

Spindynamik in quantenmechanischen Systemen: Untersuchungen an Rubidiumdampf und Zinkoxid

Von der Fakultät für Mathematik und Physik
der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover
zur Erlangung des Doktorgrades
Doktor der Naturwissenschaften
Dr. rer. nat.
genehmigte Dissertation

von
Dipl.-Phys. Hauke Horn
geboren am 11. Mai 1981 in Tönning

2012

Referent: Prof. Dr. Michael Oestreich
Korreferent: Prof. Dr. Andreas Waag
Tag der Promotion: 21.11.2012

Kurzzusammenfassung

Die optische Spinrauschspektroskopie ist aufgrund ihrer besonderen Eigenschaft ein stetig wachsendes Forschungsgebiet. In dieser Dissertation wird die dispersive, sogenannte “zerstörungsfreie” Quantenmessung eingehend am Beispiel von Rubidiumdampf untersucht. Zunächst werden neue Methoden zur Subtraktion ungewollten Hintergrundrauschens präsentiert. Damit zwischen “zerstörender” und “zerstörungsfreier” Spinrauschspektroskopie unterschieden werden kann, wird ein Laser über die gesamte D2-Linie von Rubidium verstimmt, während gleichzeitig Spinrauschspektren aufgenommen werden. Diese Messungen an Rubidiumdampf mit *homogen* verbreiteter Resonanz werden zusätzlich für verschiedene Laserintensitäten präsentiert und mit numerischen Simulationen verglichen. Diese Berechnungen sind in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Daten, ohne dass in den Simulationen ein freier Parameter zugelassen ist. Das verstärkte Spinrauschen der angeregten Niveaus im Falle eines *inhomogen* verbreiterten Absorptionsspektrums wird in den numerischen Simulationen nicht bestätigt. Einteilcheneffekte werden ausgeschlossen, daher kann das verstärkte Rauschen nur mit Vielteilcheneffekten – wie der Vorwärtsstreuung stimulierter Photonen – erklärt werden.

Das Messprinzip der Spinrauschspektroskopie wird im zweiten Schritt übertragen auf den Halbleiter Zinkoxid (ZnO). Zunächst weist die Charakterisierung der Probenoberfläche sowie die Analyse der strahlenden Exzitonenrekombinationszeiten auf eine hohe Störstellenkonzentration der Probe hin. Die Spindynamik lokalisierter Donatorelektronen wird identifiziert. Hierbei wird die longitudinale Spinlebenszeit zu $T_1 \geq 290$ ns und die transversale zu $T_2^* \approx 24$ ns ermittelt. Ein weiteres Spinrauschsignal wird lokalisierten Donatorelektronen, die Defekte im Donatorvolumen beinhalten, zugewiesen. Dessen transversale Spinlebensdauer wird zu $T_2 \geq 5$ ns gemessen und stimmt mit Messungen defektreduzierter Spin-

lebensdauern anderer Veröffentlichungen überein.

Im letzten Kapitel wird die Exzitonendynamik von ZnO-Nanosäulen untersucht. Auf den Nanosäulen gewachsene Quantenfilme emittieren nach der optischen Anregung Licht, dessen Energie höher ist als die der restlichen Nanosäulenemissionen. Zeitlich aufgelöste Photolumineszenzmessungen in Abhängigkeit der Anregungslaserleistung sowie der Temperatur geben Aufschluss über die Exzitonendynamik in den Quantenfilmen. Der Polarisationsgrad der Photolumineszenz weist auf Spinlebenszeiten hin, die um Größenordnungen länger dauern als die strahlenden Rekombinationen der Exzitonen.

Schlagwörter: Spinrauschen, Spinlebenszeit, Rubidium, Zinkoxid

Abstract

Optical spin noise spectroscopy is a permanently growing research area. In this dissertation, its advantage of being a quantum non-demolition measurement is investigated for the case of rubidium vapor. New approaches to subtract unwanted background noise are presented. The laser energy is tuned across the rubidium D2 resonance to investigate the difference between “demolition” and “non-demolition” spin noise spectroscopy. Intensity dependent measurements are performed and compared to numerically calculated spin noise spectra. The calculations are in good agreement with the measurements even though no free parameter is allowed in the simulation. An amplified noise of the excited states in the case of inhomogeneous broadened absorption spectra is not governed by the numerical simulations. Hence the amplification is assigned to many body effects like the forward scattering of stimulated emitted photons.

The measurement principle spin noise spectroscopy is now transferred to the semiconductor zinc oxide (ZnO). A detailed study of the sample surface and of the radiative exciton lifetime reveals a strong defect density in the sample. The spin dynamics of localized donor electrons are identified. The longitudinal and transverse spin lifetimes are determined to $T_1 \geq 290$ ns and $T_2^* \approx 24$ ns. An additional spin noise signal is measured and assigned to localized donor electrons which contain defects in their volume. Its transverse spin lifetime is measured to $T_2 \geq 5$ ns and matches to the spin lifetimes of defect reduced lifetimes shown in other publications.

In the last chapter, the exciton dynamics of ZnO nano pillars are investigated. The topic of research are quantum films which were grown on top of those pillars. Time resolved measurements in dependence of the laser power and the temperature reveal the exciton dynamics in the quantum wells. The photoluminescence polarization degree further

indicates long spin lifetimes in comparison with the radiative exciton lifetimes.

Keywords: spin noise, spin lifetime, rubidium, zinc oxide

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	19
2	Spinrauschspektroskopie	25
2.1	Dynamik und Spektrum	26
2.2	Rauschen	30
2.2.1	Schrotrauschspektrum	30
2.2.2	Spinrauschspektrum	31
2.2.3	Rauschstatistik	31
2.3	Faradayeffekt und Brechungsindex	34
2.3.1	Optische Blochgleichungen	35
2.3.2	Linear polarisierte Welle	38
2.4	Experimenteller Aufbau	39
2.4.1	Laserquellen	39
2.4.2	Probe im Magnetfeld	42
2.4.3	Detektion	43
3	Spinrauschen von Rubidiumdampf	49
3.1	Experimenteller Aufbau	50
3.1.1	Hintergrundaufnahme mit LCR	51
3.1.2	Messungen mit PEM	53
3.2	Optische Eigenschaften von Rubidium	56
3.2.1	Termschema	56
3.2.2	Optische Blochgleichungen für mehrere Niveaus	58
3.2.3	Berechnung der Spinrauschleistung	62
3.3	Energieabhängigkeit	63
3.3.1	Spinrelaxationsraten	65
3.4	Spinrauschen der angeregten Niveaus	67
3.5	Zusammenfassung	70

4	Spindynamik in Zinkoxid	73
4.1	ZnO	74
4.2	Defekte	76
4.2.1	Donatoren	76
4.2.2	Lokale Störstellen	78
4.2.3	Quantenpunkte	78
4.2.4	Nanoporöses ZnO	79
4.3	Spinrelaxation	79
4.3.1	Streuung von Elektronenspins an Störstellen	79
4.3.2	Hyperfeinwechselwirkung	80
4.4	Vorbereitende Messungen	83
4.4.1	REM-Aufnahmen	83
4.4.2	Exzitonendynamik	87
4.4.3	Transmissionsspektrum	90
4.5	Experimenteller Aufbau	92
4.6	Spinrauschmessungen	93
4.6.1	Transversales Magnetfeld	94
4.6.2	Longitudinales Magnetfeld	96
4.6.3	Magnetfeld in willkürlichen Richtungen	98
4.6.4	Energieabhängigkeit	99
4.6.5	Intensitätsabhängigkeit	101
4.6.6	Temperaturabhängigkeit	102
4.7	Zusammenfassung	103
5	Zinkoxid-Nanostrukturen	105
5.1	Probe	106
5.1.1	Quantisierungsenergie	107
5.2	Aufbau	108
5.3	Intensitätsabhängigkeit	109
5.4	Exzitonendynamik	110
5.5	Temperaturabhängigkeit	113
5.6	Polarisationsinformation	116
5.7	Zusammenfassung	120
6	Zusammenfassung und Ausblick	123
6.1	Zusammenfassung	123

6.2 Ausblick	126
A Quantum-Moore	129
B Brechungsindex in der Rb D2-Resonanz	131
B.1 Mathematica-Quelltext	131
C Kühlkammer für UV-Optoelektronik	145
D ZnO-MQW-Nanosäulen	151
D.1 Probe MB373	151
D.2 Probe MB377	153
D.3 Probe MB380	154
D.4 Probe MB381	155
D.4.1 Polarisationsverhalten	156
D.4.2 Oszillationen	158
D.5 Zusammenfassung	159
Literaturverzeichnis	161
Publikationsliste	181

Abbildungsverzeichnis

2.1	Longitudinale Komponente der Spindynamik und Fourierspektrum	30
2.2	Imaginärteil κ und Realteil n' des Brechungsindex sowie das Schwankungsquadrat des Realteils Δn^2	38
2.3	Experimenteller Aufbau: Spinrauschspektroskopie	40
2.4	Elektrische Rauschspektren mit unterschiedlicher Tiefpassfilterung.	46
3.1	Spinrauschspektrum gemessen mit einem PEM	54
3.2	Vereinfachtes Termschema von Rb^{87}	57
3.3	Besetzungszahlen für moderate und hohe Laserstrahlintensität	60
3.4	Vergleich gemessener und berechneter Spinrauschspektren	64
3.5	Berechnete Spinzerfallsraten des $F = 1$ - (schwarz) und $F = 2$ -Niveaus (rot) sowie aus den Messungen ermittelte gesamte Spinzerfallsrate (blau)	66
3.6	Spinrauschen in Abhängigkeit der Laserverstimmung	68
4.1	Kristallstruktur von ZnO	74
4.2	Ionisationsgrad der Al-Donatoren in ZnO in Abhängigkeit der Temperatur	77
4.3	Schematische Darstellung zweier lokalisierter Donatorelektronen	82
4.4	REM Bilder einer ZnO -Probenoberfläche (Übersicht)	83
4.5	REM Bilder einer ZnO -Probenoberfläche (Vergrößerung)	85
4.6	RKM-Aufnahme an der ZnO -Substrat-Grenzschicht	86
4.7	Experimenteller Aufbau zur Untersuchung der Exzitonendynamik.	87
4.8	Aufnahme der ZnO -PL mit der Streak-Kamera.	88

4.9	PL-Spektren 40 und 80 ps nach Anregung mit Laserpuls	89
4.10	In Transmission aufgenommenes PL-Spektrum von ZnO sowie Transmission des Laserstrahls	91
4.11	Experimenteller Aufbau für die ZnO cw-PL-Messung sowie für Spinrauschen	92
4.12	Hintergrundrauschspektren und daraus ermitteltes optisches Schrotrauschen	93
4.13	Transversale Spinrauschspektren mit angepassten Lorentz- bzw. Gaußfunktionen	95
4.14	Longitudinale Spinrauschspektren mit angepassten Lorentz- bzw. Gaußfunktionen	97
4.15	Spinrauschspektren mit gleichzeitig transversalen (konstant 1 mT) und longitudinalen Magnetfeldern	98
4.16	Aus den angepassten Funktionen ermittelte integrierte Spinrauschleistungen und Larmorfrequenz	99
4.17	Energieabhängigkeit der Spinrauschleistungen und Spinrelaxationsraten	100
4.18	Fitparameter von L_2 und G^*	102
4.19	Temperaturabhängigkeit der Spinrauschleistungen sowie Spinrelaxationsraten	103
5.1	Schematische Darstellung und REM-Bild einer MQW-Nanosäulenprobe	106
5.2	Elektronenwellenfunktionen sowie Eigenenergien eines ZnO/ZnMgO Quantenfilms	107
5.3	Aufbau zur zeitaufgelösten PL- sowie Polarisationspektroskopie	108
5.4	PL-Spektren in Abhängigkeit der Anregungsleistung	109
5.5	Zeitaufgelöstes PL-Spektrum der ZnO-Nanosäulen	111
5.6	Zeitlicher Verlauf der Quantenfilmmissionen	113
5.7	PL-Temperaturabhängigkeit	114
5.8	Temperaturabhängigkeit der strahlenden Lebensdauer der Quantenfilmmissionen	115
5.9	Polarisationsgrad in Abhängigkeit der Laserenergie	117
5.10	Zeitlich und spektral aufgelöstes Intensitätsverhalten sowie Polarisationsgrad	118

A.1	Anzahl an Veröffentlichungen mit “spin” und “quantum” der letzten 65 Jahre	129
C.1	Temperaturabhängigkeit der Wellenlänge einer UV-Laser- diode	145
C.2	Komponenten der Vakuumbox	147
D.1	Streakkamerabild von Probe MB373 mit Emissionen E1 bis E4	152
D.2	Streakkamerabild von Probe MB377	154
D.3	Auswertung von Probe MB380	155
D.4	Auswertung von Probe MB381	156
D.5	Polarisationspektrum von Probe MB381	157
D.6	Polarisationsgrad der donatorgebundenen Exzitonenre- kombination.	159

Abkürzungsverzeichnis

Symbole

A	Fläche
\vec{B}_N	Vektor des Kernmagnetfelds
β	inverser Spinentartungsgrad
c	Lichtgeschwindigkeit
χ	Suszeptibilität
e	Elementarladung
ϵ_0	Permittivität des Vakuums
ϵ_r	relative Permittivität
E	Energie
E_0	elektrische Feldstärke
$f(t)$	zeitabhängige Funktion, meist Wahrscheinlichkeitsdichte
g^*	effektiver g-Faktor
Γ	Rate, z. B. Anzahl Messungen/Zerfälle pro Sekunde
Γ_{\max}	maximale Bandbreite
γ	Relaxationsrate
h	Plancksches Wirkungsquantum
\hbar	reduziertes Plancksches Wirkungsquantum $h/(2\pi)$
I	Intensität
k_B	Boltzmannkonstante
λ	Wellenlänge
m_c	Effektive Elektronenmasse
m_e	Elektronenmasse
μ	Erwartungswert
μ_B	Bohrsches Magneton
μ_r	relative Permeabilität
η	Polarisationsgrad

N	ganze Zahl
N_0	Anzahl pro Volumen (z. B. Teilchendichte)
N_c	Leitungsbandelektronendichte
N_d	Donatorkonzentration
$ \psi\rangle$	Vektor im Hilbertraum
P	Laserleistung
p	Wahrscheinlichkeit
p_A	Polarisation eines Atoms
\vec{S}	Elektronenspinvektor
r_D	Radius des Donatorvolumens
ρ_{ij}	Dichtematrixelement an i -ter Zeile und j -ter Spalte
σ	Standartabweichung
σ^2	Varianz
θ_F	Faradayrotationswinkel
$\theta(t)$	Stufenfunktion mit $\theta(t < 0) = 0$ und $\theta(t \geq 0) = 1$
t	Zeit (englisch: time)
τ	Spinrelaxationszeit
T	Temperatur
U	Spannung
ω	Kreisfrequenz
Ω	resonante Rabi-Frequenz
ω_0	Eigenfrequenz, bzw. Resonanzfrequenz
ω_L	Larmorfrequenz
V	Volumen

Abkürzungen

Abb.	A bbildung
bzw.	b eziehungsweise
cw	englisch: c ontinuous w ave, kontinuierliche Welle
D ⁰ X	d onatorgebundenes E xziton
DGL	D ifferential g leichung
d. h.	d as h eißt
FWHM	englisch: F ull W idth at H alf M aximum, volle Halbwertsbreite
HWHM	englisch: H alf W idth at H alf M aximum, halbe Halbwertsbreite
LCR	englisch: L iquid C rystal R etarder, Flüssigkristallretardierer
LO	longitudinal o ptisch
PEM	P hotoelastischer M odulator
PL	P hotolumineszenz
QW	englisch: Q uantum W ell, Quantenfilm
RKM	R aster k raft m ikroskop
RWA	englisch: R otating W ave A pproximation, Näherung für eine rotierende Welle
REM	R asterelektronen m ikroskop
Tab.	T abelle
TES	englisch: T wo E lectron S atellites, zwei-Elektronen-Rekombination
z. B.	zum B eispiel

1 Einleitung

It can't continue forever.
The nature of exponentials
is that you push them out
and eventually disaster
happens.

(Gordon E. Moore)

Ein Elektron besitzt drei elementare Eigenschaften: Ruhemasse, Ladung und Spin. Die Masse und Ladung sind weithin bekannt; beim Spin handelt es sich um den quantenmechanischen Drehimpuls. In der aktuellen Forschung gewinnt der Elektronenspin zunehmend an Bedeutung, weil die atomar limitierende Größe der kleinsten Prozessorstrukturen von herkömmlichen Computern in absehbarer Zeit erreicht ist. Bereits 1965 sagte Gordon E. Moore voraus, dass sich die Anzahl an Transistoren in einem integrierten Schaltkreis um einen Faktor zwei pro Jahr erhöht [1]. Hiermit sollte er bis auf die Zeitkonstante, welche für die Transistoranzahl auf zwei Jahre und für die Leistungsfähigkeit von Prozessoren auf 18 Monate korrigiert wurde, bis heute Recht behalten. Dieses Jahr wurde erstmalig ein Transistor auf einatomiger Basis entwickelt, welcher das physikalische Limit herkömmlicher Transistoren definiert [2]. Das bedeutet, sobald die Halbleiterindustrie es irgendwie schafft, auch diese Grenze zu erreichen, stellt sich die Frage nach etwas neuem und effizienterem, da die Computer sonst nur noch größer werden können und irgendwann ein räumliches Limit erreicht ist. Es besteht also mittelfristig

1 Einleitung

konkretes Interesse daran, die quantenmechanische Eigenschaft zu nutzen, da mit dieser ein weitaus größerer Informationsgehalt in nur einem Schritt verarbeitet werden kann. Genau dies wird mit dem sogenannten Quantencomputer möglich¹.

Für den Quantencomputer müssen quantenmechanische Zustände, wie z. B. der Kernspin oder auch elektronische Zustände, präpariert, manipuliert und ausgelesen werden. Der Spin des Elektrons legt aber die Nutzung dieses quantenmechanischen Freiheitsgrades nahe. Nun lässt sich der Spin z. B. in kalten Gasen sehr gut mit Lasern manipulieren – eine Problematik liegt hier aber in der fehlenden elektrischen Kontaktierung. Da Nanotechnologien bereits sehr stark etabliert sind, stellt sich die Frage, wie sich Spins in Festkörpern verhalten. Halbleiter besitzen eine Bandlücke welche zusätzlich zur elektrischen Kontaktierung den optischen Zugang zur Messung ermöglicht. Die in der Halbleiter-Quantenoptik genutzten Energien beschränken sich also hauptsächlich auf den Bereich rund um die Bandlücke des jeweiligen Halbleiters. Elektronen in Halbleitern besitzen einen Spin, deren Polarisation sich – ähnlich zum Gesamtspin von Atomen – mithilfe von Lasern initialisieren, manipulieren und auslesen lässt. Damit dies möglich wird, darf der Spin während dieses gesamten Zyklus seine Polarisation nicht verlieren. Daher sind für diese sogenannten Spin-optronischen Bauelemente hinreichend lange Spinlebenszeiten notwendig. Da Spins in Halbleitern aufgrund unterschiedlichster Wechselwirkungen ihre Orientierung verlieren [3], ist es wichtig, die genaue Ursachen für diese Spindephasierung zu kennen. Das Dissipations-Fluktuations-Theorem, welches gleichzeitig das Rauschen thermodynamisch gleichverteilter Zustände sowie deren Zugang über die Suszeptibilität (bzw. Brechungsindex) erklärt [4], wird von der in dieser Doktorarbeit vorgestellten Spinrauschspektroskopie ausgenutzt. Mit der Spinrauschspektroskopie wird nicht nur der Zerfall der Spinorientierung, sondern die gesamte Dynamik der Elektronenspins im thermodynamischen Gleichgewicht ermittelt.

Der für die Spinrauschspektroskopie notwendige Brechungsindex wurde von Ibn Sahl bereits um 984 n. Chr. mathematisch korrekt beschrieben [5]. Die Beschreibung mittels Brechungsindex wurde im 16. Jahrhun-

¹Die Anzahl an Veröffentlichungen in Richtung Quantencomputer steigt ebenfalls exponentiell, wie aus Graphik A.1 im Anhang A hervorgeht.

dert wieder aufgegriffen, als Snell und Descartes ein Brechungsgesetz mithilfe des Sinussatzes formulierten [6]. Etwa zwei Jahrhunderte später begründete Michael Faraday mit seinem Experiment die Magnetooptik [7]. Er untersuchte die Polarisierung eines Lichtstrahls durch ein transparentes Medium, welches zusätzlich einem Magnetfeld ausgesetzt wurde. Hierbei fand er heraus, dass das Magnetfeld den Polarisationswinkel des Lichtstrahls verändert. Nachdem um 1925 der quantenmechanische Spinfreiheitsgrad entdeckt war, veröffentlichte Felix Bloch 1946 Messungen von Protonenspins mit Mikrowellen [8]. 1981 wurde das durch Atomspins hervorgerufene Rauschen im Faradayrotationswinkel das erste Mal von Alexandrov *et al.* an Natriumdampf mit optischer Detektion aufgenommen [9]. Vier Jahre später wurden die Fluktuationen von Kernspins mit Radiowellen gemessen [10]. Neben Anderen untersuchte T. Mitsui Rubidiumdampf und benannte das durch die Atomspins hervorgerufene Faradayrotationsrauschen “Spontaneous Noise Spectroscopy” [11, 12]. 2004 schlug S. Crooker vor, diese “spectroscopy of spin noise” auf Halbleiterheterostrukturen zu übertragen [13]. In seiner Arbeit untersuchte er das durch die Atomspins verursachte Faradayrotationsrauschen in Kalium- sowie Rubidiumdampf in Abhängigkeit verschiedener Parameter. Ein knappes Jahr später wurden in der Gruppe von M. Oestreich Spinrauschspektren erstmals an einem Halbleiter aufgenommen [14]. Die dabei verwendete Probe war eine Galliumarsenid Volumenprobe. Seitdem ist die Anzahl an Veröffentlichungen in der optischen Spinrauschspektroskopie – speziell an III-V-Halbleitern – stetig gestiegen [15, 16, 17].

Ein entscheidender Nachteil von Blochs Messungen ist eine resonante Anregung der zu messenden Spinzustände. Durch Absorption der Radiowellen wird das System aufgeheizt und die gemessene Spinlebenszeit ist meist kürzer als die tatsächliche intrinsische Spinlebenszeit. Einen Ausweg bietet die Spinrauschspektroskopie: durch Ausnutzen des dissipativen Teils aus dem Dissipations-Fluktuations-Theorem [4] wird das System nicht angeregt. Die zerfallenden Spins werden aber als Schwankungen im Brechungsindex über die Faradayrotation messbar. Hieraus folgt, dass die intrinsischen Spinlebenszeiten absorptionsfrei gemessen werden können. Ein Hauptkriterium für den Quantencomputer ist die lange Kohärenzzeit, damit die darin verschränkten Zustände (Qubits)

1 Einleitung

möglichst lange stabil bleiben. Im Fall des spinbasierten Quantencomputers entscheidet die Spinlebensdauer sowie das Auslesen des Spins über die Kohärenzzeit des Qubits. Mit der Spinrauschspektroskopie kann die Spinlebensdauer maximal gehalten und gleichzeitig die intrinsisch zerfallenden Spins ausgelesen werden. Ein klarer Unterschied zwischen resonanter und nicht resonanter Spinrauschspektroskopie ist jedoch schwierig, da immer eine Restwahrscheinlichkeit für die Absorption von Photonen vorhanden ist.

Eine Untersuchung von resonanter und nicht resonanter Spinrauschspektroskopie wurde bereits im direkten Vorfeld dieser Arbeit durchgeführt [18]. Als stellvertretenden Repräsentanten diamagnetischer Halbleiterspins wird zunächst Rubidiumdampf verwendet und die Laserenergie quer über dessen atomare Resonanz (die D2-Linie) verstimmt. Zur Erklärung der entstandenen Spinrauschspektren muss aber vor allem der theoretische Hintergrund verstanden werden. Erst dann ist es möglich, klar zwischen störender und störungsfreier Spinrauschspektroskopie zu unterscheiden.

Diese Spinrauschspektroskopie kann nun auf einen in der Halbleiterindustrie bisher wenig verbreiteten II-VI-Halbleiter übertragen werden: Zinkoxid (ZnO). Aufgrund seiner großen Bandlücke von 3,436 eV werden den darin vorhandenen Elektronen sehr lange Spinlebenszeiten vorhergesagt. Die hohe Exzitonenbindungsenergie sollte eine Manipulation der gebundenen Exzitonen sowohl bei tiefen Temperaturen als auch bei Raumtemperatur zulassen. Wegen der langen Spinlebensdauer und der hohen Bindungsenergie gilt ZnO als viel versprechender Kandidat für die optische Spintronik. Bei niedrigen Temperaturen formen sich in schwach dotiertem ZnO künstliche Atome, die lokalisierten Donatoren. Neutral geladene Donatoren besitzen ein gebundenes Elektron, dessen intrinsischen Spinlebenszeiten mit der Spinrauschspektroskopie ermittelt werden. Untersuchungen in Abhängigkeit von der Laserenergie lassen Rückschlüsse auf die Spinrelaxationsmechanismen zu.

Nachdem nun die intrinsische Spindynamik in ZnO bekannt ist, können abschließend komplexe ZnO-Nanostrukturen untersucht werden. Im experimentellen Aufbau für zeitlich aufgelöste Spektroskopie wird zunächst die Exzitonendynamik detailliert untersucht und analysiert. Nun wird der mit einem zirkularen Laserpuls erzeugte Spinpolarisationsgrad

anhand der strahlenden Exzitonenrekombination gemessen.

In **Kapitel 2** werden zunächst die theoretischen Grundlagen erklärt. Hier werden die Blochgleichungen erläutert, mit denen die homogene Spindynamik beschrieben wird. Im Fourierspektrum ist dann indirekt die gesamte Dynamik sichtbar. Anschließend wird statistisches Rauschen erläutert. Nachdem der Faradayeffekt mittels optischer Blochgleichungen für ein vereinfachtes Modell hergeleitet wurde, wird der für die Spinrauschspektroskopie experimentelle Aufbau beschrieben.

In **Kapitel 3** werden unterschiedliche Messungen an Rubidiumdampf vorgestellt. Dabei gibt ein Vergleich der mittels erweiterter optischer Blochgleichungen berechneten Rauschleistung mit den experimentellen Messungen in Abhängigkeit der Laserenergie Aufschluss über die Besetzungszahlen sowie Kohärenzen zwischen den beteiligten Niveaus.

Im nächsten Teil dieser Arbeit wird die Spindynamik in Zinkoxid untersucht: Zunächst werden in **Kapitel 4** für ZnO typisch auftretende Defekte diskutiert und die relevanten Spinrelaxationsmechanismen dargestellt. Dann werden zunächst vorbereitende Messungen zur Probencharakterisierung analysiert. Nach Details über den experimentellen Aufbau werden verschiedene Spinrauschmessungen vorgestellt und dann abschließend zusammengefasst.

Im vorletzten **Kapitel 5** dieser Arbeit wird die Exzitonendynamik in epitaktisch gewachsenen ZnO-Nanostrukturen untersucht. Als Probe hierfür dienen senkrecht gewachsene Nanosäulen, auf deren oberes Ende ZnO/Zn_{0,9}Mg_{0,1}O Quantenfilme gewachsen wurden. Nachdem anhand von intensitäts- und temperaturabhängigen Photolumineszenzspektren die Emissionslinien identifiziert und charakterisiert werden, wird abschließend der Spinpolarisationsgrad untersucht.

Die Arbeit wird in **Kapitel 6** mit einer Zusammenfassung und einem Ausblick für zukünftig mögliche Untersuchungen abgeschlossen.

2 Spinrauschspektroskopie

In diesem Kapitel werden alle grundlegenden physikalischen Zusammenhänge der Spinrauschspektroskopie hergeleitet und erläutert. Dafür wird zunächst die Dynamik eines einzelnen Spins im Magnetfeld und dessen spektrale Darstellung beschrieben (Abschnitt 2.1). Danach werden statistische Betrachtungen für unkorrelierte Photonen sowie für korrelierte Spinensembles durchgeführt (Abschnitt 2.2). Anschließend folgt eine Herleitung des Brechungsindex aus einem vereinfachten Modell optischer Blochgleichungen (Abschnitt 2.3). Mit diesem Brechungsindex kann der Faradayeffekt vollständig für ein Zweiniveaumatom mit zusätzlicher Spinartartung eines Niveaus beschrieben werden. Damit wird die Faradayrotation einer linear polarisierten Welle hergeleitet.

Anschließend wird der experimentelle Aufbau für die Spinrauschspektroskopie erläutert (Abschnitt 2.4). Dabei wird jeweils auf die Laserquelle, Probe und Detektion eingegangen. Weiterhin wird eine einfache Formel zur Berechnung der Rauschleistung über den Faradayrotationswinkel aus vorherigen Überlegungen hergeleitet.

2.1 Dynamik und Spektrum

Die Dynamik eines Spins im Magnetfeld wird üblicherweise mit den phänomenologischen Blochgleichungen beschrieben. Diese von Felix Bloch erstellten Gleichungen sind für einen magnetischen Polarisationsvektor im dreidimensionalen Raum formuliert [19]:

$$\dot{\vec{m}} = \frac{\mu_B g^*}{\hbar} \vec{m} \times \vec{B} - \frac{1}{T_2} \begin{pmatrix} m_x \\ m_y \\ \frac{T_2}{T_1} m_z \end{pmatrix} + \frac{1}{T_1} m_{z,0} \vec{e}_z. \quad (2.1)$$

Hier ist \vec{m} der magnetische Polarisationsvektor $(m_x, m_y, m_z)^T$, μ_B das Bohrsche Magneton und g^* der Elektronen-g-Faktor. Die Messrichtung wurde in z-Richtung angenommen und die longitudinale und transversale Spinlebenszeit T_1 und T_2 eingesetzt. In longitudinaler Richtung wird die Gleichgewichtsmagnetisierung des Materials mit $m_{z,0}$ berücksichtigt. Da diese Gleichgewichtsmagnetisierung zeitlich konstant ist, in dieser Arbeit aber nur die Spindynamik von Relevanz ist, wird sie im Folgenden nicht weiter berücksichtigt ($m_{z,0} := 0$)¹.

Nun können die Gleichungen für zwei Spezialfälle stark vereinfacht werden: Liegt ein Magnetfeld parallel zur Messrichtung (z-Achse), dann vereinfacht sich die Differentialgleichung (DGL) (2.1) für die z-Komponente zu

$$\dot{m}_z = -\frac{1}{T_1} m_z. \quad (2.2)$$

Diese DGL lässt sich mit dem Ansatz $m_z(t) = A e^{-t/T_1}$ lösen. Dabei ist A die Amplitude des exponentiellen Zerfalls zum Zeitpunkt $t = 0$.

Wenn das Magnetfeld \vec{B} senkrecht zur z-Achse anliegt (wahlweise parallel zur x-Achse mit $\vec{B} = B_x \vec{e}_x$), kann die Vektorgleichung (2.1) reduziert werden auf eine DGL zweiter Ordnung. Diese kann mit $\omega_0^2 = (\frac{\mu_B g^* B_x}{\hbar})^2 + \frac{1}{T_1 T_2}$ und $2\gamma = \frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2}$ vereinfacht als gedämpfter harmonischer Oszillator geschrieben werden. Die entsprechende DGL

$$\ddot{m}_z + 2\gamma \dot{m}_z + \omega_0^2 m_z = 0 \quad (2.3)$$

¹In den im Rahmen dieser Arbeit verwendeten diamagnetischen Proben ist eine Gleichgewichtsmagnetisierung nicht vorhanden.

$\gamma < \omega_0$	schwingend	$m_z(t) = (Ae^{i\sqrt{\omega_0^2 - \gamma^2}t} + Be^{-i\sqrt{\omega_0^2 - \gamma^2}t})e^{-\gamma t}$
$\gamma = \omega_0$	aperiodisch	$m_z(t) = (A + Bt)e^{-\gamma t}$
$\gamma > \omega_0$	überdämpft	$m_z(t) = (Ae^{\sqrt{\gamma^2 - \omega_0^2}t} + Be^{-\sqrt{\gamma^2 - \omega_0^2}t})e^{-\gamma t}$

Tabelle 2.1:

Regimes des gedämpften harmonischen Oszillators. Die Gleichungen in der rechten Spalte sind Spezialfälle von Gleichung (2.4)

wird mit dem allgemeinen Ansatz

$$m_z(t) = Ae^{(-\gamma + \sqrt{\gamma^2 - \omega_0^2})t} + Be^{(-\gamma - \sqrt{\gamma^2 - \omega_0^2})t} \quad (2.4)$$

gelöst. Für die vollständige Lösung wurde hier zusätzlich zu A die Amplitude B eingeführt. Da der Exponent in der Lösung (2.4) komplex werden kann, wird die Dynamik in drei verschiedene Regimes aufgeteilt. Die Lösungen vereinfachen sich dann jeweils für die einzelnen Regimes und sind in Tabelle 2.1 aufgelistet. Sie sind so dargestellt, dass die Quadratwurzeln in den Exponenten reelle Werte ergeben. Anfangsbedingungen werden an dieser Stelle nicht gesetzt.

Da die longitudinale Spinlebenszeit um Größenordnungen länger ist als die transversale Spinlebenszeit darf die Resonanzfrequenz für die meisten Magnetfelder mit der Larmorfrequenz genähert werden. Das heißt, für endliche Magnetfelder wird ω_0 mit der Larmorfrequenz $\omega_L = g^* \mu_B B_x \gg \sqrt{\frac{1}{T_1 T_2}}$ ersetzt. Bei $B_x \rightarrow 0$ fällt auf, dass immer eine scheinbare minimale Oszillation der z -Komponente des Spins mit der Frequenz $\omega_0 = \sqrt{\frac{1}{T_1 T_2}}$ existiert. Wird $B_x = 0$ in den überdämpften Fall eingesetzt, dann vereinfacht sich dieser zu $m_z(t) = \left(Ae^{\frac{1}{2} \sqrt{\frac{1}{T_1^2} + \frac{1}{T_2^2}}t} + Be^{-\frac{1}{2} \sqrt{\frac{1}{T_1^2} + \frac{1}{T_2^2}}t} \right) e^{-\gamma t}$.

Die Fouriertransformation ist durch

$$F(\omega) = \mathcal{F}\{f(t)\} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt f(t) \cdot e^{-i\omega t} \quad (2.5)$$

2 Spinrauschspektroskopie

definiert und liefert komplexe, sowie in einigen Spezialfällen von $f(t)$ reelle Werte [20]. Zum Ermitteln der Spindynamik unkorrelierter Ensemblespins wird kein Phasenanteil benötigt, deshalb wird vereinfachend nur das Betragsquadrat betrachtet. Die Lösungen in Tabelle 2.1 können mit der Transformation (2.5) in den Frequenzraum umgewandelt werden. Es gibt einen grundlegenden Unterschied zwischen den Messungen im thermodynamischen Gleichgewicht und Messungen mit Störung des Spinensembles. Dieser wird Unterschied daher im Folgenden im Fourierspektrum erklärt.

Im thermodynamischen Gleichgewicht kann von einem zeitumkehrinvarianten System ausgegangen werden, d. h. jede Funktion ist symmetrisch zu $t = 0$. Ein exponentieller Zerfall wird für das thermodynamische Gleichgewicht demnach mit $f(t) = e^{-\gamma|t|}$ beschrieben. Die Fouriertransformation dieses zeitumkehrinvarianten exponentiellen Zerfalls ergibt die Lorentzfunktion²

$$L(\omega) = \frac{1}{2\pi} \frac{2\gamma}{\omega^2 + \gamma^2}. \quad (2.6)$$

Der zeitumkehrinvariante exponentielle Zerfall ist also ein solcher Spezialfall, dessen Fouriertransformierte eine rein reelle Funktion ergibt. Das Betragsquadrat wird zu $|F(\omega)|^2 = \frac{1}{\pi^2} \frac{\gamma^2}{(\gamma^2 + \omega^2)^2}$ berechnet. $\gamma = \gamma_{\text{FWHM}}/2$ ist die halbe Halbwertsbreite (englisch: Half Width at Half Maximum, HWHM) der Lorentzverteilung und γ_{FWHM} die volle Halbwertsbreite (englisch: Full Width at Half Maximum, FWHM). Die quadrierte Lorentzfunktion kann in erster Näherung mit der Lorentzfunktion beschrieben werden. Die aus den angepassten Lorentzfunktionen ermittelte Breite ist dann etwa 14 % geringer als die eigentliche, während der Faktor $1/\gamma$ zusätzlich in der integrierten Rauschleistung auftaucht (siehe hierfür auch Abschnitt 3.4).

Die Fouriertransformation (2.5) angewendet auf den exponentiellen Zerfall³ $f(t) = e^{-\gamma t} \theta(t)$ ergibt $F(\omega) = \frac{1}{2\pi} \frac{1}{\gamma + i\omega}$. Das Betragsquadrat

²Je nach Definition der Fouriertransformation (2.5) entspricht der Normierungsfaktor der Lorentzfunktion dem Vorfaktor der Fouriertransformation, in diesem Fall also $\frac{1}{2\pi}$.

³Die Heavisidefunktion $\theta(t) = \begin{cases} 0, & t < 0 \\ 1, & t \geq 0 \end{cases}$ stellt sicher, dass der exponentielle

dieser Fouriertransformierten wird zu $|F(\omega)|^2 = \frac{1}{4\pi^2} \frac{1}{\gamma^2 + \omega^2}$ berechnet und unterscheidet sich von der Lorentzfunktion (2.6) nur um den Faktor $\gamma/(4\pi)$. Dies kann bei der Abschätzung der Spinrauschleistung zu Verwechslungen führen, da in den quadrierten Spektren die Spinrelaxationsrate mit berücksichtigt werden muss. So kann also abschließend für ein gestörtes System sowie für das thermodynamische Gleichgewicht eine Fallunterscheidung für den harmonischen Oszillator (siehe Tab. 2.1) erstellt werden:

- Für den schwingenden Fall ergibt das Betragsquadrat der Fouriertransformierten eine quadrierte Lorentzfunktion, die die Breite γ besitzt und bei der Frequenz ω zentriert ist.
- Der aperiodische Grenzfall wird zu einer komplexeren Lösung transformiert, die einer quadrierten Lorentzfunktion ähnelt und bei $\omega = 0$ zentriert ist.
- Für den überdämpften Fall existieren zwei Lösungen, die beide um $\omega = 0$ Frequenz zentriert sind. Die Fouriertransformation dieser Lösungen ergibt eine schmale Lorentzfunktion mit einer verringerten Zerfallsrate $\Gamma_- = (\gamma - \sqrt{\gamma^2 - \omega_0^2})$ und eine breite Lorentzfunktion mit einer erhöhten Rate $\Gamma_+ = (\gamma + \sqrt{\gamma^2 - \omega_0^2})$.

In Abb. 2.1 ist exemplarisch die z-Komponente einer zerfallenden Spinpolarisation und deren fouriertransformierte Funktion (Lorentzfunktion) für den schwingenden Fall dargestellt. Daraus geht hervor, wie aus dem Spektrum die relevanten Größen wie Resonanzfrequenz ω_0 und Zerfallsrate γ abgelesen werden können.

Zerfall zum Zeitpunkt $t = 0$ beginnt.

2 Spinrauschspektroskopie

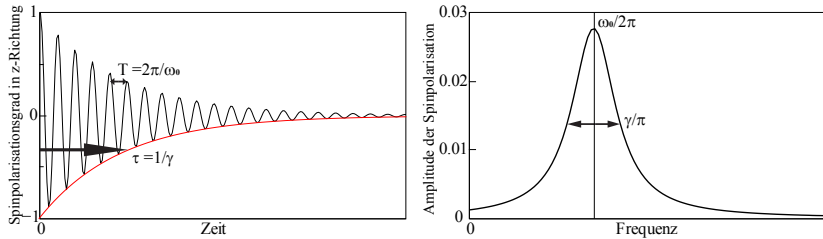


Abbildung 2.1:

Zeitlicher Verlauf der longitudinalen Komponente eines Spins im transversalen Magnetfeld (links) und dessen Fourierspektrum (rechts)

2.2 Rauschen

Für das Verständnis der Spinrauschspektroskopie wird zunächst erläutert, wie aus dem Messsignal die entscheidende Information aus dem korrelierten Rauschen gewonnen wird. Anschaulich ist der Zusammenhang zwischen Rauschen, Korrelationsfunktion und Spektrum sehr gut in [21] beschrieben. Deshalb wird hier nur auf die wesentlichen Schritte eingegangen. Anschließend die Statistik für die Messungen an Spinensembles erläutert. Hierfür wird mit der Binomialverteilung die gesamte Spinrauschleistung abgeschätzt. Die Wahrscheinlichkeitsdichten bedingen sich direkt aus der Spindynamik. Deshalb werden die Wahrscheinlichkeitsdichten anschließend für den inhomogenen und homogenen Fall erläutert.

2.2.1 Schrotrauschspektrum

Beim optischen Schrotrauschen sind die Messwerte $U(t)$ und $U(t + \tau)$ unkorreliert. Das heißt, die Messwerte $U(t) = U_0 \delta(t)$ sind zeitlich so verrauscht, dass die Autokorrelationsfunktion

$$R(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} dt U(t)U(t + \tau) \quad (2.7)$$

eine Deltafunktion mit $R(\tau) = U_0^2 \delta(\tau)$ bei $\tau = 0$ ergibt. Das Betragsquadrat der Fouriertransformation ergibt ein konstantes Spektrum. Aus physikalisch-technischen Gründen können nicht unendlich hohe Frequenzen digitalisiert werden [22]. Daher liegt die spektrale Konstante bei U_0^2/Γ_{\max} , wobei Γ_{\max} die maximale spektrale Bandbreite des Detektors ist.

2.2.2 Spinrauschspektrum

Wenn zwei Messwerte $U(t)$ und $U(t + \tau)$ einander bedingen, d. h. korreliert sind, dann kann die Beziehung der Messwerte aus der Autokorrelationsfunktion (2.7) gewonnen werden. Die Verteilungsfunktion ist gleich der Korrelationsfunktion, welche die Spindynamik beschreibt⁴. Das heißt, dass die Korrelationsfunktion direkt die Spindynamik sowie die daraus resultierende Wahrscheinlichkeitsdichte $f(t)$ wiedergibt, $R(t) = f(t)$. Nun ergibt sich die spektrale Leistungsdichte nach dem Wiener-Khintchine Theorem [23] direkt aus der Fouriertransformierten der Wahrscheinlichkeitsverteilung:

$$S(\omega) = \mathcal{F}\{R(t)\} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt f(t) e^{-i\omega t} \quad (2.8)$$

Das Rauschspektrum wird aus dem zeitlichen Verhalten der Ensemble-Spinorientierung ermittelt. Deshalb ist das Spinrauschsignal aufgrund der Spindynamik (2.1) und der daraus folgenden Statistik zeitlich verrauscht.

2.2.3 Rauschstatistik

Ist das zeitliche Signal verrauscht, dann entspricht das arithmetische Mittel dem Erwartungswert μ . In der Zeitdomäne sind die Messwerte

⁴Die Wahrscheinlichkeitsdichten $f(t)$ betreffen jeden Zeitpunkt t , also liegen sie eigentlich senkrecht zur Zeitachse. Zum Zeitpunkt $t + \tau$ liegt zwar eine neue Wahrscheinlichkeitsdichte vor, die Korrelationsfunktion beinhaltet aber noch die Spindynamik $f(t + \tau)$. Also kann ein statischer Prozess angenommen werden [23]. Deshalb wird die Zeitachse als Parameterraum für die Fouriertransformation der Wahrscheinlichkeitsdichte $f(t)$ angenommen.

2 Spinrauschspektroskopie

dann mit der Standardabweichung σ verrauscht [20].

