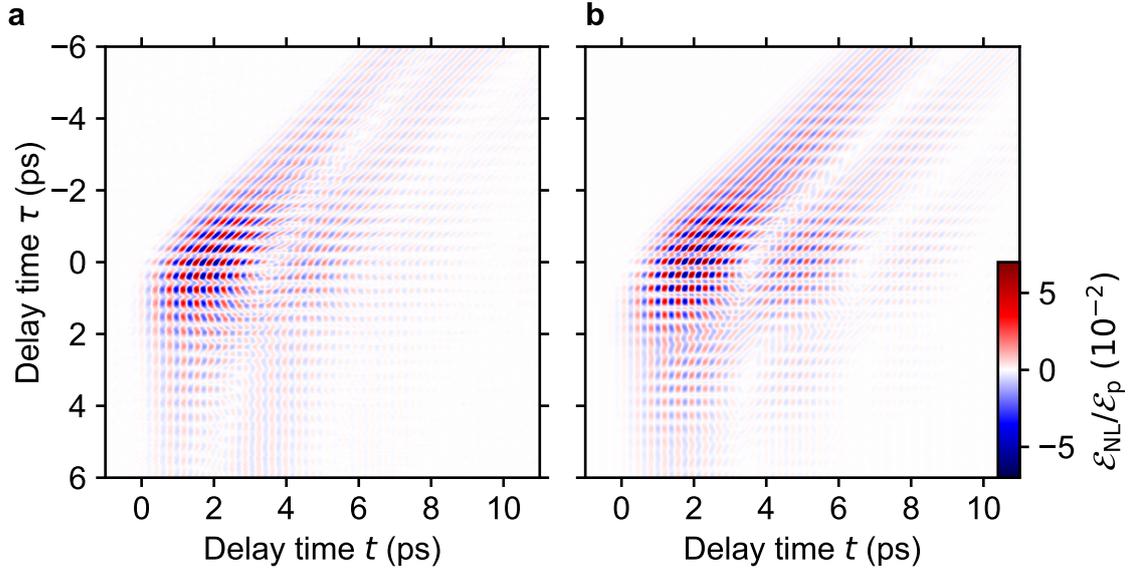


Abbildung 4.6: 2D-THz-Spektroskopie von Intersubband-Polaritonen.

a, Farbcodierte Darstellung des emittierten Feldes $\mathcal{E}_{\text{NL}} = \mathcal{E}_{\text{AB}} - \mathcal{E}_{\text{A}} - \mathcal{E}_{\text{B}}$ als Funktion der Verzögerungszeiten t und τ bei einer Spitzenfeldstärke von $1,1 \text{ kV cm}^{-1}$. Das Feld ist auf das Maximum \mathcal{E}_{p} der reflektierten Wellenform \mathcal{E}_{A} normiert. **b**, Nichtlineare Antwort der Probe, simuliert mit dem semiklassischen Modell aus Abschnitt 4.4.2.

Die unterschiedlichen Beiträge zu diesem nichtlinearen Signal können mithilfe einer zweidimensionalen Fourier-Analyse in der Frequenzdomäne unterschieden werden. Das durch numerische Fourier-Transformation aus $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ gewonnene, normierte Amplitudenspektrum $\tilde{\mathcal{E}}_{\text{NL}}(\nu_t, \nu_\tau)$ ist in Abb. 4.7a gezeigt. Man erkennt fünf klar getrennte Signaturen, welche entlang ν_t um die Frequenz $\nu_{\text{ISB}} = 2,7 \text{ THz}$ des ISB-Übergangs zentriert sind und sich verschiedenen, nichtlinearen Prozessen zuordnen lassen. Die Anrege-Abtast-Signale (PP) bei $\nu_\tau = 0 \text{ THz}$ und $\nu_\tau = -2,7 \text{ THz}$ sind inkohärenter Natur und stammen von einer inkohärenten Besetzung des ISB-Übergangs. Diese führt zu einer reduzierten Oszillatorstärke und folglich einer spektral leicht verschobenen Position der Polaritonen, die sich in der nichtlinearen Antwort manifestiert. Des Weiteren erkennt man ausgeprägte, kohärente Vier-Wellen-Mischsignale bei $\nu_\tau = 2,7 \text{ THz}$ und $\nu_\tau = -5,4 \text{ THz}$ sowie sogar ein Sechs-Wellen-Mischsignal bei $\nu_\tau = 5,4 \text{ THz}$, welche von einer nichtlinearen Dynamik der Polarisation verursacht werden.

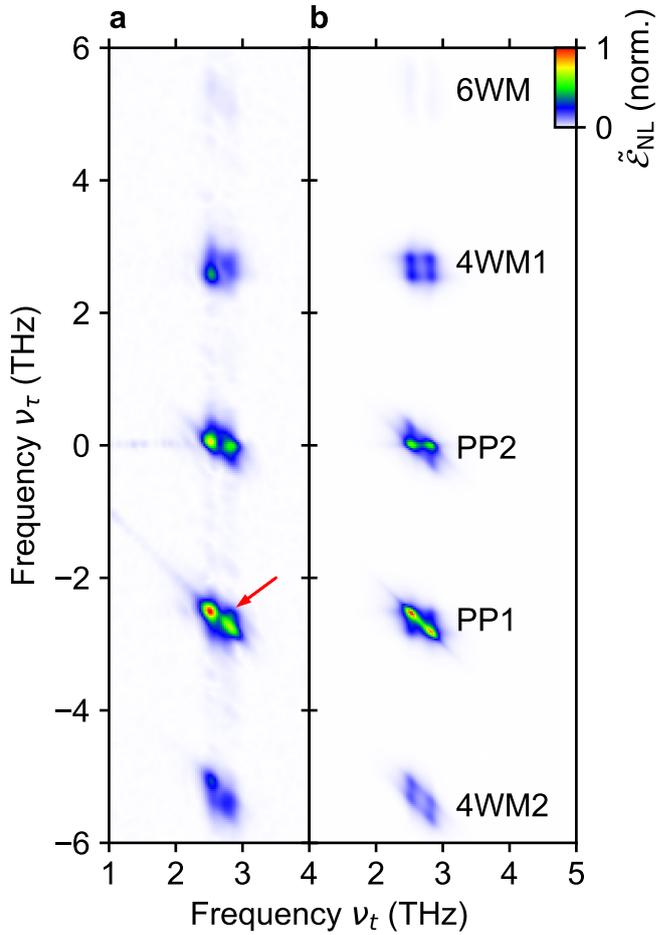


Abbildung 4.7: 2D-Amplitudenspektrum der nichtlinearen Antwort der ISB-Polaritonen. **a**, Normiertes 2D-Amplitudenspektrum $\tilde{\mathcal{E}}_{NL}$ der nichtlinearen Antwort \mathcal{E}_{NL} der Probe aus Abb. 4.6a als Funktion der Frequenzen ν_t und ν_τ . **b**, Normiertes 2D-Amplitudenspektrum $\tilde{\mathcal{E}}_{NL}$ der simulierten Antwort aus Abb. 4.6b

Die beschriebenen Signale weisen bei genauer Betrachtung eine zusätzliche Substruktur auf. Jede Signatur unterteilt sich in die dominanten, einzelnen Beiträge von unterem und oberem Polariton, die von einer Wechselwirkung der THz-Impulse mit lediglich einem der beiden Polaritonen stammen. Zusätzlich erkennt man aber noch Mischterme, deren Liouvillepfade Frequenzen beider Polaritonen enthalten und bei den kohärenten 4WM- und 6WM-Signalen besonders ausgeprägt sind. Mit den zu den Polaritonen gehörenden Quasi-Wellenvektoren $\vec{k}_A^j = (\nu_j, 0)$ und $\vec{k}_B^j = (\nu_j, -\nu_j)$ ($j \in \{\text{LP}, \text{UP}\}$) lässt sich die Signatur mit dem Quasi-Wellenvektor $\vec{k}_{\text{mix}}^1 = (\nu_{\text{UP}}, -\nu_{\text{LP}})$ (roter Pfeil in Abb. 4.7a) durch den Liouvillepfad $\vec{k}_{\text{mix}}^1 = \vec{k}_B^{\text{LP}} + \vec{k}_A^{\text{UP}} - \vec{k}_A^{\text{LP}}$ ausdrücken.

Gemäß den Überlegungen aus Kapitel 2.5.2 entspricht dieser Pfad einer nichtlinearen Polarisation $P_{\text{mix}}^{\text{I}}$, die mithilfe der spektralen Amplituden $\mathcal{E}_{\text{A,LP}}$, $\mathcal{E}_{\text{A,UP}}$ und $\mathcal{E}_{\text{B,LP}}$ zu

$$P_{\text{mix}}^{\text{I}} = \chi^{(3)}(\nu_{\text{UP}}, \nu_{\text{LP}}, -\nu_{\text{LP}}) \mathcal{E}_{\text{A,UP}}^* \mathcal{E}_{\text{A,LP}} \mathcal{E}_{\text{B,LP}} e^{2\pi i \nu_{\text{UP}} t} e^{-2\pi i \nu_{\text{LP}} t} e^{2\pi i \nu_{\text{LP}} (t-\tau)} \quad (4.19)$$

angegeben werden kann. Die beispielhaft herausgegriffene Signatur in der nichtlinearen Antwort des ultrastark gekoppelten Systems kann folglich nur existieren, wenn das nichtlineare Tensorelement $\chi^{(3)}(\nu_{\text{UP}}, \nu_{\text{LP}}, -\nu_{\text{LP}})$ nicht verschwindet. Da $\chi^{(3)}(\nu_{\text{UP}}, \nu_{\text{LP}}, -\nu_{\text{LP}})$ von beiden Frequenzen ν_{UP} und ν_{LP} abhängt, setzt das Auftreten der Mischsignale eine Beteiligung beider Resonanzen voraus. Damit ist die Beobachtung der Mischterme in der nichtlinearen Antwort der Probe ein direkter Beweis für eine nichtlineare Wechselwirkung der Polaritonen unter intensiver Anregung.

Dem Auftreten der Wechselwirkungssignaturen liegt der sättigbare ISB-Übergang zugrunde. Wird dieser durch Absorption eines Photons mit der Frequenz des einen Polaritons angeregt, so beeinflusst die damit einhergehende verringerte Oszillatorstärke des ISB-Übergangs auch die Resonanz des anderen Polaritons in spektraler Position und Amplitude. Zudem weist die induzierte Polarisation des ISB-Übergangs eine nichtlineare Mischung der Frequenzen beider Polaritonen auf, was das Auftreten der Mischterme insbesondere bei den kohärenten Beiträgen zum nichtlinearen Signal erklärt.

Die Signaturen im 2D-Amplitudenspektrum werden vollständig durch das theoretische Modell bestätigt. Abb. 4.7b zeigt die Frequenzdarstellung der simulierten Daten aus Abb. 4.6b, welche quantitativ die relativen Amplituden der individuellen Signaturen korrekt wiedergibt. Wie im Experiment zerfallen die einzelnen Maxima hauptsächlich in die Anteile der beiden Polaritonen, zeigen aber auch die Beiträge der Mischterme. Das sättigbare Zwei-Niveau-System führt also auch im numerischen Modell zur nichtlinearen Wechselwirkung zwischen den Polaritonen, was den Ursprung der experimentell beobachteten Nichtlinearitäten in der Sättigung des ISB-Übergangs bestätigt.

Die Beobachtung der nichtlinearen Wechselwirkung zwischen den Polaritonen und insbesondere der kohärenten Beiträge der Polarisation zeigt einmal mehr das große Potenzial der 2D-THz-Spektroskopie, die es erlaubt, die mikroskopischen Wechselwirkungen in der Probe anhand der einzelnen, nichtlinearen Signale eindeutig zu identifizieren.

4.5.2 Mikroskopische Analyse der Polaritondynamik

Die zweidimensionale Fourier-Analyse der gewonnenen Daten erlaubt es, die einzelnen Beiträge zum gesamten, nichtlinearen Signal zu trennen und den jeweiligen Wechselwirkungen zuzuordnen. Darüber hinaus bietet sie jedoch auch die Möglichkeit, die Dynamik dieser Prozesse in der Zeitdomäne zu betrachten, indem mittels geeigneter Bandpassfilter einzelne Signale herausgegriffen und in die Zeitdomäne zurück transformiert werden.

Um die Dynamik des Anrege-Abtast-Signals bei $\nu_\tau = 0$ THz zu untersuchen, wurde ein zweidimensionaler Bandpass mit einer Breite von 1,6 THz um die Zentralfrequenz des Signals gelegt und das so gefilterte Frequenzspektrum invers Fourier-transformiert. Das so erhaltene elektrische Feld ist in Abb. 4.8a als Funktion der Verzögerungszeiten t und τ gezeigt. Bei dem dargestellten Signal handelt es sich um den inkohärenten Beitrag der Population des ISB-Übergangs zum nichtlinearen Signal. Es entsteht, wenn der anregende THz-Impuls (B) eine Population erzeugt und diese von Impuls A abgefragt wird. Jener Beitrag zum Signal mit vertauschten Rollen der Impulse A und B ist hier aufgrund der Auswahl des Frequenzfensters nicht gezeigt. Der zeitliche Verlauf entlang der τ -Achse stellt ein Maß für die Population dar und gibt damit die inkohärente Dynamik des sättigbaren Absorbers wieder.

Diese lässt sich am besten anhand eines Schnittes durch die zweidimensionale Feldverteilung entlang der τ -Achse für eine feste Verzögerungszeit von $t = 1,4$ ps beobachten, wie er in Abb. 4.8b als rote Kurve gezeigt ist. Der steile Anstieg für Zeiten $-1 \text{ ps} < \tau < 0,8 \text{ ps}$ rührt von der Anregung der ISB-Population durch den intensiven THz-Impuls. Der folgende Zerfall ist dominiert von der Relaxation der Population mit der charakteristischen Lebensdauer von 2,5 ps, wobei eine weitere, schnellere Dynamik dem Zerfall überlagert ist. Diese ist auf den periodischen Austausch von Energie zwischen Materie und Resonatormode zurückzuführen und führt folglich zu einer periodischen Entleerung und Bevölkerung des oberen Niveaus des ISB-Übergangs mit einer Rate von $2\Omega_R$. Dies manifestiert sich insbesondere in der Schulter des Anrege-Abtast-Signals bei $\tau = 3,6$ ps, wenn bereits der erste Rabi-Zyklus vollendet und die Besetzung des ISB-Übergangs teilweise wiederhergestellt ist. Aufgrund des Zerfalls der Population und vor allem der Dephasierung der Polarisation ist dieses Merkmal jedoch nur schwach ausgeprägt. Die blaue Kurve in Abb. 4.8b zeigt das gleichermaßen analysierte Anrege-Abtast-Signal der numerisch simulierten Spektren.