Zunächst wird für die vorhandenen Spins die Binomialstatistik erläutert. Für die statistische Betrachtung des Zeitsignals kann es wichtig werden, zwischen diskreter und stetiger Messung zu unterscheiden. Bei diskreten Messungen wie zum Beispiel Laserpulsen werden stochastische Ketten oder Markoffsche Ketten relevant, sobald der relative Pulsabstand kleiner wird als die Pulsdauer. In dieser Arbeit werden alle Spinrauschmessungen mit einem cw-Laser (englisch: continuous wave, kontinuierliche Welle) durchgeführt. Deshalb wird ein stetiger Parameterraum t vorgegeben. Für diesen Fall wird die Statistik mit einer Normal- sowie Exponentialverteilung beschrieben.

Binomialverteilung Bei Elektronen gibt es für den Spin zwei Eigenzustände: up und down. Damit ist jedes System von N Elektronenspins im thermischen Gleichgewicht binomialverteilt. Der Erwartungswert wird nach $\mu = N \cdot p$ und die Standardabweichung nach $\sigma = \sqrt{N \cdot p(1-p)}$ berechnet [20]. Da die Spins im thermodynamischen Gleichgewicht gleichverteilt sind, beträgt die Wahrscheinlichkeit $p = 0,5$. Die in dieser Arbeit entstehenden Messgrößen sind in Einheiten der Rauschleistung angegeben, die proportional zur Varianz σ^2 ist.

Rauschleistung Gemessen wird eine Rauschleistung P , die proportional zur Varianz ist:

$$P \sim \sigma^2 = (\sqrt{N}/2)^2. \quad (2.9)$$

N ist die Anzahl der Photonen (Abschnitt 2.2.1) beziehungsweise die Anzahl zerfallender Spins (Abschnitt 2.2.2). Die spektrale Rauschleistungsdichte ist $S \sim P/\Gamma$. Die Rate $\Gamma = \Gamma_{\max}$ ist für Schrotrauschen die maximale Bandbreite des Detektors und für Spinrauschen die Breite der spektralen Dichtefunktion. Für den letzteren Fall werden nun die für diese Arbeit relevanten Wahrscheinlichkeitsdichten beschrieben.

Die Binomialverteilung ist eine diskrete Verteilungsfunktion. Diese reicht zwar für eine Abschätzung der Rauschleistung aus, allerdings fehlt hier eine physikalische Interpretation der Spindynamik. Die Zeitskala, in der die Spindynamik beschrieben wird, ist ein stetiger Parameterraum. Deshalb werden im Folgenden zwei aus der Spindynamik resultierende

Verteilungsfunktionen mit stetigem Parameterraum vorgestellt.

Normalverteilung Die Binomialverteilung kann für die in dieser Arbeit untersuchten Proben näherungsweise durch die Normalverteilung ersetzt werden⁵. Diese wird für das zeitliche Verhalten von beispielsweise Donatorelektronen relevant (siehe Abschnitt 4.3.2). Die Dichtefunktion der Normalverteilung wird mit

$$f(t) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(t-\mu)^2}{2\sigma^2}} \quad (2.10)$$

beschrieben. Die Standardabweichung σ wird im Kontext der Spindynamik auch inhomogene Spinlebenszeit genannt. Ist das Zeitsignal der Projektion des Spins auf die z -Achse normalverteilt, dann ist dessen Fouriertransformierte auch normalverteilt. Deshalb wird im Spinrauschspektrum eine Gaußverteilung beobachtet. Durch eine periodische Modulierung im Zeitraum kann die Gaußverteilung im Frequenzraum zur Modulationsfrequenz verschoben werden.

Exponentialverteilung Der Vollständigkeit halber wird hier noch die Exponentialverteilung erwähnt, welche sich direkt aus der homogenen Spindynamik ergibt (Abschnitt 2.1). Der Zerfall eines quantenmechanischen Zustands wird im Allgemeinen mit einem exponentiellen Zerfall beschrieben. Deren Wahrscheinlichkeitsdichte ist durch $f(t) = \gamma e^{-\gamma t} \theta(t)$ definiert. γ ist hier die mittlere Anzahl von Zerfällen pro Zeiteinheit und $\frac{1}{\gamma}$ ist die $\frac{1}{e}$ -Lebenszeit des Systems. Im thermodynamischen Gleichgewicht ist die positive beziehungsweise negative Richtung der Zeitskala nicht ausgezeichnet, d. h. die Exponentialverteilung wird zu $f(t) = \gamma e^{-\gamma|t|}$ angenommen. Im Fourierspektrum entsteht jeweils wieder eine Lorentzfunktion (2.6), die bei der entsprechenden Modulationsfrequenz zentriert ist (siehe Abschnitt 2.1).

⁵Die Bedingung $N \cdot p = \mu > 4$ und $N \cdot (1-p) > 4$ [20] sind bereits für $N \geq 10$ Spins erfüllt.

2.3 Faradayeffekt und Brechungsindex

1845 entdeckte Michael Faraday den nach ihm benannten Effekt [7]. In seinem Experiment untersuchte er verschiedene transparente Materialien. In einer Probe („schweres Glas“) konnte er mit einem Magnetfeld die Polarisation eines Lichtstrahls drehen. Die Drehung um den Faradayrotationswinkel θ_F ist abhängig von der Richtung und der Stärke des angelegten Magnetfeldes.

Einige Jahrzehnte später untersuchte Marcel Émile Verdet zwei verschiedene Materialien („schweres Glas“ und Schwefelkohlenstoff) in Abhängigkeit des Magnetfeldes [24]. Verdet stellte hierbei einen linearen Zusammenhang zwischen einem zum Lichtstrahl parallelem Magnetfeld B_z , der vom Licht durchsetzten Probenlänge l und dem Rotationswinkel auf: $\theta_F = \mathcal{V}B_z l$. Die nach ihm benannte Verdetkonstante \mathcal{V} setzt sich zusammen aus Naturkonstanten, der Wellenlänge und der Dispersion des Brechungsindexes.

Der Brechungsindex ist demnach ein entscheidendes Bindeglied in der Wechselwirkung von Licht mit einem Medium. Der Faradayrotationswinkel der elektromagnetischen Welle

$$\vec{E} = E_0 \vec{e}_x e^{i(k_z z - \omega t)} \quad (2.11)$$

wird aus dem Brechungsindex mit dem Wellenvektor $\vec{k} = k_z \vec{e}_z$ durch eine Probenlänge l nach

$$\theta_F = k'_z l = k_z \Delta n l = \frac{\omega}{c} \Delta n l \quad (2.12)$$

berechnet. ω ist hier die Kreisfrequenz des Lasers, c die Lichtgeschwindigkeit und $\Delta n = n^+ - n^-$ der Unterschied des Brechungsindexes für links und rechts zirkular polarisiertes Licht. Da linear polarisiertes Licht als eine Überlagerung von links und rechts zirkularem Licht aufgefasst werden kann, erfährt die Welle eine Phasenverschiebung der beiden zirkularen Teilwellen (siehe Abschnitt 2.3.2). Diese Phasenverschiebung äußert sich in einer Rotation der insgesamt linear polarisierten Welle um den Faradayrotationswinkel θ_F .

Zur vollständigen Berechnung des Brechungsindex werden zunächst die optischen Blochgleichungen für ein Zweizustandssystem gelöst. Aus den daraus resultierenden Dichtematrixelementen wird der komplexe Brechungsindex ermittelt. Abschließend werden dessen Auswirkung auf die transmittierte Welle genau betrachtet.

2.3.1 Optische Blochgleichungen

Der komplexe Brechungsindex kann über die optischen Blochgleichungen berechnet werden. Die optischen Blochgleichungen beschreiben das dynamische Verhalten der Dichtematrix $\rho = |\psi\rangle\langle\psi|$. Da die Herleitung in einschlägiger Literatur verbreitet ist [25], werden hier nur die wichtigsten Schritte zusammengefasst.

Die zeitliche Ableitung der Dichtematrix ergibt mithilfe der zeitabhängigen Schrödingergleichung $\frac{d}{dt}|\psi\rangle = \frac{1}{i\hbar}H|\psi\rangle$ die von-Neumann-Gleichung

$$\dot{\rho} = \frac{d}{dt}(|\psi\rangle\langle\psi|) = \left(\frac{d}{dt}|\psi\rangle\right)\langle\psi| + |\psi\rangle\left(\frac{d}{dt}\langle\psi|\right) = \frac{i}{\hbar}[\rho, H]. \quad (2.13)$$

Nun wird zunächst ein zwei-Niveau-Atom mit Grundzustand $|g\rangle$ und angeregtem Zustand $|e\rangle$ angenommen. In Matrixform wird der Dichtematrixoperator mit

$$\rho \doteq \begin{pmatrix} \rho_{ee} & \rho_{eg} \\ \rho_{ge} & \rho_{gg} \end{pmatrix} \quad (2.14)$$

dargestellt. Zusätzlich wird der Hamiltonoperator

$$H := H_0 + H_1 + H_\Gamma \quad (2.15)$$

definiert. $H_0 = \hbar\omega_e|e\rangle\langle e| + \hbar\omega_g|g\rangle\langle g|$ beschreibt das ungestörte Atom mit den Energieeigenwerten $\hbar\omega_g$ und $\hbar\omega_e$. Der energetische Abstand der beiden Zustände ergibt sich aus der Differenz der Eigenwerte, d. h. $\omega_0 = \omega_e - \omega_g$. Der Term $H_1 = -\vec{\mu}_{ge}\vec{E}(t)(|e\rangle\langle g| + |g\rangle\langle e|)$ beschreibt die Wechselwirkung zwischen Atom und Laser. Mit einer kontinuierlichen Welle $\vec{E}(t) = \vec{e}_x E_0 \cos(\omega t)$ kann die resonante Rabi-Frequenz

$$\Omega := \frac{\mu_{ge} E_0}{2\hbar} \quad (2.16)$$

2 Spinrauschspektroskopie

definiert werden. Das Dipolmatrixelement $\mu_{ge} = \langle e | (-e \vec{x}) | g \rangle$ spiegelt die Wahrscheinlichkeit wider, mit der sich die Wellenfunktion des Elektrons mit Ladung $-e$ vom Grundzustand $|g\rangle$ in den angeregten Zustand $|e\rangle$ ändert. Nun lässt sich der Wechselwirkungsterm umschreiben zu $H_1 = -\hbar\Omega \cos(\omega t)(|e\rangle\langle g| + |g\rangle\langle e|)$. Der phänomenologische Relaxationsterm H_Γ beschreibt den natürlichen Zerfall der Zustände. Er wird implizit in die von-Neumann-Gleichung (2.13) eingesetzt:

$$\begin{aligned}\dot{\rho}_{ee} &= +i\Omega \cos(\omega t)(\rho_{eg} - \rho_{ge}) - \Gamma\rho_{ee} \\ \dot{\rho}_{gg} &= -i\Omega \cos(\omega t)(\rho_{eg} - \rho_{ge}) + \Gamma\rho_{ee} \\ \dot{\rho}_{eg} &= +i\Omega \cos(\omega t)(\rho_{ee} - \rho_{gg}) - i\omega_0\rho_{eg} - (\Gamma/2)\rho_{eg} \\ \dot{\rho}_{ge} &= -i\Omega \cos(\omega t)(\rho_{ee} - \rho_{gg}) + i\omega_0\rho_{ge} - (\Gamma/2)\rho_{ge}.\end{aligned}\quad (2.17)$$

Die Relaxationsrate Γ ist auch als Einsteinkoeffizient A bekannt und gibt die Zerfallsrate vom angeregten Niveau in das Grundniveau an.

Bei einer Näherung, die im Englischen “rotating wave approximation” (RWA) genannt wird, wird ρ zunächst in die Rotationsbasis der Lichtwelle überführt. Dabei wird ρ durch

$$\begin{aligned}\tilde{\rho}_{ee} &= \rho_{ee}, & \tilde{\rho}_{eg} &= \rho_{eg}e^{+i\omega t} \\ \tilde{\rho}_{gg} &= \rho_{gg}, & \tilde{\rho}_{ge} &= \rho_{ge}e^{-i\omega t}\end{aligned}\quad (2.18)$$

ersetzt. Wenn nun die schnell oszillierenden Terme $e^{\pm i\omega t}$ vernachlässigt werden (RWA), lassen sich die optischen Blochgleichungen aufschreiben:

$$\begin{aligned}\dot{\tilde{\rho}}_{ee} &= +i\Omega(\tilde{\rho}_{eg} - \tilde{\rho}_{ge}) - \Gamma\tilde{\rho}_{ee} \\ \dot{\tilde{\rho}}_{gg} &= -i\Omega(\tilde{\rho}_{eg} - \tilde{\rho}_{ge}) + \Gamma\tilde{\rho}_{ee} \\ \dot{\tilde{\rho}}_{eg} &= +i\Omega(\tilde{\rho}_{ee} - \tilde{\rho}_{gg}) + i\delta\tilde{\rho}_{eg} - (\Gamma/2)\tilde{\rho}_{eg} \\ \dot{\tilde{\rho}}_{ge} &= -i\Omega(\tilde{\rho}_{ee} - \tilde{\rho}_{gg}) - i\delta\tilde{\rho}_{ge} - (\Gamma/2)\tilde{\rho}_{ge}.\end{aligned}\quad (2.19)$$

$\delta = \omega - \omega_0$ ist die Verstimmungsfrequenz des Laserstrahls mit Energie $\hbar\omega$ von der Resonanzfrequenz ω_0 . Die Näherung gilt selbstverständlich nur für $\omega \gg \delta$.

In dieser Arbeit werden nur kontinuierliche Laserquellen benutzt. Alle gemessenen Relaxationszeiten sind groß im Vergleich zur strahlenden

2.3 Faradayeffekt und Brechungsindex

Lebensdauer $t_{\text{rad}} = 1/\Gamma$. Deshalb wird für $t \gg t_{\text{rad}}$ nur der statische Fall ($\dot{\rho} = 0$) gelöst:

$$\begin{aligned} \rho_{ee} &= \frac{\Omega^2}{4\delta^2 + \Gamma^2 + 2\Omega^2}, & \rho_{gg} &= 1 - \rho_{ee} \\ \tilde{\rho}_{ge} &= -\frac{2\Omega(\delta - i\Gamma/2)}{4\delta^2 + \Gamma^2 + 2\Omega^2}, & \tilde{\rho}_{eg} &= \tilde{\rho}_{ge}^* \end{aligned} \quad (2.20)$$

Die Polarisation $P = \epsilon_0 \chi E_0$ setzt sich zusammen aus N Atomen mit einzelner Polarisation im Volumen V , d. h. $P = \frac{N}{V} p_A = N_0 p_A$. Der Polarisationsvektor eines einzelnen Atoms entspricht dem Produkt zwischen Übergangsmatrixelement und Dichtematrixelement $p_A = |\mu_{eg}|(\tilde{\rho}_{eg} + \tilde{\rho}_{ge})$. Daraus lässt sich die Suszeptibilität

$$\chi = \frac{N_0 |\mu_{eg}|}{\epsilon_0 E_0} \rho_{eg} = \frac{N_0 |\mu_{eg}|^2}{\epsilon_0 \hbar \Omega} \rho_{eg} \quad (2.21)$$

berechnen. Im letzten Schritt wurde die elektrische Feldstärke E_0 durch die resonante Rabi-Frequenz (2.16) ersetzt. Wie in Formel (2.21) zu sehen ist, ist die Suszeptibilität direkt proportional zum Quadrat des Übergangsmatrixelements μ_{eg} .

Nun wird ein Zustand, z. B. $|e\rangle$, als spinentartet angenommen. Wird die Übergangsmatrix für links und rechts zirkular polarisiertes Licht aus den Clebsch-Gordan-Koeffizienten berechnet, dann werden beispielsweise nach Formel (2.4) zum Zeitpunkt $t = 0$ aus den optischen Auswahlregeln unterschiedliche Werte für $\mu_{e\uparrow g}$ und $\mu_{e\downarrow g}$ ermittelt. Daraus entstehen unterschiedliche Suszeptibilitäten χ_{\uparrow} und χ_{\downarrow} . Der Brechungsindex wird aus der relativen Permittivität $\epsilon_r = 1 + \chi$ wie folgt berechnet⁶:

$$n_{\pm} = \sqrt{\epsilon_{r\uparrow,\downarrow} \mu_r} = \sqrt{1 + \chi_{\uparrow,\downarrow}} \approx 1 + \chi_{\uparrow,\downarrow}/2. \quad (2.22)$$

Für nicht magnetische Proben (Permeabilität $\mu_r \rightarrow 1$) liegen die Suszeptibilitäten $\chi_{\uparrow,\downarrow}$ sehr dicht beieinander, deshalb darf die Wurzel im letzten Schritt genähert werden.

⁶Die Frage, wie genau der Realteil des Brechungsindex aus der Suszeptibilität zu berechnen ist, d. h. ob der Realteil der Wurzel oder die Wurzel des Realteils berechnet wird, wurde erst vor kurzem beantwortet; siehe hierfür Ref. [26].

2 Spinrauschspektroskopie

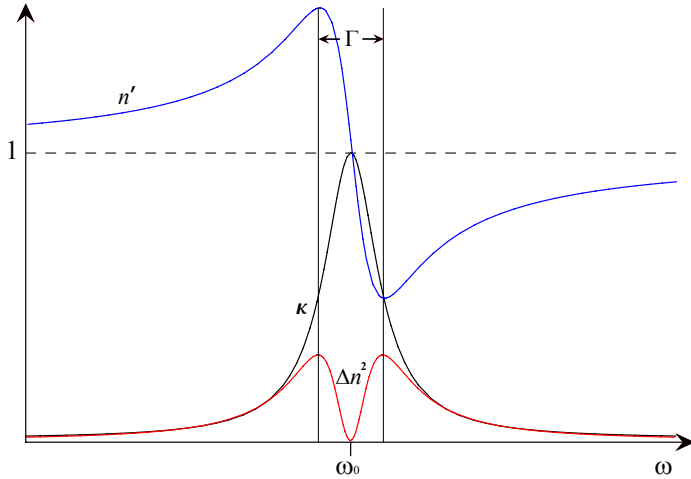


Abbildung 2.2:

Imaginärteil κ und Realteil n' des Brechungsindex sowie das Schwankungsquadrat des Realteils Δn^2 .

2.3.2 Linear polarisierte Welle

Die Suszeptibilität χ ist komplex (siehe ρ_{eg} in Formeln (2.20) und (2.21)). Daher ist auch der Brechungsindex komplex mit $n = n' + i\kappa$. In Abbildung 2.2 sind Real- und Imaginärteil des Brechungsindex exemplarisch für $\Gamma \gg \Omega$ dargestellt. Der Imaginärteil des Brechungsindex bewirkt eine Amplitudenänderung der transmittierten elektromagnetischen Welle (2.11): $\vec{E} = \vec{E}_0 e^{-\kappa kz} e^{i(kz - \omega t)}$. Für die elektromagnetische Welle $\vec{E} = \frac{1}{2}(\vec{E}_+ + \vec{E}_-)$ mit den zirkularen Teilwellen $\vec{E}_{\pm} = (1, \mp i)^T E_0 e^{i(k_{\pm} z - \omega t)}$ entsteht in der Probe die Phasendifferenz $\Delta k z = (k_+ - k_-)z = k_0 z(\chi_{\uparrow} - \chi_{\downarrow})/2$ zwischen links und rechts zirkularem Licht. Werden die Teilwellen \vec{E}_{\pm} wieder zusammengefügt, dann ist die Welle um die Phasendifferenz gedreht:

$$\vec{E} = \begin{pmatrix} \cos \theta_F \\ \sin \theta_F \end{pmatrix} E_0 e^{i(kz - \omega t)} \quad (2.23)$$

Die Phasendifferenz ist der Faradayrotationswinkel $\theta_F = k_0 z \Delta n$ mit $\Delta n = n_+ - n_- \approx (\chi_\uparrow - \chi_\downarrow)/2$.

2.4 Experimenteller Aufbau

Der grundsätzliche experimentelle Aufbau für die Spinrauschspektroskopie setzt sich zusammen aus Laser, Probe und Detektion (siehe Abb. 2.3). In dieser Reihenfolge ist auch dieser Abschnitt gegliedert. Nachdem die in dieser Arbeit verwendeten Laserquellen beschrieben sind (Abschnitt 2.4.1), werden in Abschnitt 2.4.2 die benötigten Grundlagen zum Verständnis der Spinrauschspektroskopie in der Probe erklärt. Das Ende in Laserpropagationsrichtung bildet die Detektion. Hier werden neben der Beschreibung und der Berechnung der Rauschleistung in Abschnitt 2.4.3 Fortschritte in diesem Themengebiet dargestellt.

2.4.1 Laserquellen

Die Wahl der richtigen Laserquelle ist extrem wichtig für erfolgreiche Spinrauschmessungen. Sie richtet sich im Wesentlichen nach den optischen Eigenschaften der zu messenden Probe. Prinzipiell muss die Lichtquelle weder kohärent noch spektral extrem schmal sein um Faradayrotationsschwankungen aufzunehmen⁷. Wichtig ist aber vor Allem, dass im Radiofrequenzbereich keine Modensprünge vorhanden sind, da genau hier das im Vergleich zum optischen Schrotrauschen schwache Spinrauschsignal gemessen wird. Die im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Proben erfordern einen frequenzstabilisierten Laser mit sehr schmaler spektraler Bandbreite, da das Spinrauschen in unmittelbarer Nähe der optischen Resonanz am stärksten wird. Direkt hinter dem Laser wird zusätzlich ein Faraday-Isolator verwendet, damit ungewollte Rückreflexe in den Laser und damit einhergehende Modensprünge verhindert werden. Zusammengefasst: der Laser muss für die Spinrauschspektroskopie über

⁷Tatsächlich wurde aus unterschiedlichen Gründen ernsthaft diskutiert, die ersten Messungen der Faradayrotationsschwankungen mit einer Glühlampe durchzuführen. Aufgrund des starken thermischen Rauschens wurde von dieser Herangehensweise jedoch Abstand genommen [27].

2 Spinrauschspektroskopie

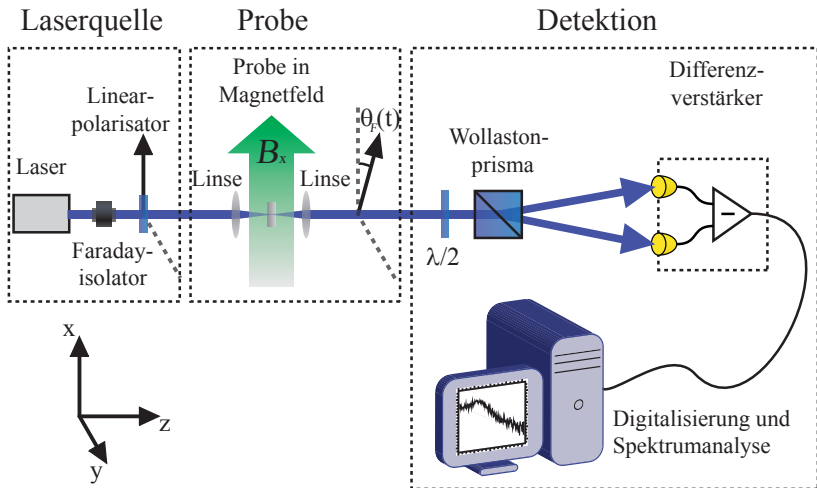


Abbildung 2.3:

Experimenteller Aufbau für die Spinrauschspektroskopie, bestehend aus Laser, Probe im Magnetfeld und Detektion (Details siehe Text).

die gesamte Messdauer (häufig mehrere Stunden) hinweg stabil in der Frequenzmode sowie Intensität bleiben.

Ringlaser Der Resonator eines Ringlasers ist so angeordnet, dass die stimuliert emittierten Photonen in eine Richtung im "Ring" propagieren. Deshalb besteht ein Ringlaser aus mindestens drei Spiegeln, einem Pumplaser, einem optisch aktiven Medium und einer 'optischen Diode' (z. B. ein Faraday-Rotator mit Brewsterfenster). Die spektrale Breite des Laserstrahls ist nun nicht mehr durch die Resonatorlänge limitiert, daher kann eine extrem schmale spektrale Bandbreite erreicht werden. Mit aktiver Stabilisierung können bei typischen Laserfrequenzen von etwa 400 THz spektrale Linienbreiten kleiner als 100 kHz erreicht werden. Der Ringlaser kann mit dem Titan-Saphir-Kristall auf Wellenlängen von ca. 690 nm bis etwa 1100 nm eingestellt werden. In dieser Arbeit wurde

weiterhin ein Frequenzverdoppler in einem Ringresonator⁸ benutzt um im nahen UV-Bereich messen zu können. Für die Frequenzverdopplung werden sehr hohe Leistungsdichten benötigt. Hier wird ein weiterer Vorteil des Ringlasers, nämlich die hohen erreichbaren Ausgangsleistungen von typischerweise 3 – 5 W, genutzt.

Halbleiterlaser Der Halbleiterlaser bietet sich als kostengünstige Alternative zum Ringlaser an. Eine Halbleiterlaserdioden wird beispielsweise in CD-Spielern 'frei lasend' eingesetzt, d.h. der Resonator besteht aus den beiden Oberflächen des Einkristalls. Nachteile sind hierbei die fehlende Wellenlängenselektion und eine im Vergleich zu anderen Lasersystemen große spektrale Bandbreite. Deshalb wurden frequenzstabilisierte Laser aufgebaut. Dafür wird das Licht einer antireflexbeschichteten Laserdioden mit einer Linse kollimiert und auf ein optisches Gitter gebracht. Die Anordnung, in der die erste gebeugte Ordnung auf den einfallenden Strahl reflektiert wird, wird Littrowgeometrie genannt [28]. Das Gitter wird durch Verstellen des Einfallswinkels zur genauen Wellenlängenselektion verwendet. Darüber hinaus kann die Temperaturabhängigkeit der Bandlücke ausgenutzt werden um die Wellenlänge durch ein starkes Kühlen der Laserdioden zu reduzieren. Im Kapitel 3 und Anhang C werden die verwendeten Laser aufgrund leicht unterschiedlicher Bauweise jeweils detailliert beschrieben.

Faradayisolator und Linearpolarisator Da auf die Probe fokussiert wird, diese aber nur selten antireflexbeschichtet ist, kommt es sehr häufig vor, dass ein direkter Rückreflex zurück in den Resonator der Laserquelle propagiert. Dies bildet ein weiteres Etalon, welches für weitere Modensprünge mit hoher Frequenz in der Laserwellenlänge sorgt. Diese Frequenzen liegen häufig genau dort, wo gemessen wird, nämlich im Radiofrequenzbereich. Deshalb wird hinter der Laserquelle ein Faradayisolator verwendet, damit Reflexionen in den Laser vermieden werden. In einigen Fällen kann es trotzdem vorkommen, dass ein Rückreflex trotz Abschwächung in den Laser kommt, daher empfiehlt sich einen zweistufigen Faradayisolator zu verwenden.

⁸Wavetrain mit DeltaConcept® von der Firma Spectra Physics, Newport

2 Spinrauschspektroskopie

Für die Messungen wird weiterhin ein größtmögliches Auslöschungsverhältnis zwischen senkrecht (s-) und parallel zur optischen Ebene (p-)polarisiertem Licht benötigt. In den Faradayisolatoren befinden sich Polarisatoren mit relativ geringem Auslöschungsverhältnis ($\sim 10^3 : 1$), deshalb wird ein weiterer Linearpolarisator mit einem weitaus höherem Auslöschungsverhältnis $10^5 : 1$ hinter dem Faradayisolator verwendet.

2.4.2 Probe im Magnetfeld

Häufig kommt es vor, dass die Probe aufgrund hoher Temperaturschwankungen (z. B. Einkühlen oder aufheizen zwischen Raumtemperatur und der Temperatur flüssigen Heliums) und den damit einhergehenden Expansionen beziehungsweise Kompressionen um einige Millimeter transversal zum Strahl driftet. Deshalb wird die Probe so platziert, dass sie der Laserstrahl möglichst mittig transmittiert. Häufig muss nach dem Einkühlen einer Probe im Kryostaten sogar nachjustiert werden. Für die Spinrauschmessungen wird mit einer Linse in die Probe fokussiert. Der direkte Rückreflex der Probenoberfläche sollte nicht in den Laser gelangen, da sonst trotz Faradayisolator ungewollte Modensprünge im Laser auftreten können (siehe Abschnitt 2.4.1). Dafür wird die Probe nach Möglichkeit ein wenig um den Polarisationsvektor des Laserstrahls gedreht. Eine weitere Linse hinter der Probe kollimiert das transmittierte Licht.

Messbar sind in erster Linie diamagnetische Proben, in denen es Atome oder freie, beziehungsweise lokalisierte Ladungsträger mit endlichen Spin $S \neq 0$ gibt. Letzteres ist notwendig, da für eine hinreichende Rauschleistung eine endliche Anzahl N an thermisch fluktuierenden Spins vorhanden sein muss. Wie in Abschnitt 2.2.3 beschrieben, beträgt die Standardabweichung von N Spins genau $\sqrt{N}/2$. Der durch die Fluktuationen verursachte Faradayrotationswinkel ergibt sich dann aus Gleichungen (2.9), (2.12), (2.21) und (2.22) zu

$$\delta\theta_{\text{F}} = k_z l \frac{\sqrt{N} |\mu_{eg}|}{2V \epsilon_0 E_0} \rho_{eg}. \quad (2.24)$$

Hier ist die Anzahl N durch die Standardabweichung $\sqrt{N}/2$ ersetzt wor-

den. Weiterhin sollte ein großes Dipolmatrixelement existieren, damit die Schwankungen des Brechungsindex groß und das daraus resultierende Faradayrotationsrauschen messbar wird. Die Oszillatorstärke $f_{eg} \sim \mu_{eg}^2$ [29] ist im Allgemeinen invers proportional zur strahlenden Lebensdauer des Übergangs. Darum sollte an einem erlaubten direkten Übergang gemessen werden. Deshalb bieten sich z. B. die D2-Linie von Rubidiumatomen oder auch lokalisierte Donatoren in ZnO als ideale Proben für die Spinrauschspektroskopie an, da in beiden eine große Anzahl Spins mit einer großen Oszillatorstärke vorhanden ist.

Wird nun ein Magnetfeld B senkrecht zum Laserstrahl angelegt, dann wird die Dynamik eines einzelnen Spins mit Formel (2.3) beschrieben. Die Resonanzfrequenz ω_0 entspricht dann der nach dem Irischen Physiker Joseph Larmor benannten Frequenz [30]

$$\omega_L = g^* \mu_B B / \hbar. \quad (2.25)$$

Hier kann in Formel (2.3) die Näherung $\omega_L^2 \gg \frac{1}{T_1 T_2}$ für endliche Magnetfelder angewendet werden. Die Spindynamik beschreibt demnach eine Oszillation, welche im Spektrum als Lorentzfunktion erscheint (siehe Abb. 2.1). Das Rauschen des Faradayrotationswinkels (2.24) wird also mit der Oszillationsfrequenz ω_0 (2.3) moduliert. Im Folgenden wird erläutert, wie dieses modulierte Faradayrotationsrauschen des Laserstrahls gemessen wird.

2.4.3 Detektion

Der Faradayrotationswinkel wird mit einer optischen Brücke gemessen. Diese besteht im Wesentlichen aus einer $\lambda/2$ -Platte und einem in Laserpropagationsrichtung dahinter befindlichen Wollaston-Prisma. Für eine perfekte Ausbalancierung des Messsignals wird mit der $\lambda/2$ -Platte in einer feinjustierbaren Rotationshalterung die Intensität auf beiden Photodioden geregelt. Sehr kleine Intensitätsunterschiede können so in der ausgegebenen Spannung am Differenzverstärker ausbalanciert werden. Dank dieser Vorrichtung wird nur der durch den Brechungsindex der Probe hervorgerufene Faradayrotationswinkel θ_F gemessen. Amplitudenänderungen im Laserstrahl werden hinterm Differenzverstärker aufgrund dessen Gleichtaktunterdrückung nicht detektiert. Unempfindlich ist die

2 Spinrauschspektroskopie

Detektion bei Phasenrauschen von zirkularem Licht. Dies wird in Kapitel 3.1.1 detaillierter erklärt.

Das Herzstück der Detektion bildet ein Differenzverstärker Modell 1807-FS von der Firma New Focus (Newport). Dieses Modell weist im direkten Vergleich zu Differenzverstärkern anderer Hersteller ein sehr gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis auf und deckt dank der verwendeten Silizium-Photodioden weit mehr als das sichtbare optische Spektrum ab. Deshalb wurde das Modell für alle in dieser Arbeit durchgeführten Messungen verwendet. Aufgrund der relativ hohen zu detektierenden Radiofrequenzen muss die Kapazität der Photodioden klein sein. Dies wird unter anderem durch eine kleine aktive Diodenfläche realisiert (Durchmesser $\sim 0,4$ mm). Auf diese Diodenfläche wird das Laserlicht fokussiert. Die optimale Fokussierung wird erreicht, wenn der Laserfokus mit einer auf einem x-y-z- μ m-Verschiebetisch befestigten Fokussierlinse auf die Mitte der Photodiode einjustiert ist. Die $1/e^2$ -Breite des Laserfokusses muss klar innerhalb der aktiven Fläche liegen, da der Photostrom der Dioden im Randbereich der aktiven Fläche nicht linear abnimmt. Die Laserleistung darf nicht zu hoch und nicht zu stark fokussiert werden, da zu hoher Photostrom zu Elektromigration und damit einhergehenden nichtlinearen Effekten bis hin zur dauerhaften Beschädigung der Photodioden führt.

Mit dem Umrechnungsfaktor $\beta = \alpha(\lambda) \cdot 4 \times 10^4$ V/A wird die eingestrahelte Lichtleistung in eine Spannungsverstärkung des Differenzverstärkers umgewandelt. Die spektrale Empfindlichkeit der Silizium-Photodioden

$$\alpha(\lambda) = I_{el}/P_{opt} = \frac{N_e \cdot e}{dt} \bigg/ \frac{N_{Phot} \cdot h\nu}{dt} \quad (2.26)$$

gibt die Quanteneffizienz, d. h. das Verhältnis der Elektronen, welche zum Photostrom beitragen, pro eingestrahlenen Photonen wider. N_e und N_{phot} sind jeweils die Anzahl an Elektronen beziehungsweise Photonen und $h\nu$ ist die Photonenenergie. Die Quanteneffizienz beträgt je nach Wellenlänge $\alpha(370 \text{ nm}) \approx 0,2$ oder $\alpha(780 \text{ nm}) \approx 0,5$ A/W. α wandelt die eingestrahelte Lichtleistung P_{opt} in einen Photostrom I_{el} um, sodass mit β aus der optischen Leistung direkt die am Verstärker entstehende Spannung ermittelt werden kann. An das Ausgangssignal des Differenz-

verstärkers wird ein weiterer Verstärker angeschlossen. An diesem kann eine beliebige Verstärkung von 10 dB bis zu 60 dB eingestellt werden. Mit der passenden Verstärkung der Ausgangsspannung, d. h. 20 dB bei 1 mW eingestrahelter Laserleistung, kann die volle Eingangsspannung der Digitalisierkarte ausgenutzt werden. Mit dem Verstärkungsfaktor des Differenzverstärkers kann nun das optische Schrotrauschen [31] in die integrierte Rauschleistung umgerechnet werden:

$$\delta U(f)_{\text{Phot}}^2 = \beta^2 \delta P_{\text{opt}}^2 = (\alpha h\nu)^2 \frac{\sqrt{N_{\text{Phot}}}}{4} \Gamma_{\text{max}}^2 \quad \text{in V}^2. \quad (2.27)$$

Die spektrale Rauschleistungsdichte ergibt sich anschließend aus $S_{\text{Phot}} = \delta U(f)_{\text{Phot}}^2 / \Gamma_{\text{max}}$, wobei Γ_{max} die maximale spektrale Bandbreite des Detektors ist (hier also 81 MHz, siehe unten).

Die Rauschleistung für das Spinrauschsignal wird analog zur Schrotrauschleistung (2.27)

$$\delta U(f)_{\text{Spin}}^2 = \beta^2 P_{\text{opt}}^2 \sin^2(\delta\theta_{\text{F}}) \quad (2.28)$$

berechnet. Das Faradayrotationsrauschen (2.24) wird hier mit der Sinusfunktion des Rotationswinkels berücksichtigt. Die Sinusfunktion kann für kleine Winkel mit $\sin^2(\delta\theta_{\text{F}}) \approx \theta_{\text{F}}^2$ entwickelt werden. Meist ergeben sich in den resultierenden Spinrauschspektren Lorentzfunktionen (Abschnitte 2.1 und 2.2.3). Damit das Spinrauschen vom Schrotrauschen unterschieden werden kann, wird die maximale spektrale Rauschleistungsdichte betrachtet. Eine Lorentzverteilung (auch Cauchy-Lorentz-Verteilung genannt) besitzt die maximale Amplitude $S_{\text{Spin}} = \delta U(f)_{\text{Spin}}^2 / \gamma$, wobei γ die Spinrelaxationsrate $\gamma = 1/(\pi T_2)$ ist.

In der Dissertation von G. Müller wurde zur Abschätzung der Spinrauschleistung die relative Signalstärke eingeführt [32]. Für die relative Signalstärke wird die Spinrauschleistung mit der Schrotrauschleistung ins Verhältnis gesetzt. In diesem Fall vereinfacht sich die Berechnung der relativen Signalstärke mit der transversalen Spinlebenszeit $T_2^* = 1/\gamma$ zu

$$\eta = \frac{S_{\text{Spin}}}{S_{\text{Phot}}} \approx \delta\theta_{\text{F}}^2 T_2 \Gamma_{\text{max}}. \quad (2.29)$$

Demnach ergibt sich aus dem Faradayrotationswinkel direkt die auf

2 Spinrauschspektroskopie

das spektral konstante Schrotrauschen normierte spektrale Spinrauschleistung.

Bei sehr kurzen Spinlebensdauern werden die Spinrauschbeiträge in den Spektren sehr breit (vergleiche Abschnitt 4.6). Daher muss im gegebenen Aufbau eine möglichst große spektrale Bandbreite erreicht werden. Um Reflexionen an der oberen Frequenzkante zu vermeiden, muss ein Tiefpassfilter verwendet werden. In Abbildung 2.4 werden unterschiedliche Rauschspektren mit drei verschiedenen Konfigurationen von Tiefpassfiltern jeweils mit dem -3 dB-Punkt bei 90 MHz dargestellt. In diesem Fall wurde mit 1 GS/s digitalisiert und anschließend das Frequenzspektrum berechnet. Der schwarze Graph stellt ein elektrisches

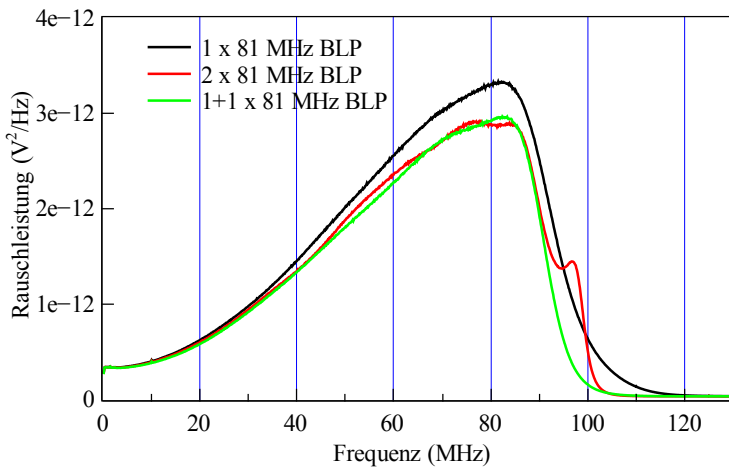


Abbildung 2.4:

Elektrische Rauschspektren mit unterschiedlicher Tiefpassfilterung.

Rauschspektrum unter Verwendung nur eines Tiefpassfilters dar. Wird nun im 180 MS/s-Takt digitalisiert, reicht das aus den digitalen Daten berechnete Frequenzspektrum der Karte genau von 0 bis 90 MHz. Dies hat zur Folge, dass alle Frequenzen oberhalb von 90 MHz an dieser Frequenzkante gespiegelt werden.

Damit dieser sogenannte Aliasingeffekt vermieden wird, werden zu-

nächst zwei elektronische Tiefpassfilter direkt hintereinander verwendet. Dadurch wird die Dämpfung hoher Frequenzen verdoppelt. Der rote Graph zeigt ein Rauschspektrum mit zwei Tiefpassfiltern direkt hintereinander. Bei etwa 95 MHz ist hier ein lokales Maximum zu sehen. Dieses Maximum kann mit elektronischen Interferenzen zwischen den beiden Filtern erklärt werden.

Solche Interferenzen müssen vermieden werden, daher wird ein Tiefpassfilter vor und einer hinter dem elektronischen Verstärker eingesetzt. Damit werden unerwünschte Interferenzeffekte verhindert, während die doppelte Dämpfung ≥ 90 MHz genutzt wird. Das entsprechende Rauschspektrum ist als grüner Graph abgebildet. Bei 100 MHz ist die Rauschleistung im Vergleich zu den Werten bei 80 MHz auf mehr als eine Größenordnung abgefallen. Das resultierende Spektrum mit der 180 MS-Karte kann nun bis knapp unter 80 MHz verwendet werden.

Subtraktion des Hintergrundrauschens

Das gemessene Rauschspektrum besteht zum größten Teil aus optischem Schrotrauschen. Um den starken Schrotrauschuntergrund zu eliminieren wird zu jeder Messung mindestens ein Hintergrundrauschspektrum aufgenommen. Hierzu dient häufig ein verändertes transversales Magnetfeld. Zunächst werden etwa 20 s lang Rauschspektren gemittelt, dann wird das Magnetfeld verändert um dann das Hintergrundrauschen aufzunehmen.

Die Messdauer von 20 s ist ein Erfahrungswert: Ein durch kleine Temperatur- und Luftdruckschwankungen verursachter Drift verhindert eine Verlängerung dieser Aufnahmedauer. Der Drift wird als eine scheinbare Änderung in der Laserintensität auf den Photodioden wahrgenommen, allerdings schließt diese Tatsache Änderungen in der Fokusposition nicht aus. Wenn alles korrekt einjustiert ist, sind aber meist Intensitätsänderungen des Lasers die Ursache für den gemessenen Drift. Daher empfiehlt es sich, die Laserintensität über die gesamte Messdauer gleichzeitig aufzunehmen, um eine eventuelle Fehlersuche zu vereinfachen. Bei Diodenlasern sind Intensitätsänderungen meist mit Modensprüngen verbunden, welche bei der Auswertung mit einem entsprechenden Skript gut herausgefiltert werden können.

Intuitiv bietet sich die Aufnahme eines Hintergrundrauschspektrums

2 Spinrauschspektroskopie

für jede einzelne Messung an. Driftet die Laserintensität (beispielsweise des Ti:Saphir-Lasers) über die gesamte Messdauer, bietet sich es allerdings an, Hintergrundspektren vor und nach jeder Spinrauschmessung aufzunehmen. Für jedes entstehende Rauschspektrum wird 20 s lang gemittelt, dann wird das Magnetfeld geschaltet und danach wird die nächste Messung gestartet. Alle Spektren werden separat mit fortlaufender Messnummer abgespeichert. Bei drei verschiedenen Magnetfeldern sähe die Messreihenfolge der gemittelten Rauschspektren S beispielsweise so aus: $S(10\text{ mT}) - S(0\text{ mT}) - S(10\text{ mT}) - S(1\text{ mT}) - S(10\text{ mT}) - S(2\text{ mT}) - S(10\text{ mT})$. Danach wird mit fortlaufender Messnummer, aber gleichem Zyklus, von vorn begonnen. Als Hintergrundspektrum dient in diesem Fall die 10 mT-Messung. Von jeder 0, 1 und 2 mT-Messung können nun gleichzeitig zwei integrierte Rauschspektren subtrahiert werden, nämlich das Hintergrundrauschen vor und nach jeder eigentlichen Messung. Zunächst sieht es so aus als würde etwas mehr Messzeit durch Aufnahme eines zusätzlichen Hintergrundrauschspektrums zum Ende verloren gehen. Aber insgesamt kann nun die doppelte Anzahl an Hintergrundrauschspektren pro Messung genutzt werden, was letzten Endes die Schwankungen im subtrahierten Spinrauschspektrum reduziert. Außerdem wird so der zeitlich lineare Drift in der Schrotrauschleistung beim subtrahieren korrigiert.

3 Spinrauschen von Rubidiumdampf

In diesem Kapitel wird zunächst der genaue experimentelle Aufbau zum Rubidiumspinrauschen erläutert (Abschnitt 3.1). Anschließend werden zwei Verfahren zur Subtraktion des Hintergrundschrotauschens, welche in diesem Experiment erstmalig durchgeführt wurden, vorgestellt. Beide Verfahren basieren auf demselben Prinzip, die durch die Probe verursachten Faradayrotationsschwankungen zu eliminieren. Hierfür wird zunächst die Messung mit Flüssigkristallretardierer erklärt (Abschnitt 3.1.1). Ein daraus hervorgegangenes Problem wurde in der Bachelorarbeit von Arthur Varkentin behandelt: Messungen mittels PEM (Photoelastischer Modulator) werden in Abschnitt 3.1.2 erklärt und präsentiert. Nachdem die wichtigsten relevanten Eigenschaften von Rubidium erläutert wurden (Abschnitt 3.2), werden anschließend nichtlineare Effekte des Spinrauschsignals in Abhängigkeit der Laserenergie untersucht. Für diese Verstimmungsabhängigkeit werden die in Abschnitt 2.3.1 vorgestellten Blochgleichungen in Abschnitt 3.2.2 erweitert und berechnet. Im Vergleich zweier Messungen mit unterschiedlicher Laserleistung wird in Abschnitt 3.3 gezeigt, dass das vorgestellte theoretische Modell die Messungen sehr gut erklärt. Des Weiteren wird ein Klärungsansatz eines bisher noch offenen Problems zur Beschreibung des starken Rauschsignals des angeregten Niveaus geliefert.

3.1 Experimenteller Aufbau

Der experimentelle Aufbau entspricht im Wesentlichen dem aus Abbildung 2.3. Detailliertere Änderungen werden im Folgenden erläutert.

Diodenlaser Als Laserquelle dient ein Diodenlaser mit externem Resonator in Littrow-Geometrie. In dieser Geometrie wird die erste Beugungsordnung eines optischen Gitters in die Laserdiode reflektiert [28]. Durch eine kleine Änderung des Einfallswinkels auf das Gitter kann die Wellenlänge über den freien Spektralbereich der antireflexbeschichteten Laserdiode verstimmt werden. Für ein stabiles Durchstimmen ohne Modensprünge muss aber gleichzeitig auch der Brechungsindex innerhalb der Laserdiode geändert werden. Dies wird durch eine Modulation des Diodenstroms erreicht. Eine Stromänderung hat aber wiederum eine Änderung in der Laserleistung zur Folge. Über den gesamten Durchstimmbereich des Lasers von 20 GHz verliert der Strahl dadurch $\sim 15\%$ an Intensität von der kleinsten bis zur größten Laserenergie. Direkt hinter dem Laser hebt ein anamorphisches Prismenpaar mit einem Vergrößerungsverhältnis von 2,8 : 1 zwischen x- und y-Achse die elliptische Form des Laserstrahls auf.

Der runde Laserstrahl propagiert nun einen Faradayisolator. Da der in diesem Versuch verwendete einstufige Faradayisolator die Polarisation in einen 45° Winkel zur p-Achse rotiert, wird eine $\lambda/2$ -Platte zum Zurückdrehen der Polarisation verwendet. Da noch ein Linearpolarisator mit großem Auslöschungsverhältnis ($1 : 10^5$) hinter der $\lambda/2$ -Platte steht, kann diese Platte auch gleichzeitig zur stufenlosen Intensitätsänderung des Laserstrahls verwendet werden.

Probe und Magnetfeld Als Probe dient in diesem Versuch eine Rubidiumdampfzelle. Die Anzahl N der Atome im Laserstrahlvolumen wird über die Dampfdruckgleichung ermittelt und kann über die Temperatur um einige Größenordnungen variiert werden [33]. Im Rahmen dieser Arbeit wurden zwei verschiedene Zellen untersucht: eine Vakuumdampfzelle mit Rubidium natürlichen Vorkommens (72,2% ^{85}Rb und 27,8% ^{87}Rb) sowie eine Zelle mit fast reinem ^{87}Rb in 1 mbar Helium Puffergas. In der letzteren Probe sorgt das Puffergas zum einen für eine

langsamere Diffusion der Rubidiumatome und zum anderen für eine zusätzliche spektrale Druckverbreiterung. Beide Zellen sind 5 cm lang. Der Laserstrahl wird im Zentrum der Zelle fokussiert.

Das sehr homogene Magnetfeld in x-Richtung wird aus dem Strom durch zwei Spulen in Helmholtzanordnung aufgebaut. Mit weiteren Spulenpaaren kann das Erdmagnetfeld in y- sowie z-Richtung kompensiert werden. Hierfür kann beispielsweise mit einem Deklinationsrechner [34] der Vertikal- und Horizontalanteil des Erdmagnetfeldes ermittelt und dann mit dem passenden Strom gegengeregelt werden. Zur Kompensation hat sich das Verwenden eines Fluxgatesensors [35], mit dem das Magnetfeld bis in den nT-Bereich genau gemessen werden kann, sehr gut bewährt. Während das Magnetfeld mit dem Fluxgatesensor gemessen wird, kann der passende Spulenstrom so eingestellt werden, dass die zum Magnetfeld proportionale Sensorspannung U zu genau 0 V ($|U| < 1$ mV) gemessen wird. Mit kompensiertem Erdmagnetfeld konnte das Spinausgangssignal der Rubidiumatome im Rahmen der Bachelorarbeit von C. Schulte im kHz-Bereich gemessen und somit hörbar gemacht werden [36].

Detektion Die Detektion bleibt weitestgehend dieselbe wie in Abschnitt 2.4.3 beschrieben. Die verwendeten Optiken ($\lambda/2$ -Platte und Wollastonprisma) sind für das nahe Infrarot antireflexionsbeschichtet. Zum Aufnehmen des starken Hintergrundrauschens können weitere Methoden eingesetzt werden. Eine Methode ist, wie in Abschnitt 2.4.3 beschrieben, das gleiche Rauschspektrum mit verändertem transversalem Magnetfeld von dem ursprünglich aufgenommenen Spektrum zu subtrahieren. Eine weitere Methode der Hintergrundaufnahme, basierend auf dem Umschalten der Polarisation, wird im Folgenden vorgestellt. Die für diese Methoden benötigten Optiken (LCR oder PEM) werden entweder vor dem Wollastonprisma oder vor der $\lambda/2$ -Platte mit der optischen Achse parallel zur Polarisation des Laserlichtes eingesetzt.

3.1.1 Hintergrundaufnahme mit LCR

Mit einem Flüssigkristallretardierer (englisch: liquid crystal retarder, LCR) kann die lineare Polarisation des Laserstrahls durch Anlegen unter-

3 Spinrauschen von Rubidiumdampf

schiedlicher Schaltspannungen stufenlos von 0 über zirkular bis hin zur Drehung der linearen Komponente geändert werden. Die Retardierung des LCRs ändert sich allerdings je nach Wellenlänge λ . Daher wird bei der Wahl einer neuen Wellenlänge eine andere Retardierungsspannung am LCR eingestellt. In diesem Versuch werden nur zwei Stellungen benötigt: $\lambda/2$ und $\lambda/4$ Retardierung. Der LCR wird hinter der Probe positioniert. Hier soll in der $\lambda/4$ -Stellung nicht – wie es in Aufbauten anderer Experimente üblich ist – die Gesamtpolarisation, sondern nur das Spinrauschsignal zirkular gemacht werden. Dies ist der Fall, wenn die Polarisation parallel zur schnellen Achse des LCR liegt, wie eine kurze Rechnung mit Jonesmatrizen gezeigt hat [18]. Nun können mit der Retardierungsänderung zwischen $\lambda/2$ und $\lambda/4$ abwechselnd Spektren mit Spinrauschsignal und Hintergrundrauschspektren aufgenommen werden. Eine Subtraktion dieser beiden Spektren ergibt analog zu Abschnitt 2.4.3 wieder das Spinrauschspektrum.

Der Einsatz eines LCRs wird vor allem relevant, wenn sehr kurze Spinlebenszeiten erwartet werden. In diesem Fall entstehen im Spinrauschspektrum sehr breite Rauschbeiträge. Wenn das maximale transversale Magnetfeld nicht ausreicht, um die Larmorfrequenz um mehr als das doppelte der Spinrelaxationsrate (FWHM) im Spektrum zu verschieben, dann überlappen die Funktionen stark im nach Abschnitt 2.4.3 ermittelten subtrahierten Rauschspektrum. Dieser Überlapp der Spinrauschbeiträge kann bei der Auswertung zu verschiedensten Problemen führen, wie z. B. sehr große Fehlerbalken angepasster Funktionen. Deshalb bietet sich eine Messung mit LCR an, da im Hintergrundspektrum kein Spinrauschsignal vorhanden ist. Notwendig wird die Messung mit LCR auch, wenn Signale gemessen werden, die nicht mit der Larmorfrequenz verschieben wie z. B. longitudinale Spinrelaxation (vgl. Abschnitt 2.1).

Die Messung mit LCR kann aber auch Nachteile haben. Beispielsweise weist die Retardierung eine starke Temperaturabhängigkeit auf, die trotz stabiler Temperaturverhältnisse im Labor ($< 2^\circ\text{C}$ Schwankung) leider nie vollständig vermieden werden kann. Daher wurde eine Box konstruiert, deren Temperatur geregelt werden kann und der LCR so thermisch von äußeren Einflüssen entkoppelt wird. Ein weiterer Nachteil ist folgender: Durch die Änderung des Brechungsindex wird die Reflektivität

und damit auch die Transmission des Laserstrahls geändert ($\sim 1,7\%$ zwischen $\lambda/2$ und $\lambda/4$ bei $\lambda = 780 \text{ nm}$). Wegen dieser Transmissionsänderung wird beispielsweise eine höhere Hintergrundrauschleistung gemessen. Daher entsteht im subtrahierten Spinrauschspektrum ein kleiner Offset (siehe Abb. 3.6). Dieser Offset kann an anderer Stelle im Aufbau mit einer antizyklischen Intensitätsänderung kompensiert werden. Diese Kompensation kann z. B. mit einem weiteren LCR vor einem Linearpolarisator oder einem verstellbarem Abschwächer realisiert werden.

3.1.2 Messungen mit PEM

Um die Nachteile der Intensitätsänderung bei der Messung mittels LCR zu umgehen, kann ein anderes optisch aktives Element verwendet werden. Hier wird mit einem photoelastischen Modulator (PEM) abwechselnd Spinrauschen mit Hintergrundrauschen und reines Hintergrundrauschen aufgenommen. Bei einem PEM ist die Brechungsindexänderung zwischen den unterschiedlich einstellbaren Retardierungen extrem klein ($< 0,1\%$). Daher kann die Intensitätsänderung des transmittierten Laserstrahls vernachlässigt werden. Die Funktionsweise des PEMs ist folgende. Zunächst wird ein Quarzkristall mittels Piezoelement zu einer mechanischen Schwingung angeregt. Eine Kompression beziehungsweise Expansion resultiert in einer leichten Brechungsindexänderung für den außerordentlichen Strahl. Der Kristall verzögert den Laserstrahl bei seiner Resonanzfrequenz von 50 kHz abwechselnd positiv und negativ mit gleichem Betrag. Die maximale Retardierung kann mit einer Amplitudenänderung der Piezoschwingung, welche wiederum den Kristall zum Schwingen bringt, eingestellt werden.

In diesem Experiment wurde der PEM mit der passenden Wellenlänge von 780 nm sowie der maximalen Retardierung $\lambda/4$ eingestellt. Die zeitliche Retardierungsänderung verläuft sinusförmig, d. h. sie oszilliert zwischen $\lambda/4$ und $-\lambda/4$. Da die Retardierung zwischen den maximalen Verzögerungen jedes Mal 0 Retardierung durchläuft, wird das Spinrauschsignal abwechselnd gemessen und unterdrückt. Daher werden mit der doppelten Frequenz (100 kHz) Spinrauschen mit Hintergrund, beziehungsweise nur Hintergrundrauschen aufgenommen. Da das FFT-

3 Spinrauschen von Rubidiumdampf

Programm über ~ 20 s integriert, das Hintergrundrauschen nun aber direkt während der Messzeit subtrahiert werden muss, wird eine modifizierte Variante verwendet. In dem umgeschriebenen c++-Programm werden mit 100 kHz-Takt in Echtzeit Rauschspektren aufgenommen und voneinander subtrahiert. So kann wieder über einen langen Zeitraum (20 s) integriert werden. Der Integrationszeitraum sollte nach wie vor nicht zu stark verlängert werden, da die Messdaten häufig nachträglich gefiltert werden.

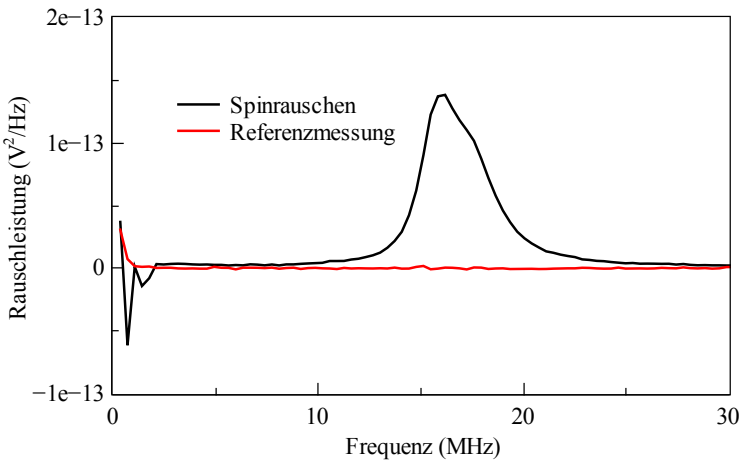


Abbildung 3.1:

Spinrauschspektrum und Referenzspektrum gemessen mit einem PEM (A. Varkentin); Details siehe Text.

In Abbildung 3.1 ist eine Spinrauschmessung (schwarz) von A. Varkentin unter Zuhilfenahme des PEM dargestellt. Da die isotopepure Probe verwendet wurde, ist ein einzelner Spinrauschbeitrag bei der Larmorfrequenz (16 MHz) von ^{87}Rb zu erkennen. In positive Frequenzrichtung ist diese Funktion leicht asymmetrisch. Diese Asymmetrie wird durch das stark inhomogene Magnetfeld erklärt: Die Probe ist während der Justierarbeiten um wenige cm aus dem Zentrum des Helmholtzspulenpaares in z -Richtung gerutscht. Außerhalb dieses homogenen Magnetfeldsymme-

triefpunkts wird das Magnetfeld um einige Prozent stärker. Ein stärkeres Magnetfeld führt zu einer höheren Larmorfrequenz, was wiederum zur im schwarzen Graphen sichtbaren Asymmetrie führt. Dieses Artefakt muss keinesfalls unerwünscht sein: Mit einem kurzen Laserfokus kann beispielsweise durch das Verstellen der z -Position des Laserfokusses die Homogenität des Magnetfeldes sehr präzise untersucht werden. Die Auflösung dieser Homogenitätsanalyse ist nur durch die Fokusslänge (Rayleigh-Länge) beziehungsweise Fokusbreite limitiert und erreicht daher weitaus kleinere Dimensionen als die sonst limitierende Länge des Fluxgatesensors [35].

Für die Referenzmessung (roter Graph in Abb. 3.1) wurde der PEM auf 0 Retardierung eingestellt. Bei dieser Einstellung ist der Quarzkristall aus technischen Gründen dennoch sehr schwachen Schwingungen ausgesetzt, was das Ansteigen der Referenzrauschleistung bei niedrigen Frequenzen erklärt.

Eine große Schwierigkeit beim Nutzen des PEM ergibt sich bei der Justage:

- Bei Ausdehnung oder Kompression entsteht ein Spannungsgradient senkrecht zur Laserstrahlrichtung entlang des Quarzkristalls [37]. Dieser Gradient führt zu unterschiedlichen Retardierungen des Laserstrahls innerhalb der vom Strahl durchsetzten Fläche. Deshalb muss der Laserstrahl exakt durch die Mitte des Einkristalls geführt werden. In diesem Fall können die unterschiedlichen Retardierungen innerhalb des Laserstrahls mit der Achsensymmetrie des Einkristalls ausgeglichen werden.
- Reflexe an den Oberflächen des Quarzkristalls können ungewünschte Interferenzeffekte hervorrufen [38]. Die in diesem Versuch auftretenden Interferenzen können so stark werden, dass eine Spinrausmessung unmöglich wird. Deshalb wird, wie z. B. in der Referenz [37] vorgeschlagen, der PEM mit einem großen Winkel ($> 20^\circ$) zur Ausbreitungsrichtung des Laserlichtes gestellt. Eine für die jeweilige Wellenlänge passende Antireflexbeschichtung reduziert aber auch die Interferenzeffekte um einige Größenordnungen.

Der PEM muss daher gleichzeitig exakt mittig auf den Mittelpunkt des Laserstrahls positioniert, senkrecht zur Strahlpropagationsrichtung

3 Spinrauschen von Rubidiumdampf

gedreht und zusätzlich auf die exakte Polarisation des Laserstrahls einjustiert werden. Daraus ergeben sich die Schwierigkeiten in der Justage: Eine nur geringfügige Abweichung von einem dieser drei Parameter sorgt für Störungen, die das Spinrauschsignal unmessbar machen. In diesem experimentellen Aufbau kommt erschwerend hinzu, dass die senkrechte Drehachse nicht konzentrisch um den Mittelpunkt des PEMs, sondern außerhalb liegt. In zukünftigen Experimenten mit PEM sollte daher entweder eine zusätzliche feinjustierbare konzentrische Rotationshalterung für die senkrechte Achse oder eine Antireflexbeschichtung verwendet werden um die Interferenzeffekte zu vermeiden.

3.2 Optische Eigenschaften von Rubidium

In diesem Kapitel werden zunächst die optischen Eigenschaften mit Hinblick auf die D2-Linie von Rubidium vorgestellt. Da Rubidium ein gemeinhin bekanntes Element ist [39, 33], wird hier ein vereinfachtes Termschema beschrieben. Anhand dieses Termschemas werden die wichtigsten Eigenschaften von Rubidium vorgestellt mit denen anschließend Ratengleichungen aufgestellt und berechnet werden können. Danach werden die in 2.3.1 hergeleiteten optischen Blochgleichungen auf das Termschema von Rubidium erweitert und berechnet.

3.2.1 Termschema

Natürliches Rubidium besteht hauptsächlich aus den zwei Isotopen Rb^{85} (anteilig 72.168%, stabil) und Rb^{87} (27,835 %, Lebenszeit $\sim 4,9 \times 10^{10}$ Jahre). Das Termschema von Rubidium ist bereits detailliert von Daniel Steck beschrieben [39, 33]. Hier werden nur die für die Berechnung und Messungen wichtigsten Eigenschaften erläutert. Rb^{85} und Rb^{87} unterscheiden sich nicht nur in der Masse, sondern auch im Kernspin. Deshalb ist im Grundzustand die Aufspaltung der Hyperfeinniveaus $F = 2, 3$ für Rb^{85} mit Kernspin $I = 5/2$ und $F = 1, 2$ für Rb^{87} mit Kernspin $I = 3/2$. Wegen der optischen Auswahlregeln ändert sich die Anzahl der Hyperfeinniveaus beider Isotope im angeregten Zustand nicht – allerdings ändern sich die Übergangswahrscheinlichkeiten zwischen den Hyperfeinniveaus.

3.2 Optische Eigenschaften von Rubidium

In Abbildung 3.2 ist das stark vereinfachte Termschema für Rb^{87} dargestellt. Die Pfeile stellen die möglichen Kopplungen des Laserfeldes an

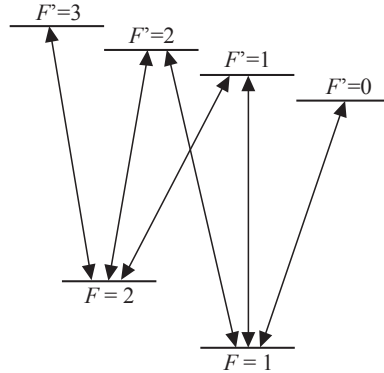


Abbildung 3.2:

Vereinfachtes Termschema von Rb^{87} mit den Hyperfeinniveaus F für das Grundniveau und den angeregten Niveaus F' .

der D2-Linie, d. h. der Übergang $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$ (1,59 eV Laserenergie), dar. Wird hier F durch $F + 1$ und F' durch $F' + 1$ ersetzt, dann ergibt sich das entsprechende Termschema von Rb^{85} .

Die Resonanzfrequenz des D2-Übergangs von Rubidium liegt bei $384\,227\,981,8773 \text{ MHz} \pm 5,5 \text{ kHz}$ [40]. Die Energieabstände zwischen den einzelnen Hyperfeinniveaus werden aus den Dipolmatrixelementen berechnet. Die Oszillatorstärken ergeben sich direkt aus den Clebsch-Gordan-Koeffizienten. Die in [33] verwendeten Werte wurden überprüft, auf den Entartungsgrad normiert und zur Berechnung in Anhang B verwendet.

Optisches Pumpen

Ein einfaches System zur Beschreibung von Mehrniveausystemen sind Ratengleichungen. Die Ratengleichungen beschreiben das zeitliche Verhalten der Besetzungszahlen. Da eine kontinuierliche Laserquelle verwendet

3 Spinrauschen von Rubidiumdampf

wird, können die Ratengleichungen unter Einbeziehung des Laserfeldes ähnlich wie in Kapitel 2.3.1 als statisch angenommen werden. Im Laufe dieser Arbeit hat sich jedoch herausgestellt, dass Ratengleichungen das Rubidiumsystem nur unzureichend beschreiben. Aufgrund der im Vergleich zur Sättigungsintensität hohen verwendeten Laserintensitäten entstehen Kohärenzen, die im Ratengleichungsmodell nicht berücksichtigt werden. Deshalb wird zum Modell der optischen Blochgleichungen gewechselt.

3.2.2 Optische Blochgleichungen für mehrere Niveaus

Die in Kapitel 2.3.1 hergeleiteten Blochgleichungen (2.19) werden nun auf die D2-Linie von Rubidium übertragen. Dabei muss beachtet werden, dass zwei Grundniveaus sowie vier angeregte Niveaus vorhanden sind. Nun kann das Grundniveau $|g\rangle$ durch mehrere Grundniveaus $|i\rangle$ und das angeregte Niveau $|e\rangle$ durch angeregte Niveaus $|j\rangle$ ersetzt werden. Hier sind i beziehungsweise j jeweils der Index für das i -te Grundniveau oder j -te angeregte Niveau. Da die daraus resultierende Dichtematrix aus 36 Elementen besteht (inklusive Real- sowie Imaginärteil), werden die Gleichungen an dieser Stelle für die Grundniveaus ρ_{ii} , die angeregten Niveaus ρ_{jj} , die direkten Übergänge ρ_{ij} sowie die inneren Kohärenzen $\rho_{ii'}$ und $\rho_{jj'}$ zusammengefasst. Die folgenden Gleichungen, die hier vorgestellt werden, können allerdings ohne weiteres erweitert werden auf eine beliebig höhere Anzahl an Grundniveaus. Der derzeit einzig limitierende Faktor bleibt hier die häufig begrenzende Rechenkapazität.

In Anhang B ist das gesamte Mathematica-Worksheet angehängt. Darin werden explizit alle Dichtematrixelemente inklusive Real- und Imaginärteil berechnet.

Nun können die Grundzustandsgleichungen für $\rho_{gg} = \rho_{ii}$ zusammengefasst werden zu

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{ii} = & \sum_j \gamma_{ij} \rho_{jj} + 2 \sum_j \Omega_{ij} \text{Im}\{\rho_{ij}\} \\ & + \gamma_{\text{diff}} \sum_{i'} \varepsilon_{ii'} \rho_{i'i'} \frac{g_i}{\sum_i g_i}. \end{aligned} \quad (3.1)$$

3.2 Optische Eigenschaften von Rubidium

Die Summen über j stellen eine Beteiligung jedes angeregten Niveaus, welches an den Grundzustand i koppelt sicher. Für $|i - j| > 1$ ist der Übergang verboten und die Relaxationsraten sowie die resonanten Rabifrequenzen verschwinden zu $\gamma_{ij} = \Omega_{ij} = 0$. Der letzte Term in (3.1) repräsentiert zusätzliche Diffusion von Atomen in den Laserstrahl mit der Diffusionsrate γ_{diff} . Da in den Laserstrahl Atome mit thermischer Gleichverteilung diffundieren, wird hier über die Grundniveaus summiert. Der Permutationstensor $\varepsilon_{ii'}$ (auch Levi-Civita-Symbol genannt) stellt hier sicher, dass nur über Zustände mit $i \neq i'$ summiert und der Grundzustand mit dem Entartungsgrad der Grundniveaus (g_i) im thermischen Gleichgewicht berücksichtigt wird.

Die Besetzungszahlen der angeregten Niveaus bestimmen sich aus

$$\dot{\rho}_{jj} = - \sum_i [\gamma_{ij} \rho_{jj} + 2 \Omega_{ij} \text{Im}\{\rho_{ij}\}]. \quad (3.2)$$

Hier wird über die Grundniveaus i summiert. Aus Gl. (3.2) können die Besetzungszahlen der angeregten Niveaus direkt ermittelt werden. Der Imaginärteil entsteht bei der Differenz $\rho_{ij} - \rho_{ji} = \rho_{ij} - \rho_{ij}^* = 2 \text{Im}\{\rho_{ij}\}$ und repräsentiert die Absorption von Photonen. Für den statischen Fall $\dot{\rho}_{jj} = 0$ entspricht die Besetzung direkt der Absorption, d. h. $\rho_{jj} = 2 \frac{\Omega_{ij}}{\gamma_{ij}} \text{Im}\{\rho_{ij}\}$. Da sich die resonante Rabifrequenz (2.16) aus der Intensität des Laserstrahls berechnen lässt¹, können sich gerade die Besetzungszahlen der angeregten Niveaus in Abhängigkeit der Laserintensität stark ändern.

Die auf 1 normierten Besetzungszahlen sind in Abbildung 3.3 für zwei unterschiedliche Laserleistungen in Abhängigkeit der Laserverstimmung von der ^{87}Rb D2 $F = 2 \rightarrow F' = 3$ -Resonanz dargestellt. Ist die Laserenergie stark von dieser Resonanz verstimmt (z. B. bei $-7,5$ GHz), bleiben die angeregten Niveaus unbesetzt und die Grundniveaus sind infolge unterschiedlicher Entartung ungleich besetzt. Direkt um 0 GHz Verstimmung von der $F = 2 \rightarrow F' = 3$ -Resonanz sorgt das Laserfeld

¹Für eine kontinuierliche elektromagnetische Welle im Vakuum wird die elektrische Feldstärke aus der mittleren Intensität $I = \frac{c\epsilon_0}{2} E_0^2 = \frac{P}{A}$ [41] zu $E_0 = \sqrt{\frac{2I}{\epsilon_0 c}}$ berechnet.

3 Spinrauschen von Rubidiumdampf

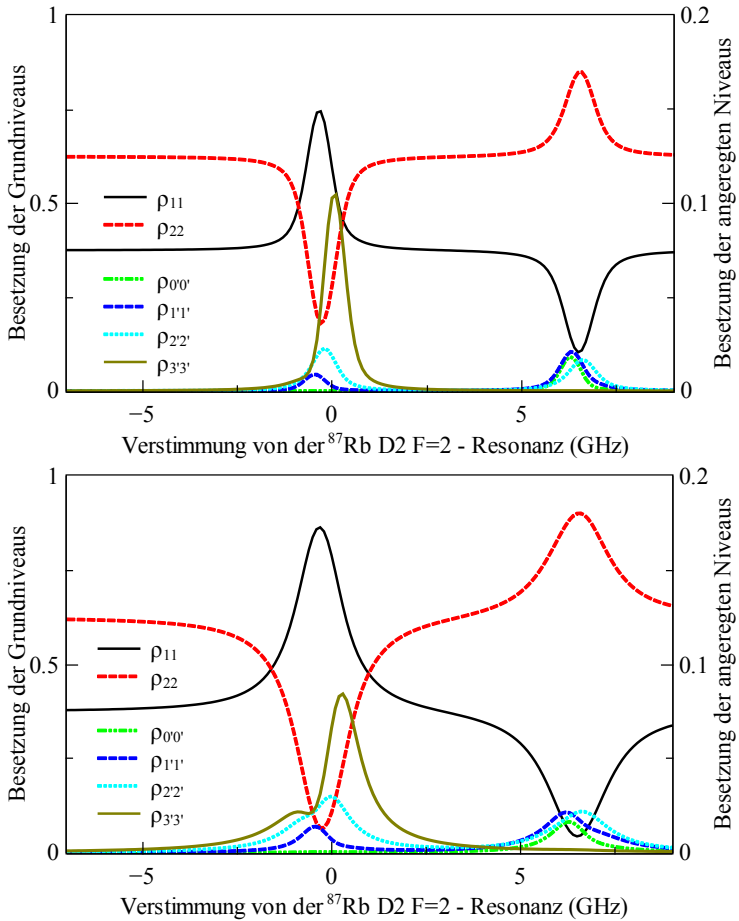


Abbildung 3.3:

Besetzungszahlen für moderate ($1,8 \text{ W/cm}^2$, oben) und hohe ($14,1 \text{ W/cm}^2$, unten) Laserstrahlintensität. Für die Grundniveaus (schwarz und rot) gilt die linke und für die angeregten Niveaus (grün, blau, cyan und dunkelgelb) die rechte Skala.

3.2 Optische Eigenschaften von Rubidium

für eine Umpopulation vom $F = 2$ -Grundniveau in das $F = 1$ -Niveau. Zusätzlich steigt die Besetzung der angeregten Niveaus. Beim Betrachten der Besetzungszahlen der angeregten Niveaus bei 0 GHz in Abhängigkeit der Laserleistung fällt zunächst auf, dass die maximale Besetzung des $F' = 3$ -Niveaus ($\rho_{3'3'}$) bei hoher Laserleistung geringer ist als bei niedrigerer Leistung. Stattdessen tritt eine starke spektrale Verbreiterung aller Besetzungszahlen bei hohen Laserleistungen auf. Diese Verbreiterung entsteht aus der Sättigung der Übergänge durch das Laserlicht. Die homogene Sättigungsverbreiterung sorgt dafür, dass mehrere Niveaus gleichzeitig an das Laserfeld koppeln. Aus dieser gleichzeitigen Kopplung kann gefolgert werden, dass die Zustände nicht mehr nur durch ihre Besetzungszahlen, sondern zusätzlich auch durch deren Kohärenzen untereinander beschrieben werden müssen. Daher reicht das Modell einfacher Ratengleichungen (vergleiche Abschnitt 3.2.1) nicht zur Beschreibung aus.

Der komplexe Brechungsindex wird aus den nicht-diagonalen Termen

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{ij} = & \left(-\frac{1}{2}(\gamma_{ij} + \gamma_B) - i\Delta_{ij} \right) \rho_{ij} + i\Omega_{ij}(\rho_{jj} - \rho_{ii}) \\ & + i \sum_{j', i-j'=\pm 1} \Omega_{ij'} \rho_{jj'} + i \sum_{i', i'-j=\pm 1} \Omega_{i'j} \rho_{ii'}. \end{aligned} \quad (3.3)$$

berechnet (siehe Abschnitt 2.3.1). Die komplexen Größen ρ_{ij} entsprechen den in Abbildung 3.2 eingezeichneten Kohärenzen, die durch die direkte Kopplung an das Laserfeld entstehen. $\Delta_{ij} = \nu - \nu_{ij}$ ist die Verstimmung des Lasers von der Resonanz ν_{ij} . Im Experiment wurde teilweise Rubidium mit Heliumpuffergas als Probe verwendet. In diesem Fall müssen Stöße der Rubidiumatome mit Heliumatomen berücksichtigt werden. Durch Stöße werden diese Kohärenzen unterbrochen, was mit einer zusätzlichen Relaxationsrate γ_B berücksichtigt wird. Gleichzeitig verringert sich durch die Stöße die Diffusionsrate der Rubidiumatome durch den Laserstrahl. Dies wird durch eine Änderung von γ_{diff} in Gl. (3.1) berücksichtigt. Da aus dem komplexen Brechungsindex direkt die Spinrauschleistung sowie die Absorption (1-Transmission des Laserstrahls durch die Probe) berechnet wird, ist das Resultat der Rechnungen in Abbildung 3.4 im direkten Vergleich mit den Messungen dargestellt.

3 Spinrauschen von Rubidiumdampf

Die Hyperfeinniveaus koppeln nicht nur direkt mit dem Laserfeld, sondern auch indirekt untereinander. Deshalb müssen diese Kohärenzen auch berücksichtigt werden.

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{ii'} &= i \sum_j [\delta_{j,i\pm 1,0} \Delta_{ij} - \delta_{j,i'\pm 1,0} \Delta_{i'j}] \rho_{ii'} \\ &\quad + i \sum_j [\Omega_{ij} \rho_{i'j} - \Omega_{i'j} \rho_{ji}] \end{aligned} \quad (3.4)$$

beschreibt die Grundniveaus und

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{jj'} &= -\frac{1}{2} \left(\sum_i [\gamma_{ij} + \gamma_{ij'}] - \gamma_B \right) \rho_{jj'} \\ &\quad + i \sum_i [\delta_{j,i\pm 1,0} \Delta_{i\pm 1,0 j} - \delta_{j',i\pm 1,0} \Delta_{i\pm 1,0 j'}] \rho_{jj'} \\ &\quad \quad \quad + i \sum_i [\Omega_{ij} \rho_{ij'} - \Omega_{i'j'} \rho_{ji}] \end{aligned} \quad (3.5)$$

die angeregten Niveaus. Hier stellt das Kronecker-Delta $\delta_{j,i\pm 1,0}$ sicher, dass die optischen Auswahlregeln berücksichtigt werden.

3.2.3 Berechnung der Spinrauschleistung

Die optischen Blochgleichungen (3.1), (3.2), (3.3), (3.4) und (3.5) werden numerisch mit einem Computer in Mathematica 8.0 von Wolfram [42] gelöst. Aus den nicht-diagonalen Termen ρ_{ij} wird die Suszeptibilität (2.21) berechnet, woraus wiederum der Brechungsindex (2.22) ermittelt wird. Anschließend wird über den Brechungsindex die Transmission und die Spinrauschleistung (2.24) über ein Faltungsintegral mit der Geschwindigkeitsverteilung berechnet. Weitere Größen wie z. B. Entartungsgrad, doppelter gemessener Faradayrotationswinkel am Differenzverstärker, Intensitätsverlust durch die Optiken (Faktor 1/2) etc. werden in den Berechnungen auch berücksichtigt.

Ein Ausschreiben der Summen in den Gleichungen (3.1) bis (3.5) würde zu unübersichtlichen und nur wenig aussagekräftigen Gleichungen führen. Deshalb ist das komplette Mathematica-Worksheet mit den

ausformulierten optischen Blochgleichungen im Anhang B zu finden. Dort wird exemplarisch für den Fall von reinem ^{87}Rb mit 1 mbar He Puffergas die Transmission sowie die Spinrauschleistung in Abhängigkeit der Laserenergie sowie Laserleistung berechnet. Das Resultat dieser Rechnungen wird im folgenden Abschnitt 3.3 präsentiert und diskutiert.

Analog zu dem Worksheet in Anhang B wurden die optischen Blochgleichungen sowie die Spinrauschleistung für natürliches Rubidium ohne Puffergas berechnet. Das Resultat dieser nicht explizit gezeigten Rechnungen wird in Abschnitt 3.4 vorgestellt.

3.3 Energieabhängigkeit

In Absatz 3.1 wurde beschrieben, wie die Wellenlänge des Diodenlasers über ~ 20 GHz ohne Modensprung verstimmbar wird. Während die Wellenlänge kontinuierlich mit 1 Hz von -7 GHz bis 13 GHz Laserverstimmung geändert wird, werden im Radiofrequenzbereich Rauschspektren aufgenommen. Gleichzeitig wird die Transmission aufgenommen, damit eine direkte Referenz für die Spinrauschspektren vorhanden ist. Diese Methode wurde schon im Vorfeld dieser Arbeit durchgeführt [18] und im Rahmen dieser Dissertation für intensitätsabhängige Messungen erfolgreich reproduziert. In Abbildung 3.4 sind die gemessenen (a, b), sowie die berechneten (c, d) Rauschspektren dargestellt. Die Farbskala (rechts) repräsentiert die gemessene Rauschleistung in Abhängigkeit der Laserverstimmung Δ (horizontale Achse) und Radiofrequenz ν (vertikale Achse). Zusätzlich ist zur besseren Orientierung an den Rubidium-Absorptionslinien die Transmission des Laserstrahls durch die Probe (schwarzer Graph) abgebildet. Die maximale Absorption beträgt für die niedrige Laserintensität ($I_l = 1,8 \text{ W/cm}^2$) 50 % und für die hohe ($I_l = 14,1 \text{ W/cm}^2$) 5 %. Die integrierte Rauschleistung (roter Graph) sowie die Transmissionsmessung sind beide in willkürlichen Einheiten dargestellt. Für alle Graphen sowie für die Farbmatrix gilt die gleiche x -Achse. Aufgrund des subtrahierten Hintergrundrauschens bei 0 mT ergäbe die über die Radiofrequenzen ν (jeweils linke y -Achse) integrierte Gesamtspinrauschleistung Null. Deshalb gehen die Integrationsgrenzen für die als roter Graph abgebildete Spinrauschleistung im Radiofrequenzbereich nur von 7 bis 18 MHz.

3 Spinrauschen von Rubidiumdampf

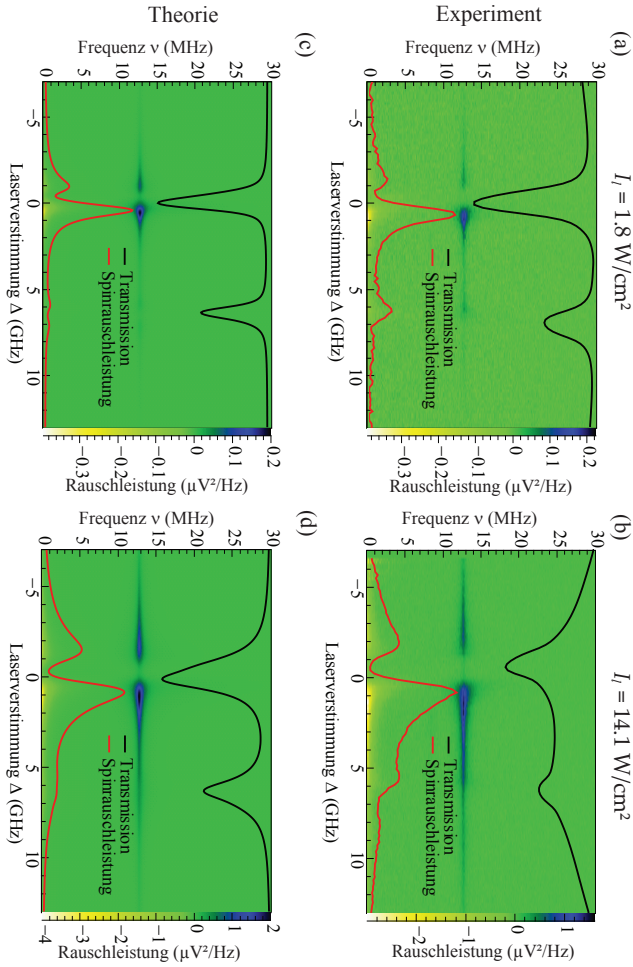


Abbildung 3.4:

Vergleich gemessener (a, b) und berechneter (c, d) Spinrauschspektren in Abhängigkeit der Laserfrequenz für niedrige ($1,8 \text{ W/cm}^2$), (a, c) und hohe ($14,1 \text{ W/cm}^2$), (b, d) Laserintensität; Details siehe Text.

Die Rauschleistung bei geringer Intensität weist eine starke Asymmetrie ± 1 GHz um die $F = 2 \rightarrow F' = 3$ -Resonanz auf. Diese Asymmetrie wurde bereits im Intensitätsrauschen eines transmittierenden Laserstrahls entdeckt [43]. Bei höherer Laserintensität erscheint die Spinrauschleistung symmetrischer um $\Delta = 0$ GHz als bei der geringen. Einfache Ratengleichungen konnten dieses Asymmetrieverhalten speziell für unterschiedliche Laserleistungen nicht erklären. Da die Berechnungen mit Hilfe der optischen Blochgleichungen eine sehr gute Übereinstimmung mit dem Experiment liefern, kann gefolgert werden, dass Kohärenzen zwischen den jeweiligen Hyperfeinniveaus für diese Asymmetrie verantwortlich gemacht werden können. Speziell für die $F = 2 \rightarrow F' = 3$ -Resonanz entsteht beispielsweise eine N-förmige Kohärenz zwischen den Grundniveaus $F = 1, 2$ und den angeregten Niveaus $F' = 1, 2, 3$ (siehe hierfür z. B. [44]). In Abbildung 2.2 wurde die Spinrauschleistung für einen homogenen Übergang dargestellt. Für die gesättigten Übergänge $F = 1, 2 \rightarrow F' = 1, 2$ ist in Abbildung 3.4 tatsächlich ein Minimum bei $\Delta = -0,4$ GHz zu erkennen. Der Übergang $F = 2 \rightarrow F' = 3$ kann aber als 2-Niveau-Modell angenommen werden. Aufgrund der inhomogenen Verbreiterung in Verstimmungsrichtung (Dopplerverbreiterung) entsteht bei diesem Übergang daher kein Minimum in der Spinrauschleistung. Im Gegenteil sorgt die inhomogene Dopplerverbreiterung dafür, dass genau in der Resonanz ein endliches Spinrauschsignal messbar wird. Zusätzlich befindet sich sehr nahe bei der Resonanz ein Spinrauschmaximum. Dies wird in Abschnitt 3.4 an der Rubidiumdampfzelle ohne Puffergasdruck weiter untersucht.