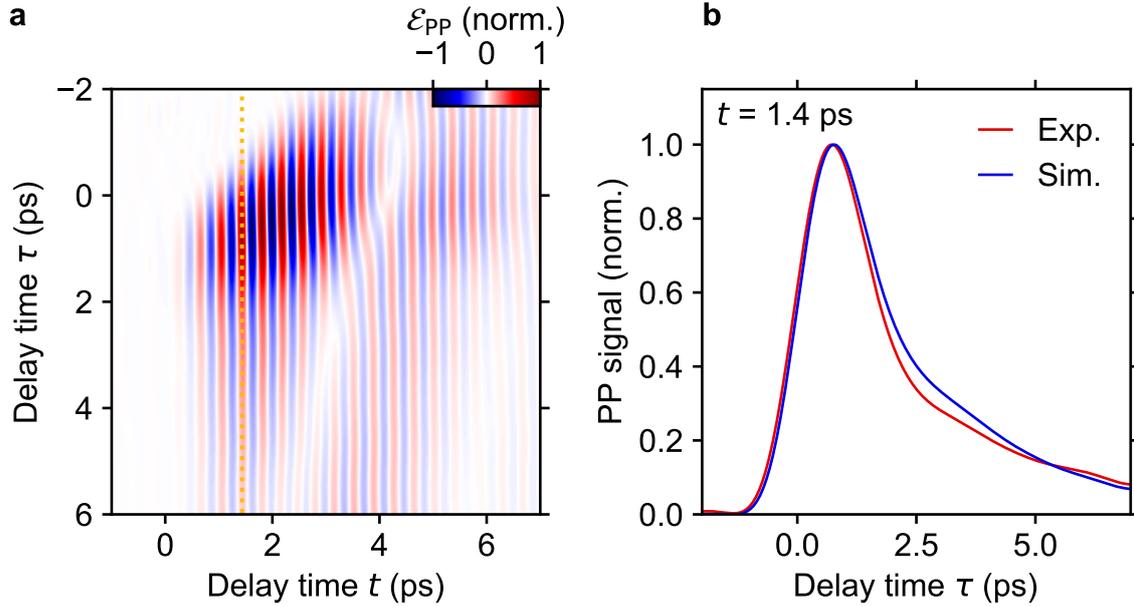


Abbildung 4.8: Zeitentwicklung des Anrege-Abtast-Signals. **a**, Normierte inverse Fourier-Transformation $\mathcal{E}_{PP}(t, \tau)$ des Anrege-Abtast-Signals bei $(\nu_t, \nu_\tau) = (2,7 \text{ THz}, 0 \text{ THz})$ aus Abb. 4.7a in einem Frequenzfenster von 1,6 THz als Funktion der Verzögerungszeiten t und τ . **b**, Rote Kurve: Schnitt durch $\mathcal{E}_{PP}(t, \tau)$ entlang der τ -Achse bei einer Verzögerungszeit $t = 1,4 \text{ ps}$ (gelbe Strichlinie in a) als Funktion der relativen Verzögerungszeit τ . Die blaue Kurve wurde auf gleiche Weise aus dem simulierten Spektrum von Abb. 4.7b gewonnen.

Auch diese Kurve zeigt den wechselseitigen Energieaustausch zwischen Population und Resonatormode und zeichnet die experimentellen Daten nahezu vollständig nach, was nochmals unterstreicht, wie gut Theorie und Experiment übereinstimmen.

Die hervorragende Übereinstimmung theoretischer und experimenteller Daten erlaubt einen tieferen Einblick in die Dynamik des ultrastark gekoppelten Systems. Neben dem elektrischen Feld des Resonators, das im Verlauf der Diskussion zum Vergleich mit den Messdaten diente, liefert die Lösung der gekoppelten Differenzialgleichungen zusätzlich die Population des ISB-Übergangs. Somit steht die vollständige Information über die Dynamik des betrachteten Systems zur Verfügung. In Abb. 4.9a sind die Ergebnisse der Simulation unter Anregung mit moderater Feldstärke, welche noch zu keiner vollständigen Sättigung führt, als Funktion der Verzögerungszeit t zusammengefasst. Die rote, gestrichelte Kurve zeichnet die Feldeinhüllende des anregenden THz-Impulses nach, welche bei $t = -0,8 \text{ ps}$ ihr Maximum erreicht.

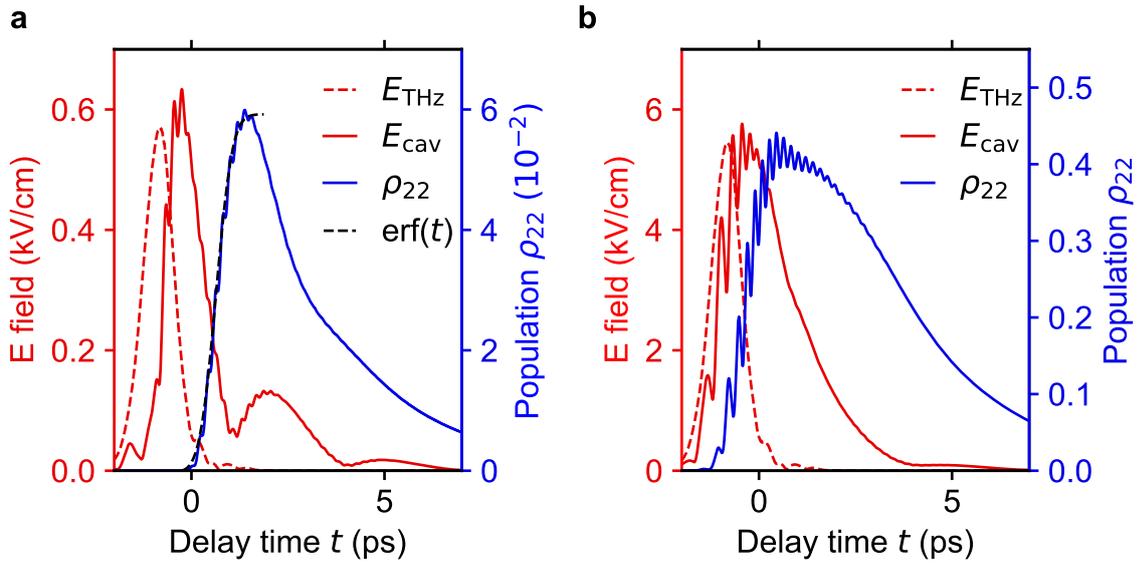


Abbildung 4.9: Simulation der Anregungsdynamik des sättigbaren Absorbers. Die THz-Wellenform (rote Strichlinie: Feldeinhüllende) regt im Resonator ein elektrisches Feld an (rote Linie: Feldamplitude), welches eine ausgeprägte Schwebung mit der Vakuum-Rabifrequenz als Funktion der Verzögerungszeit t zeigt. Dieses Feld koppelt an den ISB-Übergang und regt eine Besetzung des oberen Niveaus an (blaue Kurve, ρ_{22}). **a**, Anregung mit geringer Spitzenfeldstärke. Die schwarze Strichlinie stellt eine numerisch angepasste Fehlerfunktion zur Bestimmung der Anregungsdynamik dar. **b**, Anregung mit einer Spitzenfeldstärke, die zur Gleichbesetzung des ISB-Übergangs führt.

Dieses Feld regt die Mode des Resonators an und der Betrag des elektrischen Feldes (rote Linie) steigt stark an, bis er bei $t = -0,4$ ps sein Maximum erreicht. Die Energie des elektrischen Feldes im Resonator wird durch Absorption in die Besetzung des ISB-Übergangs (blaue Kurve) übertragen, die bei $0,7$ ps ihr Maximum erreicht. Dieses Maximum geht nahezu zeitgleich mit einem Minimum der Feldamplitude einher. Die zu diesem Zeitpunkt vorliegende Population ist für das Auftreten des Anrege-Abtast-Signals aus Abb. 4.8b verantwortlich, welches zusammen mit der Population ein Maximum annimmt.

Ab diesem Zeitpunkt kehrt sich der Ablauf um und die Energie fließt durch stimulierte Emission wieder in das elektrische Feld zurück, wobei die Population ab- und das Feld aufgebaut wird. Der schnelle Abbau der Population zugunsten des elektrischen Feldes manifestiert sich in dem ebenso raschen Zerfall des Anrege-Abtast-Signals,

nachdem dieses sein Maximum erreicht. Nach Abschluss eines Rabi-Zyklus bei einer Verzögerungszeit von $t = 3,6$ ps ist ein Teil der ursprünglichen Population des ISB-Übergangs wiederhergestellt und der Vorgang beginnt von neuem. Aufgrund der Dephasierung des Systems sowie der Verluste von Resonator und ISB-Übergang ist in den experimentellen Daten lediglich der erste Zyklus der Rabi-Oszillation gut erkennbar.

Die Dynamik der Anregung lässt sich mithilfe einer Gaußschen Fehlerfunktion ermitteln, welche numerisch an den simulierten Verlauf der Population angepasst wird. Eine solche Anpassung ist als schwarze Strichlinie in Abb. 4.9a gezeigt und ergibt eine volle Halbwertsbreite der zugehörigen Gauß-Funktion von 0,9 ps. Da die Sättigung des Absorbers durch den Zusammenbruch der ultrastarken Kopplung verursacht wird und dieser direkt mit der Besetzung des ISB-Übergangs verknüpft ist, dient diese Zeitdauer als Maß für die Reaktionszeit des sättigbaren Absorbers. Für die hier diskutierte, schwache Anregung bleibt die ultrastarke Kopplung von Licht und Materie erhalten, sodass der Rabi-Zyklus wie beschrieben ablaufen kann und ein periodischer Austausch der Energie über Zeitskalen der Dephasierungszeit möglich wird. Ist die Feldstärke der anregenden THz-Impulse jedoch so hoch, dass sie zu einer Besetzungsinversion des ISB-Übergangs führt, so ändert sich die Dynamik vollständig, wie in Abb. 4.9b zu sehen ist. Bei einer zehnmal höheren Feldstärke als in Teilbild a erreicht das Zwei-Niveau-System kurz nach der Anregung nahezu Gleichbesetzung und die ultrastarke Licht-Materie-Wechselwirkung bricht vollständig zusammen. In der Folge ist auch der Energieaustausch zwischen Resonatormode und ISB-Übergang stark unterdrückt und eine Rabi-Oszillation wie im Fall schwacher Anregung kommt nicht zustande. Vielmehr ist die Dynamik von Resonatormode und Population von Dämpfung bzw. Relaxation dominiert.

Die beiden vorgestellten Fälle definieren auch die Betriebspunkte des vorgeschlagenen sättigbaren Absorbers. Im Fall schwacher Anregung (a) erlaubt die ultrastarke Licht-Materie-Kopplung eine Absorption an den Resonanzfrequenzen der Polaritonen und einen effizienten Energietransfer zum Materiesystem. Überschreitet die anregende Feldstärke jedoch die Sättigungsfeldstärke (b), so wird die Licht-Materie-Wechselwirkung unterdrückt und die Absorption der Polaritonen verschwindet. Der Übergang von absorbierendem in den gesättigten Zustand erfolgt innerhalb von lediglich 0,9 ps, was die vorgestellten ISB-Polaritonen zu vielversprechenden sättigbaren Absorbern zur Generation von Pikosekunden-Wellenformen aus QCLs macht.

4.5.3 Vergleich der Sättigungsfeldstärken

Die vorgestellten experimentellen Befunde und numerischen Simulationen zeigen, dass ISB-Polaritonen schnelle und ausgesprochen effiziente sättigbare Absorber darstellen. Die geringen Verluste im gesättigten Zustand ermöglichen insbesondere den Einsatz in QCLs mit geringer Verstärkung, wo nicht-sättigbare Verluste besonders problematisch sind. Über diese vorteilhaften Eigenschaften hinaus erlaubt die ultrastarke Kopplung an die resonante Mode des plasmonischen Resonators eine deutliche Verringerung der Sättigungsfeldstärke des ISB-Übergangs.

Für einen quantitativen Vergleich mit den Ergebnissen der ungekoppelten Mehrfachquantentrogstruktur wurde in einer Messreihe die nichtlineare Antwort der Probe gemessen und dabei systematisch die Spitzenfeldstärke der anregenden THz-Impulse zwischen $0,34 \text{ kV cm}^{-1}$ und 14 kV cm^{-1} variiert. Als quantitatives Maß für die Stärke der nichtlinearen Antwort dient die in einem Frequenzfenster von $1,0 \text{ THz}$ Breite um die jeweilige Zentralfrequenz integrierte Amplitude des Anrege-Abtast-Signals $((\nu_t, \nu_\tau) = (\nu_{\text{ISB}}, -\nu_{\text{ISB}}))$ und des Vier-Wellen-Mischsignals $((\nu_t, \nu_\tau) = (\nu_{\text{ISB}}, \nu_{\text{ISB}}))$ (siehe Abb. 4.7).

In Abb. 4.10 ist die so gewonnene, integrierte Amplitude des Anrege-Abtast-Signals (Teilbild a) sowie des Vier-Wellen-Mischsignals (Teilbild b) als Funktion der Spitzenfeldstärke und Spitzenintensität eines anregenden THz-Transienten als rote Linie dargestellt. Beide Kurven steigen zunächst mit der Feldstärke stark an und erreichen bei $1,7 \text{ kV cm}^{-1}$ ein scharfes Maximum. Bei dieser Spitzenfeldstärke bricht die ultrastarke Kopplung bei der Anregung mit zwei Impulsen zusammen und die relative Änderung zwischen der Anregung mit nur einem Impuls und mit zwei Impulsen gleichzeitig ist maximal. Folglich erreicht auch die nichtlineare Antwort der Probe bei dieser Spitzenfeldstärke ein Maximum. Eine weitere Steigerung der Spitzenfeldstärke führt lediglich zu einer kleineren relativen Änderung und damit zu einer Verringerung der nichtlinearen Antwort, da maximal eine Gleichbesetzung des ISB-Übergangs erreicht werden kann. Da das ausgeprägte Maximum der nichtlinearen Antwort durch den Zusammenbruch der ultrastarken Kopplung verursacht und damit direkt die Stärke der Licht-Materie-Wechselwirkung beeinflusst wird, sind sowohl das kohärente Vier-Wellen-Mischsignal als auch das inkohärente Anrege-Abtast-Signal gleichermaßen betroffen und verlieren an Amplitude.

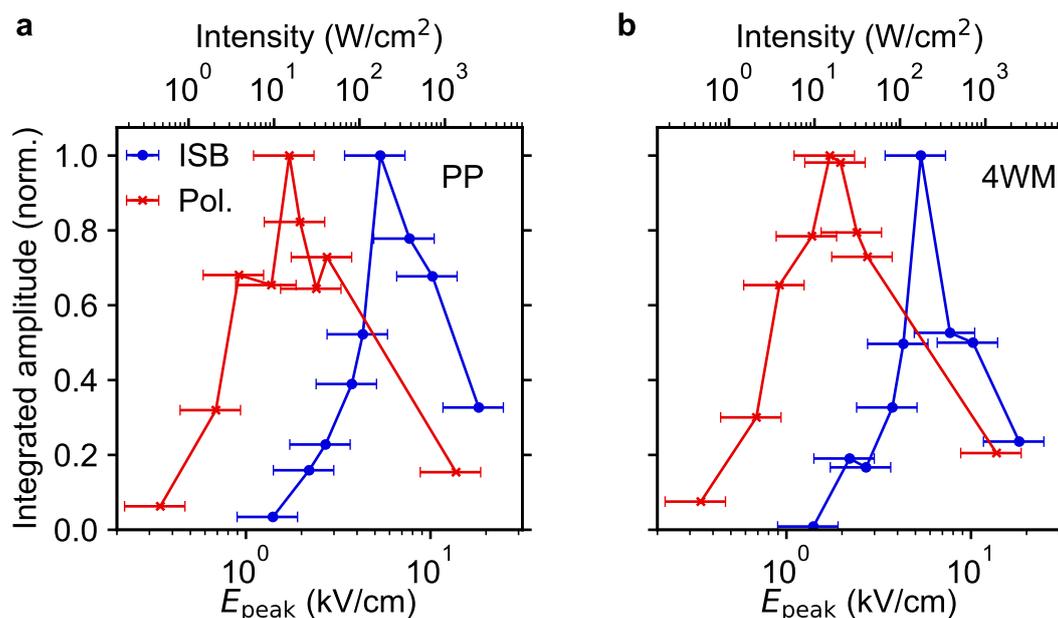


Abbildung 4.10: Vergleich der Sättigungsfeldstärken. Verlauf der integrierten Maxima in der Frequenzdomäne des **a**, Anrege-Abtast-Signals sowie **b**, Vier-Wellen-Mischsignals des ultrastark gekoppelten sättigbaren Absorbers (rot, Pol.) als Funktion der Spitzenfeldstärke (untere Achse) und der Spitzenintensität (obere Achse) eines einzelnen Impulses. Dazu wurden die jeweiligen Maxima im 2D-Amplitudenspektrum (siehe Abb. 4.7) in einem Frequenzfenster von 1,0 THz Breite integriert. Die blaue Kurve (ISB) dient dem Vergleich zum Verhalten des ungekoppelten ISB-Übergangs und ist aus Abb. 3.5 entnommen.

Die zum Vergleich in Abb. 4.10 eingezeichnete, integrierte nichtlineare Antwort des reinen ISB-Übergangs (blaue Linie) wurde bereits in Kapitel 3.4.2 umfassend diskutiert. Sie zeigt einen grundsätzlich ähnlichen Verlauf wie die der ISB-Polaritonen, erreicht ihr Maximum jedoch erst bei einer etwa zehnmal höheren Spitzenintensität. Diese starke Reduktion der Sättigungsintensität gegenüber dem reinen ISB-Übergang beruht dabei allein auf der ultrastarken Licht-Materie-Kopplung und demonstriert so den großen Vorteil, den die ultrastarke Kopplung für die Verwendung von Mehrfachquantentrogstrukturen als sättigbare Absorber bietet.

Eine weitere erhebliche Verringerung der Sättigungsfeldstärke lässt sich durch die angepasste Wahl des ISB-Übergangs erreichen. Wie bereits in Abschnitt 3.5.3 angesprochen, erzeugt die in dieser Arbeit vorgestellte THz-Quelle hochintensive, spektral breitbandige THz-Impulse, deren überwiegendes spektrales Gewicht im Bereich von

1,5 THz liegt. Folglich trägt auch nur ein geringer Teil der Impulsenergie zur Sättigung bei und die nötigen Sättigungsfeldstärken sind entsprechend höher, als es für eine vollständig resonante Anregung der Probe der Fall wäre. Simuliert man mithilfe des vorgestellten Modells die Sättigung der Probe unter Anregung mit einem auf die Zentralfrequenz des Systems abgestimmten, 4 ps langen Impuls, so verringert sich die Spitzenfeldstärke um etwa einen Faktor 10 gegenüber den experimentellen Werten. Die vorgestellten polaritonischen sättigbaren Absorber erfordern also Feldstärken von wenigen 100 V cm^{-1} um vollständig gesättigt zu werden.

Diese Feldstärken sind mittels moderner, leistungsfähiger THz-QCLs [Wan15, Wan17] bereits heute erreichbar und dürften, angesichts des raschen, technologischen Fortschritts auf diesem Gebiet [Vit15], wohl schon bald übertroffen werden. Zudem zeichnet sich der sättigbare Absorber auf Basis von ISB-Polaritonen durch geringere, nicht-sättigbare Verluste von lediglich 30% gegenüber 50% [Kei16b] beziehungsweise 80% [Hof10] in bisherigen Demonstrationen aus.

Die vorgestellte Dynamik der ISB-Polaritonen erlaubt eine Modulation der optischen Antwort des Systems innerhalb von 0,9 ps, was einer vollständigen Sättigung auf Zeitskalen weniger Oszillationsperioden der optischen Trägerwelle entspricht. Diese ultraschnelle Sättigungsdynamik unterstützt somit Impulsdauern von etwa 1 ps und erlaubt so die Generation erheblich kürzerer Impulse als Verfahren, die auf aktiver Modenkopplung beruhen. Die erreichbaren Impulsdauern können, bei passender Auslegung des Absorbers, sogar wesentlich kürzer ausfallen, als die Abschätzung über die Reaktionszeit des Absorbers nahelegt. Da lediglich jene cw-Moden des Lasers zusätzlichen, ultraschnell modulierbaren Verlusten unterliegen müssen, die auch die größte Verstärkung erfahren, reicht bereits die geringe Bandbreite des vorgeschlagenen Absorbers aus, um den gepulsten Betrieb gegenüber dem cw-Betrieb zu bevorzugen. Der sättigbare Absorber kann somit auch in Kombination mit erheblich größeren Verstärkungsbandbreiten Verwendung finden als die Absorptionsbandbreite nahelegt und ermöglicht so Impulse mit lediglich einzelnen Schwingungszyklen der Trägerwelle innerhalb der vollen Halbwertsdauer der Intensitätseinhüllenden.

Der Grundzustand des Absorbers stellt sich nach etwa 2,5 ps wieder ein, was ausreichend schnell ist, um den cw-Betrieb trotz kurzer Verstärkungs-Relaxationszeit des QCL effektiv zu unterdrücken. Darüber hinaus verspricht die lange Kohärenzzeit von 1,5 ps des Systems auch eine Verwendung zur kohärenten Impulsformung, was mit einer erheblichen Verbesserung der Effizienz gegenüber vollständig inko-

	T_{exc}	T_1	T_2^*	E_{sat}	E_{theo}
ISB	0,3 ps	5 ps	2,2 ps	11 kV cm ⁻¹	1 kV cm ⁻¹
USC	0,9 ps	2,5 ps	1,5 ps	3,4 kV cm ⁻¹	0,3 kV cm ⁻¹

Tabelle 4.1: Vergleich von ungekoppelten und ultrastark gekoppelten ISB-Übergängen. Die Tabelle vergleicht die wichtigsten Parameter von ungekoppelten (ISB) und ultrastark an das Lichtfeld (USC) gekoppelten ISB-Übergängen. T_{exc} beschreibt dabei die Zeitdauer bis zur Sättigung des Absorbers, T_1 die Populationslebensdauer und T_2^* die Dephasierungszeit. E_{sat} entspricht der experimentell bestimmten und E_{theo} der unter resonanter Anregung simulierten Sättigungsfeldstärke.

härennten Ansätzen einhergeht [Kal99]. Ein Vergleich von ultrastark gekoppelten und ungekoppelten ISB-Übergängen (siehe Tabelle 4.1) unterstreicht nochmals den entscheidenden Vorteil, der mit der Verwendung polaritonischer Absorber einhergeht. Nicht nur verringert sich die nötige Sättigungsfeldstärke auf rund ein Drittel, auch die Relaxationszeit ist durch die ultrastarke Kopplung deutlich verkürzt, was vor dem Hintergrund sehr kurzer Verstärkungs-Relaxationszeiten in QCLs einen erheblichen Vorteil bietet. Die im Vergleich zum ungekoppelten ISB-Übergang längere Anregungszeit des ultrastark gekoppelten Absorbers lässt sich kompensieren, indem beispielsweise die Kopplungsstärke von Licht und Materie durch eine höhere Dotierung oder verkleinertes Modenvolumen des Mikroresonators vergrößert wird. ISB-Polaritonen ebnet so den Weg für neuartige, elektrisch gepumpte THz-Quellen auf der Basis von Halbleiter-Heterostrukturen, welche in vielen Bereichen der Wissenschaft, aber auch der Spektroskopie [Con12, Con19b] und Datenübertragung [Fed10] Anwendung finden können.

Hochfeldspektroskopie an Quantenkaskadenlasern

Ultrakurze THz-Impulse aus modengekoppelten QCLs verlangen nach optimal angepassten sättigbaren Absorbern, wie sie in den vorherigen Abschnitten beschrieben und umfassend charakterisiert wurden. Das aktive Medium des QCL spielt jedoch eine mindestens ebenso große Rolle, definiert es doch für die Dynamik wichtige Parameter wie beispielsweise die Verstärkungs-Relaxationszeit. In bestehenden Veröffentlichungen wurden bereits Ansätze demonstriert, die diesen wichtigen Parameter im Rahmen von THz-Anrege-Abtast-Experimenten experimentell zugänglich machen [Krö07, Gre09, Bac16, Der18]. Dabei kamen stets verhältnismäßig geringe Spitzenfeldstärken der THz-Impulse zum Einsatz, die die Verstärkung des QCL nicht vollständig sättigen konnten. So zeigte die gemessene Verstärkungs-Relaxationszeit eine Abhängigkeit von der verwendeten THz-Feldstärke.

In einer alternativen Demonstration [Mar17b] nutzen die Autoren eine zusätzliche Modulation der elektrischen Vorspannung mit ns-Spannungsimpulsen in Phase mit der Wiederholrate der abtastenden THz-Impulse und beobachten so den sich aufbauenden Impulszug, welcher phasenstarr zum eingestrahlten THz-Feld ist. Dieser Impulszug sättigt die Verstärkung des QCL auf den Wert der Verluste des Resonators, was mit einem folgenden THz-Impuls abgetastet werden kann. Dieses Verfahren erfordert nicht nur aufwendige, zusätzliche Elektronik, sondern erlaubt auch keine Beobachtung der Dynamik am frei laufenden QCL.

Theoretische [Kaz71, Jon16] und experimentelle Arbeiten [Eic02] im mittel-infraroten Spektralbereich zeigten zudem, dass der Transport von Elektronen durch die Halbleiter-Heterostruktur teilweise auf kohärenten Mechanismen beruht, die jedoch im Frequenzbereich weniger THz und an aktiv emittierenden QCLs bislang noch unerforscht sind.

Vor dem Hintergrund der Bedeutung dynamischer Prozesse in QCLs für die Erzeugung ultrakurzer THz-Impulse und der bislang unvollständigen Datenlage zu diesem Thema erscheint es sinnvoll, auch das aktive Medium von QCLs in den Fokus von Hochfeld-Experimenten zu rücken. Daher stellt das folgende Kapitel erste experimentelle Ergebnisse der Untersuchung von QCLs mittels 2D-THz-Spektroskopie vor und zeigt so einen Weg auf, der umfassende Einblicke in die elektronische Dynamik von QCLs bietet.

Erste Transmissionsexperimente demonstrieren die Verstärkung der THz-Impulse im aktiven Medium und beweisen die vollständige Sättigung der Verstärkung durch die verwendeten THz-Impulse. Anschließende Experimente mittels 2D-THz-Spektroskopie geben Einblick in die vollständige, nichtlineare Dynamik des vorgespannten QCL. Eine Extraktion der Verstärkungs-Relaxationszeit als Funktion des Stroms durch den QCL demonstriert beispielhaft die Möglichkeiten, welche dieses Verfahren zur Erforschung von QCLs bietet.

5.1 Sättigung der Verstärkung

Die Dynamik der Verstärkung im QCL lässt sich beobachten, indem intensive THz-Impulse durch das aktive Medium transmittiert und anschließend in Amplitude und Phase detektiert werden. Das elektrische Feld führt im QCL durch stimulierte Emission zu einer schlagartigen Entleerung des oberen Laserniveaus und so zu einem Zusammenbrechen der Verstärkung des aktiven Mediums. Ein weiterer, auf den ersten folgender THz-Impuls erfährt eine entsprechend geringere Verstärkung, solange, bis sich diese wieder zu ihrem Gleichgewichtswert aufgebaut hat.

Ein entsprechender experimenteller Aufbau ist in Abb. 5.1 schematisch dargestellt. Der untersuchte QCL besteht aus einer $\text{Al}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}/\text{GaAs}$ Heterostruktur, welche in Referenz [Wor06] detailliert beschrieben ist. Diese wurde in der Gruppe von Prof. S. Dhillon (École Normale Supérieure, Paris) in einem nasschemischen Ätzprozess in Form eines Wellenleiters strukturiert. Der Wellenleiter weist eine Breite von

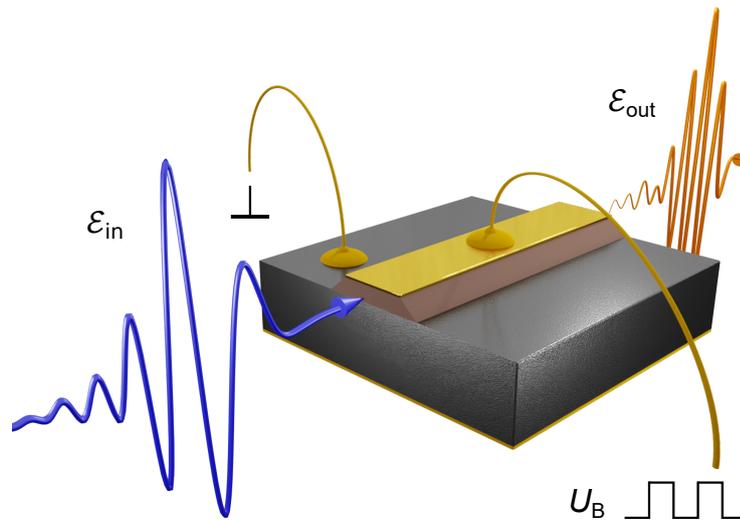


Abbildung 5.1: Transmissionsmessung am Quantenkaskadenlaser. Das aktive Medium des QCL (rötlich) ist in Form eines Wellenleiters strukturiert. Elektrische Kontakte sowohl auf der Oberseite des Wellenleiters (Gold) als auch auf dem p-dotierten GaAs-Substrat (grau) erlauben eine elektrische Vorspannung der Struktur. Zur Messung der Verstärkungsdynamik des QCL wird ein THz-Impuls (\mathcal{E}_{in} , blaue Wellenform) über die Spaltkante in den QCL eingekoppelt und das transmittierte elektrische Feld (\mathcal{E}_{out} , orange Wellenform) elektro-optisch detektiert. Eine Rechteckspannung (U_B) moduliert die Verstärkung des QCL.