3.3.1 Spinrelaxationsraten

Aus an den gemessenen Spektren angepassten Lorentzfunktionen wird die Spinrelaxationsrate ermittelt. Zusätzlich werden die Spinlebenszeiten aus den optischen Blochgleichungen wie folgt ermittelt:

$$\gamma_i = \gamma_{\text{Diff}} + \sum_j \gamma_{ij} \rho_{jj}. \quad (3.6)$$

Hier ist $\gamma_i = \frac{1}{2\pi\tau}$ die Spinrelaxationsrate, γ_{Diff} die Diffusionsrate und γ_{ij} die Zerfallsrate des angeregten Niveaus j in das Grundniveau i . Der

3 Spinrauschen von Rubidiumdampf

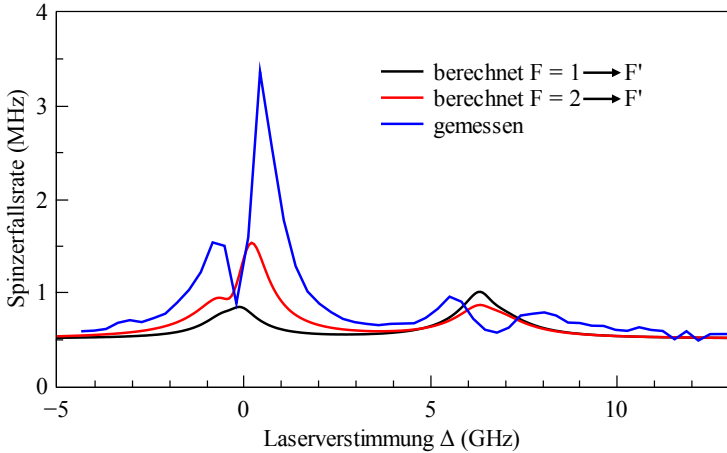


Abbildung 3.5:

Berechnete Spinzerfallsraten des $F = 1$ - (schwarz) und $F = 2$ -Niveaus (rot) sowie aus den Messungen ermittelte gesamte Spinzerfallsrate (blau)

erste Term in (3.6) beschreibt die durch den Laserstrahl diffundierenden Atome und der letzte Term repräsentiert die zusätzliche Relaxation aufgrund natürlicher Zerfälle der angeregten Niveaus. Diese sind für die Grundniveaus $i = 1, 2$ (schwarz, rot) zusammen mit der gemessenen Spinzerfallsrate (blau) in Abhängigkeit der Laserenergie in Abbildung 3.5 dargestellt. Die berechneten Zerfallsraten zeigen einen ähnlichen charakteristischen Verlauf wie die gemessenen: Die Spinlebenszeit ist jeweils bei $\Delta = -0,3$ GHz nahezu diffusionslimitiert und bei $\Delta = 0,3$ GHz ist ein Maximum der Spinrelaxationsrate zu erkennen. Die starke Abweichung der absoluten Werte in der Resonanz kann durch in Gleichung (3.6) fehlende, zwischen Rb- und He-Atomen stoßinduzierte Zerfälle erklärt werden. Die Stoßrate beträgt ~ 18 MHz und ist ungefähr dreimal größer als der Zerfall vom $F' = 3 \rightarrow F = 2$ -Niveau. Das Einbeziehen der inelastischen Rb-He-Stöße erklärt demnach die starke Abweichung der berechneten Werte von den experimentellen speziell bei $\Delta = 0,3$ GHz.

Anhand Abbildung 3.5 lässt sich nun der Unterschied zwischen reso-

3.4 Spinrauschen der angeregten Niveaus

nanter und nicht-resonanter Spinrauschspektroskopie festmachen:

- Ändert sich die Spinlebenszeit mit dem Verstellen der Laserenergie, dann sind Anregungseffekte nicht auszuschließen und das Experiment wird „störende Spinrauschspektroskopie“ genannt.
- Wenn keine Änderung der Spinrelaxationsraten bei variiertener Laserenergie abzusehen ist (siehe z. B. im Intervall von 10 – 13 GHz in Abb. 3.5), dann handelt es sich um nicht- beziehungsweise „störungsfreie Spinrauschspektroskopie“.

Die Schrittweite der Laserenergiewerte muss größer sein als die spektrale Linienbreite des Übergangs, da sonst direkt im Absorptionsmaximum gemessen werden könnte und dort bei einer kleinen Variation der Laserenergie keine Änderung der Spinrelaxationsrate zu sehen ist.

3.4 Spinrauschen der angeregten Niveaus

In Abbildung 3.6 sind fünf Spinrauschspektren mit unterschiedlicher Laserverstimmung $d\nu$ von der $^{87}\text{Rb } F = 2 \rightarrow F' = 3$ -Linie dargestellt. In Bild (a) sind die gemessenen und in (b) die berechneten Spektren zu sehen. An die gemessenen Spektren (a) sind Lorentzfunktionen angepasst. Die zwei Spinrauschbeiträge für ^{85}Rb und ^{87}Rb können zum Einen anhand der berechneten g_F -Faktoren ($g_F = 1/3$ für ^{85}Rb und $g_F = 1/2$ für ^{87}Rb jeweils im Grundzustand), zum Anderen aber auch anhand der spektralen Nähe zu den entsprechenden Absorptionslinien identifiziert werden. Die Rauschleistung sowie das Verhalten mit der Laserverstimmung wird sehr gut für die Grundniveaus mit dem Modell optischer Blochgleichungen ohne freien Parameter reproduziert.

Direkt in der $F = 2 \rightarrow F' = 3$ -Resonanz von ^{87}Rb ist aber ein signifikanter Unterschied zwischen Messung und Rechnung zu erkennen: Bei 13 MHz entsteht in den Messungen ein weiterer, sehr breiter Rauschbeitrag, welcher nicht in den Rechnungen zu sehen ist. Zwar sind die angeregten Niveaus in den Rechnungen berücksichtigt, allerdings können die Messergebnisse für das angeregte Niveau nicht reproduziert werden. Die integrierte Rauschleistung bei $g_F = 2/3$ kann im thermodynamischen Gleichgewicht eigentlich nicht größer werden als die Rauschleistung der

3 Spinrauschen von Rubidiumdampf

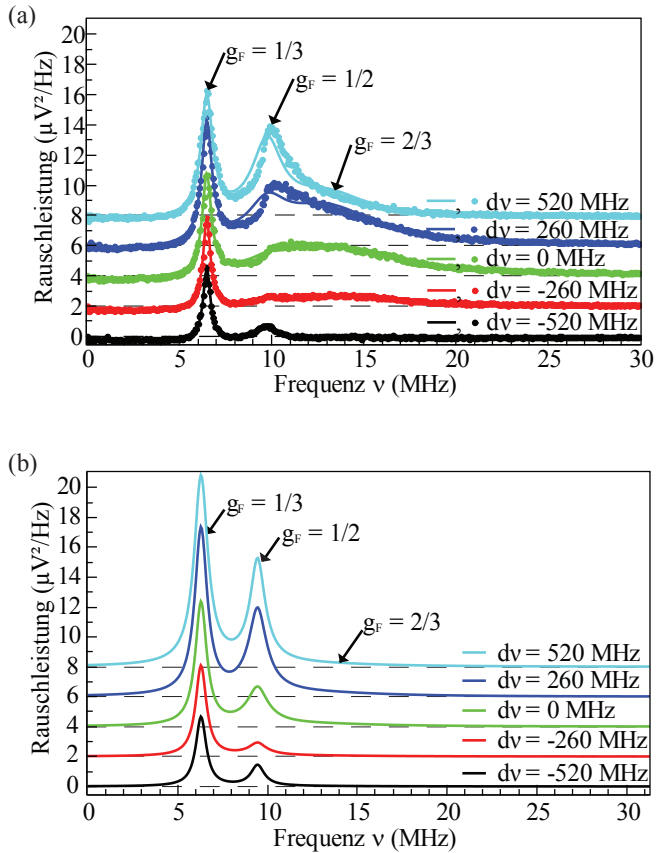


Abbildung 3.6:

Gemessene (a) und berechnete (b) Spinrauschspektren in der $F' = 2 \rightarrow F' = 3$ -Resonanz von ^{87}Rb für unterschiedliche Laserverstimmung $d\nu$

3.4 Spinrauschen der angeregten Niveaus

Grundniveaus, weil eine Besetzungsinversion in diesen Fall (entartetes Zweiniveausystem) nicht möglich ist (siehe hierzu auch Abb. 3.3).

Die Breite γ wird mit der angepassten Lorentzfunktion bei $g_F = 2/3$ zu $\text{HWHM} = \text{FWHM}/2 = 4 \text{ MHz}$ ermittelt. Die Lebensdauer des angeregten Niveaus entspricht aber $\tau = 1/(6 \text{ MHz})$ [33]. Da nur σ^+ und σ^- -Übergänge zum Spinrauschen beitragen, π -polarisiertes Licht aber nicht gemessen wird, werden auch nur 2/3 der Zerfälle in den Spinrauschspektren beobachtet. Daher wird im Rauschspektrum eine schmalere Lorentzfunktion bei $g_F = 2/3$ gemessen als angenommen, mit einem $\text{HWHM} = \frac{2}{3} \times 6 \text{ MHz}$.

In Abschnitt 2.1 wurde bereits erklärt, wie im thermodynamischen Gleichgewicht aufgrund der Zeitinversionssymmetrie eine Lorentzfunktion (2.6) im Spinrauschspektrum entsteht. Das Integral einer quadrierten Lorentzfunktion mit $\int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{1}{\pi} \frac{\gamma}{\omega^2 + \gamma^2} = 1$ wird mit

$$R_{|t|} = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \left(\frac{1}{\pi} \frac{\gamma}{\omega^2 + \gamma^2} \right)^2 = \frac{1}{2\pi\gamma} \quad (3.7)$$

berechnet. Da der energetische Abstand zwischen $5S_{1/2^-}$ - und $5P_{3/2^-}$ -Niveau von 1,59 eV weitaus größer ist als die thermische Energie $k_B T \approx 32 \text{ meV}$ bei $T = 373,15 \text{ K}$, gilt die Annahme des thermodynamischen Gleichgewichts nicht für das angeregte Niveau. Hierfür sollte ein exponentieller Zerfall ohne Zeitinversionssymmetrie angenommen werden (siehe Abschnitt 2.1). Die Fläche der fouriertransformierten Lösung ist für diesen Fall halb so groß:

$$R_{\theta(t)} = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \left| \frac{1}{2\pi} \frac{1}{i\omega + \gamma} \right|^2 = \frac{1}{4\pi\gamma}. \quad (3.8)$$

Das bedeutet, dass nur die halbe Rauschleistung für das angeregte Niveau gemessen werden sollte. Der höhere Entartungsgrad des angeregten $5P_{3/2^-}$ -Niveaus wurde für die Berechnung der Spinrauschleistung bereits berücksichtigt. Die stimulierte Emission von zusätzlichen Photonen wurde näherungsweise mit dem Faktor 2 in die Rauschleistung

3 Spinrauschen von Rubidiumdampf

des angeregten Niveaus eingebracht. Die Blochgleichungen beschreiben alle für den Laserstrahl relevanten *Einteilcheneffekte*, deshalb kann die erhöhte Rauschleistung der angeregten Niveaus nur noch durch *Vielteilcheneffekte* erklärt werden.

In [45] wird angedeutet, dass die erhöhte Rauschleistung auf einen kollektiven Effekt zurückgeführt werden kann. Nichtlineare Selbstrotation zum Beispiel wurde bereits vor langer Zeit entdeckt [46]. Budker *et al.* haben viele nichtlineare magneto-optische Effekte zusammengefasst [47]. So könnte zum Beispiel Vorwärtsstreuung bereits stimuliert emittierter Photonen eine entscheidende Rolle für die verstärkte Rauschleistung spielen. Wäre dem so, dann müssten die optischen Blochgleichungen für unterschiedliche Positionen entlang der Propagationsrichtung des Laserlichtes inkrementell mit variabler Polarisation berechnet werden. Hinzu käme, dass nun alle magnetischen Quantenzahlen in den optischen Blochgleichungen berücksichtigt werden müssten, um eine Polarisationsänderung des Laserstrahls vollständig zu beschreiben. Die neue zu berechnende Matrix erstreckte sich dann für ^{87}Rb über 24 Diagonalelemente, was bedeutet, dass ein lineares Gleichungssystem aus insgesamt $24^2 = 576$ Variablen mit hinreichender numerischer Genauigkeit diagonalisiert werden müsste. Das Lösen der in dieser Arbeit verwendeten Blochgleichungen mit 36 reellen Komponenten inklusive Geschwindigkeitsintegral nimmt zwei Stunden in Anspruch (bei paralleler Berechnung mit vier Prozessorkernen). Da die Rechendauer mit der Anzahl der beteiligten Niveaus stark ansteigt, reicht die Rechenkapazität eines einzelnen Computers derzeit noch nicht aus, um diese Problemstellung mit angemessenem Zeitaufwand zu lösen. Daher bietet sich für zukünftige Berechnungen eine weitere Optimierung in eine noch effizientere Programmiersprache (z. B. C++) oder auch das Anwenden von Monte-Carlo-Methoden [48] an. Außerdem minimiert das Berechnen mit einem Computerclustersystem den Zeitaufwand.

3.5 Zusammenfassung

In diesem Kapitel diente Rubidium als Probe zur Messung thermisch fluktuierender Spins. In diesem Aufbau wurde der Hintergrund erstmals mit verstelltem LCR, heißt mit aktiver Spinrauschunterdrückung, ge-

messen. Mit dieser Methode wurden Spinrauschspektren an der ^{87}Rb D2 $F = 2 \rightarrow F' = 3$ -Resonanz an natürlichem Rubidium gemessen (siehe Abb. 3.6). Aufgrund der hohen gemessenen Spinrauschleistung in der Resonanz kann der Intensitätsverlust des Laserstrahls am LCR vernachlässigt werden. Eine Weiterentwicklung dieser Technik wurde zusammen mit A. Varkentin im Rahmen seiner Bachelorarbeit mit einem PEM durchgeführt. Trotz der Schwierigkeiten, die die Verwendung eines PEM in Spinrauschmessungen mit sich bringt, konnten erfolgreich Spinrauschspektren aufgenommen werden. Aufgrund der schnellen Schaltrate der Retardierung mit PEM nicht möglich, lange Lebenszeiten ($> 1/(\pi 100 \text{ kHz})$) bei niedrigen Rauschfrequenzen ($< 1 \text{ MHz}$) mit der Spinrauschspektroskopie zu messen. Anhand der Spinrauschspektren kann weiterhin die Homogenität des Magnetfeldes indirekt über das Spektrum wiedergegeben werden.

Eine im Vorfeld dieser Arbeit entdeckte Asymmetrie der Spinrauschleistung auf der Laserenergieskala wurde in Abschnitt 3.3 für zwei Laserintensitäten untersucht. Die Berechnungen des komplexen Brechungsindex mittels optischer Blochgleichungen ergeben sehr gute Übereinstimmungen mit den gemessenen Rauschspektren in Abhängigkeit der Verstimmungsfrequenz des Lasers (Δ). Die Spinrelaxationsraten γ_s erlauben eine klare Unterscheidung zwischen störender und störungsfreier Spinrauschspektroskopie:

- ist γ_s über Δ konstant, wird störungsfreie Spinrauschspektroskopie durchgeführt,
- ändert sich γ_s über Δ , handelt es sich um störende Spinrauschspektroskopie.

Die Voraussetzung, dass die Verstimmungsfrequenz Δ größer ist als die spektrale Linienbreite des zu messenden Übergangs, muss für dieses Unterscheidungskriterium erfüllt sein.

Im Modell der erweiterten optischen Blochgleichungen sind alle erlaubten Kohärenzen innerhalb der D2-Linie berücksichtigt, daher können Einteilcheneffekte für das verstärkte Spinrauschen der angeregten Niveaus ausgeschlossen werden. Deshalb wird hierfür ein Vielteilcheneffekt – wie z. B. Vorwärtsstreuung von stimuliert emittierten Photonen – in

3 Spinrauschen von Rubidiumdampf

Betracht gezogen. Berechnungen entlang der Laserpropagationsrichtung (z. B. Monte-Carlo-Simulationen) könnten diese Annahme bestätigen.

Insgesamt eignet sich Rubidium sehr gut als Modellprobe auch für zukünftige Messungen mit der Spinrauschspektroskopie. Hier kann nicht nur die Anzahl der Atome im Strahl anhand der Dampfdruckgleichung, sondern auch die Dynamik (z. B. durch Festlegen der Geschwindigkeitsverteilung durch den Strahl, der Wahl einer anderen Strahlform oder mit zusätzlicher Anregung) gezielt beeinflusst werden.

4 Spindynamik in Zinkoxid

In diesem Kapitel werden zunächst die grundlegenden Eigenschaften von Zinkoxid (ZnO) erläutert (Abschnitt 4.1). Hier stellt sich heraus, dass ZnO einige herausragende Eigenschaften besitzt und daher speziell für spintronische Bauelemente als sehr attraktiver Kandidat betrachtet wird. Allerdings gibt es beim Wachstum von einkristallinem ZnO speziell für den Fall dünner Filme offenbar große Schwierigkeiten [49]. Deshalb werden im anschließenden Abschnitt 4.2 typische Defekte in ZnO aufgezählt und erläutert. Dabei wird in Abschnitt 4.3 speziell die Relevanz für die Spindynamik in den inhaltlichen Fokus gerückt.

Anschließend wird in Abschnitt 4.4 eine nanoporöse Dünnschichtprobe eingehend charakterisiert. Hierfür werden Aufnahmen eines Rasterelektronenmikroskops (REM) untersucht und zeitaufgelöste Photolumineszenzmessungen (PL) durchgeführt. Nach weiteren Untersuchungen in Transmissionsgeometrie wird zur Spinrauschspektroskopie gewechselt (Abschnitt 4.5). Im darauf folgenden Abschnitt 4.6 werden Spinrauschspektren mit transversalen sowie longitudinalen Magnetfeldern analysiert. Weiterhin wird die Spindynamik in Abhängigkeit der Laserenergie, Laserleistung sowie Temperatur untersucht. Dieses Kapitel wird mit einer Zusammenfassung in Abschnitt 4.7 beendet.

4.1 ZnO

ZnO ist in der Medizin, Industrie, als auch im täglichen Leben bereits ein allgegenwärtiges Material. Die Weltgesundheitsorganisation beschreibt beispielsweise im “World Health Report 2002” aus Zinkmangel resultierende unterschiedlichste Krankheiten. In der Industrie wird Zinkoxid bei der Herstellung von Autoreifen vor allem als Aktivator für den Vulkanisationsprozeß verwendet. Auf weißen Wänden befindet sich meist ZnO (in der Malerfarbe), welches in diesem Kontext als Zinkweiß bekannt ist [50].

Als Halbleiter zeichnet sich ZnO durch einige besondere Eigenschaften aus. Die Bindungsart des II-VI-Halbleiters ist zweifach ionisch mit der chemischen Formel $\text{Zn}^{2+} \text{O}^{2-}$. Es kristallisiert vorwiegend in hexagonalen

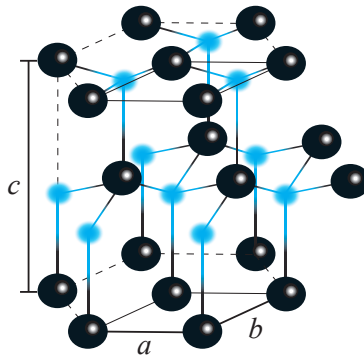


Abbildung 4.1:

Kristallstruktur von ZnO. Die Linien mit Farbübergang von den Zinkatomen (schwarz) zu den Sauerstoffatomen (blau) kennzeichnen die Bindungen und die schwarzen Linien geben die Gitterkonstanten a , b und c wieder.

Einkristallen (Wurtzit-Struktur, siehe Abb. 4.1) mit den Gitterkonstanten $a = b = 3,25 \text{ \AA}$ (senkrecht) und $c = 5,23 \text{ \AA}$ (parallel zur $[0001]$ -Achse) [51]. Aufgrund seiner hohen Bandlücke von $3,35 \text{ eV}$ bei Raumtemperatur ist ZnO transparent für optische Wellenlängen. Dies macht den Halbleiter relevant für diverse optoelektronische Anwendungen, wie z. B. transparente Dünnschichttransistoren, Leuchtdioden oder Laserdioden.

Schwierigkeiten zeigen sich beim Wachstum p-dotiertem ZnO: Obwohl in einigen Veröffentlichungen tatsächlich für einen p-dotierten Halbleiter charakteristische positive Hallkoeffizienten gemessen wurden [52], gibt es gegenwärtig keine zuverlässige Methode für die reproduzierbare p-Dotierung von ZnO [49].

ZnO ist ein attraktiver Kandidat für die optische Spintronik. Wegen der großen Bandlücke ist eine sehr schwache Spin-Orbit-Wechselwirkung von nur 8 meV vorhanden [53]. Galliumarsenid besitzt im Vergleich dazu eine Spin-Bahn-Wechselwirkung von ~ 340 meV [54]. Das Fehlen dieser Spin-Orbit-Wechselwirkung in ZnO resultiert in sehr langen Spinlebenszeiten [55]. Eine weitere für die optische Spintronik relevante Eigenschaft ist die Exzitonenbindungsenergie, d. h. die Energie, die aufgewendet werden muss, um die Bindung des Elektronen-Loch-Paares im ZnO-Gitter aufzuheben. Diese Bindungsenergie beträgt 60 meV und ist groß im Vergleich zur Raumtemperatur (26 meV). Daraus folgt, dass die Elektronen mit den Löchern auch bei Raumtemperatur noch eine gebundene Wellenfunktion im ZnO-Gitter beschreiben.

Die Ordnung des Valenzbandes in ZnO wird seit über 40 Jahren debattiert [49]. Nach derzeitigem Stand der Forschung gibt es drei Typen von freien Exzitonen in ZnO: FX_A , FX_B und FX_C (A-, B- und C-Exziton). Diese drei Exzitonen entstehen zum einen aus der Valenzbandaufspaltung durch das Kristallfeld und zum anderen aus der Spin-Orbit-Aufspaltung. Das Leitungsbandminimum ist s-förmig ($j = 1/2$), während das Valenzbandmaximum normalerweise (z. B. in GaAs) p-förmig ($j = 3/2$) ist (siehe hierzu [56, 57, 58]). Vor wenigen Jahren wurde allerdings eine negative Spin-Orbit-Aufspaltung vorgeschlagen, was zusammen mit der Aufspaltung durch das Kristallfeld die Valenzbandordnung kompliziert gestaltet [59]. Bei Photolumineszenz-, Reflexions- oder Absorptionsspektren entscheidet die Propagationsrichtung des Laserstrahls über die gemessene Exzitonen-Struktur. Ist der Wellenvektor – wie in dieser Arbeit – parallel zur Wachstumsrichtung ($\vec{k} \parallel c$ -Achse), dann werden die Exzitonen FX_A und FX_B sowie deren gebundenen Zustände gemessen.

4.2 Defekte

Viele verschiedene Defekte sind in ZnO bekannt [60, 61]. Die für diese Arbeit relevanten Defekte sind Donatoren, lokale Störstellen, Quantenpunkte und Gitterdefekte (z. B. ZnO-Vakuum-Übergänge bei nanoporösem ZnO). In diesem Abschnitt wird jeweils im Einzelnen auf die Defekte und deren Relevanz für Exzitonen sowie Elektronenspins eingegangen.

Das Vorhandensein von Akzeptoren in ZnO ist ein umstrittenes Thema [49, 62]. Da Akzeptoren in den in dieser Arbeit untersuchten Proben nicht gemessen werden, werden sie nicht weiter erläutert.

4.2.1 Donatoren

Intrinsisch dotiertes ZnO weist üblicherweise eine n-Dotierung auf. Diese Restdotierung liegt bei wenigen $1 \times 10^{15} / \text{cm}^3$. Die bisher in ZnO identifizierten Donatoren sind Wasserstoff (H), Aluminium (Al), Gallium (Ga) und Indium (In). Von diesen ist Al vor allem in mit der Gasphase gewachsenem ZnO als allgegenwärtiger Donator bekannt [49]. Diffusionslängen über mehrere μm während des Wachstums sind für diesen Donator durchaus üblich [63]. Die anderen Donatoren besitzen zum Al ähnliche Eigenschaften. Der in der hier behandelten Probe am häufigsten vorkommende Donator ist Al, daher werden weitere Untersuchungen nur für diesen Donator durchgeführt.

Ionisierung Wenn oberhalb der Bandlücke mit einem Laser freie Exzitonen erzeugt werden, lokalisieren die freien Exzitonen FX bei niedrigen Temperaturen ($< 50 \text{ K}$) an den donatorgebundenen Elektronen. Die Lokalisierungsenergie an den neutralen Al-Donatoren beträgt $15,1 \text{ meV}$ [53]. Das bedeutet, dass die Exzitonen eigentlich bei einer Temperatur von $T = 15,1 \text{ meV}/k_{\text{B}} \approx 150 \text{ K}$ delokalisieren. Allerdings besitzen die Donatoren höhere Niveaus mit der Hauptquantenzahl $n = 2, 3$ als der Grundzustand $n = 1$. Hinzu kommt, dass die Donatorionisierung schon für $T = 60 \text{ K}$ bei 4% liegt. Als Folge nimmt die Photolumineszenz gebundener Donatoren schon ab einer Temperatur von $T \approx 70 \text{ K}$ deutlich ab.

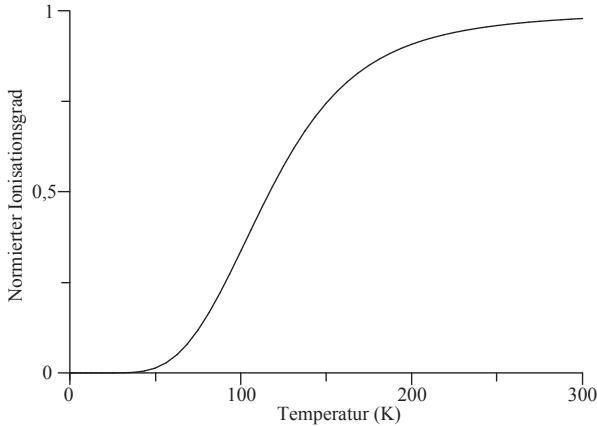


Abbildung 4.2:

Ionisationsgrad der Al-Donatoren in ZnO in Abhängigkeit der Temperatur.

Der Donatorionisationsgrad wird nach

$$\frac{n(T)}{N_d} = \frac{2}{1 + \sqrt{1 + \frac{4 N_d e^{\frac{E_d}{k_B T}}}{\beta N_c}}} \quad (4.1)$$

berechnet [64]. Hier ist N_d die Donatorkonzentration, $E_d = 51,55$ meV die Donatorbindungsenergie [53], T die Temperatur und $\beta = 1/2$ die inverse Spinentartung. Die effektive Zustandsdichte $N_c = 2 \left(\frac{2\pi m_c k_B T}{h^2} \right)^{\frac{3}{2}}$ wird aus der effektiven Masse der Elektronen $m_c = 0,24 m_e$ [53], der Temperatur und der Boltzmannkonstanten k_B sowie der Planckkonstanten h ermittelt. In Abbildung 4.2 ist der Anteil an ionisierten Donatoren mit einer Donatorkonzentration von $N_d = 5 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ in Abhängigkeit der Temperatur aufgetragen. Ab ~ 50 K steigt der Donatorionisationsgrad mit steigender Temperatur stark an. Schon bei 100 K sind ein Drittel aller Al-Donatoren ionisiert. Dies hat zum einen zur Folge, dass die strahlende Exzitonenrekombination an den Donatoren stark absinkt. Zum anderen sind Spinrauschmessungen lokalisierter Elektronen bei

4 Spindynamik in Zinkoxid

$T > 150\text{ K}$ nicht mehr realisierbar.

4.2.2 Lokale Störstellen

In vielen ZnO-Proben sind tiefe Zentren, wie zum Beispiel zusätzliche Sauerstoff- oder Zinkatome in Gitterzwischenräumen, häufig vorkommende Kristalldefekte [65]. Tiefe Zentren können allerdings durchaus für eine Reduzierung der Exzitonen- beziehungsweise Spinlebenszeiten verantwortlich gemacht werden. Die spektralen Rekombinationslinien sind weit von den gemessenen Energien entfernt, daher werden sie in dieser Arbeit nicht näher untersucht. Weiterführende Übersichtsartikel hierzu sind [60, 61].

4.2.3 Quantenpunkte

ZnO Quantenpunkte sind in [55] sehr ausführlich charakterisiert. Durch die laterale Einschränkung der Elektronenwellenfunktion kann die PL von Quantenpunkten bei höheren Energien liegen als z. B. die PL der Donatoren. Da in dieser Arbeit keine sichtbare spektrale Verschiebung der PL vorliegt¹, wird über die strahlende Exzitonenlebenszeit sowie über REM-Bilder abgeschätzt, ob die Strukturgrößen die Spindynamik beeinflussen könnten. Der Donatorradius von Al in ZnO wird aus der Donatorbindungsenergie berechnet [66] und ist mit $r_D = 1,93\text{ nm}$ klein im Vergleich zu Donatoren in GaAs ($r_{D, \text{GaAs}} \approx 10\text{ nm}$ [67]). Damit die Elektronenwellenfunktion in Quantenpunkten nicht an den Donatoren lokalisiert ist, sondern aufgrund der räumlichen Einschränkung quantisierte Niveaus vorweist, müssen die Quantenpunkte kleiner beziehungsweise mindestens gleich dem Donatorradius sein. Tatsächlich entsteht ab einem Durchmesser $\leq 4\text{ nm}$ eine Quantisierung, welche eine Verschiebung der Exzitonenrekombination zu höheren Energien zur Folge hat [55]. Die in dieser Arbeit vermessenen Strukturen sind größer als 10 nm Durchmesser, daher spielen die Quantisierungseffekte keine wesentliche Rolle.

¹Alle PL-Linien der hier untersuchten Probe liegen unterhalb der FX_A -Rekombination.

4.2.4 Nanoporöses ZnO

Nanoporöses ZnO zeichnet sich durch eine extrem große Oberfläche des Kristalls aufgrund von porösen Strukturen aus. Da alle Messungen im Vakuum durchgeführt wurden, können alle Oberflächen als ZnO-Vakuum-Übergang, beziehungsweise als Vakuumstörstelle angenommen werden. Die Störstellenkonzentration der hier untersuchten Probe wird über das Verhältnis des störstellenfreien Volumens mit dem Donatorvolumen zu $V_{\text{Defekt}} = V_{\text{Donator}} \frac{10}{1} \approx 1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ abgeschätzt (siehe Abschnitt 4.6.4).

Die Streuung von freien Elektronen an der Oberfläche wurde für Transportmessungen bereits eingehend untersucht und beschrieben [68], aber leider fehlt derzeit noch ein vollständiges Modell zur Erklärung der Spinrelaxation an der Oberfläche.

4.3 Spinrelaxation

Da es bereits ausführliche Zusammenfassungen der in Halbleitern bekannten Spinrelaxationsmechanismen gibt [69, 32], werden hier nur die für ZnO relevanten Spinrelaxationsmechanismen erklärt. Für die in dieser Arbeit verwendeten ZnO-Proben sind nur zwei wesentliche Relaxationsmechanismen relevant: Streuung von Elektronenspins an Störstellen (z. B. Oberflächen oder lokale Störstellen) und die Elektronenspin-Kernspin-Wechselwirkung (Hyperfeinwechselwirkung). Im Folgenden wird zuerst die Streuung von Elektronen an Störstellen erläutert. Anschließend wird die für die lokalisierten Donatoren relevante Hyperfeinwechselwirkung zusammengefasst.

4.3.1 Streuung von Elektronenspins an Störstellen

Die Streuung eines an einem Donatoratom lokalisierten Elektrons an einer Störstelle mit einem Spin (z. B. der Oberfläche) kann als anisotrope Wechselwirkung angenommen werden. Diese anisotrope Wechselwirkung (Dzyaloshinsky-Moriya-Wechselwirkung) ist in [70, 71, 72] ausführlich beschrieben.

4 Spindynamik in Zinkoxid

Ein Gitterdefekt wirkt einschränkend auf die räumliche Ausdehnung der Elektronenwellenfunktion. Aufgrund der starken Wechselwirkung im Donatorvolumen zwischen Elektronenspin und der Störstelle ist die Spinlebenszeit kürzer als die durch die Hyperfeinwechselwirkung begrenzte Spinlebenszeit. Die Streuung eines lokalisierten Elektrons an einem Gitterdefekt wird in dieser Arbeit als homogen angenommen. Für die Spindephasierung einer lokalisierten Elektronenwellenfunktion mit homogener Dynamik gilt der in Abschnitt 2.1 beschriebene exponentielle Zerfall.

Die Spinrelaxation freier Elektronen an Störstellen wird mit dem Dyakonov-Perel-Mechanismus beschrieben [73, 74]. Dieser beschreibt einen homogenen Zerfallsprozess der Spinpolarisation und kann demnach mit dem exponentiellen Zerfall beschrieben werden. Allerdings gilt diese Beschreibung nur für freie Elektronen mit einem endlichen Wellenvektor \vec{k} . In dieser Arbeit werden aber Spinzerfälle lokalisierter Donatorelektronen gemessen. Hierfür geht der Wellenvektor \vec{k} gegen Null. In weiterführender Literatur für delokalisierte Elektronenspins (d. h. $T > 150$ K) spielt die Spin-Orbit-Wechselwirkung eine wichtige Rolle für die Spinlebenszeit (siehe z. B. [75, 76]).

4.3.2 Hyperfeinwechselwirkung

Die Spinlebenszeit lokalisierter Elektronen in Halbleitern wurde von Merkulov ausführlich beschrieben [77]. Sind Kernspins im Halbleiter vorhanden, dann ist ein häufig dominierender Spinrelaxationsmechanismus lokalisierter Elektronenwellenfunktionen die Hyperfeinwechselwirkung. Diese beschreibt die Wechselwirkung des Elektronenspins mit dem Kernspin. Bis auf ^{67}Zn (anteilig 4,1 % in natürlichem Zink) besitzen alle stabilen Zn-Isotope keinen Kernspin². In natürlichem Sauerstoff besitzt ^{17}O (anteilig nur 0,048 %) einen Kernspin³. Zusammengerechnet wechselwirken also insgesamt 2,08 % aller Kerne im ZnO-Gitter mit dem Elektronenspin. Je nach Donatoratom muss auch ein einzelner Kernspin

²Natürliches Zink besteht zu 48,6 % aus ^{64}Zn , zu 27,9 % aus ^{66}Zn , zu 18,8 % aus ^{68}Zn und zu 0,6 % aus ^{70}Zn [78].

³Natürlicher Sauerstoff besteht fast ausschließlich aus ^{16}O (99,76 %) und nur zu 0,20 % ^{18}O , jeweils ohne Kernspin.

im Donatorvolumen berücksichtigt werden. Der in ZnO am häufigsten vorkommende Donator Aluminium (100 % ^{27}Al) besitzt den Kernspin $I = 5/2$. Dieser stimmt mit denen aller anderen in ZnO vorhandenen Kernspins überein, $I = 5/2 = I_{67\text{Zn}} = I_{17\text{O}} = I_{27\text{Al}}$.

Der Spin \vec{S} an Donatorrümpfen lokalisierter Elektronen wechselwirkt mit dem Kernmagnetfeld \vec{B}_N (siehe Abb. 4.3). Da die Orientierung der Kernspins untereinander unkorreliert ist, ist die Orientierung der Kernspins normalverteilt (siehe Absatz 2.2.3). Ein einzelner Elektronenspin erfährt eine Präzessionsbewegung durch jeden im Donatorvolumen vorhandenen Kern mit Spin, was insgesamt einen Verlust der Spinorientierung und somit die inhomogen reduzierte Spinlebenszeit zur Folge hat. Gleichzeitig erfährt der Spin eines lokalisierten Donatorelektrons eine Präzessionsbewegung durch das im Donatorvolumen gemittelte Kernmagnetfeld (auch "Overhauserfeld" genannt), da das Elektron eine s-Wellenfunktion im begrenzten Donatorvolumen beschreibt. Es wird also zwischen zwei Fällen unterschieden:

- $\vec{B}_N \perp \vec{S}$ (Kernmagnetfeld *senkrecht* zum Elektronenspin) und
- $\vec{B}_N \parallel \vec{S}$ (Kernmagnetfeld *parallel* zum Elektronenspin).

Ist der Elektronenspin senkrecht zum gesamten Kernmagnetfeld, dann wird die Spinlebenszeit des Elektrons aufgrund der Hyperfeinwechselwirkung reduziert. Da die Dynamik von N unkorrelierten Donatorspins gemessen wird, wird das Kernmagnetfeld als Normalverteilt angenommen. Die Standardabweichung Δ_B der Kernmagnetfelder \vec{B}_N wird aus dem Kernspin I sowie der Hyperfeinwechselwirkungskonstante zwischen den Elektronenspins und ^{67}Zn ($3,64 \mu\text{eV}$ [79]) aus

$$\Delta_B = \sqrt{\frac{4}{3} \sum_j I^j(I^j + 1)(a_j)^2} \quad (4.2)$$

berechnet. Die inhomogene Spinlebenszeit wird dann direkt aus der Larmorfrequenz (2.25) [77, 80]

$$T_2^* = \frac{\hbar}{\mu_B g^* \Delta_B} = \hbar \sqrt{\frac{3N_L}{4 \sum_j I^j(I^j + 1)(A^j)^2}} \quad (4.3)$$

4 Spindynamik in Zinkoxid

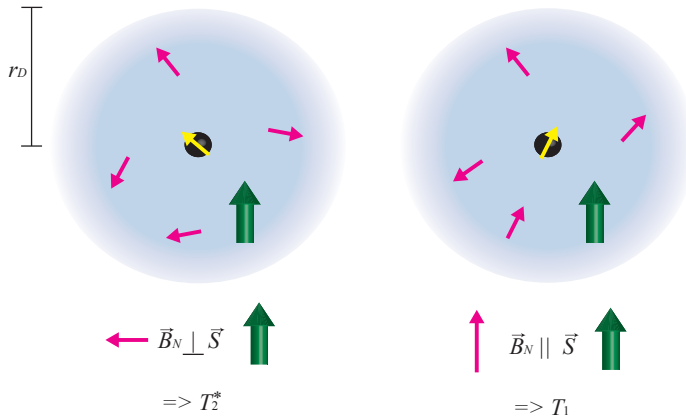


Abbildung 4.3:

Schematische Darstellung zweier lokalisierter Donatorelektronen. Der grüne Pfeil repräsentiert den Elektronenspin \vec{S} , die magentafarbenen Pfeile ^{67}Zn Kernspins \vec{I} und der kleine gelbe Pfeil den Kernspin des Donatoratoms. Die Summe aller Kernspins im Donatorvolumen mit Radius r_D ergibt das Gesamtmagnetfeld \vec{B}_N .

ermittelt. In dem Donatorvolumen mit einem Bohrradius von 1.93 nm für den Aluminiumdonator in ZnO [66] befinden sich $N_L = 5055$ Kerne. Nur 2,08 % aller Kerne besitzen einen Spin, daher wird über $j = 0..(0,0208N_L)$ Atome in (4.2) und (4.3) summiert. Mit diesen Werten wird die inhomogene Spinlebenszeit mit einem Kernmagnetfeld von $\Delta_B = 0,22$ mT zu 26,3 ns berechnet. Die Wechselwirkung des Elektronenspins mit dem Kernspin des Al-Atoms ist im Vergleich zur Wechselwirkung mit ^{67}Zn -Kernen sehr schwach [66]. Bei der Berechnung macht diese Wechselwirkung hier nur 0,1 ‰ des gesamten Kernmagnetfeldes aus und kann daher vernachlässigt werden.

Ist das Kernmagnetfeld parallel zum Elektronenspin ($\vec{B}_N \parallel \vec{S}$), dann findet keine Präzessionsbewegung von \vec{S} um \vec{B}_N statt. Als Folge wird nur die homogene Spindynamik ohne Larmorpräzession gemessen (siehe Abschnitt 2.1). Diese entspricht der longitudinalen Komponente und die

davon gemessene Relaxationszeit ist die lange T_1 -Zeit aus Gl. (2.2).

4.4 Vorbereitende Messungen

Zur Probencharakterisierung werden im folgenden Abschnitt zunächst REM-Aufnahmen untersucht. Anschließend wird in Abschnitt 4.4.2 die Exzitonendynamik spektroskopisch analysiert. Danach wird eine Transmissionsmessung in Verbindung mit einer cw-PL-Messung in Abschnitt 4.4.3 präsentiert um dann direkt zu den Spinrauschmessungen (Abschnitte 4.5 und 4.6) wechseln zu können.

4.4.1 REM-Aufnahmen

Die mit Spinrauschspektroskopie untersuchte Probe weist eine stark inhomogene Fläche auf. In Abbildung 4.4 und 4.5 sind REM-Bilder der

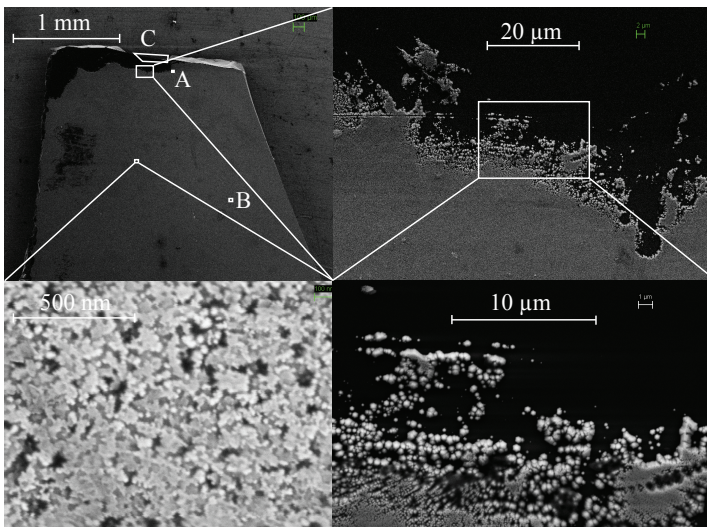


Abbildung 4.4: REM Bilder von der ZnO-Probenoberfläche (H. Schmidt).

4 Spindynamik in Zinkoxid

Probenoberfläche dargestellt. Oben links ist zunächst eine Übersicht der Probe abgebildet. Am im Bild oberen Ende der Probe ist eine Grenzschicht zwischen Substrat und der dünnen ZnO-Schicht sichtbar. Das Substrat erscheint grundsätzlich extrem Glatt im Vergleich zur Oberfläche. Anhand der unterschiedlich starken Rückstreuung der Sekundärelektronen und der damit verbundenen unterschiedlichen Färbung (schwarz und grau) wird klar, dass es sich zwischen Substrat und Oberfläche um zwei verschiedene Materialien handelt.

Die auf der Probe vorhandenen unterschiedlichen Strukturen werden nun weiter untersucht. Dafür sind die verschiedenen weiß markierten Bereiche vergrößert in den anderen Bildern zu sehen. Oben rechts in Abbildung 4.4 wird die Grenzschicht genauer gezeigt. Dort werden mikrobis nanokristalline Strukturen offenbar. Im noch stärker vergrößerten Bild unten rechts ist zu sehen, dass große Einkristalle direkt auf dem Substrat, aber viele kleinere Einkristalle auf höheren Ebenen vorhanden sind. Der eingezeichnete **Bereich A** ist in Abbildung 4.5 vergrößert abgebildet. In dessen Vergrößerung sind Einkristalle mit einem Durchmesser von 20 bis ~ 80 nm zu erkennen.

Unten links in Abbildung 4.4 ist ein typisches REM-Bild der Dünnschichtoberfläche mit ~ 5 nm Auflösung dargestellt. Dort sind einzelne sowie untereinander verbundene ZnO-Nanokristalle sichtbar. Bei genauere Betrachtung können zwar kleinere Nanokristalle erahnt werden, allerdings reicht die Auflösung hier nicht aus um konkrete Aussagen über die kleinsten Korngrößen treffen zu können. Die Anzahl kleiner Kristalle (< 5 nm) kann allerdings nicht groß sein, da der Kontrast zwischen Vakuum und ZnO sehr hoch ist und kleinere Kristalle wegen der begrenzten Auflösung im REM-Bild als unscharfe graue Punkte auffallen würden.

Der **Bereich B** ist in Abbildung 4.5 vergrößert abgebildet. Dort sind auf großer Fläche Strukturen mit vielen kleinen dunklen Einschlüssen zu erkennen. Da die Probe ausschließlich im Vakuum untersucht wurde, sind diese Einschlüsse als leer anzunehmen. Diese nanoporösen Strukturen sind vorwiegend kleiner als 100 nm.

Der **Bereich C** in Abbildung 4.5 zeigt eine seitliche Aufnahme der Probe (in Abb. 4.4 oben links aus Sicht von oben). Hierfür wurde sie um einen Winkel von 68° relativ zum Elektronenstrahl des REMs gedreht. Anhand der Größenskala kann die Dicke des dünnen nanoporösen

4.4 Vorbereitende Messungen

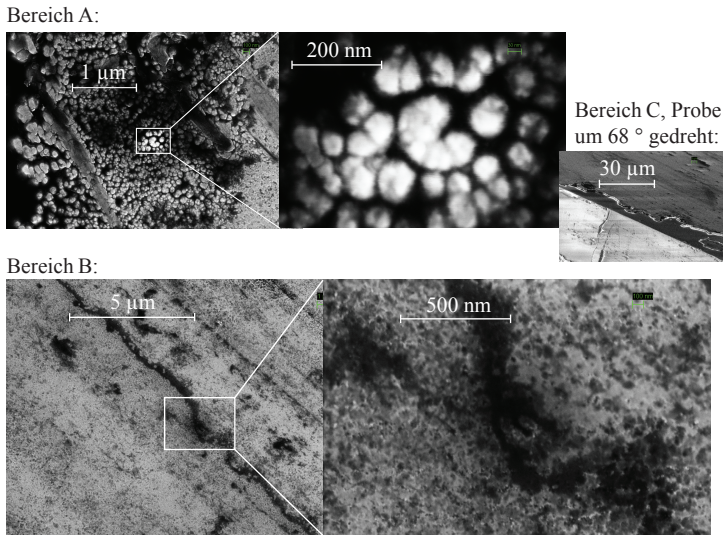


Abbildung 4.5: REM Bilder von der ZnO-Probenoberfläche (H. Schmidt).