250 μm sowie eine Dicke von 200 μm auf. Auf der Oberseite des Wellenleiters und der Unterseite des Substrats ist jeweils eine 150 nm dicke Goldschicht aufgebracht. Der 2,9 mm lange Laserresonator wird von den Endfacetten des aktiven Mediums gebildet und basiert auf der Fresnel-Reflexion an der GaAs-Luft-Grenzfläche. Eine externe Stromquelle spannt die Heterostruktur im Kryostaten elektrisch vor. Die Vorspannung U_B ist mit einem Rechtecksignal von 500 Hz moduliert. Diese elektrische Modulation ist mit der mechanischen Modulation der THz-Impulse bei einer Frequenz von 1 kHz (siehe Abschnitt 2.5.1) synchronisiert, sodass direkt auf die Änderung der Transmission durch die elektrische Vorspannung geschlossen werden kann. Die THz-Transienten der Quelle aus Abschnitt 2.4.1 (blau, \mathcal{E}_{in} in Abb. 5.1) treffen auf die vordere Endfacette des QCL, wobei das elektrische Feld parallel zur Wachstumsrichtung der Heterostruktur polarisiert ist. Ein Teil der Impulsenergie des einlaufenden Transienten koppelt in den Wellenleiter des QCL ein und propagiert bis zur zweiten Endfacette, wo wiederum ein Teil davon ausgekoppelt wird (orange, \mathcal{E}_{out}

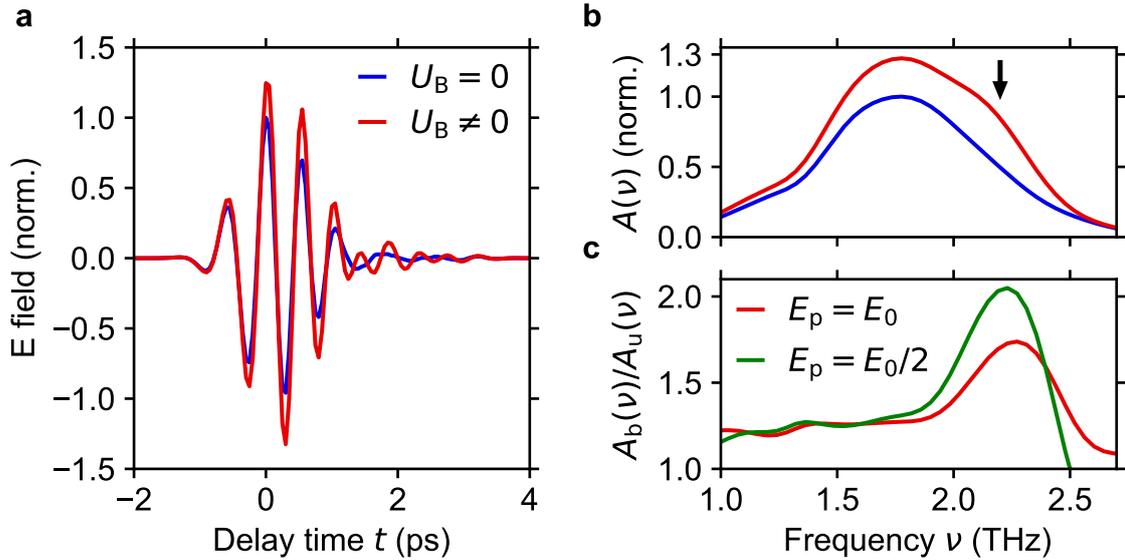


Abbildung 5.2: Sättigung der linearen Verstärkung. **a**, Gemessene THz-Wellenformen als Funktion der Verzögerungszeit t nach der Transmission durch den QCL mit (rot) und ohne (blau) Vorspannung. Im Fall $U_B \neq 0$ betrug der Strom durch den QCL $I_B = 920$ mA. **b**, Amplitudenspektren $A(\nu)$ für die in **a** gezeigten Wellenformen. Der Pfeil markiert die Zentralfrequenz des QCL. **c**, Die Teilabbildung zeigt die Modulation der Transmission als Funktion der Frequenz, definiert über den Quotienten der Transmissionsspektren von vorgespanntem und nicht-vorgespanntem QCL (siehe Teilbild **b**) für zwei Spitzenfeldstärken $E_p = E_0 = 1,4 \text{ kV cm}^{-1}$ und $E_p = E_0/2$.

in Abb. 5.1). Das derart transmittierte elektrische Feld wird anschließend elektrooptisch detektiert. Eine geeignete Elektronik (siehe Abschnitt 2.5.1) ermöglicht die Unterscheidung zwischen Zeiten mit und Zeiten ohne Vorspannung des QCL. Eine kleine, kreisförmige Lochblende vor der Eintrittsfacette des QCL stellt sicher, dass das gemessene elektrische Feld überwiegend aus dem Wellenleiter des QCL stammt und unterdrückt so einen störenden Hintergrund.

Ein durch den QCL transmittierter THz-Transient ist in Abb. 5.2a als Funktion der Verzögerungszeit t dargestellt. Der Vergleich der Wellenformen von vorgespanntem (rot, $U_B \neq 0$) und nicht-vorgespanntem (blau, $U_B = 0$) QCL zeigt bereits in der Zeitdomäne einen deutlichen Unterschied. Für den Fall $U_B \neq 0$ ist die Amplitude etwa 30% höher, als im Fall $U_B = 0$ und zeigt ausgeprägte Oszillationen etwa 1 ps nach dem Hauptmaximum. Dieser deutlich erkennbare Unterschied ist bereits ein

Anzeichen für die Verstärkung, die das elektrische Feld im aktiven Medium des QCL erfährt.

Anhand des Fourier-Spektrums des transmittierten elektrischen Feldes lässt sich eine Aussage über die spektrale Charakteristik der Verstärkung im QCL treffen. Abbildung 5.2b zeigt die Amplitudenspektren $A_b(\nu)$ und $A_u(\nu)$ für die beiden Wellenformen in Teilbild a, wobei der Vergleich der beiden Kurven zwei Auffälligkeiten zeigt. Bei Frequenzen von etwa 2,2 THz, entsprechend der Emissionsfrequenz des QCL, zeigt das Spektrum im Fall des vorgespannten QCL eine ausgeprägte Schulter (Pfeil in Abb. 5.2b), die auf die Verstärkung im QCL zurückzuführen ist. Des Weiteren ist die Transmission auch zu niedrigeren Frequenzen leicht erhöht, was an geringeren Verlusten im aktiven Medium aufgrund einer veränderten Ladungsträgerverteilung im vorgespannten QCL liegt [Krö07].

Der Quotient $A_b(\nu)/A_u(\nu)$ der beiden Amplitudenspektren aus Teilbild b liefert eine quantitative Aussage über die Verstärkung des THz-Impulses im QCL und ist in Abb. 5.2c als rote Kurve gezeigt. Das Verstärkungsspektrum wird dominiert von einem Maximum bei 2,2 THz, welches etwa 37% über der Basislinie liegt, die aufgrund der reduzierten Absorption einen Wert von über 1 aufweist. Die grüne Kurve in Abb. 5.2c zeigt das Ergebnis einer analogen Messung, jedoch mit einer um 50% reduzierten Spitzenfeldstärke des verwendeten THz-Impulses. Während die Basislinie einen ähnlichen Verlauf aufweist, ist die Verstärkung mit 64% fast doppelt so hoch, wie bei maximaler Spitzenfeldstärke. Die Anregung des aktiven Mediums spielt sich also fern des linearen Regimes ab, in dem die Verstärkung unabhängig von der eingestrahlten Spitzenfeldstärke sein sollte. Ein weiterer Effekt der verringerten Spitzenfeldstärke besteht in der Linienbreite des Maximums in Abb. 5.2c, welche im Fall der schwächeren Anregung deutlich geringer ausfällt. Dies ist so zu erwarten, wenn die Lebensdauer im oberen Laserniveau aufgrund der verringerten Anregungsintensität länger wird, was zu einer geringeren Linienbreite führt (sog. Leistungsverbreiterung [Cit77]).

Der Vergleich der beiden Messungen zeigt, dass die verwendeten THz-Impulse ausreichend intensiv sind, um die Verstärkung des QCL vollständig zu sättigen [Bac16]. Im Rahmen eines Anrege-Abtast-Experiments ist also sowohl die Verstärkungs-Relaxationszeit als auch die Dynamik des Aufbaus der Verstärkung direkt zugänglich.

5.2 2D-THz-Spektroskopie am Quantenkaskadenlaser

Wie eingangs bereits angesprochen, ist die Dynamik der Verstärkung im aktiven Medium des QCL theoretischen Vorhersagen zufolge stark von kohärenten Transportphänomenen geprägt. Sie spielen folglich auch für die Erzeugung ultrakurzer THz-Impulse eine entscheidende Rolle und bieten ein großes Potenzial für die Weiterentwicklung von QCLs. Ein umfassendes Verständnis dieser Prozesse setzt zeitaufgelöste Experimente voraus, die direkte Rückschlüsse auf die Prozesse im QCL erlauben. Ein hierfür ideales Verfahren stellt die 2D-THz-Spektroskopie dar, welche eine Unterscheidung von inkohärenten und kohärenten Beiträgen zur Licht-Materie-Wechselwirkung im aktiven Medium erlaubt.

Das grundsätzliche Messverfahren folgt dem in Abschnitt 2.5 beschriebenen: Zwei phasenstarre THz-Impulse werden um eine variable Verzögerungszeit τ gegeneinander verzögert. Der erste Impuls erzeugt in der Probe eine nichtlineare Polarisation, welche vom folgenden Impuls abgetastet wird. Das gesamte elektrische Feld wird nach der Wechselwirkung mit der Probe in Amplitude und Phase detektiert. Die Anordnung des Experiments ist identisch zu der der Transmissionsmessungen aus Kapitel 5.1 mit dem Unterschied, dass für die 2D-THz-Spektroskopie zwei aufeinander folgende THz-Wellenformen durch den Wellenleiter des QCL propagieren.

Die gemäß dem Schema aus Abschnitt 2.5.1 extrahierte nichtlineare Antwort $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ des nicht-vorgespannten QCL ist in Abb. 5.3 farbcodiert dargestellt. Die schwache nichtlineare Antwort stammt alleine von der Heterostruktur und hat den gleichen Ursprung wie die Nichtlinearitäten des reinen ISB-Übergangs, die bereits in Kapitel 3 ausführlich diskutiert wurden. Im Vergleich zur dort untersuchten Probe ist die nichtlineare Antwort jedoch nur im Bereich $\tau \approx 0$ ps kohärent moduliert, was auf eine wesentlich kürzere Kohärenzzeit des QCL hinweist.

Im Gegensatz dazu zeigt die nichtlineare Antwort des vorgespannten QCL ein völlig anderes Verhalten, wie in Abb. 5.3b für einen Strom von 1,0 A zu sehen ist. Zum einen fällt das Signal um etwa einen Faktor 100 höher aus als im nicht-vorgespannten Fall (man beachte die Skalierung in Teilbild a). Zum anderen erkennt man eine ausgeprägte, kohärente Modulation mit der Übergangsfrequenz des Lasers $\nu_0 = 2,2$ THz entlang der τ -Achse, die über das gesamte, aufgenommene Zeitfenster erhalten bleibt. Diese ist einem nicht modulierten Beitrag zur nichtlinearen Antwort überlagert, welcher entlang der τ -Achse exponentiell gedämpft ist.

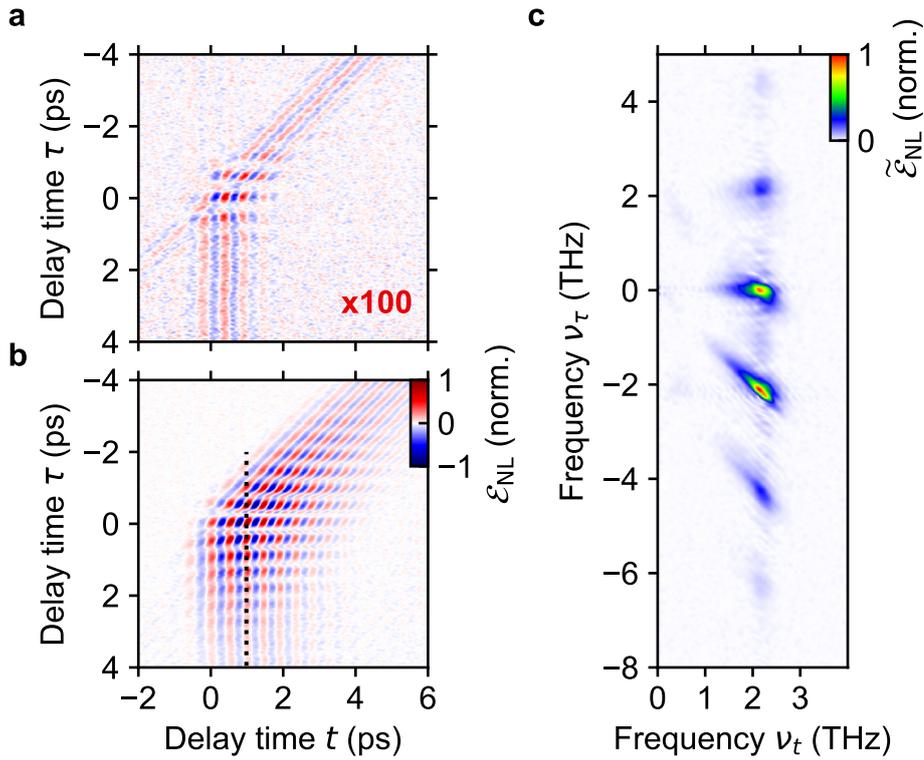


Abbildung 5.3: 2D-THz-Spektroskopie am Quantenkaskadenlaser. **a**, Emittierte nichtlineare Polarisation $\mathcal{E}_{NL}(t, \tau)$ des nicht-vorgespannten QCL als Funktion der Verzögerungszeiten t und τ . Das elektrische Feld wurde mit 100 multipliziert und mit der gleichen Farbskala wie in Teilbild b codiert. **b**, Wie a, jedoch für einen Strom durch den QCL von $I_B = 1,0$ A. **c**, Zweidimensionales Amplitudenspektrum $\tilde{\zeta}_{NL}(\nu_t, \nu_\tau)$ der nichtlinearen Antwort in b.

Die Überlegungen zur Verstärkung eines einzelnen Impulses im QCL, wie sie in Abschnitt 5.1 präsentiert wurden, erlauben eine erste, qualitative Interpretation der nichtlinearen Antwort des elektrisch in Besetzungsinversion gehaltenen aktiven Mediums. Intensive THz-Impulse führen mittels stimulierter Emission zu einem Abbau der Besetzungsinversion im oberen Laserniveau. Das Medium wird für den kurz darauf folgenden Impuls teilweise transparent, er erfährt also weder Verstärkung noch zusätzliche Absorption, was zu einer Amplitude des nichtlinearen Signals von der Größenordnung der Verstärkung im QCL führt. Dieser rein inkohärente Beitrag zur nichtlinearen Antwort wird mit der Verstärkungs-Relaxationszeit gedämpft und zerfällt entsprechend exponentiell in τ -Richtung.