Films zu weniger als 1 µm abgeschätzt werden. Da die Perspektive täuschen kann, wurde die Probe zusätzlich mit einem Rasterkraftmikroskop (RKM) an dieser Kante zwischen Schicht und Substrat untersucht (siehe Abb. 4.6). Mit dem RKM wurde die Schichtdicke – beziehungsweise die Stufenhöhe – zu $l = 450$ nm ermittelt. Um sicherzustellen, dass es sich bei Dünnschicht und Substrat tatsächlich um zwei unterschiedliche Materialien handelt, wird die Transmission eines UV-Laserstrahls (371 nm Wellenlänge) bei Raumtemperatur durch die verschiedenen Bereiche gemessen. Durch die schwarze Fläche in Abbildung 4.4 werden $\sim 54\%$ des Laserstrahls und durch die graue Fläche nur 11% transmittiert. Der Absorptionskoeffizient von ZnO beträgt bei Raumtemperatur $\kappa \approx 2 \times 10^5$ /cm [81]. Aus dem Lambert-Beerschen Satz [82, 83] wird hieraus für Volumen-ZnO die relative Transmission $\frac{I_{\text{hint}}}{I_{\text{vor}}} = e^{-\kappa l}$ berechnet. Diese beträgt bei einer Probendicke von 450 nm rechnerisch nur $0,12\%$. Die gemessene Transmission ist also ~ 1000 mal größer

4 Spindynamik in Zinkoxid

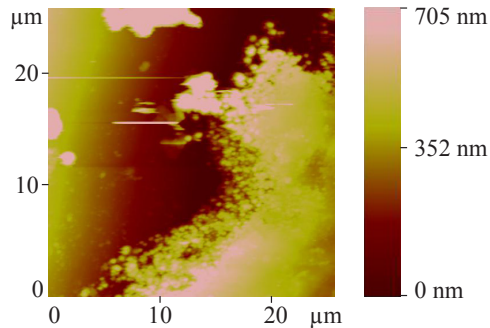


Abbildung 4.6:

RKM-Aufnahme an der ZnO-Substrat-Grenzschicht (D. Tutuc).

als die Berechnete. Hieraus kann geschlossen werden, dass Teile des Laserstrahls (11 %) den dünnen Film passieren ohne das ZnO zu transmittieren. Dies ist möglich, wenn der dünne Film über die gesamte Dicke Vakuumeinschlüsse besitzt, sodass der Strahl entweder durch leere Bereiche hindurch propagiert oder durch die nanoporösen Strukturen streut.

Zusammenfassung der Probenstrukturanalyse

In der Dünnschichtprobe sind drei verschiedene Typen von kristallinen Strukturen vorhanden:

- Kristalle mit einem Durchmesser von 20 bis 80 nm (Bereich A),
- Nanokristalle mit einem Durchmesser kleiner als 20 nm, aber geringer Häufigkeit (Abb. 4.4 unten links) und
- nanoporöse Strukturen (Bereich B).

Die Dicke der nanoporösen Schicht (Bereich C) wurde mit einem RKM zu 450 nm ermittelt. Aus einer vergleichenden Transmissionsmessung wird geschlossen, dass das gesamte ZnO-Volumen nanoporös bis nanokristallin ist.

4.4.2 Exzitonendynamik

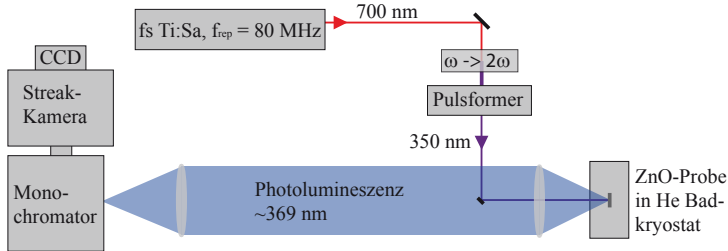


Abbildung 4.7:

Experimenteller Aufbau zur Untersuchung der Exzitonendynamik.

Der experimentelle Aufbau zur Untersuchung der Exzitonendynamik ist in Abbildung 4.7 dargestellt. Die zeitaufgelösten Messungen werden mit einem frequenzverdoppelten Titan:Saphir-Laser mit 100 fs langen Pulsen durchgeführt. Die Laserpulse mit 350 nm Wellenlänge (3,54 eV) durchlaufen einen Pulsformer⁴, der die spektrale Pulsbreite auf 1 nm reduziert und die Pulse aufgrund der Wellennatur des Lichtes etwas verlängert [84]. Die CW-Leistung des Laserstrahls beträgt vor der Probe $P = 1,5 \text{ mW}$. Die Pulse werden auf die Probe fokussiert und bringen die Probe periodisch alle 12,5 ns zum Leuchten. Das von der Probe ausgesandte Licht wird von einer großen Linse aufgesammelt und auf den Eingangsspalt eines Monochromators fokussiert. Das nun spektral aufgefächerte Licht wird auf die Streak-Kamera, welche sich hinter dem Monochromator befindet, gebracht. Mit der Streak-Kamera kann nun das PL-Spektrum in Abhängigkeit der Zeit dargestellt werden.

⁴Der hier verwendete Pulsformer besteht aus einem optischen Gitter, einer Linse, einem Keilspalt und einem Spiegel. Mit dem optischen Gitter wird die Wellenlänge des Laserstrahls räumlich aufgefächert. Die Linse fokussiert den Laserstrahl auf den Spiegel, vor dem zusätzlich mithilfe des senkrecht verschiebbaren Keilspaltes die Wellenlänge selektiert wird. Die räumliche Dispersion des Laserstrahls wird aufgehoben, indem der reflektierte Laserstrahl ein zweites Mal das optische Gitter in umgekehrter Richtung durchläuft.

4 Spindynamik in Zinkoxid

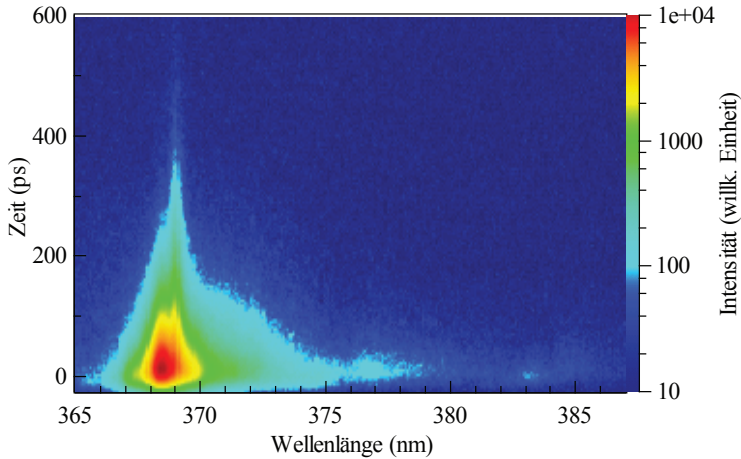


Abbildung 4.8: Aufnahme der ZnO-PL mit der Streak-Kamera.

In Abbildung 4.8 ist das Resultat einer solchen Messung dargestellt. Die Farbskala repräsentiert die Lichtintensität, die in Abhängigkeit der Wellenlänge (x-Achse) und Zeit (linke y-Achse) von der Probe ausgesandt wird. Mit der Auswertesoftware HPDTA 8.0 von Hamamatsu Photonics kann ein einzelnes Spektrum in einem Zeitintervall oder auch die Dynamik in einem spektralen Intervall extrahiert werden.

Eine detailliertere Auswertung der Spektren ist in Abbildung 4.9 zu sehen. Zwei Spektren, die 40 und 80 ps nach dem Laserpuls aufgenommen wurden, sind logarithmisch dargestellt. Die stärkste Rekombination ist das donatorgebundene Exziton D^0X . Die longitudinal optischen Phononenreplika $LO-D^0X$ und $2LO-D^0X$ weisen den für ZnO charakteristischen energetischen Abstand von ~ 70 meV auf. Bei 3,333 eV taucht im PL-Spektrum 80 ps nach Anregung eine weitere Linie auf: Höchstwahrscheinlich ist diese PL auf Rekombinationen von Exzitonen an Störstellen zurückzuführen (DBX) [85], allerdings kommen bei dieser spektralen Linie auch zwei-Elektronen-Satelliten aufgrund der begrenzten Auflösung des Spektrometers in Betracht (TES) [86]. Der kleine eingesetzte Graph in Abbildung 4.9 stellt das zeitliche Verhalten der

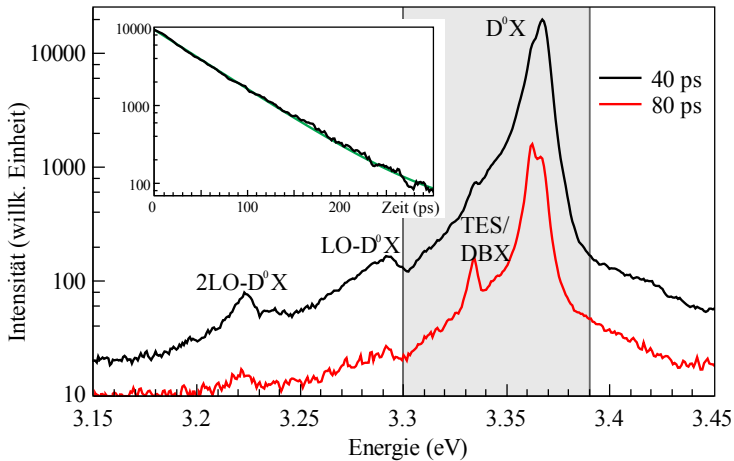


Abbildung 4.9:

PL-Spektren 40 und 80 ps nach Anregung mit Laserpuls. Der eingesetzte Graph zeigt den zeitlichen Verlauf der PL ab 20 ps nach dem Laserpuls bei 3,36 eV. Die schattierte Region im Spektrum wird mit cw-PL- und Transmissionsmessungen weiter untersucht.

PL bei genau 369 nm dar. Die Lumineszenz nach Laserpulsanregung ist logarithmisch dargestellt – da sie im einfach logarithmischen Diagramm linear abfällt, folgt diese Exzitonenrekombination einem exponentiellen Zerfall. Die leichte Krümmung der PL bei > 200 ps entsteht durch einen kleinen Offset, der trotz Subtraktion einer Hintergrundaufnahme übrig bleibt. In dem Offset könnten langlebige Rekombinationen versteckt sein – diese konnten hier aufgrund der vergleichbar geringen Amplitude nicht mit ausreichend kleinen Fehlerbalken ermittelt werden. Aus einer angepassten exponentiellen Funktion wird die Exzitonenlebensdauer der lokalisierten donatorgebundenen Exzitonen zu 60 ps ermittelt. Diese Lebenszeit entspricht sehr genau der von Oberflächenexzitonen [87]. Da die Lebensdauer an der spektralen Position des donatorgebundenen Exzitons I_6 (Al-Rekombination [53]) gemessen wurde, kann davon ausgegangen werden, dass sich tatsächlich die Mehrzahl aller Al-Donatoren

4 Spindynamik in Zinkoxid

in der Nähe der ZnO-Oberfläche befindet. Für hohe Temperaturen (150 K – 300 K) verkürzt sich die strahlende Rekombination des freien Exzitons auf ~ 20 ps. Diese kurze Exzitonenlebensdauer ist in der Tat ein Hinweis für eine extrem hohe Defektkonzentration [88].

4.4.3 Transmissionspektrum

Für die weitere Probencharakterisierung wird der frequenzverdoppelte Titan-Saphir-Ringlaser (siehe Abschnitt 2.4.1) benutzt. Der Laserstrahl wird auf die ZnO-Probe, welche sich nun im Mikrokryostaten bei einer Temperatur von 4 K befindet, zu $3 \mu\text{m}$ Durchmesser fokussiert (siehe Abb. 4.11 mit Spiegel). Die durch die optische Anregung entstehende transmittierte PL wird von einer Linse hinter dem Kryostaten aufgesammelt und auf den Eingangsspalt eines Linsenspektrometers fokussiert. Ein Vorteil dieses Aufbaus ist, dass der Laser direkt zur Kalibrierung des Spektrometers verwendet werden kann. Ein weiterer Vorteil wird offenbar, wenn der Umlenkspiegel hinter der Probe entfernt wird: So kann direkt zur Spinrausmessung gewechselt werden. In Abbildung 4.10 ist das cw-PL-Spektrum (schwarz) dargestellt. Das Spektrum zeigt die TES- beziehungsweise DBX-Rekombination, die nicht genau identifiziert werden kann. Die stärkste Rekombination des lokalisierten donatorgebundenen Exzitons ist bei 3,36 eV zu sehen. Weitere Linien werden bei $3,362 \text{ eV} - 3,364 \text{ eV}$ sichtbar, die zum einen Wasserstoffdonatoren zugeordnet werden können, zum anderen aber Quantenpunktmissionen entsprechen könnte. Bei Streak-Kamera-Messungen mit einer IR-Kamera ist eine Abhängigkeit der Stärke dieser Emissionslinie von der Anregungsleistung festgestellt worden, die aber aufgrund fehlender Sensitivität der dafür genutzten Photokathode nicht genauer untersucht werden konnte. Die Intensitätsabhängigkeit ist ein Indiz für höhere angeregte Zustände der Donatoren [89], allerdings konnte sie in den CW-PL-Spektren nicht reproduziert werden.

Transmission

An demselben Ti:Sa-Ringlaser wird nun wiederholt die Wellenlänge geändert. Gleichzeitig wird die Leistung vor der Probe auf $P_{\text{in}} = 2,3 \text{ mW}$

4.4 Vorbereitende Messungen

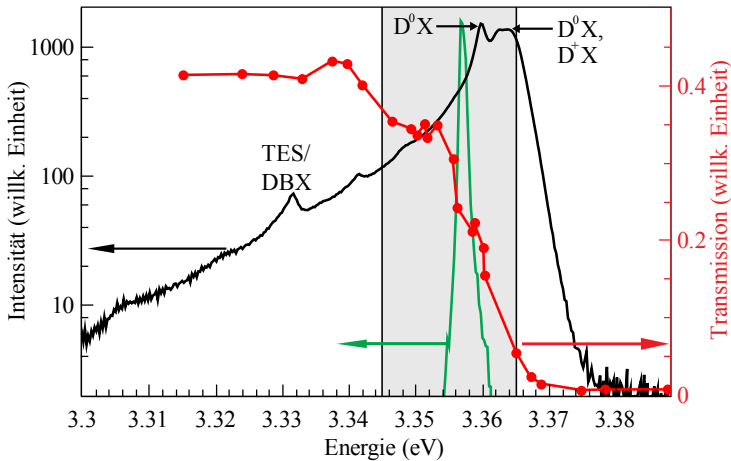


Abbildung 4.10:

PL-Spektrum von ZnO (schwarz) gemessen in Transmission bei 4 K. Die Transmission des Laserstrahls ist in rot und eine Laserlinie in grün dargestellt.

eingestellt. Hinter der Probe (am Ort des in Abb. 4.11 eingezeichneten Spiegels) wird die transmittierte Leistung P_{trans} gemessen. Der Quotient $P_{\text{trans}}/P_{\text{in}}$ ergibt die Transmission. Der rote Graph in Abbildung 4.10 stellt diese Transmission für verschiedene Laserenergien dar. ZnO wird bei niedrigen Temperaturen (4 K) für einen Laser mit $\sim 3,3\text{ eV}$ komplett transparent [81]. Der maximale Wert von 0,4 ergibt sich aus Leistungsverlusten bei Reflexen an der Probe sowie an den unbeschichteten Glasscheiben des Mikrokryostaten. Bei 3,36 eV werden aus den eingestrahlenen Photonen donatorgebundene Exzitonen erzeugt. Mit geringfügig höherer Energie (3,364 eV) entstehen zusätzliche höhere Zustände der gebundenen Exzitonzustände [89]. Als Folge der steigenden Anzahl möglicher angeregter Zustände sinkt die Transmission mit steigender Laserenergie auf null, noch bevor die ersten freien A-Exzitonen bei 3,375 eV erzeugt werden. Mit dieser Information kann die Laserlinie (Abb. 4.10, grün) exakt an der Transmissionskante für die ersten Spinrauschmessungen eingestellt werden.

4 Spindynamik in Zinkoxid

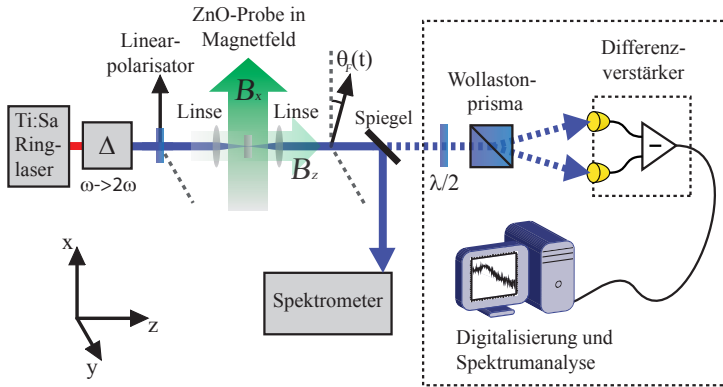


Abbildung 4.11:

Experimenteller Aufbau für die ZnO cw-PL-Messung sowie für Spinrauschen (letzteres mit entferntem Spiegel).

4.5 Experimenteller Aufbau

Der experimentelle Aufbau ist in Abbildung 4.11 (ohne Spiegel) schematisch dargestellt. Als fundamentale Lichtquelle dient der in Abschnitt 2.4.1 beschriebene Ti:Saphir Ringlaser mit einer schmalen Bandbreite von $\delta\nu < 100$ kHz. Das rote Licht des Ti:Sa Lasers wird in einem weiteren Ringresonator frequenzverdoppelt, damit keine zusätzliche Verbreiterung der Laserlinie stattfindet. Der weitere Aufbau gleicht dem typischen Spinrauschaufbau (Abschnitt 2.4) mit drei Unterschieden:

- Es werden nur UV-transmittierende Optiken verwendet, d.h. entweder UV-beschichtete oder unbeschichtete Optiken und vor allem keine Achromate, da diese meist aus mindestens einem UV-absorbierenden Glas bestehen.
- Die Zinkoxid-Halbleiterprobe befindet sich in einem Mikrokryostat für Messungen bei tiefen Temperaturen bei 4 K.
- Hier kann zusätzlich zum transversalen Magnetfeld B_x ein longitudinales Feld B_z angelegt werden.

4.6 Spinrauschmessungen

Im Folgenden werden Spinrauschmessungen an ZnO präsentiert. Dieser Abschnitt beginnt mit Messungen in Abhängigkeit des transversal angelegten Magnetfeldes 4.6.1. Hier werden Annahmen getroffen, die anschließend in 4.6.2 mit longitudinalen Magnetfeldern überprüft werden. Danach werden in 4.6.3 Spinrauschmessungen mit gleichzeitig longitudinalen und transversalen Magnetfeldern untersucht. In Abschnitt 4.6.4 gibt die Analyse der Spinrauschspektren in Abhängigkeit der Laserenergie Aufschluss über die spektrale Herkunft der Spinrauschbeiträge. Untersuchungen in Abhängigkeit der Laserintensität lassen auf ein Heizen der Ladungsträger schließen. Diese Annahme wird mit der Temperaturabhängigkeit in Abschnitt 4.6.6 überprüft.

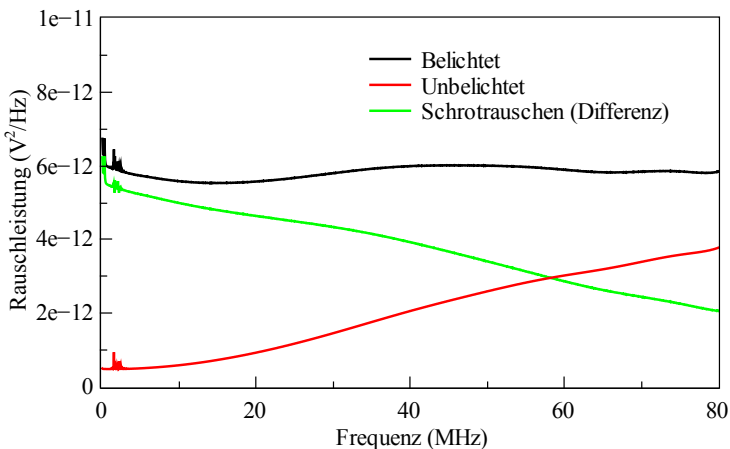


Abbildung 4.12:

Hintergrundrauschspektren von belichtetem (schwarz) und unbelichtetem (rot) Differenzverstärker, sowie daraus ermitteltes optisches Schrotrauschen (grün).

Da in den resultieren Spinrauschspektren häufig sehr breite Funktionen auftauchen, ist es notwendig, alle nichtlinearen Effekte im Spinrauschspektrum zu eliminieren. Dies wird durch folgende Schritte realisiert

4 Spindynamik in Zinkoxid

(siehe hierzu Abb. 4.12): Zunächst wird durch Mitteln aller transversalen 10 mT-Messungen ein Hintergrundrauschspektrum aufgenommen (schwarz). Nun wird ein zeitlich stark integriertes Hintergrundrauschspektrum mit unbelichtetem Differenzverstärker aufgenommen (Abb. 4.12, rot). Anschließend wird das rote Spektrum vom schwarzen subtrahiert. Das nun entstandene – offenbar nichtlinear verstärkte – optische Schrotrauschspektrum (grün) wird zur Normierung (Division) aller Spinrauschspektren (mit der Spinrauschleistung im Intervall von 0 bis 80 MHz) verwendet. Daraus folgt, dass alle folgenden Rauschspektren nun in Einheiten der optischen Schrotrauschleistung angegeben sind. Sofern sie nicht anders angegeben wird, beträgt die Laserleistung in allen folgenden Messungen 2,3 mW.

4.6.1 Transversales Magnetfeld

Zunächst werden verschiedene transversale Magnetfelder an die Probe angelegt, während mit einer Laserenergie von $E = 3,3547$ eV Spinrauschspektren aufgenommen werden. Die genaue Vorgehensweise für die Subtraktion des Hintergrundrauschens ist bereits in Abschnitt 2.4.3 ausführlich beschrieben worden. Der Elektronen- g^* -Faktor beträgt in ZnO 1,96 und ist in der Literatur vielfach bestätigt worden [90, 91, 92, 93, 79]. Mit diesem g^* -Faktor wird die Larmorfrequenz für 10 mT Magnetfeld zu $\omega_L \approx 274$ MHz berechnet (2.25). Eine breite Lorentzfunktion im Spinrauschspektrum wird zu 75 MHz ermittelt (siehe Abschnitt 4.6.4). Da die maximale detektierte Frequenz bei 80 MHz liegt, können bei 10 mT die Spinrauschbeiträge nahezu komplett aus dem Spinrauschspektrum heraus geschoben angenommen werden⁵.

In Abbildung 4.13 sind Messungen für verschiedene transversale Magnetfelder dargestellt. Die Rauschspektren offenbaren drei Spinrauschbeiträge:

- L_1 – eine schmale Lorentzfunktion zentriert um 0 MHz,
- L_2 – eine flache Lorentzfunktion, die mit der Larmorfrequenz aus dem Rauschspektrum geschoben wird,

⁵Eine 75 MHz breite Lorentzfunktion, deren Mittenfrequenz bei 274 MHz liegt, ist bei 80 MHz auf 3,60 % der maximalen Amplitude abgefallen.

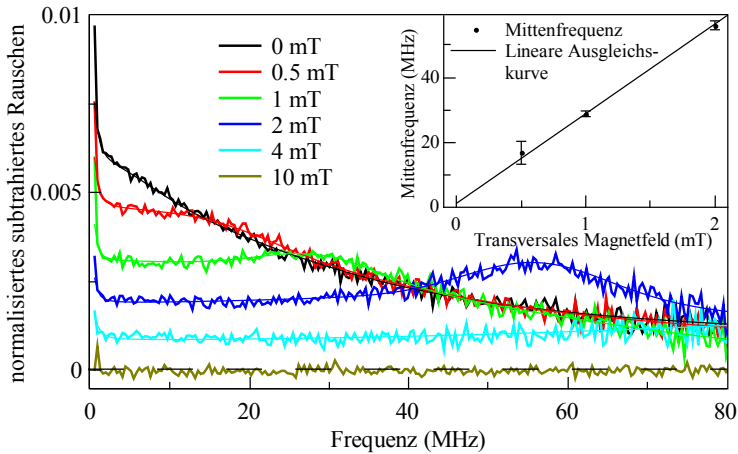


Abbildung 4.13:

Transversale Spinrauschspektren mit angepassten Lorentz- bzw. Gaußfunktionen. Der kleine eingesetzte Graph zeigt die ermittelte Larmorfrequenz.

- G^* – eine ~ 13 MHz breite Gaußfunktion.

Diese werden an die Rauschspektren angepasst.

Die Spinlebenszeit von L_1 wird aus der vollen Halbwertsbreite (FWHM, siehe Abschnitt 2.1) zu $T_1 = 1/(\pi\gamma_{\text{FWHM},1}) = 1.11 (+2.24/-1.11)$ MHz ≈ 290 ns ermittelt. Eine Problematik bei der Auswertung von schmalen Rauschbeiträgen bei 0 MHz ergibt sich aus langsamen Temperaturschwankungen im Labor, die zum Beispiel Laserdrift oder auch eine leicht geänderte Retardierung der $\lambda/2$ -Platte verursachen. Als Folge sind die Rauschspektren gerade bei niedrigen Frequenzen (≤ 500 kHz) nicht systematisch auszuwerten. Da diese Werte gelöscht werden müssen, sind die Resultate der Fitfunktionen (wie in diesem Fall die Breite) üblicherweise mit sehr großen Fehlerbalken behaftet.

In Abschnitt 2.1 wurde erläutert, dass unterschiedliche Funktionen im Fourierspektrum um den aperiodischen Grenzfall zu erwarten sind. Beim Anpassen der Lorentzfunktion L_2 an die Spektren mit endlichem Magnetfeld entstehen Probleme, weil die hier erwarteten Larmorfrequen-

4 Spindynamik in Zinkoxid

zen in Größenordnungen der halben Relaxationsrate von L_2 (gemessen bei 0 mT) und damit genau beim aperiodischen Grenzfall liegen. Näherungsweise kann zwar eine Lorentzfunktion angepasst werden, allerdings stimmen die ermittelten Rauschleistungen beziehungsweise Relaxationsraten keinesfalls mit der intrinsischen Spindynamik überein. Für die folgenden Messungen werden daher – sofern nicht anders angegeben – die Rauschleistungen sowie Spinrelaxationsraten bei 0 mT ermittelt. Die homogene transversale Spinlebenszeit (Abschnitt 2.1) wird aus dem FWHM von L_2 bei 0 mT zu $T_2 = 1/(\pi 60 \text{ MHz}) \approx 5 \text{ ns}$ ermittelt.

Aus der angepassten Gaußfunktion G^* wird die inhomogene Spinlebenszeit (Abschnitt 4.3.2) zu $T_2^* = 1/(\pi 13 \text{ MHz}) \approx 24 \text{ ns}$ berechnet. Die Mittenfrequenz von G^* ist im kleinen eingesetzten Graphen in Abbildung 4.13 in Abhängigkeit des transversalen Magnetfeldes dargestellt. Sie zeigt ein deutlich lineares Verhalten. Aus einer angepassten Gerade wird der Elektronen- g^* -Faktor nach Gl. (2.25) zu $1,97 \pm 0,09$ ermittelt. Die Gerade liegt für 0 mT bei $\sim 1 \text{ MHz}$. Dies liegt daran, dass das Erdmagnetfeld mit $45 \mu\text{T}$ [34] die Spinrauschbeiträge zu $\omega_L \approx 1 \text{ MHz}$ verschiebt.

4.6.2 Longitudinales Magnetfeld

Zu Beginn dieser Arbeit (Abschnitt 2.1) wurde bereits ausführlich beschrieben, wie sich ein longitudinales Magnetfeld auf die Spindynamik auswirkt. Da keine Oszillationen gemessen werden, entstehen die Spinrauschbeiträge um 0 MHz Frequenz. Abbildung 4.14 zeigt Spinrauschspektren mit longitudinalen Feldern. In diesem Fall wurde anstelle des 10 mT-Magnetfeldes eine Messung ohne Magnetfeld (0 mT) subtrahiert. Im subtrahierten Spinrauschspektrum kann daher zwischen zwei Rauschbeiträgen unterschieden werden: longitudinale (L_1) und transversale Spinzerfälle (G^*). Ohne longitudinales Magnetfeld wechselwirken die an die Donatoren lokalisierten Elektronenspins mit dem im Donatorvolumen inhomogen verteilten Kernmagnetfeld. Diese inhomogenen Zerfälle mit der transversalen Spinlebenszeit T_2^* werden in den Spinrauschspektren als breite Gaußfunktion (breite Funktionen zu negativen Werten in Abbildung 4.14) sichtbar. Wird das Kernmagnetfeld überschritten, dann kann die Wechselwirkung zwischen Elektronenspins und Kernspins

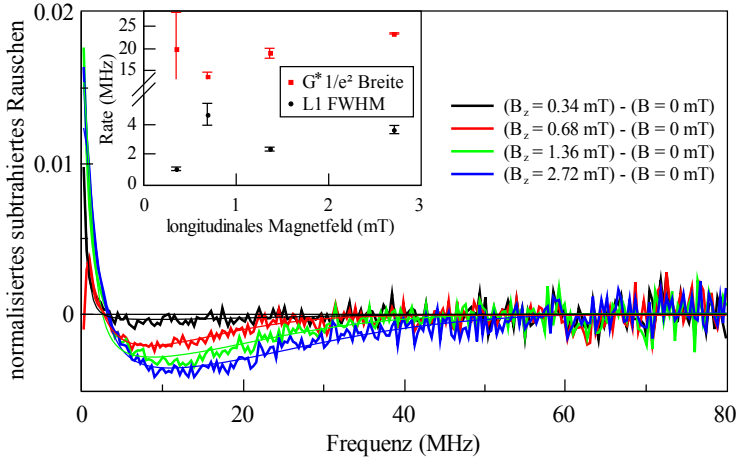


Abbildung 4.14:

Longitudinale Spinrauschspektren mit angepassten Lorentz- bzw. Gaußfunktionen. Der kleine eingesetzte Graph zeigt die ermittelten Spinrelaxationsraten.

vernachlässigt werden. Als Folge wird die longitudinale Spinlebenszeit T_1 gemessen. T_1 ist im Allgemeinen länger als T_2^* , deshalb entsteht im Spektrum eine schmalere Funktion bei 0 MHz. An die Spektren sind jeweils eine Lorentzfunktion (L_1) zu positiven und eine Gaußfunktion (G^*) zu negativen Werten angepasst. Der eingesetzte Graph zeigt die aus den angepassten Funktionen ermittelten Spinrelaxationsraten. Aus der Breite von G^* wird die Spinlebenszeit zu $T_2^* = 1/(\pi\gamma_{1/e^2}) \approx 24$ ns ermittelt. Die longitudinale Spinlebenszeit T_1 ergibt sich aus der vollen Halbwertsbreite von L_1 und wird hier zu über $T_1 = 1/(\pi\gamma_{FWHM}) > 100$ ns ermittelt. Diese Lebensdauer ist relativ kurz im Vergleich zu der in Abschnitt 4.6.1 und anderen Veröffentlichungen (z. B. [92]). Die reduzierte longitudinale Spinlebenszeit kann in diesem Fall auf ein Aufheizen der Ladungsträger durch Anregung mit dem Laserlicht zurückgeführt werden [94], da der Laser mit einer Energie von 3,359 eV nah an der Emissionslinie des donatorgebundenen Exzitons liegt und Absorption nicht mehr vernachlässigbar ist.

4.6.3 Magnetfeld in willkürlichen Richtungen

Nun, nachdem transversale und longitudinale Magnetfelder separat voneinander untersucht wurden, können die bereits getroffenen Annahmen für T_1 und G^* mit Magnetfeldern in gleichzeitig beiden Richtungen überprüft werden. In Abbildung 4.15 sind normalisierte Spinrauschspek-

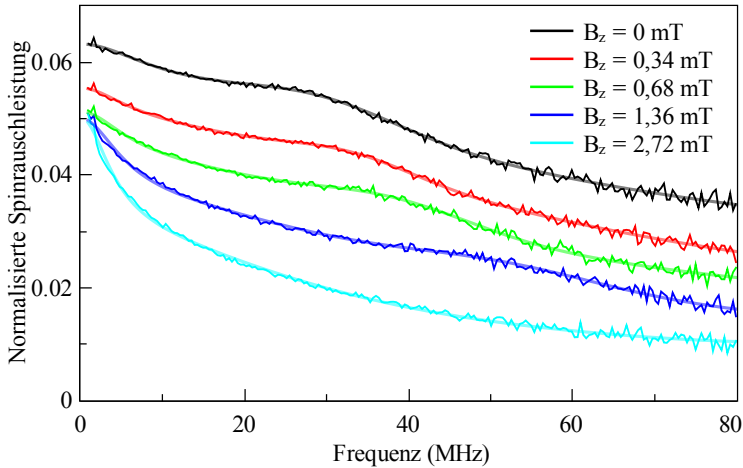


Abbildung 4.15:

Spinrauschspektren mit gleichzeitig transversalen (konstant 1 mT) und longitudinalen Magnetfeldern. Die Rauschspektren sind auf der y -Achse gegeneinander verschoben.

tren von unterschiedlichen longitudinalen Magnetfeldern mit konstantem transversalen Magnetfeld dargestellt. Mit steigendem longitudinalem Magnetfeld steigt die Larmorfrequenz von G^* , da der Betrag des gesamten Magnetfeldes zunimmt. Zusätzlich entsteht mit steigendem longitudinalem Feld bei 0 MHz eine schmale Kurve (L_1), die den longitudinalen Spinzerfällen zuzuordnen ist.

Eine Auswertung der Fitkurven ist in Abbildung 4.16 dargestellt. Die Spinrauschleistung des longitudinalen Anteils L_1 steigt an, während die Rauschleistung des transversalen Beitrags G^* abnimmt (Abb. 4.16 links, schwarz und grün). Dies stimmt mit der Schlussfolgerung, dass

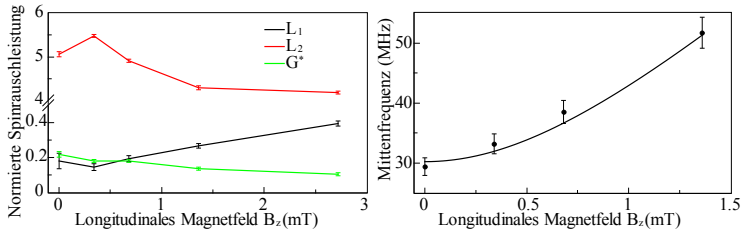


Abbildung 4.16:

Links: Aus den angepassten Funktionen ermittelte integrierte Spinrauschleistung der Beiträge L_1 , L_2 und G^* bei 1 mT transversalem und variiertem longitudinalem Magnetfeld. Rechts: Ermittelte Larmorfrequenz (Punkte) und theoretischer Verlauf (Linie).

das Kernmagnetfeld mit dem longitudinalen Magnetfeld überschritten wird, überein. Die Spinzerfälle von G^* werden also mit steigendem longitudinalem Feld in den longitudinalen Anteil L_1 umgewandelt. Das Verhalten der Rauschleistung von L_2 ist mit Hinblick auf den aperiodischen Grenzfall (siehe Abschnitt 2.1) zu erklären: Hier wird als Näherung eine Lorentzfunktion, welche diesen Fall nicht vollständig beschreibt, angenommen.

Die aus den angepassten Funktionen ermittelte Larmorfrequenz (Abb. 4.16 rechts) entspricht dem theoretischen Verlauf $\frac{\omega_L}{2\pi} = \frac{g^* \mu_B}{h} \sqrt{B_x^2 + B_z^2}$ mit $B_x = 1$ mT. Dieser folgt aus der Vektoraddition bei der Überlagerung der zueinander senkrechten Magnetfelder. Der Elektronen g^* -Faktor in ZnO ist in paralleler und senkrechter Richtung zum Magnetfeld fast gleich ($g_{\parallel} = 1,957$ und $g_{\perp} = 1,956$) [95, 96]. Daher folgt die gesamte Präzessionsfrequenz der Elektronenspins dem gesamten Betrag des Magnetfeldes.

4.6.4 Energieabhängigkeit

Analog zu den Messungen für die Transmission (Abb. 4.10) werden nun wiederholt Spinrauschspektren für unterschiedliche Laserenergiewerte aufgenommen. Die für jeden Laserenergiewert aufgenommenen Spektren werden anschließend mit der Lorentzfunktion L_2 und der Gaußfunktion

4 Spindynamik in Zinkoxid

G^* angepasst. Niedrige Frequenzen (< 1 MHz) wurden hierfür gelöscht. Die aus den Fitfunktionen ermittelten Werte sind in Abbildung 4.17

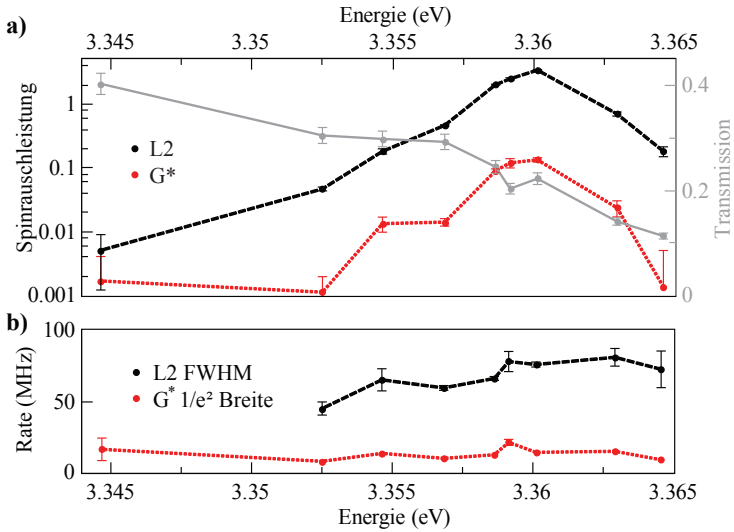


Abbildung 4.17:

Energieabhängigkeit der Spinrauschleistungen von L_2 und G^* (a) sowie deren Spinrelaxationsraten (b).

in Abhängigkeit der Laserenergie aufgetragen. Es wurden auch weitere Rauschspektren außerhalb des abgebildeten Intervalls aufgenommen. Für Energien $< 3,345$ eV reicht die Spinrauschleistung für eine Auswertung mit angepassten Funktionen und hinreichend kleinen Fehlerbalken nicht aus. Bei Energien $> 3,365$ eV wird die transmittierte Laserleistung so gering ($< 50 \mu\text{W}$), dass ein klares Unterscheiden zwischen Schrotrauschen, unbelichtetem Hintergrundrauschen (siehe Abb. 4.12) und vor allem Spinrauschen nicht mehr möglich ist.

In Abbildung 4.17 (a) ist die integrierte Spinrauschleistung der einzelnen Funktionen logarithmisch dargestellt. Die Spinrauschleistung wird mit steigender Laserenergie größer bis sie ab dem Maximum bei 3,36 eV wieder sinkt. Die logarithmische Skala legt nahe, dass die Übergänge in-

homogen verteilt sind. Weiterhin kann aus diesem Diagramm abgeleitet werden, dass für beide Spinrauschbeiträge dieselbe Ursachen zugrunde liegen. Bei 3,36 eV rekombiniert das donatorgebundene Exziton, D^0X . Da die Maxima beider Spinrauschleistungen bei genau diesem Übergang liegen, wird gefolgert, dass das D^0X für beide Spinrauschbeiträge verantwortlich ist. Die Rauschleistungen unterscheiden sich um einen Faktor 10 in der Amplitude, d. h. $R(L_2)/R(G^*) = 10/1$.

Die Spinrelaxationsrate (Abb. 4.17 (b)) von G^* bleibt für alle Energiewerte näherungsweise konstant, während die von L_2 mit steigender Laserenergie zunimmt. Hieraus kann abgeleitet werden, dass L_2 durchaus Anregungseffekten unterliegt (z. B. Aufheizen der Störstellen oder der Elektronen), welche für G^* aufgrund der Lokalisierung an den Donatoren nicht ins Gewicht fallen. Die kleinste hier ermittelte Spinrelaxationszeit beträgt $\tau = 1/(\pi 81 \text{ MHz}) \approx 4 \text{ ns}$.

4.6.5 Intensitätsabhängigkeit

Die Anregungseffekte werden nun durch Variieren der Laserintensität überprüft. In Abbildung 4.18 ist die Auswertung der Spinrauschspektren in Abhängigkeit verschiedener Laserleistungen bei $E = 3,3566 \text{ eV}$ dargestellt. Mit steigender Laserleistung steigt die Spinrauschleistung von L_2 (schwarz) an, während die von G^* (rot) konstant bleibt. Dies ist auf die Relaxationsraten zurückzuführen: diese steigt für L_2 , aber nicht für G^* . L_2 beschreibt homogene Spinzerfälle, die durch Heizen des Halbleiters häufiger auftreten. Die inhomogene Spindynamik G^* der lokalisierten Donatoren bleibt jedoch unverändert.

Bei der hohen Laserleistung (9,2 mW) scheint die ermittelte Spinrauschleistung für L_2 wieder zu sinken. Dies stellt sich aber als Messartefakt heraus: Bei den hier immer weiter steigenden Spinrelaxationsraten ($> 120 \text{ MHz}$) darf das für die Subtraktion des Hintergrundrauschens aufgenommene Rauschspektrum mit dem Spinrauschbeitrag bei $\frac{\omega_L}{2\pi} = 274 \text{ MHz}$ nicht vernachlässigt werden. Von einer weiteren Steigerung der Spinrelaxationsrate und damit auch der integrierten Spinrauschleistung ist also auszugehen. Leider sind viel größere Magnetfelder als 10 mT in diesem Aufbau aus technischen Gründen nicht möglich⁶.

⁶Die an den Spulen umgesetzte Leistung steigt quadratisch mit dem Magnetfeld

4 Spindynamik in Zinkoxid

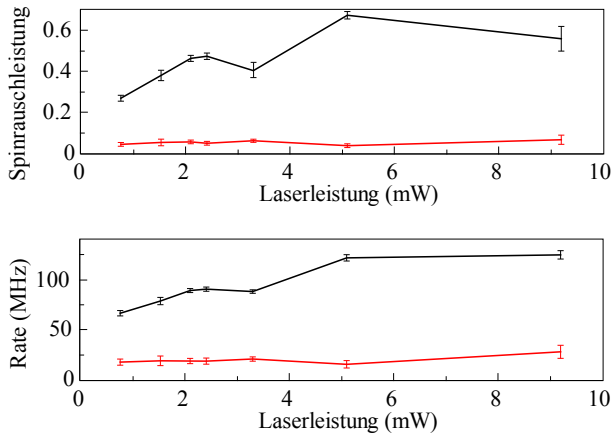


Abbildung 4.18:

Fitparameter von L_2 (schwarz) und G^* (rot). Oben sind die integrierten Spinrauschleistungen und unten deren Spinrelaxationsraten dargestellt.

4.6.6 Temperaturabhängigkeit

Die Auswertung der Temperaturabhängigkeit ist in Abbildung 4.19 dargestellt. Spinrauschspektren konnten bis zu 80 K gemessen werden. Die Fehlerbalken sind allerdings schon bei dieser Temperatur extrem groß; Bei noch höheren Temperaturen ≥ 100 K konnten Spinrauschbeiträge zwar erahnt, aber nicht mehr ausgewertet werden. Dies liegt daran, dass die Donatoren ionisieren und die Spinlebenszeit stark abnimmt. Bei 100 K entsteht außerdem ein spektraler Überlapp der donatorgebundenen Exzitonen mit den freien Exzitonen. Dieser Überlapp sorgt für eine verstärkte Absorption des Laserstrahls, dessen Energie hier konstant $E = 3,3546$ eV beträgt. Dieser Trend ist auch aus der integrierten

(Leistung $P = I^2/R$, mit Strom I und Spulenwiderstand R). Bei 10 mT ist bereits trotz Wasserkühlung ein spürbares Aufheizen der Spulen zu vernehmen. Für höhere Magnetfelder notwendige Ströme führen zu weiterem aufheizen, wodurch sich wiederum der Leitungswiderstand erhöht. Schlussendlich schmilzt die Isolation zwischen den Spulenwindungen.

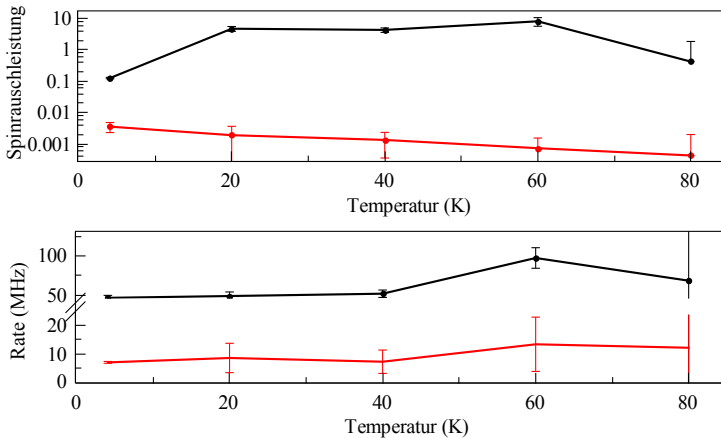


Abbildung 4.19:

Temperaturabhängigkeit der Spinrauschleistungen sowie Spinrelaxationsraten von L_2 (schwarz) und G^* (rot).

Spinrauschleistung abzusehen: während die Spinrauschleistung von L_2 mit steigender Temperatur zunimmt, nimmt die von G^* ab. Das Absinken der Spinrauschleistung von L_2 bei 80 K wird wie im vorigen Abschnitt mit der Überlagerung der Rauschkurve bei 274 MHz erklärt.

4.7 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden zunächst die in ZnO relevanten Störstellen erläutert. Diese scheinen nicht nur für die Exzitonendynamik, sondern auch für die Spindynamik lokalisierter Donatoren in nanoporösem ZnO eine sehr wichtige Rolle zu spielen. Erstmals konnten die durch die Elektronenspins hervorgerufenen Faradayrotationsschwankungen im UV-Bereich aufgenommen und spektral ausgewertet werden. Hierüber werden sehr genaue Analysen des Halbleiters ZnO möglich. Das Anwenden von Magnetfeldern in transversaler Geometrie ermöglicht die Unterscheidung zwischen transversalen und longitudinalen Spinrelaxationsmechanismen.

4 Spindynamik in Zinkoxid

Insgesamt wurden die Spinlebenszeiten dreier Spinrauschbeiträge ermittelt:

- L_1 mit der homogenen longitudinalen Spinlebenszeit $T_1 \approx 290$ ns,
- L_2 mit der homogenen transversalen Spinlebenszeit $T_2 \approx 5$ ns und
- G^* mit der inhomogenen transversalen Spinlebenszeit $T_2^* \approx 24$ ns.

Mit longitudinalen Magnetfeldern konnten die Annahmen für die transversalen und longitudinalen Spinlebenszeiten bestätigt werden. Die Energieabhängigkeit offenbart die spektrale Herkunft der Spinrauschbeiträge, die sich als identisch für G^* und L_2 herausstellt. Ein Ladungsträgerheizen von L_2 konnte mit der Intensitätsabhängigkeit bestätigt werden. Die Temperaturabhängigkeit zeigt, dass Spinrauschen in ZnO auch bei 80 K noch gemessen werden kann. Bei höheren Temperaturen ionisieren die Donatoren, sodass von Spinrauschmessungen lokalisierter Donatoren in ZnO nicht mehr möglich sind und mit der hier genutzten Detektionsbandbreite von 80 MHz kein Spinrauschen mehr messbar ist.

5 Zinkoxid- Nanostrukturen

In diesem Kapitel werden zeitaufgelöste Photolumineszenzmessungen an einer ZnO-Vielfachquantenfilm-Nanosäulenprobe vorgestellt. In Abschnitt 5.1 wird zunächst die Probenstruktur beschrieben. Um abzuschätzen, welche Rekombinationen in einem Quantenfilm (QW, englisch: **Quantum Well**) möglich sind, werden aus den möglichen Eigenzuständen die Eigenenergien berechnet. Anschließend wird der genaue experimentelle Aufbau erläutert (Abschnitt 5.2). In Abschnitt 5.3 werden zeitlich integrierte PL-Spektren in Abhängigkeit der Anregungsleistung analysiert. Im Vergleich zur ZnO-Probe aus Abschnitt 4.4.3 werden zusätzliche PL-Linien erläutert. Anschließend wird deren Exzitonendynamik und die damit verbundenen möglichen Relaxationsmechanismen in Abschnitt 5.4 erläutert. Anhand temperaturabhängiger Messungen wird die Lokalisierungsenergie der Quantenfilmexzitonen abgeschätzt (Abschnitt 5.5). Nachdem polarisationsaufgelöste Messungen zur weiteren Charakterisierung analysiert wurden (Abschnitt 5.6), wird das Kapitel in Abschnitt 5.7 zusammengefasst.

5 Zinkoxid-Nanostrukturen

5.1 Probe

In Abbildung 5.1 ist exemplarisch die Probenstruktur dargestellt. Die

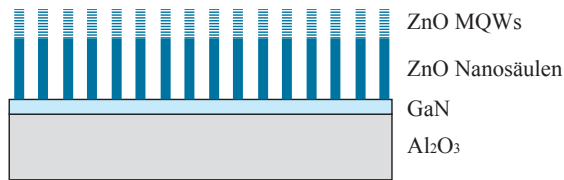


Abbildung 5.1:

Schematische Darstellung der MQW-Nanosäulenprobe. Auf dem oberen Ende der Nanosäulen befindet sich eine MQW-Struktur, welche aus 10 einzelnen QW besteht.

im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Mehrfachquantenfilmproben ähneln stark denjenigen aus [97, 98] und wurden von M. M. Al-Suleiman hergestellt. Als Substrat dient ein Saphir-Einkristall (Al_2O_3). Im Unterschied zu den in [97, 98, 99] verwendeten Proben wird hier zwischen den Nanosäulen und dem Al_2O_3 eine Galliumnitrid (GaN) Pufferschicht verwendet. Auf das GaN wurden einkristalline ZnO -Säulen mit mehreren 100 nm Durchmesser vertikal mit Gasphasenepitaxie [100] aufgewachsen. Die nun folgenden Wachstumsschritte wurden mit der Molekularphasenepitaxie [100] durchgeführt. Auf dem oberen Ende der Nanosäulen befindet sich zunächst eine 50 nm dicke $\text{Zn}_{0,9}\text{Mg}_{0,1}\text{O}$ -Schicht. Darauf wurden abwechselnd 10 ZnO QW mit 4 nm Dicke und 9 $\text{Zn}_{0,9}\text{Mg}_{0,1}\text{O}$ -Barrieren mit 7 nm Dicke gewachsen. Abschließend befindet sich eine weitere 50 nm dicke $\text{Zn}_{0,9}\text{Mg}_{0,1}\text{O}$ -Schicht auf den Säulen. Diese Parameter gelten für die Probe MB381, die in diesem Abschnitt ausführlich untersucht wird. Kurze Zusammenfassungen weiterer untersuchter Proben dieses Typs mit geänderter Quantenfilmdicke (1,9 und 3 nm) sowie geänderter Mg-Konzentration (17%) sind in Anhang D zu finden.

5.1.1 Quantisierungsenergie

Die Bandlücke von $\text{Zn}_{0,9}\text{Mg}_{0,1}\text{O}$ ist ~ 200 meV größer als die von ZnO [101, 102]. Aus der räumlichen Einschränkung der Elektronenwellenfunktion in z -Richtung entsteht die Quantisierungsenergie. In Abbildung

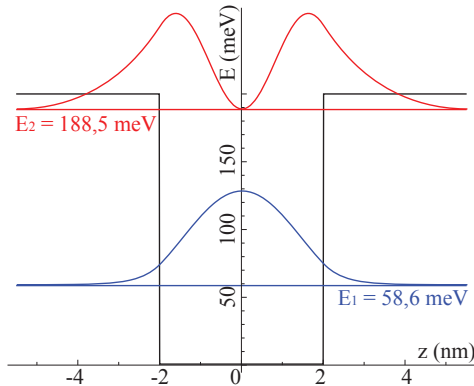


Abbildung 5.2:

Elektronenwellenfunktionen sowie Eigenenergien in einem $\text{ZnO}/\text{Zn}_{1-x}\text{Mg}_x\text{O}$ Quantenfilm, hier mit $x = 0,1$.

5.2 sind zwei Eigenzustände der Elektronenwellenfunktion für einen $\text{Zn}_{0,9}\text{Mg}_{0,1}\text{O}$ -QW dargestellt. Die schwarze Linie stellt den Potentialverlauf des QWs dar. Die 7 nm dicken Barrieren verhindern eine Überlagerung der Grundzustandswellenfunktionen benachbarter QW. Da die Mehrfachquantenfilmmmission ausgeschlossen wird, reicht die Berechnung der Eigenwerte nur eines QWs. Das Verhältnis zwischen Valenzband- und Leitungsbandverschiebung zwischen ZnO und $\text{Zn}_{1-x}\text{Mg}_x\text{O}$ entspricht etwa $\frac{\Delta E_V}{\Delta E_C} = \frac{1}{9}$ [97]. Da die Verschiebung des Valenzbandes im Vergleich zur Leitungsbandverschiebung vernachlässigbar klein ist, reicht die Betrachtung der Elektronenwellenfunktion zur Abschätzung der Exzitonenrekombinationsenergie. Der Grundzustand $E_{n=1}$ befindet sich 59 meV oberhalb des Leitungsbandminimums von ZnO . Die nächst höhere Eigenenergie $E_{n=2}$ liegt ~ 130 meV höher. Der QW-Grundzustand und der nächst höhere Zustand im QW liegen also weiter auseinander als

5 Zinkoxid-Nanostrukturen

der Abstand vom freien Exziton außerhalb der QW zum Grundzustand im QW.

5.2 Aufbau

Zur Messung der oben beschriebenen Probe wird der in Abbildung 5.3 dargestellte Aufbau verwendet. Er gleicht stark dem Aufbau aus Ab-

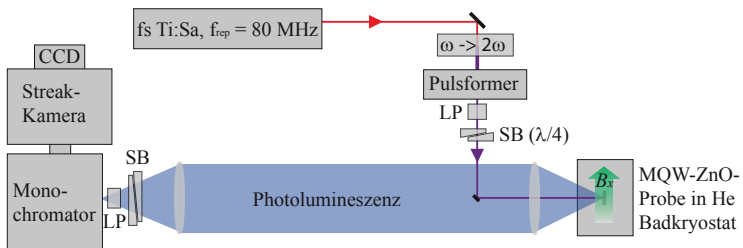


Abbildung 5.3:

Aufbau zur zeitaufgelösten PL- sowie Polarisationspektroskopie. Details siehe Text.

schnitt 4.4.2, beinhaltet aber wesentliche Unterschiede. Zunächst wird nun die Wellenlänge variiert, um beispielsweise einen hohen Spinpolarisationsgrad erzeugen zu können (siehe hierzu [103]). Damit letzteres möglich wird, befinden sich im neuen Aufbau in Propagationsrichtung des Laserstrahls hinter dem Pulsformer ein Linearpolarisator (LP) sowie ein auf $\lambda/4$ Retardierung gestellter Soleil-Babinet-Kompensator (SB) [104]. So wird eine zirkulare Polarisation erreicht, mit der nun im ZnO aufgrund der optischen Auswahlregeln eine Spinpolarisation erzeugt wird. Die PL der Probe wird mit einer Linse aufgesammelt und auf den Monochromator fokussiert. Auf diesem Weg sind wieder ein Soleil-Babinet-Kompensator und ein Linearpolarisator platziert. Durch das abwechselnde Verstellen der Retardierung des Soleil-Babinet-Kompensators von $\lambda/4$ auf $3\lambda/4$ werden Messungen von links- (I_-) und rechtszirkularem Licht (I_+) realisiert. Der Polarisationsgrad η ergibt sich aus der Differenz der beiden Intensitäten I_+ und I_- , welche mit der Gesamtintensität

$I_+ + I_-$ normalisiert wird:

$$\eta = \frac{I_+ - I_-}{I_+ + I_-}. \quad (5.1)$$

5.3 Intensitätsabhängigkeit

Zunächst werden zeitlich integrierte Spektren betrachtet um die Unterschiede zu den Messungen an der nanoporösen Probe aus Abschnitt 4.4.2 kenntlich machen zu können. Um die PL-Linien sicher identifizieren zu können wird die Laserleistung variiert. In Abbildung 5.4 sind auf die Leistung des Anregungslasers normierte PL-Spektren dargestellt. Das Oberflächenexziton (englisch: surface exciton, SX [87, 105, 106]) bei

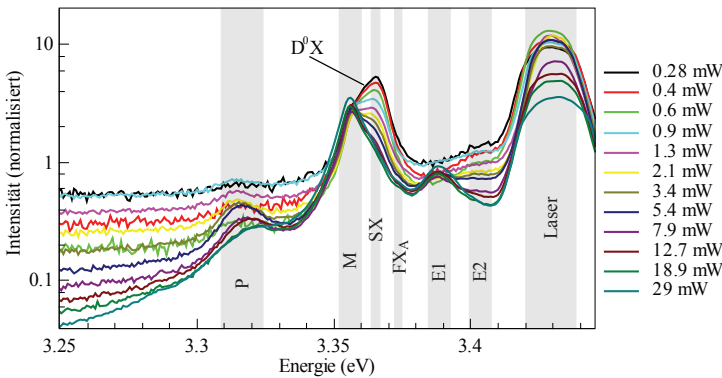


Abbildung 5.4:

Zeitlich integrierte PL-Spektren in Abhängigkeit der Leistung des Anregungslasers bei $T = 35$ K.

3,366 eV entsteht bei ZnO-Nanosäulen aufgrund des hohen Oberflächen-zu-Volumen-Verhältnisses [107]. Bei moderaten Anregungsleistungen entsteht bei 3,357 eV das Biexziton, hier M genannt [108, 109]. Das donatorgebundene Exziton D^0X bei 3,36 eV ist aufgrund des spektralen Überlapps mit dem SX bei geringer Intensität und zusätzlich mit dem M bei hoher Anregungsleistung nur schwer zu erkennen. Eine weitere

5 Zinkoxid-Nanostrukturen

strahlende Rekombination ist bei 3,315 eV zu sehen (hier mit P markiert), welche aufgrund der hohen Anregungsdichte des Laserstrahls auf inelastisch streuende Exzitonen zurückzuführen ist [110]. Während der Streuung zweier freier Exzitonen wird eines in einen höheren Zustand ($n = 2, 3, \dots, \infty$) überführt, während das andere Exziton bei entsprechend niedrigerer Energie rekombiniert. Die hierfür typischen Energien liegen zwischen 3,308 eV und 3,328 eV. Das Entstehen dieser Linie ist direkt verknüpft mit der Entstehung eines Elektron-Loch-Plasmas jenseits der Mott-Dichte (siehe hierzu z. B. [25, 49]). Die spektrale Bandbreite des Laserstrahls beträgt in dieser Messung konstant 19 meV, was auch in den hier gezeigten Spektren gut zu erkennen ist.

Zwischen dem Oberflächenexziton (SX) und der Laserlinie (hier bei 3,43 eV) liegen im Vergleich zu einfachen Nanosäulen zusätzliche Linien. Diese zwei Emissionen bei 3,39 eV und 3,4 eV sind mit QW E1 und QW E2 markiert und können nur aus den QW kommen, denn sie befinden sich bei höheren Energien als das freie Exziton FX_A (3,373 eV). Aus der Berechnung der Quantisierungsenergien (Abschnitt 5.1.1) folgt, dass E1 sowie E2 beides Grundzustände der Elektronenwellenfunktionen in den QW sind: Der spektrale Abstand zwischen E1 und E2 ist kleiner (~ 15 meV) als der Abstand zwischen E1 und dem FX_A (~ 18 meV). Daher besitzt E2 keine höhere Quantenzahl als E1 und deshalb sind beide Emissionen sind Exzitonenrekombinationen unterschiedlicher Grundzustände.

5.4 Exzitonendynamik

In Abbildung 5.5 ist ein typisches mit der Schmierbildkamera (englisch: streak camera) aufgenommenes zeitlich aufgelöstes PL-Spektrum von Probe MB381 dargestellt. Die beschrifteten Rekombinationen sind mit deren Energien in Tab. 5.1 aufgelistet. Alle Rekombinationen bis auf Emission 1 bis 3 sind bereits in anderen Veröffentlichungen eingehend untersucht worden [107, 111, 49]. Die 1LO und 2LO sind longitudinal optische (LO) Phononenreplika der stärksten Emissionen M, D^0X , SX sowie FX_A . Diese Emissionslinien stimmen mit denen anderer Veröffentlichungen überein und besitzen einen für die Replika charakteristischen Energieabstand von 72 meV zueinander sowie zwischen dem 1LO zu dem

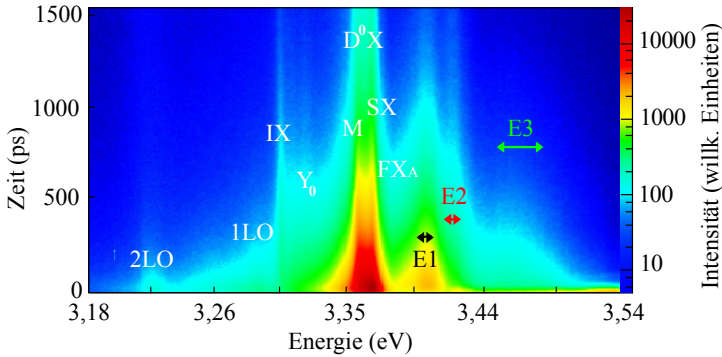


Abbildung 5.5:

Zeitaufgelöstes PL-Spektrum von ZnO-MQW-Nanosäulen bei 2 K. Die Farbskala repräsentiert die PL-Intensität.

D^0X [85]. Die IX-Linie (Indirektes Exziton) entsteht aus der Rekombination des in der Nanosäule räumlich aufgespannten Exzitons: das Valenzband sowie Leitungsband sind vom Vakuum zum Säulenzentrum hin aufgrund des – im Vergleich zur Fermienergie – hohen Vakuumniveaus nach unten gekrümmt. Die vom Laserstrahl erzeugten Löcher wandern aufgrund niedrigerer potentiellen Energie zur Säulenwand während die Elektronen in Richtung Säulenmitte propagieren. Die indirekte Rekombination dieser Elektronen und Löcher liegt bei der niedrigeren Energie (hier 3,305 eV, siehe auch [112]). Das Y_0 -Exziton ist eine Störstellenrekombination und wurde in [85] detailliert untersucht. Nun wird die Dynamik zusätzlichen Emissionen genauer analysiert.

Der zeitliche Verlauf der in Abbildung 5.5 farblich markierten Emissionen E1 (schwarz), E2 (rot) und E3 (grün) ist in Abbildung 5.6 dargestellt. Wie in der Abbildung zu erkennen ist, können die Emissionen mit einem exponentiellen Zerfall angepasst werden. Hieraus wird die strahlende Lebensdauer jeweils zu 255 ps für E1, 286 ps für E2 und 301 ps für E3 ermittelt. Bei $t = 0$ fällt E3 sehr schnell ab ($\tau = 22$ ps) während E1 mit fast derselben Zeitkonstante ($\tau = 27$ ps) ansteigt. Dies ist die Zeit, die die Ladungsträger brauchen, um von den Barrieren zu den Quantenpunkten

5 Zinkoxid-Nanostrukturen

Emission	Beschreibung	Energie (eV)
2LO	Zweite Phononenreplika	3,217
1LO	Erste Phononenreplika	3,289
IX	Indirektes Exziton	3,305
Y_0	Störstellenrekombination	3,333
M	Biexziton	3,357
D^0X	Donatorgebundenes Exziton	3,362
SX	Oberflächenexziton	3,366
FX_A	Freie A- und B-Exzitonen	3,374
Emission 1	QW-Emission 1	3,400
Emission 2	QW-Emission 2	3,418
Emission 3	Barrierenemission	3,459
Barriere mit 10 % Mg	(berechnet, nicht sichtbar)	3,55

Tabelle 5.1: Rekombinationen und Energien der verschiedenen PL-Linien

zu diffundieren. Die kleine Abweichung zwischen Zerfalls- und Einfangszeit wird auf die Störstellenstreuung von Exzitonen zurückgeführt [99]. Damit kann die Emission E3 den $Zn_{0,9}Mg_{0,1}O$ Barrieren zugewiesen werden. Die relativ niedrige Energie der langlebigen Barrierenemission im Vergleich zu anderen Veröffentlichungen [102] kann auf Defekte im $ZnMgO$ -Gitter zurückgeführt werden und ist durchaus ein üblicher Wert für diese Mg-Konzentration [113]. Diese Defekte erklären auch die relativ lange Lebensdauer von 301 ps von E3 für den zweiten exponentiellen Zerfall mit geringer Lichtintensität: hier rekombinieren in den Barrieren lokalisierte Exzitonen, die in den Barrieren in Störstellen gefangen sind und nicht herausdiffundieren.

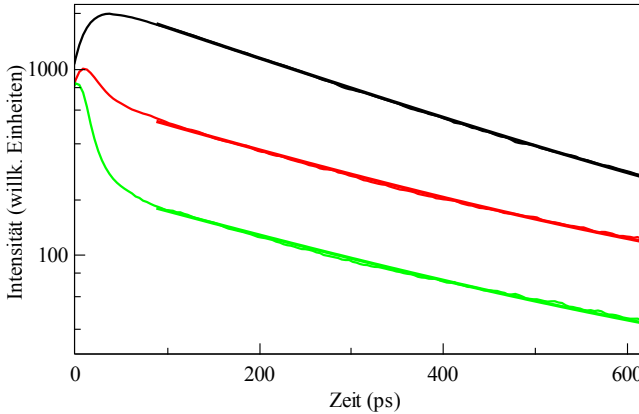


Abbildung 5.6:

Zeitlicher Verlauf der Linien E1 (schwarz), E2 (rot) und E3 (grün).

5.5 Temperaturabhängigkeit

In Abbildung 5.7 sind zeitlich integrierte PL-Spektren der Probe für Temperaturen von 2 – 300 K dargestellt. Mit steigender Temperatur verschieben die QW-Emissionslinien E1 und E2 zu niedrigeren Energien. Dasselbe Verhalten zeigt auch E3, allerdings verschwindet diese Emission bei Raumtemperatur nahezu vollständig. Dies liegt daran, dass bei Raumtemperatur eine höhere Ladungsträgerdiffusion zu niedrigeren Energien stattfindet. Bei Raumtemperatur ist immer noch eine QW-PL zu sehen, welche wesentlich höher als die PL der freien Exzitonen sowie derer LO-Phononenreplika sind. Nun kann entlang der eingezeichneten Linien für E1 (schwarz), E2 (rot) und E3 (grün) die Exzitonendynamik betrachtet werden.

Die strahlenden Lebenszeiten der Emissionen 1 bis 3 sind in Abbildung 5.8 in Abhängigkeit der Temperatur logarithmisch dargestellt. Bei $T = 2$ K wurden die Lebenszeiten E1, E2 und E3 bereits in Abschnitt 5.4 (Abb. 5.6) zu $\tau_{exc} = 255$ ps, 286 ps und 301 ps gemessen. Nach derselben Methode werden nun für verschiedene Temperaturen die strahlenden Le-

5 Zinkoxid-Nanostrukturen

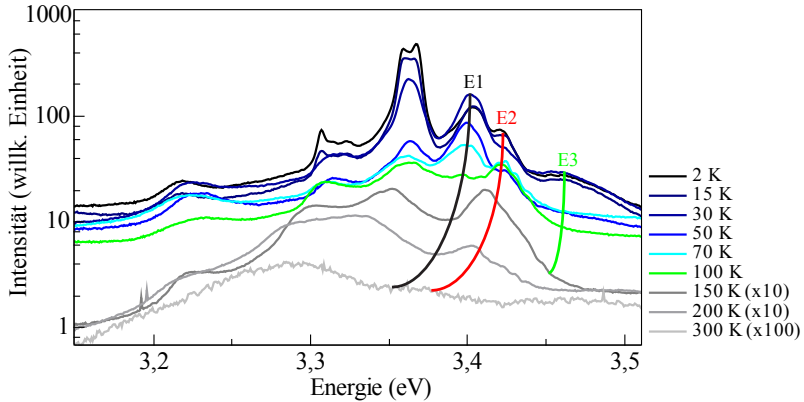


Abbildung 5.7:

Zeitlich integrierte PL-Spektren in Abhängigkeit der Temperatur bei einer Laserenergie von 3,542 eV und 1,5 mW Leistung.

benszeiten ermittelt. Mit steigender Temperatur ist ein leichter Anstieg der strahlenden Lebensdauern zu sehen. Dies wird mit einer Erhöhung der Ladungsträgerdiffusion und damit einhergehendem schwächerem Elektronen-Loch-Überlapp in den QW erklärt. Bei 15 K beginnt zunächst die E2 Lebensdauer zu sinken. Die Exzitonen diffundieren von den dünneren QW an den radialen Wänden der Nanosäulen in den QW auf dem oberen Ende um bei geringerer Energie zu rekombinieren. Diese Annahme wird mit der – im Vergleich mit E1 – schwachen PL zwischen 30 K und 50 K in den Spektren Abbildung 5.7 bestätigt.

Das rapide Absinken der strahlenden Lebensdauer von E3 ab 30 K wird mit der thermischen Anregung, beziehungsweise Ionisierung der Störstellen im ZnMgO erklärt (vergleiche Abschnitt 4.2.1). Dies stimmt überein mit dem starken Absinken der PL-Intensität ab 30 K in Abbildung 5.7. Da nun zusätzliche freie Ladungsträger in den Barrieren vorhanden sind, streuen diese vermehrt und sorgen so für eine reduzierte strahlende Rekombination von E3. Die Ladungsträger aus den Barrieren werden in den QW eingefangen, daher steigt gleichzeitig die PL-Intensität von E2 – das Grundniveau von E1 ist bei dieser Anregungsleistung offenbar

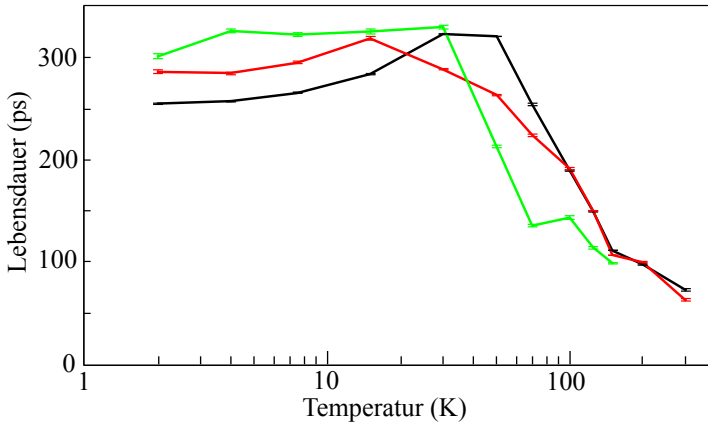


Abbildung 5.8:

Temperaturabhängigkeit der strahlenden Lebenszeiten von Emissionen E1 (schwarz), E2 (rot) und E3 (grün).

bereits gefüllt (siehe Abschnitt 5.3).

Ab 50 K wird die Ladungsträgerdichte auch in den breiteren QW auf dem oberen Ende der Nanosäulen so groß, dass auch hier die strahlende Rekombination sinkt. Die große Dichte sorgt dafür, dass Exzitonen nicht mehr nur auf dem oberen Ende, sondern auch in den radialen QW an den Rändern der Nanosäulen rekombinieren. Dies erklärt das Absinken der PL von E1 bei 70 K sowie das gleichzeitige relative Ansteigen der PL von E2 ab 100 K. Ab dieser Temperatur weisen E1 und E2 dieselben Lebenszeiten auf, was die Annahme der großen Ladungsträgerdichte in beiden QW abermals bestätigt.

Für weiter steigende Temperaturen gilt die Haynesche Regel zur Verschiebung der Bandlücke [114]. Die Energie der QW-PL wandert deswegen parallel zur FX_A -PL zu niedrigeren Energien. Gleichzeitig sorgt eine vermehrte Streuung der Exzitonen an Störstellen, beziehungsweise Phononen, für eine gesteigerte nichtstrahlende Rekombinationsrate.

Als Folge sinkt die strahlende Rekombination der gesamten PL. Die strahlende Lebensdauer von 65 ps bei Raumtemperatur ist vergleichbar mit der PL anderer Nanosäulen- sowie Nanoröhrchenproben [112].

5.6 Polarisationsinformation

Aufgrund der optischen Auswahlregeln kann mit zirkularem Licht in ZnO eine Spinpolarisation erzeugt werden [3, 115, 21]. Je nach Laserenergie [116] und Magnetfeld [117] wurden bisher in ZnO Spinpolarisationen von wenigen % bis zu maximal 20 % erzeugt. In diesem Abschnitt wird mit dem zeitaufgelösten Aufbau aus Abbildung 5.3 und dem anschließendem Anwenden der Formel (5.1) auf die Messdaten die spektrale Polarisationsinformation ermittelt.

Zunächst wird überprüft, wie sich der Polarisationsgrad der donatorgebundenen Exzitonen D^0X in Abhängigkeit der Laserenergie verhält. Vergleichbare Untersuchungen an einer ZnO-Dünnschichtprobe sowie einer ZnO-Volumenprobe sind bereits in Referenz [103] zu finden. Der D^0X Polarisationsgrad der in diesem Kapitel beschriebenen Probe MB381 ist in Abbildung 5.9 dargestellt. Die Fehlerbalken parallel zur Energieskala stellen hier die spektrale Breite des Lasers dar. Der höchste bei dieser MQW-Probe erreichte Polarisationsgrad der donatorgebundenen Exzitonen beträgt bei nahezu resonanter Anregung 7,5 %. Limitierend wirkt hier die im Vergleich zu [103] große spektrale Breite des Lasers (≥ 5 meV), die im experimentellen Aufbau mit dem Pulsformer nicht weiter reduziert werden konnte. Bei geringfügig höherer Laserenergie (3,375 meV) wird ein negativer Polarisationsgrad erzeugt. Eine mögliche Erklärung für diese negative Polarisation ist folgende [103]: Es wird ein B-Exziton erzeugt, welches ein akustisches Phonon emittiert um dann als A-Exziton (D^0X_A) zu rekombinieren. Die Entstehung des akustischen Phonons wird kompensiert, indem sich der Orbit des Exzitons ändert, ohne dass dabei der Spin beeinflusst wird. Als Folge wird die Polarisation der D^0X -PL negativ. Für steigende Laserenergie nähert sich der Polarisationsgrad der 0 %-Marke an und endet mit 2 % bei 3,57 eV. Die Messdaten aus [103] wurden demnach zumindest qualitativ reproduziert. Im Folgenden wird nun untersucht, wie sich der Polarisationsgrad der verschiedenen Emissionen bei fester Anregungsenergie verhält.

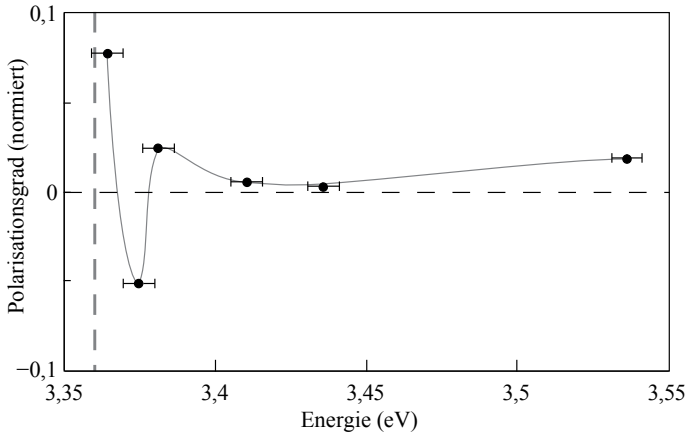


Abbildung 5.9:

Polarisationsgrad des donatorgebundenen Exzitons in Abhängigkeit der Laserenergie. Die senkrechte graue Linie symbolisiert die Position des D^0X , an dem der Polarisationsgrad gemessen wurde. Die durchgezogene graue Linie hilft zur Erkennung des Verlaufs.

Die zeitaufgelöste PL sowie deren Polarisationsgrad ist in Abbildung 5.10 dargestellt. Für die PL-Intensität (rechte Skala oberes Bild) wird eine logarithmische Skala gewählt, während für den Polarisationsgrad (rechte Skala unteres Bild) eine lineare Skala (von -10 bis $+10\%$) dargestellt ist. Die zwei Abbildungen werden nun in Abhängigkeit der Energie gleichzeitig beschrieben. In den Bereichen, in denen keine Intensität gemessen wird (oberes Bild in Abbildung 5.10, tiefblaue Bereiche), ist das Polarisationsignal (unteres Bild, gleiche Bereiche) stark verrauscht. Dieses Polarisationsrauschen folgt aus der Anwendung von Formel (5.1) bei der Division durch die summierten Messdaten (z. B. $1/1 = 100\%$ oder $-1/1 = -100\%$).

Der Laserpuls (oberes Bild) bei $3,445$ eV besitzt hier eine spektrale Breite von etwa 10 meV und dauert daher nur etwa 1 ps [118]. Aufgrund der zeitlich begrenzten Auflösung der Streakkamera von ~ 3 ps und einer bei der Auswertung zusätzlich verwendeten Driftkorrektur für die

5 Zinkoxid-Nanostrukturen

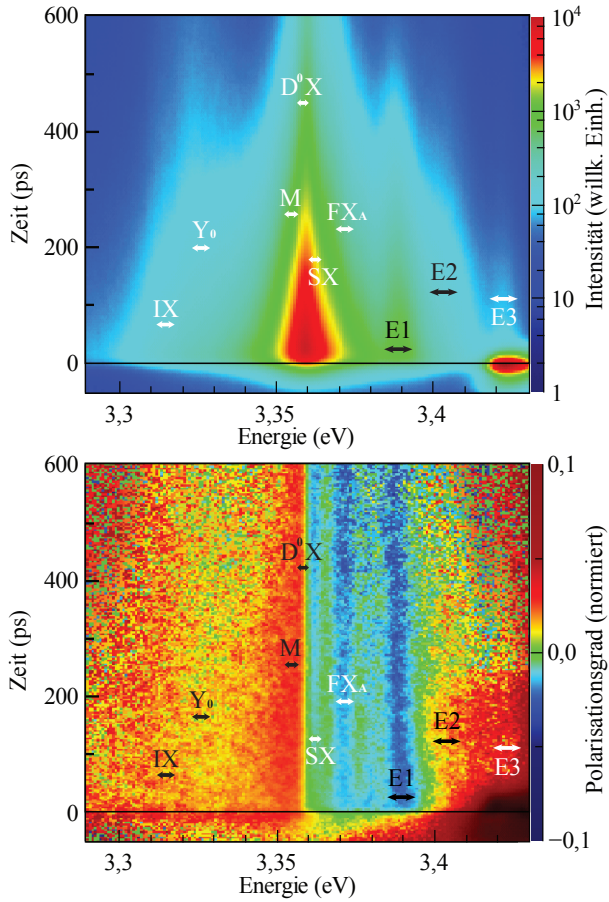


Abbildung 5.10:

Intensitätsverhalten (oben) und Polarisationsgrad (unten) bei einer Anregungsleistung von 18,3 mW und $T = 30$ K

Zeitskala verlängert sich die gemessene Pulsdauer beim Integrieren auf 11 ps. Obwohl der Laserpuls rechnerisch nach 100 ps auf einen nicht messbaren Wert abgefallen ist¹, werden in diesem Bereich (oberes Bild) bei selbiger Energie noch Photonen gemessen. Diese werden demnach von der Probe emittiert. Bei 3,445 eV liegt die PL der Barrierenemission. Folglich werden in der gesamten Probe (einschließlich Barrieren) Exzitonen erzeugt. Im unteren Bild besitzt der stark gestreute Rückreflex des Laserpulses einen Polarisationsgrad von $> 50\%$ (dunkelrot, nicht auf der Skala dargestellt). Wegen eines Speicherüberlaufes beim Integrieren von Streakbildern weicht er von 100% ab. Außer dem Laserpuls befindet sich der Polarisationsgrad in der gesamten Messung der von der Probe ausgesendeten PL im einstelligen Prozentbereich. Die Barrieren-PL bei der Laserenergie liegt beispielsweise bei etwa 3% . Die QW-Emission E2 bei 3,405 eV liegt bei 2% ; Nach dem Verschwinden der Barrierenemission ab etwa 200 ps ist diese Emission nahezu vollständig unpolarisiert. Die restliche Polarisierung von E2 bei kürzeren Zeiten kann also auf den spektralen Überlapp der Barrierenemission (E3) mit der QW-Emission (E2) zurückgeführt werden. E1 allerdings weist einen negativen Polarisationsgrad von konstant -2% auf. Der negative Polarisationsgrad kann analog zur negativen Polarisation des D^0X in Abbildung 5.10 mit der Erzeugung eines FX_B und anschließender Emission eines akustischen Phonons mit gleichzeitiger Drehimpulsänderung erklärt werden. Das Gleiche gilt für das freie Exziton FX_A sowie für das Oberflächenexziton SX. Die Biexzitonen emittieren mit positiver Polarisation – und damit entgegengesetzter Polarisation der freien Exzitonen. Diese entgegengesetzte Emission der Biexzitonen im Vergleich zu denen der freien Exzitonen FX_A wird durch den Biexzitonpolarisationseffekt erklärt [119].

Aus der PL-Polarisation wird auf eine Spinpolarisation der Ladungsträger geschlossen. Die Spinpolarisation scheint nicht zu zerfallen – jedenfalls bleibt sie weitaus länger erhalten als die strahlende Rekombinationsdauer. Die Spinlebenszeiten der Elektronen wurden in Abschnitt 4.6.1 zu

¹Die Intensität des gemessenen Gauß'schen Laserpulses ist nach 100 ps auf den Anteil $I/I_0 = e^{-2\left(\frac{100\text{ ps}}{11\text{ ps}}\right)^2} \approx 2 \times 10^{-72}$ der Laserintensität I_0 zum Zeitpunkt $t = 0$ abgefallen.

24 ns ermittelt und sind damit um etwa zwei Größenordnungen länger als die strahlenden Rekombinationen (~ 250 bis ~ 320 ps, siehe Abschnitt 5.4). Dies bestätigt die erzeugte Elektronenspinpolarisation.

5.7 Zusammenfassung

In diesem Abschnitt wurde die Probe MB381 beschrieben und analysiert. Die für Nanosäulen bekannten Rekombinationen wurden mit intensitätsabhängigen Messungen bestätigt. Zusätzlich wurden Quantenfilmemissionen (E1, E2 und E3) identifiziert und charakterisiert. Die Berechnung der Quantisierungsenergie zeigt, dass die Emissionen E1 und E2 Grundzustände der Elektronenwellenfunktionen sind. Eine genauere Analyse der Exzitonendynamik gibt Aufschluss über die strahlende Lebensdauer der verschiedenen Rekombinationen. Anhand der Temperaturabhängigkeit der QW-Emissionen wurden aus den strahlenden Lebenszeiten verschiedene Streumechanismen gefolgert. Die Exzitonenkonzentration befindet sich kurz unterhalb der Mott-Dichte. Da die Exzitonenkonzentration in den Quantenfilmen (QW) aufgrund der eingefangenen Barrierenexzitonen höher ist als im Volumenmaterial, streuen die Quantenfilmenexzitonen verstärkt untereinander. Die intensitätsabhängigen Messungen bestätigten diese Folgerung. Bei höherer Temperatur sind die Ladungsträger schwächer an Störstellen lokalisiert. Dies hat speziell für E3 ein Absinken und gleichzeitig einen Anstieg der E2-PL relativ zu E1 zur Folge. Kathodolumineszenzmessungen zeigen, dass die Rekombinationen der donatorgebundenen Exzitonen und die Biexzitonrekombination in räumlich getrennten Teilen eines Nanodrahtes stattfinden [109]. Tatsächlich stimmen die Linien E1 und E2 mit denen von planaren und radialen QW überein [98]. Abschließend wird daher gefolgert, dass E1 und E2 aus unterschiedlichen, räumlich getrennten, Quantenfilmdicken entstehen.

In E1 lässt sich durch die Wahl der richtigen Laserenergie ein negativer Exzitonenspolarisationsgrad erzeugen. Die daraus resultierende Spinpolarisation liegt im einstelligen Prozentbereich. Hier muss aber bedacht werden, dass sich das Wachstum guter ZnO-Proben im Vergleich zu z. B. GaAs derzeit noch in den Anfängen befindet. Dies begründet die hohen Störstellenkonzentrationen und somit die verkürzten strahlenden Exzi-

tonenrekombinationszeiten. Obwohl mit zeitaufgelöster Faradayrotation offenbar eindeutig Elektronenpräzessionsbewegungen gemessen wurden [91, 120], konnten magnetfeldabhängige Exzitonenoszillationen (d. h. Spinquantenschwebungen) an der hier untersuchten Probe nur bedingt gemessen werden (siehe Anhang D.4.2). Der Mangel an Veröffentlichungen bezüglich in der PL gemessener Elektronenspinquantenschwebungen ist ein Hinweis für ein Problem grundsätzlicher Art. Vielleicht gibt eine Untersuchung mit linear polarisiertem Anregungslicht [117] tiefere Einblicke in die Spindynamik in ZnO.

6 Zusammenfassung und Ausblick

Dieser Teil der Arbeit ist in zwei große Abschnitte gegliedert: Zunächst wird mit einer allgemeinen Zusammenfassung ein Zusammenhang der einzelnen Kapitel hergestellt. Dann werden kurze Zusammenfassungen der einzelnen Kapitel wiedergegeben. Anschließend folgt ein Ausblick für mögliche zukünftige Untersuchungen.

6.1 Zusammenfassung

Über das Verhalten der Spinlebenszeiten in Abhängigkeit der Laserverstimmung von einer optischen Resonanz kann nun klar zwischen störender und störungsfreier Spinrauschspektroskopie unterschieden werden (Kapitel 3). Darüber hinaus kann mittels Spinrauschspektroskopie bei inhomogen verbreiterten optischen Übergängen die strahlende Lebensdauer indirekt über die Spinlebenszeit ermittelt werden. In Rubidiumdampf sowie in ZnO (Kapitel 4) können verschiedene Spinlebenszeiten nicht nur ermittelt, sondern auch manipuliert werden. Eine Reduzierung der Spinlebensdauer kann beispielsweise durch resonante Anregung erzielt werden. In ZnO-Vielachquantenfilmstrukturen konnte ein Spinpolarisationsgrad mit einem gepulsten Anregungslaser zwar erzeugt, jedoch aber nicht mit Spinquantenschwebungen bei transversal angelegtem Magnetfeld nachgewiesen werden (Kapitel 5). Der Spinpolarisationsgrad des

6 Zusammenfassung und Ausblick

Donatorelektrons kann jedoch mit geänderter Energie des Anregungslasers variiert werden. All diese Erkenntnisse sind wesentliche Bestandteile zur Entwicklung des auf ZnO basierenden, spin-optronischen Quantencomputers. Nun wird die Quintessenz der vorigen drei Kapitel einzeln zusammengefasst.