Weiterhin impliziert diese Überlegung eine anschauliche Erklärung für die Modulation mit der Laserfrequenz ν_0 entlang der τ -Achse. Während die Polarisation zwischen oberem und unterem Laserniveau mit der Laserfrequenz oszilliert, wird deren Phase durch die Wechselwirkung mit dem ersten Impuls definiert. Die kohärente Kopplung des zweiten Impulses an diese Polarisation hängt nun von der Phasenbeziehung $\Delta\varphi = \tau\nu_0$ ab: Je nach Phasenlage kann die Population weiter reduziert oder durch Absorption wiederaufgebaut werden, was den als Funktion von τ modulierten Beitrag zur nichtlinearen Antwort erklärt.

Das 2D-Amplitudenspektrum der gezeigten Daten in Abb. 5.3 enthält eine Vielzahl von nichtlinearen Signaturen. Die einzelnen Maxima sind entlang ν_t bei der Laserfrequenz ν_0 und entlang der ν_τ -Achse bei ganzzahligen Vielfachen von ν_0 lokalisiert. Mithilfe der Liouvillepfade (siehe Abschnitt 2.5.2) lassen sich die einzelnen Signaturen unterschiedlichen nichtlinearen Prozessen zuordnen. Bei den dominanten Strukturen bei $\nu_\tau = 0$ und $\nu_\tau = -\nu_0$ handelt es sich um Anrege-Abtast-Signale, welche die Dynamik der Populationsinversion und damit direkt die Verstärkungs-Relaxationszeit abbilden. Sie entstehen, wie bereits oben diskutiert, durch die Sättigung der Verstärkung im aktiven Medium und den Wiederaufbau der Besetzungsinversion durch die elektrische Pumpe. Im Gegensatz dazu entspringen die Vier-Wellen-Mischsignale bei $\nu_\tau = \nu_0$ und $\nu_\tau = -2\nu_0$ einer kohärenten Wechselwirkung des elektrischen Feldes mit der Polarisation des Laserübergangs.

Weiterhin findet man bei $\nu_\tau = 2\nu_0$ sowie $\nu_\tau = -3\nu_0$ Sechs-Wellen-Mischsignale. Die zu den Pfaden $k_{6\text{WM}}^{\text{I}} = 3k_{\text{A}} - 2k_{\text{B}}$ sowie $k_{6\text{WM}}^{\text{II}} = 3k_{\text{B}} - 2k_{\text{A}}$ gehörenden nichtlinearen Polarisationen

$$P_{6\text{WM}}^{\text{I}} = \chi^{(5)}(\nu_0, \nu_0, \nu_0, -\nu_0, -\nu_0) \mathcal{E}_{\text{A}}^3 \mathcal{E}_{\text{B}}^{*2} e^{2\pi i \nu_0 t} e^{4\pi i \nu_0 \tau} \quad (5.1)$$

und

$$P_{6\text{WM}}^{\text{II}} = \chi^{(5)}(\nu_0, \nu_0, \nu_0, -\nu_0, -\nu_0) \mathcal{E}_{\text{B}}^3 \mathcal{E}_{\text{A}}^{*2} e^{2\pi i \nu_0 t} e^{-6\pi i \nu_0 \tau} \quad (5.2)$$

zeigen eindeutig, dass für das Auftreten der Sechs-Wellen-Mischsignale ein nichtlinearer Tensor 5. Ordnung nötig ist, welcher die Wechselwirkung von insgesamt fünf Photonen aus den beiden Impulsen vermittelt. Diese Signaturen weisen eine geringere Amplitude auf als die Nichtlinearitäten 3. Ordnung, verlangen jedoch nach einem hohen Grad an Kohärenz im System. Sie sind daher ein Indikator für die große Bedeutung kohärenter Ladungsträgerdynamik im aktiven Medium des QCL.

5.3 Quantitative Analyse der Verstärkungs-Relaxationsdynamik

Die im vorhergehenden Abschnitt beschriebenen kohärenten, nichtlinearen Signale sind größtenteils noch unverstanden und verlangen nach einer umfassenden theoretischen Analyse. Im Gegensatz dazu erlauben die Anrege-Abtast-Signale eine erste quantitative Aussage über die Zeitskalen, auf denen sich die Verstärkung im aktiven Medium wiederaufbaut, nachdem die Besetzungsinversion durch einen intensiven THz-Impuls zerstört wurde. Eine genaue Kenntnis über diese Größe ist essenziell für die Generation ultrakurzer THz-Impulse aus QCLs, da die dynamischen Parameter möglicher sättigbarer Absorber präzise auf diese abgestimmt sein müssen.

Die in Abb. 5.3b gezeigte nichtlineare Antwort in der Zeitdomäne erlaubt einen direkten Zugang zur Verstärkungs-Relaxationszeit, indem der exponentiell gedämpfte Anteil des Signals entlang der τ -Achse untersucht wird. Hierfür betrachtet man einen Schnitt durch $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ für eine feste Verzögerungszeit $t = 1,0$ ps, wie er in Abb. 5.4a gezeigt ist. Um den exponentiell gedämpften Beitrag zu extrahieren, wurde eine Funktion der Form von Gl. 3.9 numerisch an die experimentellen Daten angepasst und die Zeitkonstante T_1 als Verstärkungs-Relaxationszeit T_{gr} identifiziert. Das Ergebnis dieser Analyse ist in Abb. 5.4a als blaue Strichlinie über den experimentellen Daten gezeigt und reproduziert sowohl die gedämpfte Oszillation als auch den exponentiellen Zerfall exzellent.

Da es sich bei QCLs um elektrisch gepumpte Halbleiterlaser handelt, ist eine starke Abhängigkeit der Verstärkungs-Dynamik von der elektrischen Vorspannung beziehungsweise dem Strom durch den QCL zu erwarten. Die beschriebene Messung wurde daher für verschiedene Stromstärken I_{B} durchgeführt und die Zeitkonstante T_{gr} mittels der numerischen Anpassung ausgewertet. Das Ergebnis dieser Messreihe ist in Abb. 5.4b gezeigt, wobei die Fehlerbalken die jeweilige Unsicherheit der numerischen Anpassung widerspiegeln. Man erkennt einen deutlichen Anstieg von T_{gr} mit dem Pumpstrom, bis bei $I_{\text{B}} \approx 880$ mA ein Maximum von $T_{\text{gr}} = (2,3 \pm 0,2)$ ps erreicht wird. Diese Stromstärke entspricht gerade dem Schwellstrom des Lasers, ab dem die Lasertätigkeit einsetzt. Zu höheren Strömen und damit höheren Ausgangsleistungen des QCL sinkt T_{gr} wieder bis auf Werte von $(1,5 \pm 0,1)$ ps. Die mit steigendem Pumpstrom schneller ablaufende Dynamik der Verstärkung ist für einen QCL zu erwarten, da ein höherer Strom auch eine schnellere Bevölkung des oberen Laser-

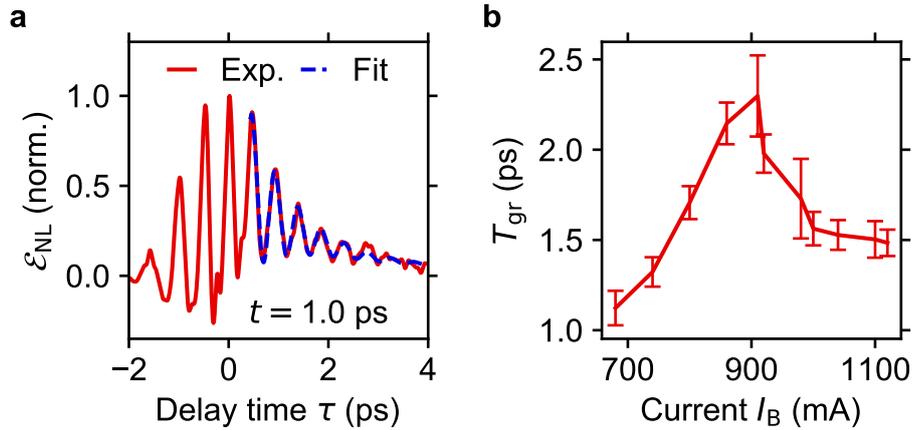


Abbildung 5.4: Verstärkungsdynamik des QCL. **a**, Schnitt durch $\mathcal{E}_{\text{NL}}(t, \tau)$ bei einer Verzögerungszeit $t = 1,0$ ps (siehe schwarze Strichlinie in Abb. 5.3b). Die blaue Strichlinie zeigt die numerische Anpassung einer Funktion der Form von Gl. 3.9. **b**, Das Teilbild zeigt die mithilfe der in **a** exemplarisch gezeigten Anpassung gewonnenen Zeiten T_{gr} als Funktion des Stroms I_B durch den QCL. Die Fehlerbalken geben die Unsicherheit der numerischen Anpassung wieder.

niveaus mit sich bringt. Die steigende Relaxationszeit bei Stromstärken unterhalb des Schwellstroms wurde so bislang nicht beobachtet und ist Gegenstand aktueller, theoretischer Untersuchungen.

Wenngleich weitere, theoretische Analysen nötig sind, zeigen die präsentierten Ergebnisse bereits eine Vielzahl relevanter und vielversprechender Aspekte. Die Verwendung hochintensiver, phasenstarrer THz-Impulse zur Untersuchung der Subzyklendynamik von QCLs erlaubt einen direkten Zugang zu allen relevanten Zeitskalen der Licht-Materie-Wechselwirkung im aktiven Medium, da das hohe elektrische Feld der THz-Impulse die vollständige Kontrolle der Besetzungsinversion ermöglicht. In Kombination mit 2D-THz-Spektroskopie wird so die vollständige, kohärente und inkohärente Dynamik der Verstärkung im Lasermedium zugänglich, wie die experimentelle Bestimmung der Verstärkungs-Relaxationszeit eindrucksvoll zeigen konnte. Die hier nur kurz umrissenen Experimente und Überlegungen zeigen, welches umfassende Potenzial zur Erforschung mikroskopischer Dynamik von QCLs eine tiefgreifende, theoretische Analyse der experimentellen Daten bietet. Die Beobachtung nichtlinearer Prozesse hoher Ordnung eröffnet so die Perspektive für eine umfassende Analyse des elektronischen Transports in vorgespannten Quantenkaskadenstrukturen, dessen Verständnis eine Grundlage für den modengekoppelten Betrieb von QCLs darstellt.

Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen der vorgestellten Experimente wurde mithilfe von 2D-THz-Spektroskopie die ultraschnelle Sättigungsdynamik von sättigbaren Absorbern im THz-Spektralbereich beobachtet und deren kohärente nichtlineare Antwort auf Subzyklen-Zeitskalen untersucht. Erste Experimente an ISB-Übergängen in Mehrfachquantentrogstrukturen ergaben, dass hochintensive THz-Impulse eine kohärente Kontrolle der Population erlauben und so Rabi-Oszillationen auf Zeitskalen einzelner Schwingungen der elektromagnetischen Trägerwelle treiben. Aufbauend auf diesen vielversprechenden Ergebnissen wurde ein neuartiger Ansatz zur Realisierung von sättigbaren Absorbern, basierend auf ultrastark Licht-Materie-gekoppelten ISB-Übergängen, vorgestellt. Experimentelle und theoretische Analysen konnten zeigen, dass diese Strukturen bereits bei Spitzenfeldstärken von 100 V cm^{-1} vollständig gesättigt werden, was eine Verwendung zur Modenkopplung von QCLs in greifbare Nähe rücken lässt.

Um diese Experimente erfolgreich durchführen zu können, wurde zunächst ein neuer Messplatz zur ultraschnellen, nichtlinearen THz-Spektroskopie entworfen und realisiert. Dieser basiert auf einer THz-Quelle, die mittels optischer Gleichrichtung ultrakurzer NIR-Impulse in einem LiNbO_3 -Kristall phasenstarre THz-Impulse mit Spitzenfeldstärken von bis zu 55 kV cm^{-1} und einer Impulsdauer von 620 fs erzeugt. Die neu entwickelte THz-Quelle ermöglicht die 2D-THz-Spektroskopie bei einer bislang unerreichten Repetitionsrate von 50 kHz und herausragendem Signal-Rausch-Verhältnis. Der vorgestellte Messplatz eröffnet durch die Kombination von hochintensiven THz-Impulsen und Subzyklen-Zeitauflösung den experimentellen Zugang zur ultraschnellen Dynamik der nichtlinearen Antwort von Halbleiter-Heterostrukturen.

In einem ersten Experiment wurde der neu aufgebaute Messplatz genutzt, um die Sättigungsdynamik von Mehrfachquantentrogstrukturen zu beobachten. Die Untersuchung mittels 2D-THz-Spektroskopie zeigte eine nichtlineare Antwort mit inkohärenten und kohärenten Beiträgen, die sowohl die Dynamik der Population als auch die der Polarisation der Materieanregung getrennt voneinander abbilden. Die quantitative Analyse der nichtlinearen Antwort ergab eine Relaxationszeit der ISB-Anregung von $T_1 = 5,0$ ps sowie eine Dephasierungszeit von $T_2^* = 2,2$ ps. Eine umfassende Messreihe zeigte eine stark nicht-monotone Abhängigkeit der Amplitude der nichtlinearen Signale von der Spitzenfeldstärke der anregenden THz-Transienten mit einem Maximum bei 11 kV cm^{-1} .

Eine neu entwickelte, numerische Simulation, basierend auf den Maxwell-Bloch-Gleichungen konnte die experimentellen Befunde, einschließlich des Skalierungsverhaltens der nichtlinearen Antwort mit der Spitzenfeldstärke, quantitativ reproduzieren. Sie zeigten, dass die hochintensiven THz-Impulse zu Rabi-Oszillationen auf Zeitskalen der Schwingungsperiode des elektrischen Feldes führen, welche durch die THz-Wellenform kohärent kontrolliert werden. Das Experiment markiert die erstmalige Beobachtung dieses extremen Regimes der Licht-Materie-Wechselwirkung in Mehrfachquantentrogstrukturen bei THz-Frequenzen und stellt so einen Meilenstein in der Untersuchung der Dynamik von ISB-Übergängen dar. Die Erzeugung der Besetzungsinversion auf Subzyklen-Zeitskalen bildet zugleich den Ursprung der unterdrückten nichtlinearen Antwort bei hohen Spitzenfeldstärken. Die Experimente und theoretischen Analysen zeigen die grundsätzliche Verwendbarkeit von ISB-Übergängen als sättigbare Absorber zur passiven Modenkopplung von Quantenkaskadenlasern und liefern die physikalischen Grundlagen für die Entwicklung neuartiger, optimierter sättigbarer Absorber.

Die ultrastarke Kopplung von ISB-Übergängen an plasmonische Mikroresonatoren stellt einen innovativen Ansatz zur Entwicklung sättigbarer Absorber mit optimierter Sättigungsfeldstärke und Dynamik dar, der im Rahmen dieser Arbeit erstmalig vorgestellt wurde. Die Anregung mit intensiven THz-Impulsen führt zu einer Besetzungsinversion des ISB-Übergangs und so zum Zusammenbruch der ultrastarken Licht-Materie-Kopplung auf Femtosekunden-Zeitskalen bei einer Spitzenfeldstärke von $3,4 \text{ kV cm}^{-1}$. 2D-THz-Spektroskopie erlaubte es, die bislang unerforschte, nichtlineare Dynamik ultrastark gekoppelter ISB-Übergänge detailliert zu untersuchen. Die Experimente zeigten eine starke nichtlineare Antwort, die inkohärente

und kohärente Signale, einschließlich von 6-Wellen-Mischsignalen, enthält. Eine Liouvillepfad-Analyse der nichtlinearen Signaturen identifizierte erstmalig beobachtete Wechselwirkungen zwischen den Polaritonen, was die enorme Bedeutung der 2D-THz-Spektroskopie für die Untersuchung der nichtlinearen Dynamik nochmals unterstreicht.

Zur Interpretation der Ergebnisse wurde ein vollständig neues theoretisches Modell erarbeitet, welches die Dynamik der ultrastarken Kopplung des ISB-Übergangs an die resonante Mode eines Mikroresonators beschreibt. Das Modell beinhaltet insbesondere eine korrekte Beschreibung der inhomogenen Feldverteilung im Inneren des Resonators, welche das Sättigungsverhalten beeinflusst. Die Simulationen reproduzierten die experimentellen Ergebnisse vollständig und ergaben, dass die Anregung der Struktur innerhalb von lediglich 0,9 ps vonstattengeht. Ein Vergleich der experimentellen Daten mit der Simulation erlaubte es, die unterschiedlichen Zerfallszeiten des Anrege-Abtast-Signals auf den dynamischen Austausch von Energie zwischen Resonatormode und Materie zurückzuführen. Die unterschiedlichen Zerfallszeiten stellen somit eine direkte Beobachtung dieses charakteristischen Merkmals der ultrastarken Kopplung in der Zeitdomäne dar.

Einen wesentlichen Vorteil der ultrastark gekoppelten sättigbaren Absorber stellt ihre niedrige Sättigungsintensität dar, welche lediglich ein Zehntel von der des ungekoppelten ISB-Übergangs beträgt. Die hohe Reflektivität (70%) der Struktur erlaubt zudem eine Verwendung der ultrastark gekoppelten ISB-Übergänge als verlustarme Endspiegel des Resonators eines QCL. Die vorgestellten Experimente und Simulationen zeigen somit eine vielversprechende Technologie auf, mit der ultrakurze Impulse aus modengekoppelten QCLs bereits mit heute verfügbarer Technik in greifbare Nähe rücken. Der große Anteil kohärenter Dynamik an der nichtlinearen Antwort eröffnet zudem eine Perspektive zur energie-erhaltenden, kohärenten Impulsformung von THz-Wellenformen durch maßgeschneiderte, polaritonische Absorber.

In einer abschließenden Messreihe wurde erstmalig das nichtlineare Verhalten von QCLs unter Anregung mit hochintensiven THz-Impulsen, welche in der Lage sind, die Verstärkung im aktiven Medium vollständig zu sättigen, untersucht. 2D-THz-Spektroskopie erlaubt es, die Relaxation der Verstärkung zurück in den Gleichgewichtszustand zeitaufgelöst für verschiedene Stromdichten im QCL zu beobachten. So wurde die Verstärkungs-Relaxationszeit bei der Schwellstromstärke der Lasertätigkeit zu $T_{gr} = 2,3$ ps bestimmt und die mit steigender Stromstärke schneller ablaufen-

de Relaxation nachvollzogen. Untersuchungen eines elektrisch vorgespannten QCL mittels 2D-THz-Spektroskopie ergaben starke, kohärente Nichtlinearitäten in Form von 4-Wellen und 6-Wellen-Mischsignalen. Diese erlauben künftig in Kombination mit einem mikroskopischen Modell detaillierte Aussagen über kohärente Transportphänomene in QCLs. Die Experimente stellen so einen ersten Schritt dar, hin zu einem vertieften Verständnis der Ladungsträgerdynamik in QCLs und bieten eine Perspektive für weitere Optimierungen der Strukturparameter.

Die vorgestellten, ultrastark gekoppelten Halbleiter-Heterostrukturen stellen flexible, auf ihre jeweilige Anwendung leicht anzupassende sättigbare Absorber dar, die im Vergleich zu dotierten Halbleitern [Hof10] oder supraleitenden Metamaterialien [Kei16b] erheblich geringere Sättigungsintensitäten aufweisen. Sie stellen das bislang vielversprechendste Materialsystem dar, um das Problem der relativ kurzen Verstärkungs-Relaxationszeiten in QCLs zu umgehen und mittels sättigbarer Absorber einen selbst-startenden, passiv modengekoppelten Betrieb von QCLs zu ermöglichen. Sie eröffnen vielfältige Einsatzmöglichkeiten für QCLs, die eine wertvolle Alternative zu etablierten, aber meist aufwendigen THz-Quellen darstellen. Beispielsweise ist der Einsatz von QCLs direkt in Ultrahochvakuum-Kammern von Nahfeldmikroskopen denkbar, sodass nicht nur störende Fenster vermieden, sondern die Experimente zusätzlich mit GHz-Repetitionsraten durchgeführt werden können. In Kombination mit schneller elektro-optischer Detektion [Urb16] versprechen die hohen Repetitionsraten modengekoppelter QCLs bisher nie dagewesene Signal-Rausch-Verhältnisse bei gleichzeitig kurzer Messzeit für Anwendungen in der zeitaufgelösten THz-Spektroskopie. Darüber hinaus ebnen modengekoppelte QCLs mit großer spektraler Bandbreite den Weg hin zu kompakten Spektrometern im Bereich der Spurengasdetektion oder der zerstörungsfreien Qualitätskontrolle [Ton07].

Publikationen

Publikationen in begutachteten Journalen

- M. Knorr, J. Raab, M. Tauer, P. Merkl, D. Peller, E. Wittmann, E. Riedle, C. Lange, & R. Huber, „Phase-locked multi-terahertz electric fields exceeding 13 MV/cm at a 190 kHz repetition rate“, *Opt. Lett.* **42**, 4367-4370 (2017).
- M. Knorr, P. Steinleitner, J. Raab, I. Gronwald, P. Merkl, C. Lange, & R. Huber, „Ultrabroadband etalon-free detection of infrared transients by van-der-Waals contacted sub-10- μm GaSe detectors“, *Opt. Express* **26**, 19059-19066 (2018).
- J. Raab, C. Lange, J. Boland, I. Laepple, M. Furthmeier, E. Dardanis, N. Dessmann, L. Li, E. Linfield, A. Davies, M. S. Vitiello, & R. Huber, „Ultrafast two-dimensional field spectroscopy of terahertz intersubband saturable absorbers“, *Opt. Express* **27**, 2248-2257 (2019).
- J. Raab, F. P. Mezzapesa, L. Viti, N. Dessmann, L. K. Diebel, L. Li, A. G. Davies, E. H. Linfield, C. Lange, R. Huber, & M. S. Vitiello, „Ultrafast terahertz saturable absorbers using tailored intersubband polaritons“, *Nat. Commun.* **11**, 4290 (2020).

Konferenzbeiträge

J. Raab, C. Lange, J. Boland, E. Dardanis, N. Dessmann, L. Li, E. Linfield, G. Davies, M. S. Vitiello, & R. Huber, „Sub-cycle 2D spectroscopy of terahertz intersubband saturable absorbers“, DPG Frühjahrstagung 2019, Rostock, Deutschland, März 2019.

Beiträge im Rahmen des Horizon 2020 Projekts „ULTRAQCL“

- J. Raab, C. Lange, M. Knorr, & R. Huber, „The new high-field THz source for ULTRAQCL“, Paris, Frankreich, Juni 2016.
- J. Raab, C. Lange, M. Knorr, M. S. Vitiello, & R. Huber, „2D spectroscopy of saturable absorber structure“, Pisa, Italien, Oktober 2016.
- J. Raab, C. Lange, E. Linfield, A. Davies, P. Dean, & R. Huber, „2D sub-cycle spectroscopy of saturable absorber and SIT“, Leeds, Vereinigtes Königreich, März 2017.
- J. Raab, C. Lange, M. Knorr, M. S. Vitiello, E. Linfield, A. Davies, P. Dean, & R. Huber, „Saturable absorber dynamics“, Regensburg, Deutschland, Mai 2018.
- J. Raab, C. Lange, M. Knorr, M. S. Vitiello, & R. Huber, „Sub-cycle 2D spectroscopy of terahertz intersubband saturable absorbers“, Paris, Frankreich, Dezember 2018.

Literatur

- [Ana09] Anappara, A. A. *et al.*, Signatures of the ultrastrong light-matter coupling regime, *Physical Review B* **79**, 201303 (2009).
- [Ask17] Askenazi, B. *et al.*, Midinfrared Ultrastrong Light–Matter Coupling for THz Thermal Emission, *ACS Photonics* **4**, 2550–2555 (2017).
- [Aus80] Auston, D. H. *et al.*, Picosecond optoelectronic detection, sampling, and correlation measurements in amorphous semiconductors, *Applied Physics Letters* **37**, 371–373 (1980).
- [Aus88] Auston, D. H. & Nuss, M. C., Electrooptical generation and detection of femtosecond electrical transients, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **24**, 184–197 (1988).
- [Bac16] Bacon, D. R. *et al.*, Gain recovery time in a terahertz quantum cascade laser, *Applied Physics Letters* **108**, 081104 (2016).
- [Bac17] Bach, F. *et al.*, Laser induced damage studies of LiNbO₃ using 1030-nm, ultrashort pulses at 10-1000 kHz, *Optical Materials Express* **7**, 240 (2017).
- [Bai16a] Baierl, S. *et al.*, Nonlinear spin control by terahertz-driven anisotropy fields, *Nature Photonics* **10**, 715–718 (2016).
- [Bai16b] Baierl, S. *et al.*, Terahertz-Driven Nonlinear Spin Response of Antiferromagnetic Nickel Oxide, *Physical Review Letters* **117**, 197201 (2016).
- [Bak10] Bakunov, M. I. & Bodrov, S. B., Si–LiNbO₃–air–metal structure for concentrated terahertz emission from ultrashort laser pulses, *Applied Physics B* **98**, 1–4 (2010).

- [Bak11] Bakunov, M. I., Bodrov, S. B. & Mashkovich, E. A., Terahertz generation with tilted-front laser pulses: dynamic theory for low-absorbing crystals, *Journal of the Optical Society of America B* **28**, 1724 (2011).
- [Bal02] Baltuska, A., Fuji, T. & Kobayashi, T., Controlling the carrier-envelope phase of ultrashort light pulses with optical parametric amplifiers, *Physical Review Letters* **88**, 133901 (2002).
- [Bao11] Bao, Q. *et al.*, Monolayer graphene as a saturable absorber in a mode-locked laser, *Nano Research* **4**, 297–307 (2011).
- [Bar11] Barbieri, S. *et al.*, Coherent sampling of active mode-locked terahertz quantum cascade lasers and frequency synthesis, *Nature Photonics* **5**, 306–313 (2011).
- [Bay17] Bayer, A. *et al.*, Terahertz Light-Matter Interaction beyond Unity Coupling Strength, *Nano Letters* **17**, 6340–6344 (2017).
- [Bel09] Belkin, M. A. *et al.*, High-Temperature Operation of Terahertz Quantum Cascade Laser Sources, *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **15**, 952–967 (2009).
- [Bia15] Bianco, F. *et al.*, THz saturable absorption in turbostratic multilayer graphene on silicon carbide, *Optics Express* **23**, 11632–11640 (2015).
- [Bia17] Bianchi, V. *et al.*, Terahertz saturable absorbers from liquid phase exfoliation of graphite, *Nature Communications* **8**, 15763 (2017).
- [Bir07] Birner, S. *et al.*, nextnano: General Purpose 3-D Simulations, *IEEE Transactions on Electron Devices* **54**, 2137–2142 (2007).
- [Bla07] Blanchard, F. *et al.*, Generation of 1.5 μJ single-cycle terahertz pulses by optical rectification from a large aperture ZnTe crystal, *Optics Express* **15**, 13212–13220 (2007).
- [Bla14] Blanchard, F. *et al.*, Terahertz pulse generation from bulk GaAs by a tilted-pulse-front excitation at 1.8 μm , *Applied Physics Letters* **105**, 241106 (2014).

- [Bod08] Bodrov, S. B., Bakunov, M. I. & Hangyo, M., Efficient Cherenkov emission of broadband terahertz radiation from an ultrashort laser pulse in a sandwich structure with nonlinear core, *Journal of Applied Physics* **104**, 093105 (2008).
- [Bod09] Bodrov, S. B. *et al.*, Highly efficient optical-to-terahertz conversion in a sandwich structure with LiNbO₃ core, *Optics Express* **17**, 1871–1879 (2009).
- [Bod12] Bodrov, S. B. *et al.*, Efficient terahertz generation by optical rectification in Si-LiNbO₃-air-metal sandwich structure with variable air gap, *Applied Physics Letters* **100**, 201114 (2012).
- [Bon95] Bonvalet, A. *et al.*, Generation of ultrabroadband femtosecond pulses in the mid-infrared by optical rectification of 15 fs light pulses at 100 MHz repetition rate, *Applied Physics Letters* **67**, 2907–2909 (1995).
- [Boy19] Boyd, R. W., *Nonlinear optics* Fourth edition, (Academic Press, 2019).
- [Bra00] Brabec, T. & Krausz, F., Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics, *Reviews of Modern Physics* **72**, 545–591 (2000).
- [Bri05] Brixner, T. *et al.*, Two-dimensional spectroscopy of electronic couplings in photosynthesis, *Nature* **434**, 625–628 (2005).
- [Bur14] Burghoff, D. *et al.*, Terahertz laser frequency combs, *Nature Photonics* **8**, 462–467 (2014).
- [Bur17] Burford, N. M. & El-Shenawee, M. O., Review of terahertz photoconductive antenna technology, *Optical Engineering* **56**, 010901 (2017).
- [Cap87] Capasso, F., Band-gap engineering: from physics and materials to new semiconductor devices, *Science* **235**, 172–176 (1987).
- [Cha06] Chang, G. *et al.*, Power scalable compact THz system based on an ultrafast Yb-doped fiber amplifier, *Optics Express* **14**, 7909–7913 (2006).
- [Cho08] Choi, H. *et al.*, Femtosecond dynamics of resonant tunneling and superlattice relaxation in quantum cascade lasers, *Applied Physics Letters* **92**, 122114 (2008).
- [Cit77] Citron, M. L. *et al.*, Experimental study of power broadening in a two-level atom, *Physical Review A* **16**, 1507–1512 (1977).