Rubidium-Spinrauschen Die Spinrauschspektroskopie an Rubidiumatomen ist eine einfache Messmethode, welche weitreichendes Verständnis in ein mathematisch vollständig beschreibbares System ermöglicht. Die technischen Neuerungen zur Subtraktion des ungewollten Hintergrundrauschens (Abschnitte 3.1.1 und 3.1.2) werden bereits angewendet [15, 16]. Die Berechnungen aus Abschnitt 3.2.2 zeigen bemerkenswert gute Übereinstimmungen mit den Messungen (Abschnitt 3.3), vor allem da kein freier Parameter in den Rechnungen zugelassen ist. In einem auf optischen Blochgleichungen basierenden Modell werden alle erlaubten Kohärenzen zwischen den sechs beteiligten Hyperfeinniveaus berücksichtigt. Des Weiteren kann nun anhand der Relaxationsraten zwischen störender und störungsfreier Spinrauschspektroskopie unterschieden werden.

Aus den Spinrauschspektren in der inhomogen verbreiterten $F = 2 \rightarrow F' = 3$ -Resonanz der D2-Linie kann die strahlende Lebensdauer der angeregten Niveaus ermittelt werden. Im Experiment wird ein verstärktes Spinrauschen dieser Niveaus gemessen, welches in der numerischen Simulation nicht reproduziert wird. Dieses verstärkte Rauschen wird auf die Vorwärtsstreuung stimulierter Photonen zurückgeführt. Diese Vorwärtsstreuung in Propagationsrichtung des Laserfeldes kann als Indikator hintereinander gekoppelter Atome mit gleicher Geschwindigkeit gesehen werden. Mit den hier vorgestellten Messungen werden die Spinlebenszeiten nicht nur ermittelt, sondern auch in der Resonanz reduziert. So bringen die hier vorgestellten Messungen die Spinrauschspektroskopie nicht nur dem Auslesen, sondern gleichzeitig der direkten Manipulation von quantenmechanischen Zuständen näher.

ZnO-Spinrauschen Die Spindynamik von donatorgebundenen Elektronen in ZnO wurde mit der Spinrauschspektroskopie untersucht. Die Messungen mit transversalen Magnetfeldern geben Aufschluss über drei

phänomenologische Zerfallszeiten der Spinorientierung:

- die longitudinale Spinlebenszeit T_1 ,
- die transversale Spinlebenszeit T_2^* und
- die reduzierte transversale Spinlebenszeit T_2 .

Die verschiedenen Spinrauschbeiträge werden wegen derselben spektralen Herkunft bei 3,36 eV dem lokalisierten Al-Donatorelektron zugewiesen. Hierbei werden die T_1 -Zeit durch Laserfeldanregung, die T_2^* -Zeit durch die Hyperfeinwechselwirkung und die reduzierte T_2 -Zeit durch Defekte limitiert. Anregungseffekte werden mit Spinrauschmessungen in Abhängigkeit der Laserintensität in T_2 nachgewiesen. Die höchste erreichbare Temperatur für ein messbares Signal beträgt ~ 100 K und wird durch die steigende Ionisierung der Donatoren limitiert.

ZnO-MQW-Nanosäulen Auf Nanosäulen gewachsene Quantenfilme wurden mit zeitaufgelöster Photolumineszenz analysiert. Die Exzitonenlebensdauern geben Aufschluss über die Kristallqualität [88]. Längere Exzitonenlebensdauern in ZnO implizieren geringere Defektkonzentrationen. Hier wurde mit höherer QW-Emissionsenergie eine längere strahlende Lebensdauer der entsprechenden Emission bei einer Temperatur von 4 K gemessen. Die Quantenfilmemissionen werden zwei räumlich getrennten Bereichen zugewiesen: Eine Emission besitzt ihren Ursprung in planaren Quantenfilmen auf dem oberen Ende der Nanosäulen, während die zweite Emission aus Rekombinationen aus den radial um die Nanosäulen gewachsenen Quantenfilmen entspringt. Die dünneren radialen Quantenfilmemissionen besitzen offenbar Barrieren mit weniger Störstellen als die Emissionen der planaren Quantenfilme. Eine stärkere Einschränkung der Elektronenwellenfunktion resultiert in einer höheren Grundzustandsenergie. Die Exzitonenrekombination liegt demnach bei höherer Energie und dauert aufgrund der geringeren Störstellenkonzentration länger.

Allgemeine Kurzzusammenfassung Die in dieser Arbeit vorgestellten Untersuchungen bringt die physikalische Grundlagenforschung einige Schritte weiter:

6 Zusammenfassung und Ausblick

- Im Spinrauschexperiment mit Rubidium wurde die Kopplung der Hyperfeinniveaus durch das starke Laserfeld nachgewiesen.
- Im Halbleiter ZnO wurde die Spindynamik einschließlich aller hier gemessenen Spinlebenszeiten entschlüsselt.
- Am Beispiel komplexer ZnO-Nanostrukturen wurde die Exzitonendynamik detailliert analysiert.

Dem angestrebten Ziel des Quantencomputers bringt diese Arbeit vor allem im Bereich der ZnO-Quantenoptik näher. Hierfür wurden einerseits die Spinlebenszeiten ermittelt und andererseits eine zentrale Problemstellung bezüglich Elektronenspinquantenschwebungen formuliert.

6.2 Ausblick

Basierend auf den in dieser Arbeit präsentierten verschiedenen Untersuchungen werden nun abschnittsweise fortführende theoretische Betrachtungen und Messungen vorgeschlagen.

Rubidium-Spinrauschen Das Spinrauschen der angeregten Niveaus kann auf einen kollektiven Effekt zurückgeführt werden. Ein erweitertes Modell fortgeschrittener numerischer Methoden – beispielsweise Monte-Carlo-Simulationen – ist hier speziell für die Berechnung der Vorwärtstreuung stimuliert emittierter Photonen empfehlenswert. Da das verstärkte Spinrauschen der angeregten Niveaus auf die Vorwärtstreuung stimuliert emittierter Photonen zurückgeführt wird, stellt sich weiterhin die Frage, wie genau sich die Kopplung der Atome entlang des Laserstrahls auswirkt. Die kohärente Kopplung mehrerer Atome hintereinander wäre in der Tat ein weiterer Schritt in Richtung der Kopplung vieler Qubits, der auch in anderen vergleichbaren Experimenten forciert wird [121]. Ein möglicher zukünftiger Aufbau beinhaltet einen oder mehrere zusätzliche Manipulationsstrahlen senkrecht zum ursprünglichen Laserstrahl für die Spinrauschmessungen. Änderungen im Spinrauschspektrum im Vergleich zum vorherigen Rauschspektrum

können die Annahme der kohärenten Kopplung von hintereinander “geordneten” Atomen¹ entlang des Messstrahls bestätigen. Zusätzlich würde so die Manipulation von Quantenzuständen direkt nachgewiesen.

ZnO-Spinrauschen Aus den hier durchgeführten Messungen lassen sich direkt zwei weitere mögliche Untersuchungen ableiten: Mit erweiterter Bandbreite (z. B. auf 500 GHz) ließe sich Spinrauschen freier Elektronen in ZnO auch bei höheren Temperaturen messen. Die kurzen Spinlebenszeiten von L_2 könnten so auch bei höheren Magnetfeldern überprüft werden. Zusätzlich könnten vergleichende Messungen an z. B. einer MBE-Probe oder sogar an ZnO-Quantenfilmen die hier gewonnen Erkenntnisse bestätigen.

Da die Frequenzverdopplung gepulster Laserstrahlen technisch weitaus einfacher zu realisieren ist als die CW-Frequenzverdopplung, sollten die hier durchgeführten Experimente auch mit einem “Ultrafast-Spin Noise”-Aufbau [122] durchgeführt werden. Die so extrem stark erhöhte Bandbreite ließe zusätzlich Spinrauschmessungen der freien Elektronen in ZnO bei Raumtemperatur zu. Weiterhin könnte die Spindynamik von Löchern in ZnO untersucht werden. Die Voraussetzungen kurzer Spinlebenszeiten für einen solchen “Ultrafast”-Aufbau sind jedenfalls für ZnO gegeben [120, 116].

ZnO-MQW-Nanosäulen Mit zeitaufgelösten Photolumineszenzmes- sungen können über die Exzitonenlebensdauer nicht nur bei Raumtemperatur [88], sondern auch bei Temperaturen flüssigen Heliums Aussagen über die Kristallqualität gemacht werden. Deshalb bieten sich weitere zeitaufgelöste Messungen neuer, hochqualitativ gewachsener MBE-Proben an, in denen sehr lange Exzitonenlebensdauern gemessen werden könnten.

Bisher wurden nur wenige Spinquantenschwebungen mit zeitaufgelö- s- ter PL gemessen (siehe [116] für Lochspinquantenschwebungen). Weitere polarisationsaufgelöste Messungen mit der Anregung linear polarisierten Lichtes (siehe z. B. [117]) sollten ein tieferes Verständnis bezüglich der

¹Mit “geordneten” Atomen sind in diesem Fall Atome gleicher Geschwindigkeit gemeint.

6 Zusammenfassung und Ausblick

optischen Auswahlregeln in ZnO ermöglichen.

Allgemeiner Ausblick Die Spinrauschspektroskopie bietet im Vergleich zu konventionellen Messmethoden, wie z. B. zeitaufgelöster Photolumineszenz oder Faradayrotation, klare Vorteile. Die Anwendungsbereiche der optischen Spinrauschspektroskopie sind wegen des großen Vorteils der störungsfreien Messung vielfältig: Der industrielle Nutzen, die Dotierkonzentration von Halbleitern direkt ermitteln zu können, hängt in erster Linie vom firmenpolitischen Willen der Halbleiterbranche ab. Die Erweiterung des spektralen Bereichs auf die Bandlücke von ZnO beweist die flexible Anwendbarkeit der optischen Spinrauschspektroskopie. Weitere Messungen an nahezu allen anderen Halbleitern (z. B. Se, GaN, AlN, ...) sowie die gleichzeitige Erweiterung des spektralen Bereichs liegen auf der Hand.

Das Ziel eines Quantencomputers liegt nach wie vor klar vor Augen: die Spinlebenszeiten in ZnO lassen sich durch verbessertes Probenwachstum sowie durch die Herstellung isotopenreiner [79] ZnO-Proben verlängern. Optische Anregung durch das Laserfeld verringert die Spinlebenszeiten, trotzdem kann die Spinorientierung mit einem Laserstrahl präpariert, manipuliert und gemessen werden.

A Quantum-Moore

Analog zum Moorschen Gesetz zur Verdoppelung der Transistorenzahl kann die Anzahl an Veröffentlichungen, welche die Worte “quantum” oder “spin” beinhalten, logarithmisch dargestellt werden. Abbildung A.1 stellt den zeitlichen Verlauf der Treffer an Veröffentlichungen bei “ISI web of knowledge” [123] mit genau dieser Suchanfrage dar. Die

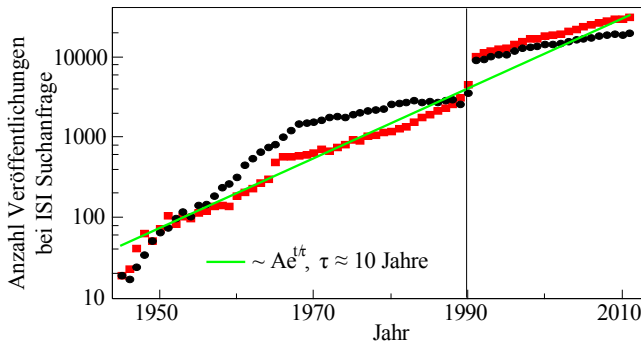


Abbildung A.1:

Logarithmische Darstellung der Anzahl an Veröffentlichungen mit “spin” (schwarze Kreise) und “quantum” (rote Quadrate) im entsprechenden Jahr. Die senkrechte schwarze Linie bei 1990 markiert das Ende des kalten Krieges und die rote Gerade stellt den exponentiellen Verlauf dar.

A Quantum-Moore

Wachstumsrate wird aus dem angepassten exponentiellen Verlauf (grüne Gerade) zu $\tau \approx 10$ Jahre ermittelt. Das bedeutet, dass sich die Anzahl an Veröffentlichungen alle $\tau \ln 2 \approx 7$ Jahre verdoppelt. Bei der grünen Gerade in Diagramm A.1 wurden Abschnitte mit anderer Steigung vernachlässigt. Offenbar ist die Forschung von politischen Einflüssen abhängig: Mindestens ein Knick in diesem Verlauf ist auf ein politisches Ereignis, nämlich dem Ende des kalten Krieges um 1990, zurückzuführen. Insgesamt ist die Wachstumsrate weitaus größer als die der Gesamtheit aller wissenschaftlicher Veröffentlichungen – diese besitzt eine Verdoppelungszeit von etwa 25 Jahren¹.

¹Dies ergab eine Stichprobe über sechs ISI Suchanfragen.

B Brechungsindex in der Rb D2-Resonanz

B.1 Mathematica-Quelltext

Zur Berechnung der Spinrauschleistung für Rubidium wurde ein Mathematica-Notebook geschrieben. Hierin wird aus allen gegebenen Parametern sowie den optischen Blochgleichungen für das 6-Niveau-Rubidium-Termschema zunächst der komplexe Brechungsindex und daraus die Absorption sowie die Spinrauschleistung eines transmittierenden Laserstrahls berechnet. Bei numerischen Berechnungen sind numerische Artefakte nicht auszuschließen. Deshalb werden die Rechnungen möglichst mit beliebiger Genauigkeit durchgeführt. Zur Berechnung wurde das Programm Mathematica 8.0 von Wolfram verwendet [42].

This program calculates the absorption and spin noise power spectra across the D2 transition of Rubidium. For this purpose, the refractive index is calculated via optical Bloch equations. By calculating the static Bloch equations, the occupation numbers are also extracted in laser energy tuning direction. The program calculates this system for different laser intensities.

```
ClearAll[["Global*"]];
```

```
$HistoryLength = 0;
```

B Brechungsindex in der Rb D2-Resonanz

NKS = MachinePrecision; (* Choose MachinePrecision or 36 NachKommaStellen *)

(* Constants *)

k_B = BoltzmannConstant = $N[13\ 806\ 504 \times 10^{-30}, \text{NKS}]$; (* J/K *)

e = ElectronCharge = $N[1\ 602\ 176\ 487 \times 10^{-28}, \text{NKS}]$; (* C *)

m_e = ElectronMass = $N[910\ 938\ 188 \times 10^{-39}, \text{NKS}]$; (* kg *)

m_u = AtomicMass = $N[1\ 660\ 538\ 782 \times 10^{-36}, \text{NKS}]$; (* kg *)

c = SpeedOfLight = $N[299\ 792\ 458, \text{NKS}]$; (* m/s *)

ϵ_0 = VacuumPermittivity = $N[885\ 418\ 781\ 762 \times 10^{-23}, \text{NKS}]$; (* As/Vm *)

h = PlanckConstant = $N[662\ 606\ 896 \times 10^{-42}, \text{NKS}]$; (* Js *)

π = $N[3\ 141\ 592\ 653\ 589\ 793\ 238\ 462\ 643\ 383\ 279\ 502\ 884\ 197 \times 10^{-39}, \text{NKS}]$;

\hbar = $N[h/(2\pi), \text{NKS}]$; (* Js *)

(* Resonance frequencies (from D. Steck, RbNumbers)*)

(* !!!Attention! In whole notebook: first index ground state, second index excited state !!! *)

Array[ν_R , {2, 4}, {1, 0}]; $\nu_R[1, 3] = 1$; $\nu_R[2, 0] = 1$; (* Unit: Hertz...*)

$\nu_R[1, 0] = N[384234454068830, \text{NKS}]$; $\nu_R[1, 1] = N[384234526286830, \text{NKS}]$;

$\nu_R[1, 2] = N[384234683233830, \text{NKS}]$;

$\nu_R[2, 1] = N[384227691606320, \text{NKS}]$; $\nu_R[2, 2] = N[384227848553320, \text{NKS}]$;

$\nu_R[2, 3] = N[384228115203320, \text{NKS}]$;

(* Degeneracies *)

Array[gF, 4, 0]; For[F = 0, F < 4, F++, gF[F] = 2F + 1];

g1 = gF[1]/(gF[1] + gF[2]);

g2 = gF[2]/(gF[1] + gF[2]);

(* Oscillatorstrengths *)

Array[f, {2, 4}, {1, 0}];

$f[1, 0] = N[\frac{1}{2}, \text{NKS}]$; $f[1, 1] = N[\frac{5}{4}, \text{NKS}]$; $f[1, 2] = N[\frac{5}{4}, \text{NKS}]$;

$f[1, 3] = N[0, \text{NKS}]$; (* $\sum f[1, j] = 3 = gF[1]$ *)

$f[2, 0] = N[0, \text{NKS}]$; (* $\sum f[2, j] = 5 = gF[2]$ *)

$f[2, 1] = N[\frac{1}{4}, \text{NKS}]$; $f[2, 2] = N[\frac{5}{4}, \text{NKS}]$; $f[2, 3] = N[\frac{7}{2}, \text{NKS}]$;

(* Oscillatorstrengths for spin noise; those differ from $f[i, j]$ by a factor of $\frac{2}{3}$ because of the missing π -polarized light *)

Array[fneu, {2, 4}, {1, 0}];

fneu[1, 0] = $N[\frac{1}{3}, \text{NKS}]$; fneu[1, 1] = $N[\frac{5}{6}, \text{NKS}]$; fneu[1, 2] = $N[\frac{5}{6}, \text{NKS}]$;

fneu[1, 3] = $N[0, \text{NKS}]$; (* $\sum \text{fneu}[1, i] = 2$ *)

```

fneu[2, 0] = N[0, NKS]; (*  $\Sigma$  fneu[2, i] =  $\frac{10}{3}$  *)
fneu[2, 1] = N [ $\frac{1}{6}$ , NKS]; fneu[2, 2] = N [ $\frac{5}{6}$ , NKS]; fneu[2, 3] = N [ $\frac{7}{3}$ , NKS];

For[z = 1, z < 2, z++, (* calculate for different laser intensities *)
Clear[ $\nu$ ]; Clear[u]; (*  $\nu$  frequency, u velocity of atoms *)

(* Laser Power & Intensity *)
P = N[800  $\times 10^{-6} \times 8^z$ , NKS]; (* W *)
(* Beam radius  $r = d/2 = 237,9/2 \mu\text{m} = 119 \mu\text{m}$  *)
A = N [ $\pi(119 \times 10^{-6})^2$ , NKS]; (*  $\text{m}^2$  *) l = N[5  $\times 10^{-2}$ , NKS]; (* m *)
V = N[A l, NKS]; (*  $\text{m}^3$  *) (* Illuminated area, length of the Rubidium vapor
cell, and resulting Volume. *) (* changed from 139 to 119  $\mu\text{m}$  radius. *)

(* Buffer gas pressure broadening *)
 $\gamma$ B = N[18  $\times 10^6$ , NKS]; (* 1 mbar causes a frequency broadening of 18 MHz
and 100 mbar 1.8 GHz; the pressure increases with temperature, but not the
pressure broadening! *)

(* Velocity distribution of a classic atom gas *)
T = N[35 315  $\times 10^{-2}$ , NKS]; (* Kelvin *);
mRb87 = N[86 909 180 527  $\times 10^{-9} m_u$ , NKS]; (* kg *);
kz = N [ $\frac{2\pi\nu_R[1,1]}{c}$ , NKS]; (*  $\frac{1}{m}$  *)
v0 = N [ $\sqrt{\frac{k_B T}{m_{\text{Rb87}}}}$ , NKS]; (*  $\frac{m}{s}$  ( $\frac{m}{2} v = \frac{1}{2} k_B T$ ) in one direction *)
s = 60; (* !! Step size s in convolution integral with Gauß function !! *)
Gauß[u_] = N[ $s\sqrt{1/(2\pi)}/v0$ , NKS] N[Exp[-1/2(u/v0)2], NKS];

(* Number of Atoms (see RbNumbers Paper) *) (* Vapor pressure *)
pV = N[1015.88253 10(-4529.635/T) 10(0.00058663 T) T-2.99138, NKS]; (* Torr *)
pVv2 = N [10(4312 10-3) 10(-4040/T) 101325, NKS]; (* New version (D. Steck,
Rbnumbers). X Atmospheres = X 101 325 Pa *)
N0 = N [133 322 368  $\times 10^{-6} \frac{pV}{k_B T}$  2783  $\times 10^{-4}$ , NKS]; (*  $\frac{1}{\text{m}^3}$  *)
(* X Torr = X · 133,322 Pa; 0.2783 is the natural abundance of Rb87 in natural
rubidium *)
Print[N0V];

```

(* Spontaneous emission frequencies from “Einstein coefficients, cross sections, f values, dipole moments, and all that”, Robert C. Hilborn, revised version

B Brechungsindex in der Rb D2-Resonanz

(2002) (original 1982)*

Array[A, {2, 4}, {1, 0}]; (* Array[Bga, {2, 4}, {1, 0}]; *)

Array[Ω, {2, 4}, {1, 0}];

For[i = 1, i < 3, i++, For[j = 0, j < 4, j++,

A[i, j] = N $\left[\frac{\nu_{\text{R}}[i, j]^2 e^2}{m_e c^3 \epsilon_0} \left(\frac{f[i, j]}{f[1, j] + f[2, j]} \right) \frac{2}{4} 6958 \times 10^{-4}, \text{NKS} \right]$; (* $A_{i, j}$ in Hz *) (*

!! Fine structure transition from $J' = 3/2$ to $J = 1/2$ (D_2), $2J + 1/2J' + 1 = 2/4$, fine structure oscillator strength $f = 0.6958$, the same as Rb85 !! $\frac{g_{\text{F}}[i]}{g_{\text{F}}[j]}$ is included in the transition strength $f[i, j]$, normalized with $f[1, j] + f[2, j]$.*)

(* Relaxation rates with $\Delta m_F = \pm 1$ *)

γ[i, j] = N $\left[\frac{\nu_{\text{R}}[i, j]^2 e^2}{m_e c^3 \epsilon_0} \left(\frac{f_{\text{neu}}[i, j]}{f[1, j] + f[2, j]} \right) \frac{2}{4} 6958 \times 10^{-4}, \text{NKS} \right]$;

(* Bga[i, j] = N $\left[\frac{g_{\text{F}}[j]}{g_{\text{F}}[i]} \frac{c^3}{8\pi h \nu_{\text{R}}[i, j]^3} A[i, j], \text{NKS} \right]$;) (* B_{ga} in $\text{m}^3 / (J * \text{s}^2)$ *)

(* Resonant Rabi frequencies *)

Ω[i, j] = N $\left[\frac{1}{2} \frac{e^2 P}{2\pi} \sqrt{\frac{e^2 P 6958 \times 10^{-4}}{h m_e \nu_{\text{R}}[i, j] A c \epsilon_0}} \left(\frac{f[i, j]}{\sum_{k=0}^3 f[i, k]} \right), \text{NKS} \right]$ (* Hz *)

(* $\Omega_{ij} = \frac{\mu_{ij} * E}{2 * 2\pi * \hbar}$; $E = \sqrt{\frac{2I}{\epsilon_0 c}}$, $I = \frac{P}{A}$; $\mu_{ij} = \sqrt{\frac{1}{2} \frac{\hbar e^2}{m 2\pi \nu_{ij}}} f_{ij}$, linear polarization

(instead of $\frac{3}{2}$), $f_{i, j} = \frac{f[i, j]}{g_i}$, the same as in RbNumbers of D. Steck ($\Omega = \frac{\Omega}{2}$, compared to some other notations → Bloch equations are formulated without $\frac{1}{2} \Omega$! *)

(* The total relaxation rate is used with the f-values normalized with the degeneracy of the lower state $f[i, 0] + f[i, 1] + f[i, 2] + f[i, 3] = g_{\text{F}}[i]$. Excitation is realized via the transition strengths $f[i, j]$, normalized with the sum over the excited states. *)

]];

Print["Spontaneous emission frequencies:"];

Print[{{A[1, 0], A[1, 1], A[1, 2], A[1, 3]}, {A[2, 0], A[2, 1], A[2, 2], A[2, 3]}}];

Print["Spontaneous emission frequencies with spin flip ($\Delta m_F \neq 0$):"];

Print[{{γ[1, 0], γ[1, 1], γ[1, 2], γ[1, 3]}, {γ[2, 0], γ[2, 1], γ[2, 2], γ[2, 3]}}];

Print["Resonant Rabi frequencies:"];

Print[{{Ω[1, 0], Ω[1, 1], Ω[1, 2], Ω[1, 3]}, {Ω[2, 0], Ω[2, 1], Ω[2, 2], Ω[2, 3]}}];

(* Diffusion rate; 640/2 kHz without buffer gas, 560.6/2, (515/2 = 257.5) kHz with 1 mbar He buffer gas. The rate is calculated by $\pi \gamma_{\text{FWHM}}$ but with Bloch equations in terms of $1/2\pi$ the factor becomes $1/2$.*)

Dif = N[257500, NKS];

(* Bloch equations. One must express the complex equations into real part and imaginary part to solve it with Mathematica. In total we have 36 eqs, in principle the one of ρ_{11} is unnecessary. This is added just to check. No initial conditions are necessary due to the static formulation of the Bloch equations. *)

Normalization:=

$$N[1, \text{NKS}] == N[\rho_{11} + \rho_{22} + \rho_{0e0e} + \rho_{1e1e} + \rho_{2e2e} + \rho_{3e3e}, \text{NKS}];$$

(* problems with small and large numbers (numerical errors) → change total number *)

(* ground state occupation numbers *)

$$\begin{aligned} \mathbf{r1g}:=N[0, \text{NKS}] &== N[A[1, 0] * \rho_{0e0e} + A[1, 1] * \rho_{1e1e} + A[1, 2] * \rho_{2e2e} \\ &+ 2 * \Omega[1, 0] * \rho_{1g0ei} + 2 * \Omega[1, 1] * \rho_{1g1ei} + 2 * \Omega[1, 2] * \rho_{1g2ei} \\ &- \text{Dif} * (\mathbf{g2} * \rho_{11} - \mathbf{g1} * \rho_{22}), \text{NKS}]; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mathbf{r2g}:=N[0, \text{NKS}] &== N[A[2, 1] * \rho_{1e1e} + A[2, 2] * \rho_{2e2e} + A[2, 3] * \rho_{3e3e} \\ &+ 2 * \Omega[2, 1] * \rho_{2g1ei} + 2 * \Omega[2, 2] * \rho_{2g2ei} + 2 * \Omega[2, 3] * \rho_{2g3ei} \\ &- \text{Dif} * (\mathbf{g1} * \rho_{22} - \mathbf{g2} * \rho_{11}), \text{NKS}]; \end{aligned}$$

(* excited state occupation numbers *)

$$\mathbf{r0e}:=N[0, \text{NKS}] == N[-A[1, 0] * \rho_{0e0e} - 2 * \Omega[1, 0] * \rho_{1g0ei}, \text{NKS}];$$

$$\begin{aligned} \mathbf{r1e}:=N[0, \text{NKS}] &== N[-(A[1, 1] + A[2, 1]) * \rho_{1e1e} \\ &- 2 * \Omega[1, 1] * \rho_{1g1ei} - 2 * \Omega[2, 1] * \rho_{2g1ei}, \text{NKS}]; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mathbf{r2e}:=N[0, \text{NKS}] &== N[-(A[1, 2] + A[2, 2]) * \rho_{2e2e} \\ &- 2 * \Omega[1, 2] * \rho_{1g2ei} - 2 * \Omega[2, 2] * \rho_{2g2ei}, \text{NKS}]; \end{aligned}$$

$$\mathbf{r3e}:=N[0, \text{NKS}] == N[-A[2, 3] * \rho_{3e3e} - 2 * \Omega[2, 3] * \rho_{2g3ei}, \text{NKS}];$$

(* ground state 1 excited state coherences *)

$$\begin{aligned} \mathbf{\rho1g0ere}:=N[0, \text{NKS}] &== N[-(A[1, 0]/2 + \gamma_B/2) * \rho_{1g0er} \\ &+ (\nu_R[1, 0] - \nu + \nu u/c) \rho_{1g0ei} + \Omega[1, 1] \rho_{0e1ei} + \Omega[1, 2] \rho_{0e2ei}, \text{NKS}]; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mathbf{\rho1g0eim}:=N[0, \text{NKS}] &== N[-(A[1, 0]/2 + \gamma_B/2) * \rho_{1g0ei} \\ &- (\nu_R[1, 0] - \nu + \nu u/c) \rho_{1g0er} + \Omega[1, 1] \rho_{0e1er} + \Omega[1, 2] \rho_{0e2er} \\ &+ \Omega[1, 0] (\rho_{0e0e} - \rho_{11}), \text{NKS}]; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mathbf{\rho1g1ere}:=N[0, \text{NKS}] &== N[-((A[1, 1] + A[2, 1])/2 + \gamma_B/2) \rho_{1g1er} \\ &+ (\nu_R[1, 1] - \nu + \nu u/c) \rho_{1g1ei} - \Omega[1, 0] \rho_{0e1ei} + \Omega[1, 2] \rho_{1e2ei} \\ &- \Omega[2, 1] \rho_{1g2gi}, \text{NKS}]; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mathbf{\rho1g1eim}:=N[0, \text{NKS}] &== N[-((A[1, 1] + A[2, 1])/2 + \gamma_B/2) \rho_{1g1ei} \\ &- (\nu_R[1, 1] - \nu + \nu u/c) \rho_{1g1er} + \Omega[1, 0] \rho_{0e1er} + \Omega[1, 2] \rho_{1e2er} \\ &- \Omega[2, 1] \rho_{1g2gr} + \Omega[1, 1] (\rho_{1e1e} - \rho_{11}), \text{NKS}]; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mathbf{\rho1g2ere}:=N[0, \text{NKS}] &== N[-((A[1, 2] + A[2, 2])/2 + \gamma_B/2) \rho_{1g2er} \\ &+ (\nu_R[1, 2] - \nu + \nu u/c) \rho_{1g2ei} - \Omega[1, 0] \rho_{0e2ei} - \Omega[1, 1] \rho_{1e2ei} \\ &- \Omega[2, 2] \rho_{1g2gi}, \text{NKS}]; \end{aligned}$$

B Brechungsindex in der Rb D2-Resonanz

$$\begin{aligned} \rho_{1g2eim} := & N[0, \text{NKS}] == N[-((A[1, 2] + A[2, 2])/2 + \gamma_B/2)\rho_{1g2ei} \\ & - (\nu_R[1, 2] - \nu + \nu u/c)\rho_{1g2er} + \Omega[1, 0]\rho_{0e2er} + \Omega[1, 1]\rho_{1e2er} \\ & - \Omega[2, 2]\rho_{1g2gr} + \Omega[1, 2](\rho_{2e2e} - \rho_{11}), \text{NKS}]; \end{aligned}$$

(* ground state 2 excited state coherences *)

$$\begin{aligned} \rho_{2g1ere} := & N[0, \text{NKS}] == N[-((A[1, 1] + A[2, 1])/2 + \gamma_B/2)\rho_{2g1er} \\ & + (\nu_R[2, 1] - \nu + \nu u/c)\rho_{2g1ei} \\ & + \Omega[2, 2]\rho_{1e2ei} + \Omega[2, 3]\rho_{1e3ei} + \Omega[1, 1]\rho_{1g2gi}, \text{NKS}]; \\ \rho_{2g1eim} := & N[0, \text{NKS}] == N[-((A[1, 1] + A[2, 1])/2 + \gamma_B/2)\rho_{2g1ei} \\ & - (\nu_R[2, 1] - \nu + \nu u/c)\rho_{2g1er} + \Omega[2, 2]\rho_{1e2er} \\ & + \Omega[2, 3]\rho_{1e3er} - \Omega[1, 1]\rho_{1g2gr} + \Omega[2, 1](\rho_{1e1e} - \rho_{22}), \text{NKS}]; \\ \rho_{2g2ere} := & N[0, \text{NKS}] == N[-((A[1, 2] + A[2, 2])/2 + \gamma_B/2)\rho_{2g2er} \\ & + (\nu_R[2, 2] - \nu + \nu u/c)\rho_{2g2ei} \\ & - \Omega[2, 1]\rho_{1e2ei} + \Omega[2, 3]\rho_{2e3ei} + \Omega[1, 2]\rho_{1g2gi}, \text{NKS}]; \\ \rho_{2g2eim} := & N[0, \text{NKS}] == N[-((A[1, 2] + A[2, 2])/2 + \gamma_B/2)\rho_{2g2ei} \\ & - (\nu_R[2, 2] - \nu + \nu u/c)\rho_{2g2er} + \Omega[2, 1]\rho_{1e2er} \\ & + \Omega[2, 3]\rho_{2e3er} - \Omega[1, 2]\rho_{1g2gr} + \Omega[2, 2] * (\rho_{2e2e} - \rho_{22}), \text{NKS}]; \\ \rho_{2g3ere} := & N[0, \text{NKS}] == N[-(A[2, 3]/2 + \gamma_B/2) * \rho_{2g3er} \\ & + (\nu_R[2, 3] - \nu + \nu u/c)\rho_{2g3ei} \\ & - \Omega[2, 1]\rho_{1e3ei} - \Omega[2, 2]\rho_{2e3ei}, \text{NKS}]; \\ \rho_{2g3eim} := & N[0, \text{NKS}] == N[-(A[2, 3]/2 + \gamma_B/2) * \rho_{2g3ei} \\ & - (\nu_R[2, 3] - \nu + \nu u/c)\rho_{2g3er} \\ & + \Omega[2, 1]\rho_{1e3er} + \Omega[2, 2]\rho_{2e3er} + \Omega[2, 3] * (\rho_{3e3e} - \rho_{22}), \text{NKS}]; \end{aligned}$$

(* ground state coherence *)

$$\begin{aligned} \rho_{1g2gre} := & N[0, \text{NKS}] == N[-((\nu_R[1, 0] - \nu_R[2, 3]) \\ & + (\nu_R[1, 1] - \nu_R[2, 1]) + (\nu_R[1, 2] - \nu_R[2, 2]))\rho_{1g2gi} \\ & + \Omega[1, 1]\rho_{2g1ei} + \Omega[1, 2]\rho_{2g2ei} + \Omega[2, 1]\rho_{1g1ei} + \Omega[2, 2]\rho_{1g2ei}, \text{NKS}]; \\ \rho_{1g2gim} := & N[0, \text{NKS}] == N[+(\nu_R[1, 0] - \nu_R[2, 3]) \\ & + (\nu_R[1, 1] - \nu_R[2, 1]) + (\nu_R[1, 2] - \nu_R[2, 2]))\rho_{1g2gr} \\ & + \Omega[1, 1]\rho_{2g1er} + \Omega[1, 2]\rho_{2g2er} - \Omega[2, 1]\rho_{1g1er} - \Omega[2, 2]\rho_{1g2er}, \text{NKS}]; \end{aligned}$$

(* excited state coherences *)

$$\begin{aligned} \rho_{0e1ere} := & N[0, \text{NKS}] == N[-((A[1, 0] + A[1, 1] + A[2, 1])/2 + \gamma_B)\rho_{0e1er} \\ & - (\nu_R[1, 0] - \nu_R[1, 1])\rho_{0e1ei} - \Omega[1, 0]\rho_{1g1ei} - \Omega[1, 1]\rho_{1g0ei}, \text{NKS}]; \\ \rho_{0e1eim} := & N[0, \text{NKS}] == N[-((A[1, 0] + A[1, 1] + A[2, 1])/2 + \gamma_B)\rho_{0e1ei} \\ & + (\nu_R[1, 0] - \nu_R[1, 1])\rho_{0e1er} + \Omega[1, 0]\rho_{1g1er} - \Omega[1, 1]\rho_{1g0er}, \text{NKS}]; \\ \rho_{1e2ere} := & N[0, \text{NKS}] == \\ & N[-((A[1, 1] + A[1, 2] + A[2, 1] + A[2, 2])/2 + \gamma_B)\rho_{1e2er} \\ & - ((\nu_R[1, 1] - \nu_R[1, 2]) + (\nu_R[2, 1] - \nu_R[2, 2]))\rho_{1e2ei} \\ & - \Omega[1, 1]\rho_{1g2ei} - \Omega[1, 2] * \rho_{1g1ei} - \Omega[2, 1]\rho_{2g2ei} - \Omega[2, 2]\rho_{2g1ei}, \text{NKS}]; \end{aligned}$$


```

ρ1e2eim:=N[0, NKS] ==
N[-((A[1, 1] + A[1, 2] + A[2, 1] + A[2, 2])/2 + γB)ρ1e2ei
+((νR[1, 1] - νR[1, 2]) + (νR[2, 1] - νR[2, 2]))ρ1e2er
+Ω[1, 1]ρ1g2er - Ω[1, 2] * ρ1g1er + Ω[2, 1]ρ2g2er - Ω[2, 2]ρ2g1er, NKS];
ρ2e3ere:=N[0, NKS] == N[-((A[1, 2] + A[2, 2] + A[2, 3])/2 + γB)ρ2e3er
-(νR[2, 2] - νR[2, 3])ρ2e3ei - Ω[2, 2]ρ2g3ei - Ω[2, 3]ρ2g2ei, NKS];
ρ2e3eim:=N[0, NKS] == N[-((A[1, 2] + A[2, 2] + A[2, 3])/2 + γB)ρ2e3ei
+(νR[2, 2] - νR[2, 3])ρ2e3er + Ω[2, 2]ρ2g3er - Ω[2, 3]ρ2g2er, NKS];
ρ0e2ere:=N[0, NKS] == N[-((A[1, 0] + A[1, 2] + A[2, 2])/2 + γB)ρ0e2er
-(νR[1, 0] - νR[1, 2])ρ0e2ei - Ω[1, 0]ρ1g2ei - Ω[1, 2]ρ1g0ei, NKS];
ρ0e2eim:=N[0, NKS] == N[-((A[1, 0] + A[1, 2] + A[2, 2])/2 + γB)ρ0e2ei
+(νR[1, 0] - νR[1, 2])ρ0e2er + Ω[1, 0]ρ1g2er - Ω[1, 2]ρ1g0er, NKS];
ρ1e3ere:=N[0, NKS] == N[-((A[1, 1] + A[2, 1] + A[2, 3])/2 + γB)ρ1e3er
-(νR[2, 1] - νR[2, 3])ρ1e3ei - Ω[2, 1]ρ2g3ei - Ω[2, 3]ρ2g1ei, NKS];
ρ1e3eim:=N[0, NKS] == N[-((A[1, 1] + A[2, 1] + A[2, 3])/2 + γB)ρ1e3ei
+(νR[2, 1] - νR[2, 3])ρ1e3er + Ω[2, 1]ρ2g3er - Ω[2, 3]ρ2g1er, NKS];

```

(* higher order coherences *)

```

ρ0e3ere:=N[0, NKS] == N[-((A[1, 0] + A[2, 3])/2 + γB)ρ0e3er
-(νR[1, 0] - νR[2, 3])ρ0e3ei - Ω[1, 0]ρ2g3ei - Ω[2, 3]ρ1g0ei, NKS];
ρ0e3eim:=N[0, NKS] == N[-((A[1, 0] + A[2, 3])/2 + γB)ρ0e3ei
+(νR[1, 0] - νR[2, 3])ρ0e3er + Ω[1, 0]ρ2g3er - Ω[2, 3]ρ1g0er, NKS];
ρ2g0ere:=N[0, NKS] == N[-(A[2, 0]/2 + γB/2) * ρ2g0er
+Ω[1, 1]ρ0e1ei + Ω[1, 2]ρ0e2ei
+Ω[2, 1]ρ0e1ei + Ω[2, 2]ρ0e2ei + Ω[2, 3]ρ0e3ei, NKS];
ρ2g0eim:=N[0, NKS] == N[-(A[2, 0]/2 + γB/2) * ρ2g0ei
+Ω[1, 1]ρ0e1er + Ω[1, 2]ρ0e2er
+Ω[2, 1]ρ0e1er + Ω[2, 2]ρ0e2er + Ω[2, 3]ρ0e3er, NKS];
ρ1g3ere:=N[0, NKS] == N[-(A[1, 3]/2 + γB/2) * ρ1g3er
-Ω[1, 0]ρ0e3ei - Ω[1, 1]ρ1e3ei
-Ω[1, 2]ρ2e3ei - Ω[2, 1]ρ1e3ei - Ω[2, 2]ρ2e3ei, NKS];
ρ1g3eim:=N[0, NKS] == N[-(A[1, 3]/2 + γB/2) * ρ1g3ei
+Ω[1, 0]ρ0e3er + Ω[1, 1]ρ1e3er
+Ω[1, 2]ρ2e3er + Ω[2, 1]ρ1e3er + Ω[2, 2]ρ2e3er, NKS];

```

(* Solution of the Bloch equations. *)

```

sol:=NSolve[{r1g, r2g, r0e, r1e, r2e, Normalization,
ρ1g0ere, ρ1g0eim, ρ1g1ere, ρ1g1eim, ρ1g2ere, ρ1g2eim,
ρ2g1ere, ρ2g1eim, ρ2g2ere, ρ2g2eim, ρ2g3ere, ρ2g3eim,

```

B Brechungsindex in der Rb D2-Resonanz

$\rho0e1ere, \rho0e1eim, \rho1e2ere, \rho1e2eim, \rho2e3ere, \rho2e3eim,$
 $\rho1g2gre, \rho1g2gim, \rho0e2ere, \rho0e2eim, \rho1e3ere, \rho1e3eim\},$
 $\{\rho11, \rho22, \rho0e0e, \rho1e1e, \rho2e2e, \rho3e3e,$
 $\rho1g0er, \rho1g0ei, \rho1g1er, \rho1g1ei, \rho1g2er, \rho1g2ei,$
 $\rho2g1er, \rho2g1ei, \rho2g2er, \rho2g2ei, \rho2g3er, \rho2g3ei,$
 $\rho0e1er, \rho0e1ei, \rho1e2er, \rho1e2ei, \rho2e3er, \rho2e3ei, \rho1g2gr, \rho1g2gi,$
 $\rho0e2er, \rho0e2ei, \rho1e3er, \rho1e3ei\},$ Reals, WorkingPrecision \rightarrow NKS];

(* Here the values of the different quantities for $t \rightarrow \infty$ are calculated. We assume that the stationary regime is obtained. *)

$val1g:=\rho11/.sol[[1]]; val2g:=\rho22/.sol[[1]];$
 $val0e:=\rho0e0e/.sol[[1]]; val1e:=\rho1e1e/.sol[[1]];$
 $val2e:=\rho2e2e/.sol[[1]]; val3e:=\rho3e3e/.sol[[1]];$
 $val1g0er:=\rho1g0er/.sol[[1]]; val1g0ei:=\rho1g0ei/.sol[[1]];$
 $val1g1er:=\rho1g1er/.sol[[1]]; val1g1ei:=\rho1g1ei/.sol[[1]];$
 $val1g2er:=\rho1g2er/.sol[[1]]; val1g2ei:=\rho1g2ei/.sol[[1]];$
 $val2g1er:=\rho2g1er/.sol[[1]]; val2g1ei:=\rho2g1ei/.sol[[1]];$
 $val2g2er:=\rho2g2er/.sol[[1]]; val2g2ei:=\rho2g2ei/.sol[[1]];$
 $val2g3er:=\rho2g3er/.sol[[1]]; val2g3ei:=\rho2g3ei/.sol[[1]];$

$$\chi1g2gi := N \left[\frac{N_0 e}{2 \cdot 2\pi} \sqrt{\frac{h c A 6958 \times 10^{-4}}{m_e \nu_{\text{Center}} \epsilon_0 P}} \rho1g2gi /.sol[[1]], \text{NKS} \right];$$

$$\chi1g2gr := N \left[\frac{N_0 e}{4\pi} \sqrt{\frac{h c A 6958 \times 10^{-4}}{m_e \nu_{\text{Center}} \epsilon_0 P}} \rho1g2gr /.sol[[1]], \text{NKS} \right];$$