- [Ciu05] Ciuti, C., Bastard, G. & Carusotto, I., Quantum vacuum properties of the intersubband cavity polariton field, *Physical Review B* **72**, 115303 (2005).
- [Coc13] Cocker, T. L. *et al.*, An ultrafast terahertz scanning tunnelling microscope, *Nature Photonics* **7**, 620–625 (2013).
- [Coc16] Cocker, T. L. *et al.*, Tracking the ultrafast motion of a single molecule by femtosecond orbital imaging, *Nature* **539**, 263–267 (2016).
- [Con12] Consolino, L. *et al.*, Phase-locking to a free-space terahertz comb for metrological-grade terahertz lasers, *Nature Communications* **3**, 1040 (2012).
- [Con19a] Consolino, L. *et al.*, Fully phase-stabilized quantum cascade laser frequency comb, *Nature Communications* **10**, 2938 (2019).
- [Con19b] Consolino, L. *et al.*, QCL-based frequency metrology from the mid-infrared to the THz range: a review, *Nanophotonics* **8**, 181–204 (2019).
- [Cow05] Cowan, M. L. *et al.*, Ultrafast memory loss and energy redistribution in the hydrogen bond network of liquid H₂O, *Nature* **434**, 199–202 (2005).
- [Cun02] Cundiff, S. T., Phase stabilization of ultrashort optical pulses, *Journal of Physics D: Applied Physics* **35**, R43–R59 (2002).
- [Dav00] David J. Jones *et al.*, Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis, *Science (New York, N. Y.)* **288**, 635–640 (2000).
- [Den10] Deng, H., Haug, H. & Yamamoto, Y., Exciton-polariton Bose-Einstein condensation, *Reviews of Modern Physics* **82**, 1489–1537 (2010).
- [Der18] Derntl, C. G. *et al.*, Gain dynamics in a heterogeneous terahertz quantum cascade laser, *Applied Physics Letters* **113**, 181102 (2018).
- [Dhi17] Dhillon, S. S. *et al.*, The 2017 terahertz science and technology roadmap, *Optics Express* **50**, 043001 (2017).
- [Die12] Dietze, D., Darmo, J. & Unterrainer, K., THz-driven nonlinear inter-subband dynamics in quantum wells, *Optics Express* **20**, 23053–23060 (2012).

-
- [Die13] Diebold, A. *et al.*, SESAM mode-locked Yb:CaGdAlO₄ thin disk laser with 62 fs pulse generation, *Optics Letters* **38**, 3842–3845 (2013).
- [Die14] Dietz, R. J. B. *et al.*, Influence and adjustment of carrier lifetimes in InGaAs/InAlAs photoconductive pulsed terahertz detectors: 6 THz bandwidth and 90dB dynamic range, *Optics Express* **22**, 19411–19422 (2014).
- [Din03] Dini, D. *et al.*, Microcavity polariton splitting of intersubband transitions, *Physical Review Letters* **90**, 116401 (2003).
- [Din04] Ding, Y. J., Efficient generation of high-power quasi-single-cycle terahertz pulses from a single infrared beam in a second-order nonlinear medium, *Optics Letters* **29**, 2650–2652 (2004).
- [Eic01] Eickemeyer, F. *et al.*, Coherent nonlinear propagation of ultrafast electric field transients through intersubband resonances, *Applied Physics Letters* **79**, 165–167 (2001).
- [Eic02] Eickemeyer, F. *et al.*, Ultrafast coherent electron transport in semiconductor quantum cascade structures, *Physical Review Letters* **89**, 047402 (2002).
- [Fai94] Faist, J. *et al.*, Quantum cascade laser, *Science* **264**, 553–556 (1994).
- [Fec03] Fecko, C. J. *et al.*, Ultrafast hydrogen-bond dynamics in the infrared spectroscopy of water, *Science* **301**, 1698–1702 (2003).
- [Fed10] Federici, J. & Moeller, L., Review of terahertz and subterahertz wireless communications, *Journal of Applied Physics* **107**, 111101 (2010).
- [Fol15] Folpini, G. *et al.*, Nonresonant coherent control: Intersubband excitations manipulated by a nonresonant terahertz pulse, *Physical Review B* **92**, 71 (2015).
- [For19] Forn-Díaz, P. *et al.*, Ultrastrong coupling regimes of light-matter interaction, *Reviews of Modern Physics* **91**, 025005 (2019).
- [Fri19] Frisk Kockum, A. *et al.*, Ultrastrong coupling between light and matter, *Nature Reviews Physics* **1**, 19–40 (2019).
- [Fül10] Fülöp, J. A. *et al.*, Design of high-energy terahertz sources based on optical rectification, *Optics Express* **18**, 12311–12327 (2010).

- [Gay08] Gaye, O. *et al.*, Temperature and wavelength dependent refractive index equations for MgO-doped congruent and stoichiometric LiNbO₃, *Applied Physics B* **91**, 343–348 (2008).
- [Gla14] Glazov, M. M. & Ganichev, S. D., High frequency electric field induced nonlinear effects in graphene, *Physics Reports* **535**, 101–138 (2014).
- [Gra06] Grange, R. *et al.*, Antimonide semiconductor saturable absorber for passive mode locking of a 1.5 μm Er:Yb:glass laser at 10 GHz, *IEEE Photonics Technology Letters* **18**, 805–807 (2006).
- [Gre09] Green, R. P. *et al.*, Gain recovery dynamics of a terahertz quantum cascade laser, *Physical Review B* **80**, 075303 (2009).
- [Gu17] Gu, X. *et al.*, Microwave photonics with superconducting quantum circuits, *Physics Reports* **718-719**, 1–102 (2017).
- [Gün09] Günter, G. *et al.*, Sub-cycle switch-on of ultrastrong light-matter interaction, *Nature* **458**, 178–181 (2009).
- [Heb02] Hebling, J. *et al.*, Velocity matching by pulse front tilting for large area THz-pulse generation, *Optics Express* **10**, 1161–1166 (2002).
- [Heb04] Hebling, J. *et al.*, Tunable THz pulse generation by optical rectification of ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts, *Applied Physics B* **78**, 593–599 (2004).
- [Heb08] Hebling, J. *et al.*, Generation of high-power terahertz pulses by tilted-pulse-front excitation and their application possibilities, *Journal of the Optical Society of America B* **25**, B6 (2008).
- [Hey96] Heyman, J. N. *et al.*, Far-infrared pump-probe measurements of the intersubband lifetime in an AlGaAs/GaAs coupled-quantum well, *Applied Physics Letters* **68**, 3019–3021 (1996).
- [Hir11] Hirori, H. *et al.*, Single-cycle terahertz pulses with amplitudes exceeding 1 MV/cm generated by optical rectification in LiNbO₃, *Applied Physics Letters* **98**, 091106 (2011).
- [Ho10] Ho, I.-C., Guo, X. & Zhang, X.-C., Design and performance of reflective terahertz air-biased-coherent-detection for time-domain spectroscopy, *Optics Express* **18**, 2872–2883 (2010).

-
- [Hof10] Hoffmann, M. C. & Turchinovich, D., Semiconductor saturable absorbers for ultrafast terahertz signals, *Applied Physics Letters* **96**, 151110 (2010).
- [Hoh15] Hohenleutner, M. *et al.*, Real-time observation of interfering crystal electrons in high-harmonic generation, *Nature* **523**, 572–575 (2015).
- [Hou19] Houver, S. *et al.*, 2D THz spectroscopic investigation of ballistic conduction-band electron dynamics in InSb, *Optics Express* **27**, 10854–10865 (2019).
- [Hou95] Houdré *et al.*, Saturation of the strong-coupling regime in a semiconductor microcavity: Free-carrier bleaching of cavity polaritons, *Physical Review B* **52**, 7810–7813 (1995).
- [Hub00] Huber, R. *et al.*, Generation and field-resolved detection of femtosecond electromagnetic pulses tunable up to 41 THz, *Applied Physics Letters* **76**, 3191–3193 (2000).
- [Jon16] Jonasson, O., Karimi, F. & Knezevic, I., Partially coherent electron transport in terahertz quantum cascade lasers based on a Markovian master equation for the density matrix, *Journal of Computational Electronics* **15**, 1192–1205 (2016).
- [Jou11] Jouy, P. *et al.*, Transition from strong to ultrastrong coupling regime in mid-infrared metal-dielectric-metal cavities, *Applied Physics Letters* **98**, 231114 (2011).
- [Jun10] Junginger, F. *et al.*, Single-cycle multiterahertz transients with peak fields above 10 MV/cm, *Optics Letters* **35**, 2645–2647 (2010).
- [Jun12] Junginger, F. *et al.*, Nonperturbative interband response of a bulk InSb semiconductor driven off resonantly by terahertz electromagnetic few-cycle pulses, *Physical Review Letters* **109**, 147403 (2012).
- [Jun97] Jung, I. D. *et al.*, Semiconductor saturable absorber mirrors supporting sub-10-fs pulses, *Applied Physics B* **65**, 137–150 (1997).
- [Kal83] Kaluzny, Y. *et al.*, Observation of Self-Induced Rabi Oscillations in Two-Level Atoms Excited Inside a Resonant Cavity: The Ringing Regime of Superradiance, *Physical Review Letters* **51**, 1175–1178 (1983).
- [Kal98] Kalosha, V. P., Müller, M. & Herrmann, J., Coherent-absorber mode locking of solid-state lasers, *Optics Letters* **23**, 117–119 (1998).

- [Kal99] Kalosha, V. P., Müller, M. & Herrmann, J., Theory of solid-state laser mode locking by coherent semiconductor quantum-well absorbers, *Journal of the Optical Society of America B* **16**, 323 (1999).
- [Kan93] Kane, D. J. & Trebino, R., Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **29**, 571–579 (1993).
- [Kar08] Karpowicz, N. *et al.*, Coherent heterodyne time-domain spectrometry covering the entire “terahertz gap”, *Applied Physics Letters* **92**, 011131 (2008).
- [Kaz17] Kazakov, D. *et al.*, Self-starting harmonic frequency comb generation in a quantum cascade laser, *Nature Photonics* **11**, 789–792 (2017).
- [Kaz71] Kazarinov, R. F. & Suris, R. A., Possible amplification of electromagnetic waves in a semiconductor with a superlattice, *Soviet Physics: Semiconductors* **5**, 707–709 (1971).
- [Kei16a] Keiber, S. *et al.*, Electro-optic sampling of near-infrared waveforms, *Nature Photonics* **10**, 159–162 (2016).
- [Kei16b] Keiser, G. R. *et al.*, Terahertz saturable absorption in superconducting metamaterials, *Journal of the Optical Society of America B* **33**, 2649 (2016).
- [Kel03] Keller, U., Recent developments in compact ultrafast lasers, *Nature* **424**, 831–838 (2003).
- [Kel96] Keller, U. *et al.*, Semiconductor saturable absorber mirrors (SESAM’s) for femtosecond to nanosecond pulse generation in solid-state lasers, *IEEE Journal on Selected Topics in Quantum Electronics* **2**, 435–453 (1996).
- [Kim10] Kim, D.-H. & del Alamo, J. A., 30-nm InAs PHEMTs With $f_T = 644$ GHz and $f_{max} = 681$ GHz, *IEEE Electron Device Letters* **31**, 806–808 (2010).
- [Kim12] Kim, K. W. *et al.*, Ultrafast transient generation of spin-density-wave order in the normal state of BaFe₂As₂ driven by coherent lattice vibrations, *Nature Materials* **11**, 497–501 (2012).

-
- [Kir06] Kira, M. & Koch, S. W., Many-body correlations and excitonic effects in semiconductor spectroscopy, *Progress in Quantum Electronics* **30**, 155–296 (2006).
- [Kno17] Knorr, M. *et al.*, Phase-locked multi-terahertz electric fields exceeding 13 MV/cm at a 190 kHz repetition rate, *Optics Letters* **42**, 4367–4370 (2017).
- [Kno18] Knorr, M. *et al.*, Ultrabroadband etalon-free detection of infrared transients by van-der-Waals contacted sub-10- μm GaSe detectors, *Optics Express* **26**, 19059–19066 (2018).
- [Koe01] Koenig, J. L., Wang, S. Q. & Bhargava, R., FTIR images, *Analytical chemistry* **73**, 360A–369A (2001).
- [Kol06] Kolano, C. *et al.*, Watching hydrogen-bond dynamics in a beta-turn by transient two-dimensional infrared spectroscopy, *Nature* **444**, 469–472 (2006).
- [Kol13] Kolarczik, M. *et al.*, Quantum coherence induces pulse shape modification in a semiconductor optical amplifier at room temperature, *Nature Communications* **4**, 2953 (2013).
- [Krö07] Kröll, J. *et al.*, Phase-resolved measurements of stimulated emission in a laser, *Nature* **449**, 698–701 (2007).
- [Küb04] Kübler, C. *et al.*, Ultrabroadband detection of multi-terahertz field transients with GaSe electro-optic sensors: Approaching the near infrared, *Applied Physics Letters* **85**, 3360–3362 (2004).
- [Kue09] Kuehn, W. *et al.*, Phase-resolved two-dimensional spectroscopy based on collinear n-wave mixing in the ultrafast time domain, *The Journal of chemical physics* **130**, 164503 (2009).
- [Kum11] Kumar, S., Recent Progress in Terahertz Quantum Cascade Lasers, *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **17**, 38–47 (2011).
- [Kur11] Kurter, C. *et al.*, Microscopic examination of hot spots giving rise to nonlinearity in superconducting resonators, *Physical Review B* **84**, 1026 (2011).

- [Kur12] Kurter, C. *et al.*, Switching nonlinearity in a superconductor-enhanced metamaterial, *Applied Physics Letters* **100**, 121906 (2012).
- [Kur98] Kurtner, F. X., der Au, J. A. & Keller, U., Mode-locking with slow and fast saturable absorbers-what's the difference?, *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **4**, 159–168 (1998).
- [Lag04] Lagatsky, A. A. *et al.*, Passive mode locking of a Cr⁴⁺:YAG laser by PbS quantum-dot-doped glass saturable absorber, *Optics Communications* **241**, 449–454 (2004).
- [Lag07] Lagatsky, A. A. *et al.*, Low-loss quantum-dot-based saturable absorber for efficient femtosecond pulse generation, *Applied Physics Letters* **91**, 231111 (2007).
- [Lan14] Lange, C. *et al.*, Extremely Nonperturbative Nonlinearities in GaAs Driven by Atomically Strong Terahertz Fields in Gold Metamaterials, *Physical Review Letters* **113**, 227401 (2014).
- [Lei99] Leitenstorfer, A. *et al.*, Detectors and sources for ultrabroadband electro-optic sampling: Experiment and theory, *Applied Physics Letters* **74**, 1516–1518 (1999).
- [Li06] Li, X. *et al.*, Many-body interactions in semiconductors probed by optical two-dimensional fourier transform spectroscopy, *Physical Review Letters* **96**, 057406 (2006).
- [Liu04] Liu, K., Xu, J. & Zhang, X.-C., GaSe crystals for broadband terahertz wave detection, *Applied Physics Letters* **85**, 863–865 (2004).
- [Lod15] Lodahl, P., Mahmoodian, S. & Stobbe, S., Interfacing single photons and single quantum dots with photonic nanostructures, *Reviews of Modern Physics* **87**, 347–400 (2015).
- [Lu19] Lu, Q. *et al.*, Room temperature terahertz semiconductor frequency comb, *Nature Communications* **10**, 2403 (2019).
- [Luo04] Luo, C. W. *et al.*, Phase-resolved nonlinear response of a two-dimensional electron gas under femtosecond intersubband excitation, *Physical Review Letters* **92**, 047402 (2004).

-
- [Maa16] Maag, T. *et al.*, Coherent cyclotron motion beyond Kohn's theorem, *Nature Physics* **12**, 119–123 (2016).
- [Mad71] Madey, J. M. J., Stimulated Emission of Bremsstrahlung in a Periodic Magnetic Field, *Journal of Applied Physics* **42**, 1906–1913 (1971).
- [Mal06] Malins, D. B. *et al.*, Ultrafast electroabsorption dynamics in an InAs quantum dot saturable absorber at 1.3 μm , *Applied Physics Letters* **89**, 171111 (2006).
- [Mar17a] Marini, A., Cox, J. D. & García de Abajo, F. J., Theory of graphene saturable absorption, *Physical Review B* **95** (2017).
- [Mar17b] Markmann, S. *et al.*, Two-dimensional coherent spectroscopy of a THz quantum cascade laser: observation of multiple harmonics, *Optics Express* **25**, 21753–21761 (2017).
- [Met99] Metcalf, H. J. & Straten, P., *Laser Cooling and Trapping*, (Springer, 1999).
- [Mot17] Mottaghizadeh, A. *et al.*, 5-ps-long terahertz pulses from an active-mode-locked quantum cascade laser, *Optica* **4**, 168 (2017).
- [Müc01] Mücke, O. D. *et al.*, Signatures of carrier-wave Rabi flopping in GaAs, *Physical Review Letters* **87**, 057401 (2001).
- [Mül04] Müller, T. *et al.*, Pulse-induced quantum interference of intersubband transitions in coupled quantum wells, *Applied Physics Letters* **84**, 64–66 (2004).
- [Neg11] Negel, J.-P. *et al.*, Compact and cost-effective scheme for THz generation via optical rectification in GaP and GaAs using novel fs laser oscillators, *Applied Physics B* **103**, 45–50 (2011).
- [Nel68] Nelson, D. F. & Turner, E. H., Electro-optic and Piezoelectric Coefficients and Refractive Index of Gallium Phosphide, *Journal of Applied Physics* **39**, 3337–3343 (1968).
- [Nol14] Nolting, W., *Grundkurs Theoretische Physik 2: Analytische Mechanik* 9. Aufl. 2014, (Springer Spektrum, 2014).
- [Olb16] Olbrich, P. *et al.*, Terahertz ratchet effects in graphene with a lateral superlattice, *Physical Review B* **93** (2016).

- [Oud85] Oudar, J. L. *et al.*, Subpicosecond spectral hole burning due to nonthermalized photoexcited carriers in GaAs, *Physical Review Letters* **55**, 2074–2077 (1985).
- [Pal03] Palik, E. D., *Handbook of optical constants of solids* [Nachdr.], (Acad. Press, 2003).
- [Pál05] Pálfalvi, L. *et al.*, 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).
- [Pas01] Paschotta, R. & Keller, U., Passive mode locking with slow saturable absorbers, *Applied Physics B* **73**, 653–662 (2001).
- [Pel15] Pelton, M., Modified spontaneous emission in nanophotonic structures, *Nature Photonics* **9**, 427–435 (2015).
- [Pim09] Pimputkar, S. *et al.*, Prospects for LED lighting, *Nature Photonics* **3**, 180–182 (2009).
- [Pla16a] Plank, H. *et al.*, Opto-electronic characterization of three dimensional topological insulators, *Journal of Applied Physics* **120**, 165301 (2016).
- [Pla16b] Plank, H. *et al.*, Photon drag effect in (Bi_{1-x}Sb_x)₂Te₃ three-dimensional topological insulators, *Physical Review B* **93**, 125434 (2016).
- [Pla18] Plank, H. & Ganichev, S. D., A review on terahertz photogalvanic spectroscopy of Bi₂Te₃- and Sb₂Te₃-based three dimensional topological insulators, *Solid-State Electronics* **147**, 44–50 (2018).
- [Pla19] Plank, H. *et al.*, Edge currents driven by terahertz radiation in graphene in quantum Hall regime, *New Journal of Physics* **6**, 011002 (2019).
- [Poc94] Pockels, F., *Ueber den Einfluss des elektrostatischen Feldes auf das optische Verhalten piezoelektrischer Krystalle*, (Dieterichsche Verlags-Buchhandlung, 1894).
- [Poe15] Poellmann, C. *et al.*, Resonant internal quantum transitions and femtosecond radiative decay of excitons in monolayer WSe₂, *Nature Materials* **14**, 889–893 (2015).
- [Pop10] Popa, D. *et al.*, Sub 200 fs pulse generation from a graphene mode-locked fiber laser, *Applied Physics Letters* **97**, 203106 (2010).

-
- [Por14a] Porer, M. *et al.*, Non-thermal separation of electronic and structural orders in a persisting charge density wave, *Nature Materials* **13**, 857–861 (2014).
- [Por14b] Porer, M., Ménard, J.-M. & Huber, R., Shot noise reduced terahertz detection via spectrally postfiltered electro-optic sampling, *Optics Letters* **39**, 2435–2438 (2014).
- [Pur46] Purcell, E. M., Torrey, H. C. & v. Pound, R., Resonance Absorption by Nuclear Magnetic Moments in a Solid, *Physical Review* **69**, 37–38 (1946).
- [Raa19] Raab, J. *et al.*, Ultrafast two-dimensional field spectroscopy of terahertz intersubband saturable absorbers, *Optics Express* **27**, 2248–2257 (2019).
- [Rei18] Reimann, J. *et al.*, Subcycle observation of lightwave-driven Dirac currents in a topological surface band, *Nature* **562**, 396–400 (2018).
- [Res16] Resan, B. *et al.*, 10 GHz pulse repetition rate Er:Yb:glass laser modelocked with quantum dot semiconductor saturable absorber mirror, *Applied optics* **55**, 3776–3780 (2016).
- [Ros07] Roskos, H. G. *et al.*, Broadband THz emission from gas plasmas induced by femtosecond optical pulses: From fundamentals to applications, *Laser & Photonics Reviews* **1**, 349–368 (2007).
- [Ros11] Rosenfeld, D. E. *et al.*, Structural dynamics of a catalytic monolayer probed by ultrafast 2D IR vibrational echoes, *Science* **334**, 634–639 (2011).
- [Ruc12] Ruchert, C., Vicario, C. & Hauri, C. P., Scaling submillimeter single-cycle transients toward megavolts per centimeter field strength via optical rectification in the organic crystal OH1, *Optics Letters* **37**, 899–901 (2012).
- [Sch07] Schwabl, F., *Quantenmechanik (QM I): Eine Einführung* 7. Aufl., (Springer-Verlag, 2007).
- [Sch14] Schubert, O. *et al.*, Sub-cycle control of terahertz high-harmonic generation by dynamical Bloch oscillations, *Nature Photonics* **8**, 119–123 (2014).
- [Sch19] Schlauderer, S. *et al.*, Temporal and spectral fingerprints of ultrafast all-coherent spin switching, *Nature* **569**, 383–387 (2019).

- [Sei18] Seifert, P. *et al.*, Spin Hall photoconductance in a three-dimensional topological insulator at room temperature, *Nature Communications* **9**, 331 (2018).
- [Sel08] Sell, A., Leitenstorfer, A. & Huber, R., Phase-locked generation and field-resolved detection of widely tunable terahertz pulses with amplitudes exceeding 100 MV/cm, *Optics Letters* **33**, 2767–2769 (2008).
- [She04] Shen, Y. C. *et al.*, Generation and detection of ultrabroadband terahertz radiation using photoconductive emitters and receivers, *Applied Physics Letters* **85**, 164–166 (2004).
- [Ste18] Steinleitner, P. *et al.*, Dielectric Engineering of Electronic Correlations in a van der Waals Heterostructure, *Nano Letters* **18**, 1402–1409 (2018).
- [Str85] Strickland, D. & Mourou, G., Compression of amplified chirped optical pulses, *Optics Communications* **55**, 447–449 (1985).
- [Sut99] Sutter, D. H. *et al.*, Semiconductor saturable-absorber mirror assisted Kerr-lens mode-locked Ti:sapphire laser producing pulses in the two-cycle regime, *Optics Letters* **24**, 631–633 (1999).
- [Ton07] Tonouchi, M., Cutting-edge terahertz technology, *Nature Photonics* **1**, 97–105 (2007).
- [Tze18] Tzenov, P. *et al.*, Passive and hybrid mode locking in multi-section terahertz quantum cascade lasers, *New Journal of Physics* **20**, 053055 (2018).
- [Urb16] Urbanek, B. *et al.*, Femtosecond terahertz time-domain spectroscopy at 36 kHz scan rate using an acousto-optic delay, *Applied Physics Letters* **108**, 121101 (2016).
- [Val14] Valavanis, A. *et al.*, Terahertz quantum cascade lasers with >1 W output powers, *Electronics Letters* **50**, 309–311 (2014).
- [Vit15] Vitiello, M. S. *et al.*, Quantum cascade lasers: 20 years of challenges, *Optics Express* **23**, 5167–5182 (2015).
- [Wan09] Wang, C. Y. *et al.*, Mode-locked pulses from mid-infrared quantum cascade lasers, *Optics Express* **17**, 12929–12943 (2009).
- [Wan15] Wang, F. *et al.*, Generating ultrafast pulses of light from quantum cascade lasers, *Optica* **2**, 944 (2015).

-
- [Wan17] Wang, F. *et al.*, Short Terahertz Pulse Generation from a Dispersion Compensated Modelocked Semiconductor Laser, *Laser & Photonics Reviews* **11**, 1700013 (2017).
- [Wei92] Weisbuch, C. *et al.*, Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semiconductor quantum microcavity, *Physical Review Letters* **69**, 3314–3317 (1992).
- [Wil07] Williams, B. S., Terahertz quantum-cascade lasers, *Nature Photonics* **1**, 517–525 (2007).
- [Woe13] Woerner, M. *et al.*, Ultrafast two-dimensional terahertz spectroscopy of elementary excitations in solids, *New Journal of Physics* **15**, 025039 (2013).
- [Wor06] Worrall, C. *et al.*, Continuous wave operation of a superlattice quantum cascade laser emitting at 2 THz, *Optics Express* **14**, 171–181 (2006).
- [Wu97a] Wu, Q. & Zhang, X.-C., 7 terahertz broadband GaP electro-optic sensor, *Applied Physics Letters* **70**, 1784–1786 (1997).
- [Wu97b] Wu, Q. & Zhang, X.-C., Free-space electro-optics sampling of mid-infrared pulses, *Applied Physics Letters* **71**, 1285–1286 (1997).
- [Xu92] Xu, L., Zhang, X.-C. & Auston, D. H., Terahertz beam generation by femtosecond optical pulses in electro-optic materials, *Applied Physics Letters* **61**, 1784–1786 (1992).
- [Yan08] Yang, L. *et al.*, Isolating excitonic Raman coherence in semiconductors using two-dimensional correlation spectroscopy, *The Journal of chemical physics* **129**, 234711 (2008).
- [Yeh07] Yeh, K.-L. *et al.*, Generation of 10 μ J ultrashort terahertz pulses by optical rectification, *Applied Physics Letters* **90**, 171121 (2007).
- [Yos17] Yoshihara, F. *et al.*, Superconducting qubit–oscillator circuit beyond the ultrastrong-coupling regime, *Nature Physics* **13**, 44–47 (2017).
- [Za199] Załuźny, M. & Nalewajko, C., Coupling of infrared radiation to inter-subband transitions in multiple quantum wells: The effective-medium approach, *Phys. Rev. B* **59**, 13043–13053 (1999).

- [Zan12] Zanotto, S. *et al.*, Ultrafast optical bleaching of intersubband cavity polaritons, *Physical Review B* **86**, 1–4 (2012).
- [Zan15] Zanotto, S. *et al.*, Saturation and bistability of defect-mode intersubband polaritons, *Physical Review B* **91**, 085308 (2015).
- [Zap16] Zapata, J. D. *et al.*, Efficient graphene saturable absorbers on D-shaped optical fiber for ultrashort pulse generation, *Scientific Reports* **6**, 20644 (2016).
- [Zhe12] Zheludev, N. I. & Kivshar, Y. S., From metamaterials to metadevices, *Nature Materials* **11**, 917–924 (2012).

Danksagung

Eine jede wissenschaftliche Arbeit lebt auch stets vom fachlichen und persönlichen Austausch mit Kollegen und anderen Arbeitsgruppen. Daher möchte ich mich an dieser Stelle bei all jenen herzlich bedanken, die zum Gelingen der Arbeit beigetragen haben. Dabei möchte ich insbesondere folgenden Personen meinen besonderen Dank aussprechen:

- **Prof. Rupert Huber** für die vielen fruchtbaren Diskussionen und Vorschläge zu meinen experimentellen und theoretischen Arbeiten, die hilfreiche Anleitung der Publikationen und die umfangreiche, wissenschaftliche Ausbildung, die ich an seinem Lehrstuhl genießen konnte.
- **Prof. Christoph Lange** für die Unterstützung bei den Experimenten und numerischen Simulationen sowie die hilfreichen Vorschläge zu Publikationsmanuskripten.
- **Martin Furthmeier** für seine unermüdliche Unterstützung in allen technischen Fragen und das Möglich-Machen unmöglich geglaubter Aufbauten.
- **Ignaz Läßle** für die schier endlose Geduld und Hilfestellung bei allen elektronischen Problemen.
- **Imke Gronwald** für die Herstellung vieler, hilfreicher Proben und die ständige Unterstützung bei allen Problemen rund um die Probenherstellung.
- **Ulla Franzke**, die wie keine andere alle bürokratischen Hindernisse zu bewältigen wusste und stets ein offenes Ohr für Probleme hatte.

- **Laura Diebel** für die großzügige Unterstützung bei den FDFD-Simulationen sowie die nette Gesellschaft im Büro, die die Arbeit so viel leichter machte.
- **Dr. Jessica Boland** für die großartigen Hilfestellungen bei der Erstellung der Bandstrukturechnungen.
- **Matthias Knorr** für die vielen, hilfreichen, fachlichen Diskussionen und die freundschaftliche Zusammenarbeit im Labor und darüber hinaus.
- **Maike Halbhuber** für die interessanten, fachlichen Diskussionen, die aufbauenden Treffen in der Kaffee-Küche und die Freundschaft.
- **Prof. Miriam S. Vitiello** für die Herstellung und Überlassung der untersuchten sättigbaren Absorber.
- **Prof. Edmund Linfield** für das Wachstum der verwendeten Halbleiter-Heterostrukturen.
- **Prof. Sukhdeep Dhillon** für die großartige Zusammenarbeit im Rahmen des FET-Projekts „ULTRAQCL“ sowie die bereitgestellten QCLs.
- Meinen Bürokollegen der letzten Jahre **Joshua Mornhinweg, Josef Riepl, Anna Girnghuber, Leonard Weigl** und **Philipp Steinleitner** für die stets kollegiale und nette Atmosphäre im Büro.
- Den Kollegen der Arbeitsgruppe Huber für die vielen, gemeinsamen Aktionen und den fruchtbaren Austausch, die die Arbeit überhaupt erst möglich machten.

Regensburg, den 20. Mai 2020