$Im\rho:=((val1g0ei) + (val1g1ei) + (val1g2ei)$
 $+ (val2g1ei) + (val2g2ei) + (val2g3ei));$
 $RealParts:=((val1g0er) + (val1g1er) + (val1g2er)$
 $+ (val2g1er) + (val2g2er) + (val2g3er));$

$\nu_{\text{Center}} = N \left[\frac{\nu_R[2,1] + \nu_R[1,1]}{2}, \text{NKS} \right];$ (* Center frequency for plotting *)

$Re\rho Sqr := ((val1g0er)^2 + (val1g1er)^2 + (val1g2er)^2$
 $+ (val2g1er)^2 + (val2g2er)^2 + (val2g3er)^2);$ (* * Gauß[u] *)
 $Re\rho1g0eSqr := ((val1g0er)^2);$ $Re\rho1g1eSqr := ((val1g1er)^2);$
 $Re\rho1g2eSqr := ((val1g2er)^2);$ $Re\rho2g1eSqr := ((val2g1er)^2);$
 $Re\rho2g2eSqr := ((val2g2er)^2);$ $Re\rho2g3eSqr := ((val2g3er)^2);$

$$\chi i := N \left[\text{Im}\rho \frac{N_0 e}{2 \cdot 2\pi} \sqrt{\frac{h c A 6958 \cdot 10^{-4}}{m_e \nu_{\text{Center}} \epsilon_0 P}}, \text{NKS} \right];$$

B.1 Mathematica-Quelltext

(* $\chi = N_0 \frac{\mu_{eg}}{\epsilon_0 E_0} \rho_{eg}$, $N_0 = \frac{N}{V}$, $\mu_{ij} = \sqrt{\frac{1}{2} \frac{h e}{m^* \omega_{ij}}} f_{ij} = \frac{e}{2\pi} \sqrt{\frac{1}{2} \frac{h}{m^* \nu_{ij}}} f_{ij}$, $E_0 = \sqrt{\frac{2I}{\epsilon_0 c}}$ *)

$\chi r := N \left[\text{RealParts} \frac{N_0 e}{4\pi} \sqrt{\frac{h c A 6958 \cdot 10^{-4}}{m_e \nu_{\text{Center}} \epsilon_0 P}}, \text{NKS} \right]$; (* but $\Delta \chi r = \frac{\sqrt{N}}{V} \frac{\mu_{eg}}{\epsilon_0 E_0} \rho_{eg}$, see below ($d\theta$). *)

(* Calculate noise power for all direct hyperfine transitions and levels. *)

$\text{constant} := N \left[\left(\frac{k z l \sqrt{N_0 V e}}{4\pi V} \sqrt{\frac{h c A 6958 \cdot 10^{-4}}{m_e \epsilon_0 P}} \sqrt{\frac{1}{2}} \right)^2, \text{NKS} \right]$; (* Faraday rotation

noise angle $d\theta = k_z l \frac{\Delta n}{2}$ ($n = \frac{(n^+ + n^-)}{2} \sim N$, $\Delta n = n^+ - n^- \sim \sqrt{N}$), expansion of $n = \sqrt{1 + \chi} \sim 1 + \chi/2 \rightarrow \Delta n = n^+ - n^- \sim \frac{\chi}{2\sqrt{N}}$; 50% spin polarizability of fine transition $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$; $3 + 5 = 8$ ($1 + 3 + 5 + 7 = 16$ m_F - levels) for normalization of $\text{fneu}[i, j]$? *)

$d\theta \text{sq} r 1 g 0 e := N \left[\text{Re} \rho 1 g 0 e \text{Sqr} \text{val} 1 g \frac{\text{fneu}[1,0]}{\nu_R[1,0]} \text{constant}, \text{NKS} \right]$;

$d\theta \text{sq} r 1 g 1 e := N \left[\text{Re} \rho 1 g 1 e \text{Sqr} \text{val} 1 g \frac{\text{fneu}[1,1]}{\nu_R[1,1]} \text{constant}, \text{NKS} \right]$;

$d\theta \text{sq} r 1 g 2 e := N \left[\text{Re} \rho 1 g 2 e \text{Sqr} \text{val} 1 g \frac{\text{fneu}[1,2]}{\nu_R[1,2]} \text{constant}, \text{NKS} \right]$;

(* Convolution with Gauß in NumberOfAtoms $\text{val} 1 g$. *)

$d\theta \text{sq} r 2 g 1 e := N \left[\text{Re} \rho 2 g 1 e \text{Sqr} \text{val} 2 g \frac{\text{fneu}[2,1]}{\nu_R[2,1]} \text{constant}, \text{NKS} \right]$;

$d\theta \text{sq} r 2 g 2 e := N \left[\text{Re} \rho 2 g 2 e \text{Sqr} \text{val} 2 g \frac{\text{fneu}[2,2]}{\nu_R[2,2]} \text{constant}, \text{NKS} \right]$;

$d\theta \text{sq} r 2 g 3 e := N \left[\text{Re} \rho 2 g 3 e \text{Sqr} \text{val} 2 g \frac{\text{fneu}[2,3]}{\nu_R[2,3]} \text{constant}, \text{NKS} \right]$;

$d\theta \text{sq} r := N [d\theta \text{sq} r 1 g 0 e + d\theta \text{sq} r 1 g 1 e + d\theta \text{sq} r 1 g 2 e$
 $+ d\theta \text{sq} r 2 g 1 e + d\theta \text{sq} r 2 g 2 e + d\theta \text{sq} r 2 g 3 e, \text{NKS}]$;

$d\theta \text{sq} r \text{DasGleiche} := N \left[\frac{\text{Re} \rho \text{Sqr}}{\nu_{\text{Center}} \text{constant}}, \text{NKS} \right]$;

(* Excited states, double photon number (from stimulated emission), therefore with factor 2. $\frac{16}{8} = 2$ gives us another factor of 2. *)

$d\theta \text{sq} r 0 e 1 g := N \left[\text{Re} \rho 1 g 0 e \text{Sqr} \text{val} 0 e \frac{\text{fneu}[1,0]}{\nu_R[1,0] \text{constant}}, \text{NKS} \right]$;

(* $g[1]f[1, 2] = -g[2]f[2, 1]$ or $f[e, g] = -\frac{g[g]}{g[e]}f[g, e]$ *)

$d\theta \text{sq} r 1 e 1 g := N \left[\text{Re} \rho 1 g 1 e \text{Sqr} \text{val} 1 e \frac{\text{fneu}[1,1]}{\nu_R[1,1]} \text{constant}, \text{NKS} \right]$;

$d\theta \text{sq} r 2 e 1 g := N \left[\text{Re} \rho 1 g 2 e \text{Sqr} \text{val} 2 e \frac{\text{fneu}[1,2]}{\nu_R[1,2]} \text{constant}, \text{NKS} \right]$;

B Brechungsindex in der Rb D2-Resonanz

$$\begin{aligned} d\theta_{\text{sqr1e2g}} &:= N \left[\text{Re}p2g1e\text{Sqr val1e} \frac{\text{fneu}[2,1]}{\nu_{\text{R}}[2,1]} \text{constant, NKS} \right]; \\ d\theta_{\text{sqr2e2g}} &:= N \left[\text{Re}p2g2e\text{Sqr val2e} \frac{\text{fneu}[2,2]}{\nu_{\text{R}}[2,2]} \text{constant, NKS} \right]; \\ d\theta_{\text{sqr3e2g}} &:= N \left[\text{Re}p2g3e\text{Sqr val3e} \frac{\text{fneu}[2,3]}{\nu_{\text{R}}[2,3]} \text{constant, NKS} \right]; \\ d\theta_{\text{exc}} &:= N [d\theta_{\text{sqr0e1g}} + d\theta_{\text{sqr1e1g}} + d\theta_{\text{sqr2e1g}} \\ &\quad + d\theta_{\text{sqr1e2g}} + d\theta_{\text{sqr2e2g}} + d\theta_{\text{sqr3e2g}}, \text{NKS}]; \end{aligned}$$

$n := \text{ComplexExpand} \left[\sqrt{1 + \chi_{\text{r}} + i\chi_{\text{i}}} \right];$ (* Refractive index n *)

$\text{Transmission} := N[\text{Exp}[\text{kz Im}[n]l], 12];$ (* The transmission is the change of transmitted laser power (normalized) through the gas cell. *)

$$(* d\theta_{\text{sqr}} := N \left[\text{kz}^2 l^2 \frac{\text{FRe}p\text{Sqr}N_0 V e^2}{4 \cdot 4\pi^2 V^2} \frac{hcA6958 \cdot 10^{-4}}{m_e \nu_{\text{Center}} \epsilon_0 P}, \text{NKS} \right]; *)$$

(* Calculating noise powers: Amplification factor $20000 \text{ V/W} = 20 \text{ V/mW}$, P Laser power in W , $P * 2\theta = I - I_-$; but $\delta n = \delta \frac{\chi}{2}$; Factor $1/2$ because of 50% overall intensity loss behind Rb gas cell. *)

$$\text{SinNoiseSqr1g0e} := N[(20000 P \text{Sin}[\text{Sqrt}[d\theta_{\text{sqr1g0e}}]] \text{Transmission}/2)^2, 12];$$

(* Single noise powers for each transition for 3D-plot *)

$$\text{SinNoiseSqr1g1e} := N[(20000 P \text{Sin}[\text{Sqrt}[d\theta_{\text{sqr1g1e}}]] \text{Transmission}/2)^2, 12];$$

$$\text{SinNoiseSqr1g2e} := N[(20000 P \text{Sin}[\text{Sqrt}[d\theta_{\text{sqr1g2e}}]] \text{Transmission}/2)^2, 12];$$

$$\text{SinNoiseSqr2g1e} := N[(20000 P \text{Sin}[\text{Sqrt}[d\theta_{\text{sqr2g1e}}]] \text{Transmission}/2)^2, 12];$$

$$\text{SinNoiseSqr2g2e} := N[(20000 P \text{Sin}[\text{Sqrt}[d\theta_{\text{sqr2g2e}}]] \text{Transmission}/2)^2, 12];$$

$$\text{SinNoiseSqr2g3e} := N[(20000 P \text{Sin}[\text{Sqrt}[d\theta_{\text{sqr2g3e}}]] \text{Transmission}/2)^2, 12];$$

$$\text{SinNoiseSqr0e1g} := N[2(20000 P \text{Sin}[\text{Sqrt}[d\theta_{\text{sqr0e1g}}]] \text{Transmission}/2)^2, 12];$$

$$\text{SinNoiseSqr1e1g} := N[2(20000 P \text{Sin}[\text{Sqrt}[d\theta_{\text{sqr1e1g}}]] \text{Transmission}/2)^2, 12];$$

$$\text{SinNoiseSqr1e2g} := N[2(20000 P \text{Sin}[\text{Sqrt}[d\theta_{\text{sqr1e2g}}]] \text{Transmission}/2)^2, 12];$$

$$\text{SinNoiseSqr2e1g} := N[2(20000 P \text{Sin}[\text{Sqrt}[d\theta_{\text{sqr2e1g}}]] \text{Transmission}/2)^2, 12];$$

$$\text{SinNoiseSqr2e2g} := N[2(20000 P \text{Sin}[\text{Sqrt}[d\theta_{\text{sqr2e2g}}]] \text{Transmission}/2)^2, 12];$$

$$\text{SinNoiseSqr3e2g} := N[2(20000 P \text{Sin}[\text{Sqrt}[d\theta_{\text{sqr3e2g}}]] \text{Transmission}/2)^2, 12];$$

(* For FWHM in frequency range, one has to multiply the HWHM by 2. The HWHM originates in the Fourier transformation of a natural decay following $e^{-\gamma\tau}$. *)

(* First term diffusion rate. Last two terms represent the loss rate of the coherence. Natural relaxation of all involved excited states destroy coherences as well, but only with the m_{F} -changes *)

$$\begin{aligned} \gamma_1 &:= N[2(\text{Dif} + \text{val0e}\gamma[1, 0] + \text{val1e}\gamma[1, 1] + \text{val2e}\gamma[1, 2] \\ &\quad + \text{val1e}\gamma[2, 1] + \text{val2e}\gamma[2, 2]), 12]; \end{aligned}$$

$$\gamma_2 := N[2(\text{Dif} + \text{val1e}\gamma[2, 1] + \text{val2e}\gamma[2, 2] + \text{val3e}\gamma[2, 3])$$

```

+val1e $\gamma$ [1, 1] + val2e $\gamma$ [1, 2]), 12];
 $\gamma e0 := N[2(\text{Dif} + \gamma[1, 0] + \text{val}0e\gamma[1, 0]), 12]; (* + A[1, 0]*)$ 
 $\gamma e1 := N[2(\text{Dif} + \gamma[1, 1] + \gamma[2, 1] + \text{val}1e\gamma[1, 1] + \text{val}1e\gamma[2, 1]), 12]; (* + A[1, 1] + A[2, 1]*)$ 
 $\gamma e2 := N[2(\text{Dif} + \gamma[1, 2] + \gamma[2, 2] + \text{val}2e\gamma[1, 2] + \text{val}2e\gamma[2, 2]), 12]; (* + A[1, 2] + A[2, 2]*)$ 
 $\gamma e3 := N[2(\text{Dif} + \gamma[2, 3] + \text{val}3e\gamma[2, 3]), 12]; (* + A[2, 3]*)$ 

```

```

(* Write to file *)  $t = N[T - 273.15, 2]; L = N[P1000, 2];$ 
FName = StringJoin["SBC42p87- ", ToString[t], " C, ",
  ToString[L], " mW 18MHz 257kHzDif", ToString[a], ".txt"];
file = OpenWrite[FName, FormatType -> CForm];
FNameFFT = StringJoin["SBC42p87FFT- ", ToString[t], " C, ",
  ToString[L], " mW 18MHz 257kHzDif", ToString[a], ".txt"];
filefft = OpenWrite[FNameFFT, FormatType -> CForm];
WriteString[file, "DetuningFrequency \t Chi_i \t Chi_r \t
  Chi1g2g_r \t Chi1g2g_i \t N1g \t N2g \t N0e \t N1e \t N2e \t N3e \t
  t1\t t2\t t3 \t t4 \t t5 \t t6 \t RelTransm \t NoiseInVolt^2 \n"]; (* Headers in file *)

```

```

(* Loop over the detuning *)
detuning = N [10 109, NKS]; Steps = 150; (* see in If-condition; *2*3 values will be calculated *)

```

```

(* IncrRes= (8 + 2z)108; (* increased resolution around resonances *) *)
d $\nu$  = N[-detuning, NKS]; (* starting point *)
While[d $\nu$  < detuning,

```

```

 $\nu = N[\nu_{\text{Center}} + \nu, \text{NKS}];$ 
d $\nu_{\text{out}} = N[(d\nu + 2993743255)10^{-9}, 12]; (* Zero detuning at  $F = 2 \rightarrow F' = 3$  resonance in output *)$ 
```

```

(* Set 0 for every detuning, then convolution with velocity distribution *)
F $\chi_i$  = F $\chi_r$  = Fd $\theta$ sqr = F $\chi_1g2g_i$  = F $\chi_1g2g_r$  = 0;
Fval1g = Fval2g = Fval0e = Fval1e = Fval2e = Fval3e = 0;
FTransmission = 0;

```

```

For[fft = 1, fft ≤ 512, fft++, (* FFT values in noise frequency direction for writing the intensity plot; the intensity plot ranges from 0 to 31.25 MHz in the corresponding tuning. Values are calculated in  $\mu\text{V}/\text{Hz}$ , using: Lorentz =

```

B Brechungsindex in der Rb D2-Resonanz

$\frac{\text{Amplitude}_{\text{FWHM}}}{(211 - \text{fft})^2 + \left(\frac{\gamma_{\text{FWHM}}}{2} - \frac{1024}{62.510^6}\right)^2}$; Normalization factor 10^{12} for μV , $\frac{1024}{62.5}$ MHz

for spectrum (1024 values over a spectral range of 62.5 MHz). *)

FFTNoise = 0;

For $[u = -1200, u \leq 1200, u = u + s,$ (* Convolution integral; Sum over all necessary susceptibilities, Faraday noise, and population numbers multiplied with the velocity distribution (Gauß[u]). *)

If $[\text{fft} < 3,$

(* Susceptibilities *)

F $\chi_1 += N[\chi_1 \text{ Gauß}[u], 12];$ **F** $\chi_r += N[\chi_r \text{ Gauß}[u], 12];$

F $\chi_{1g2g_i} += N[\chi_{1g2g_i} \text{ Gauß}[u], 12];$ **F** $\chi_{1g2g_r} += N[\chi_{1g2g_r} \text{ Gauß}[u], 12];$

FTransmission += Transmission Gauß[u];

(* Square for Faraday noise. *)

Fd $\theta_{\text{sqr}} += N[d\theta_{\text{sqr}} \text{ Gauß}[u], 12];$

(* Separate population numbers *)

Fval1g += N[val1g Gauß[u], 12]; **F**val2g += N[val2g Gauß[u], 12];

Fval0e += N[val0e Gauß[u], 12]; **F**val1e += N[val1e Gauß[u], 12];

Fval2e += N[val2e Gauß[u], 12]; **F**val3e += N[val3e Gauß[u], 12]

];

FFTNoise += $N[10^{12} \left(\frac{1024}{625 \times 10^5}\right)^2 \frac{1}{2\pi}$ (* noise power and width for each hyperfine transition *)

(SinNoiseSqr1g0e($\gamma_1 / ((211 - \text{fft})^2 + (\gamma_1 * 512 / (62510^5)^2)$))
+ SinNoiseSqr1g1e($\gamma_1 / ((211 - \text{fft})^2 + (\gamma_1 * 512 / (62510^5)^2)$))
+ SinNoiseSqr1g2e($\gamma_1 / ((211 - \text{fft})^2 + (\gamma_1 * 512 / (62510^5)^2)$))
+ SinNoiseSqr2g1e($\gamma_2 / ((211 - \text{fft})^2 + (\gamma_2 * 512 / (62510^5)^2)$))
+ SinNoiseSqr2g2e($\gamma_2 / ((211 - \text{fft})^2 + (\gamma_2 * 512 / (62510^5)^2)$))
+ SinNoiseSqr2g3e($\gamma_2 / ((211 - \text{fft})^2 + (\gamma_2 * 512 / (62510^5)^2)$))
+ SinNoiseSqr0e1g($\gamma_{e0} / ((281 - \text{fft})^2 + (\gamma_{e0} * 512 / (62510^5)^2)$))
+ SinNoiseSqr1e1g($\gamma_{e1} / ((281 - \text{fft})^2 + (\gamma_{e1} * 512 / (62510^5)^2)$))
+ SinNoiseSqr1e2g($\gamma_{e1} / ((281 - \text{fft})^2 + (\gamma_{e1} * 512 / (62510^5)^2)$))
+ SinNoiseSqr2e1g($\gamma_{e2} / ((281 - \text{fft})^2 + (\gamma_{e2} * 512 / (62510^5)^2)$))
+ SinNoiseSqr2e2g($\gamma_{e2} / ((281 - \text{fft})^2 + (\gamma_{e2} * 512 / (62510^5)^2)$))
+ SinNoiseSqr3e2g($\gamma_{e3} / ((281 - \text{fft})^2 + (\gamma_{e3} * 512 / (62510^5)^2)$))
- 2 SinNoiseSqr1g0e($\gamma_1 / (\text{fft}^2 + (\gamma_1 * 512 / (62510^5)^2)$))
- 2 SinNoiseSqr1g1e($\gamma_1 / (\text{fft}^2 + (\gamma_1 * 512 / (62510^5)^2)$))
- 2 SinNoiseSqr1g2e($\gamma_1 / (\text{fft}^2 + (\gamma_1 * 512 / (62510^5)^2)$))
- 2 SinNoiseSqr2g1e($\gamma_2 / (\text{fft}^2 + (\gamma_2 * 512 / (62510^5)^2)$))

```

-2 SinNoiseSqr2g2e( $\gamma 2 / (\text{fft}^2 + (\gamma 2 * 512 / (62510^5))^2)$ )
-2 SinNoiseSqr2g3e( $\gamma 2 / (\text{fft}^2 + (\gamma 2 * 512 / (62510^5))^2)$ )
-2 SinNoiseSqr0e1g( $\gamma e 0 / (\text{fft}^2 + (\gamma e 0 * 512 / (62510^5))^2)$ )
-2 SinNoiseSqr1e1g( $\gamma e 1 / (\text{fft}^2 + (\gamma e 1 * 512 / (62510^5))^2)$ )
-2 SinNoiseSqr1e2g( $\gamma e 1 / (\text{fft}^2 + (\gamma e 1 * 512 / (62510^5))^2)$ )
-2 SinNoiseSqr2e1g( $\gamma e 2 / (\text{fft}^2 + (\gamma e 2 * 512 / (62510^5))^2)$ )
-2 SinNoiseSqr2e2g( $\gamma e 2 / (\text{fft}^2 + (\gamma e 2 * 512 / (62510^5))^2)$ )
-2 SinNoiseSqr3e2g( $\gamma e 3 / (\text{fft}^2 + (\gamma e 3 * 512 / (62510^5))^2)$ ))Gauß[u, 12]
]; (* velocity integral *)

WriteString[filefft, CForm[FFTNoise], "\t"];
]; (* FFT values *)
FSinNoiseSqr:=N[(20000P Sin[Sqrt[Fdθsqr]]FTransmission/2)^2, 12]; (* Inte-
grated ground state noise for 2D-plot *)

totalNumber = Fval1g + Fval2g + Fval0e + Fval1e + Fval2e + Fval3e;

WriteString[file, CForm[dνout], "\t", CForm[Fχi], "\t", CForm[Fχr], "\t",
CForm[Sqrt[Fχ1g2gr]], "\t", CForm[Sqrt[Fχ1g2gi]], "\t",
CForm[Fval1g], "\t", CForm[Fval2g], "\t",
CForm[Fval0e], "\t", CForm[Fval1e], "\t",
CForm[Fval2e], "\t", CForm[Fval3e], "\t",
CForm[γ1], "\t", CForm[γ2], "\t",
CForm[γe0], "\t", CForm[γe1], "\t",
CForm[γe2], "\t", CForm[γe3], "\t",
CForm[Transmission], "\t", CForm[FSinNoiseSqr]"\n"];
(* Calculations start! *)

WriteString[filefft, "\n"];
dν+=N[detuning/Steps, NKS]
];(* Tuning *)
Close[file];
Close[filefft]
(*FilePrint[%]*)
];(* Laser power *)

Print[totalNumber];

7,413 01 × 108
Spontaneous emission frequencies:

```

B Brechungsindex in der Rb D2-Resonanz

$\{\{6,06692 \times 10^6, 5,05577 \times 10^6, 3,03346 \times 10^6, 0.\},$

$\{0., 1,01112 \times 10^6, 3,03335 \times 10^6, 6,06672 \times 10^6\}\}$

Spontaneous emission frequencies with spin flip ($\Delta m_F \neq 0$):

$\{\{4,04461 \times 10^6, 3,37051 \times 10^6, 2,02231 \times 10^6, 0.\},$

$\{0., 674078., 2,02224 \times 10^6, 4,04448 \times 10^6\}\}$

Resonant Rabi frequencies:

$\{\{6,63712 \times 10^7, 1,04942 \times 10^8, 1,04942 \times 10^8, 0.\},$

$\{0., 3,63533 \times 10^7, 8,12885 \times 10^7, 1,36022 \times 10^8\}\}$

C Kühlkammer für UV-Optoelektronik

Die Wellenlängen von Laserdioden können mit der Temperatur geändert werden. Bei Raumtemperatur beträgt die Wellenlängenänderung von Laserdioden im nahen Infrarot $\sim 0,3 \text{ nm/K}$ [28]. Die Temperaturabhängigkeit der hier verwendeten Laserdiode ist in Abb. C.1 dargestellt. Aus

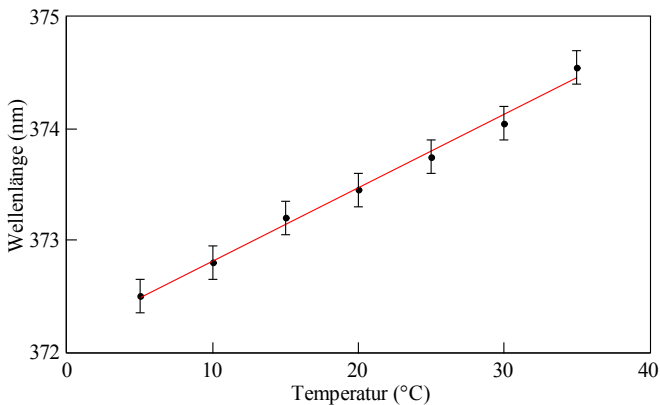


Abbildung C.1: Temperaturabhängigkeit der Wellenlänge einer UV-Laserdiode

der angepassten Geraden wird der Temperaturkoeffizient zu $0,066 \text{ nm/K}$

C Kühlkammer für UV-Optoelektronik

ermittelt. Dieser Wert liegt nahe beim Temperaturkoeffizienten einer vergleichbaren UV-Laserdiode ($\sim 0,05 \text{ nm/K}$) [124]. Der Unterschied einer Größenordnung zwischen dem Temperaturkoeffizienten dieser Laserdiode und IR-GaAs-Laserdioden wird dem schwächeren Temperaturverhalten bei größeren Bandlücken zugewiesen [125].

Die hier verwendete Laserdiode mit einer Wellenlänge von 373,45 nm muss von Raumtemperatur $\sim 80 \text{ K}$ heruntergekühlt werden, damit die Donatoremission von ZnO bei 369 nm (3,36 eV) erreicht wird (vergleiche Abschnitt 4.4.3). Damit die Laserdiode die Temperatur 215 K erreicht, muss sie mit ausreichender Kühlleistung heruntergekühlt werden. Daher ist für die Spinrauschspektroskopie von ZnO eine Vakuumbbox entwickelt worden, mit der die UV-Laserdiode heruntergekühlt werden kann.

Aus zwei Gründen muss eine Vakuumbbox verwendet werden: Zum einen wird eine Kondensation von Wasser (Luftfeuchtigkeit) an der Laserdiode verhindert und zum anderen sorgt das Vakuum für eine gute thermische Isolation. Der hier entworfene Aufbau ist folgender (von innen nach außen):

- Laserdiode mit Schutzelektronik und Kollimierlinse in Röhre
- Halterung für Diodenröhre
- gestapelte Peltierelemente
- Vakuumbbox mit Fenster und Anschlüssen
- Wasserkühlung

Diese Komponenten werden nun Absatzweise in entsprechender Reihenfolge erläutert. Die in der Institutswerkstatt angefertigten Bauteile sind in Abbildung C.2 zu sehen.

Laserdiode in Röhre Die Laserdiode wird in eine Röhrenhalterung mit einer Schutzelektronik (Thorlabs SR9B-DB9), welche die Laserdiode vor elektrostatischer Entladung, Verpolung und Überspannung schützt, eingebaut. An das Gehäuse der Laserdiode wird beim Einbau etwas Wärmeleitpaste gebracht, damit die Wärme bestmöglich in die Diodenröhre abgeführt wird. Da die UV-Laserdiode im Vergleich zu handelsüblichen

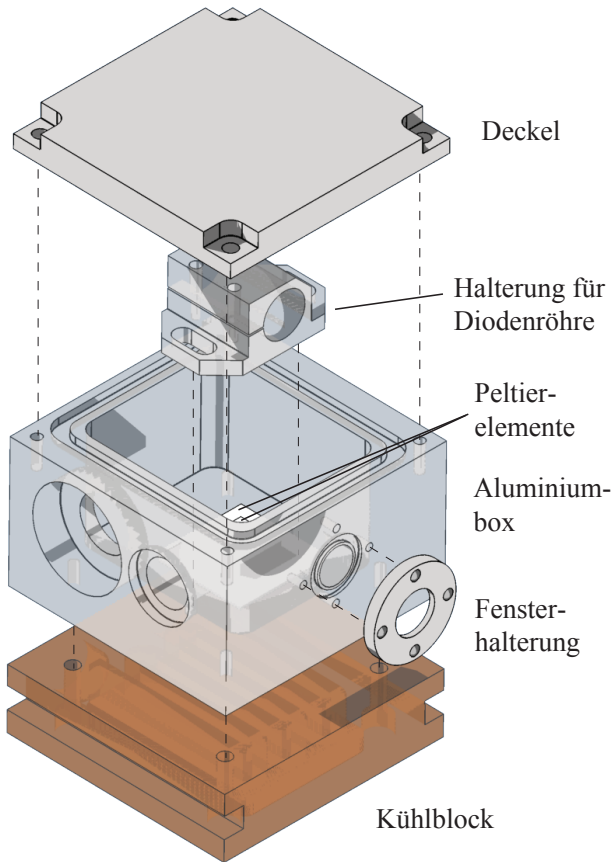


Abbildung C.2:

Komponenten der Vakuumbbox. Die gestrichelten Linien stellen Schraubverbindungen dar.

NIR-Laserdioden eine höhere Versorgungsspannung benötigt, werden in der Schutzelektronik die Zenerdiode und die Schottkydiode jeweils mit bauähnlichen Dioden höherer Schutzspannung ersetzt. Die Kontakte

C Kühlkammer für UV-Optoelektronik

der Schutzelektronik werden an die Innenseite des Fischersteckers (Kontakte siehe Tabelle C.1) mit vakuumtauglichen Kabeln angeschlossen. In der Röhrenhalterung der Laserdiode befindet sich des Weiteren eine UV-antireflexbeschichtete asphärische Kollimierlinse, dessen Fokus ($f = 4,6 \text{ mm}$) auf die Oberfläche der Laserdiode eingestellt wird¹.

Röhrenhalterung Die Diodenröhre wird in einer Halterung befestigt (siehe Abb. C.2). Diese Halterung soll mit den darunter befindlichen Peltierelementen heruntergekühlt werden. Als Temperatursensor dient ein PT1000-Widerstand, welcher in die Außenseite der Halterung eingelassen ist. Alle Komponenten an dieser Halterung (Peltierelement, Temperatursensor und Diodenröhre) werden mit Wärmeleitpaste² versehen, damit Unebenheiten zwischen den Oberflächen ausgeglichen werden und somit eine bestmögliche thermische Ankopplung realisiert wird. In die Unterseite der Halterung ist eine 2 mm tiefe und $15,1 \text{ mm} \times 15,1 \text{ mm}$ große Fläche eingelassen. Die Oberseite des oberen Peltierelements versinkt bei der Montage in dieser Fläche. Dadurch wird ein Verrutschen des oberen Peltierelements gegenüber der Röhrenhalterung verhindert.

Peltierelemente Damit die Solltemperatur von 215 K erreicht wird, werden zwei aufeinander gestapelte Peltierelemente benutzt. Beide werden an Ober- und Unterseite mit Wärmeleitpaste versehen. Der Temperatursensor sowie das obere Peltierelement (9,3 W Aufnahmeleistung) werden mit einer aktiven Temperaturregelung versehen, welche die Halterung für die Diodenröhre und somit auch die Laserdiode auf eine konstante Temperatur kühlt. Diese Regelung kann aber erst gestartet werden, wenn das unter dem Regelement befindliche Peltierelement die Halterung auf einer näherungsweise konstanten Temperatur hält. Das letztere Element (37,9 W Aufnahmeleistung) besitzt eine eigene konstante Stromversorgung, da es aufgrund der Wärmeentwicklung des Regelements eine weitaus größere Kühlleistung benötigt. Die Unterseite des großen Peltierelements ($30,1 \text{ mm} \times 30,1 \text{ mm}$) ist 1 mm tief in

¹Eine bestmögliche Kollimierung wird erzielt, wenn der Strahldurchmesser nach einigen Metern freier Propagation im Raum weder ab- noch zunimmt.

²Die Wärmeleitpaste ist Temperatur- und Vakuumbeständig und besteht hauptsächlich aus ZnO (60 – 80 %).

den Boden der Aluminiumbox eingelassen. Der Stapel ist mit Kunststoffschrauben durch die Diodenröhrenhalterung in den Boden der Box fixiert.

Vakuumbox Die Aluminiumbox besitzt insgesamt vier Öffnungen. Für die größte Öffnung (Deckel) sowie für das Fenster sind Dichtungsringe in die Box eingelassen. Diese und an den beiden anderen Öffnungen von außen aufgelegte Dichtungsringe an Kabeldurchführung sowie Vakuumanschluss ermöglichen das Evakuieren. Wegen des kleinen Volumens wird ein niedriger Druck bis zum Hochvakuum erreicht ($\sim 1 \times 10^{-5}$ mbar). Der Einfachheit halber wurde das Boxvakuum an das Vakuumvolumen des im gleichen experimentellen Aufbau befindlichen Mikrokryostatens angeschlossen. Bei diesem Aufbau ist eine aufmerksame Verwendung verschiedener Vor- sowie Hochvakuumventile notwendig, damit keine Komponenten zu Schaden kommen.

In die Fensterhalterung wurde eine Planplatte mit 20 mm Durchmesser und 2 mm Dicke eingesetzt. Die beidseitige Antireflexbeschichtung der Planplatte ist für den UV-Bereich hergestellt worden³. Durch Austauschen dieser Planplatte wäre eine weitere Verwendung dieser Box für andere Wellenlängen denkbar (z. B. gekühlter CCD-Sensor, bzw. als Mini-Spektrometer). Der innere Durchmesser der optischen Öffnung von 14 mm in der Aluminiumbox lässt genug Spielraum zur genauen Justage etwaiger Optiken zu.

Als Kabeldurchführung zur Laserbox wird ein 24-poliger Fischerstecker verwendet. Die durchnummerierten Kontakte sind in Tabelle C.1 angegeben.

Kühlblock & Wasserkühlung Die gesamte Kühlkammer wird vom restlichen Aufbau thermisch entkoppelt. Dies wird mit dem Basismaterial einer Leiterplatte, welche zwischen optischem Tisch und Kühlkammer platziert ist, realisiert. Eine der wohl effizientesten Entwärmungsmethoden bieten Kupferleitungen, weil Kupfer eine extrem hohe Wärmeleitfähigkeit besitzt. Daher wird durch im Kupferblock eingelassene

³BBAR-UV-Beschichtung der Firma Edmund Optics

C Kühlkammer für UV-Optoelektronik

Kontakt	Anschluss
1	SMD-Widerstand, Masse
2 & 3	SMD-Widerstand, Phase
12	Laserdiode, Masse
13	Laserdiode, --Pol
15	Laserdiode, +-Pol
9	großes Peltierelement (37,9 W), +-Pol
21	großes Peltierelement (37,9 W), --Pol
22 & 23	kleines Peltierelement (9,3 W), +-Pol
24	kleines Peltierelement (9,3 W), --Pol

Tabelle C.1: Kontakte an Fischerstecker

Kühlrippen Wasser geleitet, wo letzteres die Wärme der gesamten Box aufnimmt.

Der primäre Wasserkühlkreislauf wurde in Zusammenarbeit mit R. Hütter im Labor eingebaut. Ein an diesen Kühlblock angeschlossener Schlauch führt das Wasser über die Labordecke (Höhenunterschied ~ 2 m) zu einem Wasserreservoir. Diese befindet sich an der höchsten Stelle des Labors, damit mit dem Reservoir der Wasserdruck zum Atmosphärendruck ausgeglichen werden kann. Aus dem Wasserreservoir führt die Wassersäule abwärts zu einem Wärmetauscher, welcher wiederum an den Hauskühlwasserkreislauf angeschlossen ist. Das gekühlte Wasser durchläuft nun eine Aquariumpumpe, welche für das Aufrechterhalten der Strömung sorgt. Der Wasserdruck ist aufgrund der potentiellen Energie an den niedrigsten Stellen (Tisch, Wärmetauscher und Pumpe) am höchsten. Für den Fall, dass an einer Stelle Wasser ausläuft, bricht aufgrund mangelnder Pumpleistung der Aquariumpumpe die Wasserströmung zusammen. Daher wird die Wasserströmung regelmäßig mit einem Durchflussindikator überprüft. Der Kreislauf wird mit einem Schlauch, welcher über die Labordecke parallel zum ersten Schlauch bis zur Vakuumbox verläuft, geschlossen.

D ZnO-MQW-Nanosäulen

In diesem Kapitel werden weitere Proben mit geänderter Quantenfilmdicke und Mg-Konzentration mit der in Abschnitt 4.4.2 beschriebenen Messmethode analysiert. Die Laserenergie beträgt für alle folgenden Messungen konstant 3,547 eV und die Anregungsleistung ~ 3 mW. Damit ein direkter Vergleich möglich wird, ist für alle Proben eine gleich lange Integrationszeit für das Streakbild vorgegeben. Die folgenden Abschnitte sind zunächst nach Proben gegliedert. Der Vollständigkeit halber ist hier die bereits in Kapitel 5 untersuchte Probe MB381 mit aufgelistet. Hier wird die Probe MB381 zusätzlich auf Spinqantenschwebungen untersucht. Anschließend wird die Auswertung aller Proben zusammengefasst.

D.1 Probe MB373

In Probe MB373 wurde der Mg-Gehalt auf 0,17 % erhöht. Dies erhöht die potentielle Energie rechnerisch auf 340 meV. Die höheren Barrieren resultieren in einer stärkeren Einschränkung der Elektronenwellenfunktion und als Folge liegt die PL bei höherer Energie. Zusätzlich sorgt eine dünnere Quantenfilmdicke von 2,7 nm für eine noch stärkere Einschränkung der Wellenfunktion. Diese resultiert wiederum in einer höheren Exzitonenrekombinationsenergie. Abbildung D.1 zeigt ein mit der Streakkamera aufgenommenes Bild der Probe. Die Nanosäulenemissionen um 3,36 eV sind in Abschnitt 5.3 bereits ausführlich erklärt. Eine weitere sehr breite Emission liegt bei 3,48 eV. Die zeitlichen Werte der integrier-

D ZnO-MQW-Nanosäulen

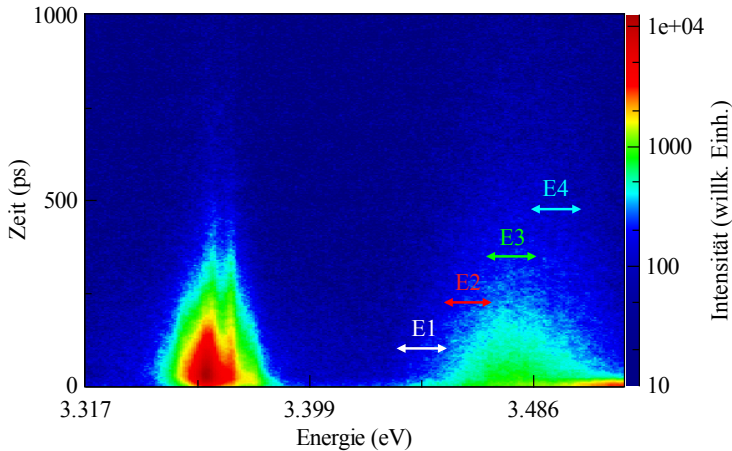


Abbildung D.1:

Auswertung von Probe MB373 und Deklaration der Emissionen E1 bis E4.

ten breiten Emission lassen sich nicht mit einem monoexponentiellen Zerfall anpassen. Daher wird sie unterteilt in vier Emissionen (E1 bis E4). Diese Emissionen werden einzeln spektral integriert und anschließend analog zu Abbildung 5.5 ausgewertet.

Die strahlenden Exzitonenlebensdauern sind in Tabelle D.1 aufgelistet. Aus den unterschiedlichen Lebensdauern wird ersichtlich, warum das

Emission	strahlende Lebensdauer (ps)
E1	$166,4 \pm 4,1$
E2	$215,2 \pm 2,0$
E3	$220,2 \pm 1,3$
E4	$231,5 \pm 2,0$

Tabelle D.1: Strahlende Lebensdauern der Emissionen von Probe MB373.

Anpassen einer einzelnen exponentiellen Zerfallsfunktion an das gesamte, von E1 bis E4 integrierte Spektrum, nicht funktioniert: Aufgrund der unterschiedlichen Lebensdauern zerfällt die Emission nicht monoexpo-

nentiell. Des Weiteren ist hier ein eindeutiger Trend abzusehen: je höher die Emissionsenergie, desto länger die strahlende Exzitonenlebensdauer.

D.2 Probe MB377

Die Auswertung von Probe MB377 ist im Vergleich zu Probe MB373 etwas differenzierter. Diese Probe unterscheidet sich von Probe MB381 (Abschnitt 5.1) nur geringfügig in der Quantenfilmdicke (3 nm anstelle 4 nm). Emissionen E1 und E2 in Abbildung D.2 markieren die Quantenfilmmissionen. Die Lebenszeit von E2 ist größer als die von E1 (siehe

Emission	strahlende Lebensdauer (ps)
E1	$304,8 \pm 2,3$
E2	$381,1 \pm 4,2$
E3	$339,7 \pm 3,9$
E4	$303,9 \pm 4,0$

Tabelle D.2: Strahlende Lebensdauern der Emissionen von Probe MB377.

Tabelle D.2). Diese Emissionen entsprechen E1 und E2 in Abschnitt 5.4, nur mit etwas höherer Rekombinationsenergie. Die anderen beiden Emissionen E3 und E4 sind Barrierenmissionen. Für diese wird eine reduzierte strahlende Exzitonenlebensdauer von E4 im Vergleich zu E3 gemessen. Dies ist ein Anzeichen dafür, dass die angeregten Exzitonen in den Barrieren zunächst zu den Störstellen niedrigerer Energie wandern und anschließend dort rekombinieren.

D ZnO-MQW-Nanosäulen

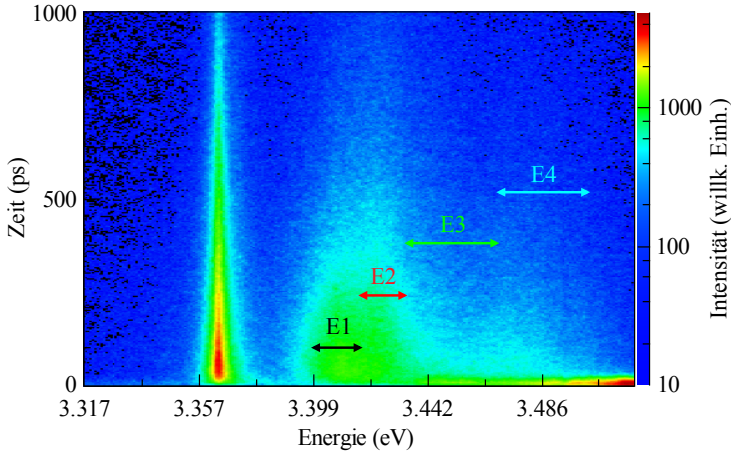


Abbildung D.2: Strekkamerabild von Probe MB373

D.3 Probe MB380

Von der hier untersuchten Proben besitzt die Probe MB380 mit 1,7 nm die dünnsten Quantenfilme. Die Mg-Konzentration in den Barrieren beträgt 0,17%. Als Folge liegt die QW-PL bei der höchsten Energie ($\sim 3,5$ eV). Das Übersichtsbild der Strekkamera ist in Abbildung D.3 zu sehen. Hier sind E1 bis E3 Quantenfilmemissionen und E4 eine Barrierenemission. Diese Identifikation kann anhand Tabelle D.3 vollzogen

Emission	strahlende Lebensdauer (ps)
E1	$288 \pm 11,7$
E2	$344 \pm 5,1$
E3	$349 \pm 3,6$
E4	$328 \pm 5,3$

Tabelle D.3: Strahlende Lebensdauern der Emissionen von Probe MB380.

werden. Die strahlende Lebensdauer steigt von E1 bis E3. E4 besitzt eine geringfügig reduzierte strahlende Rekombinationszeit und kann mit

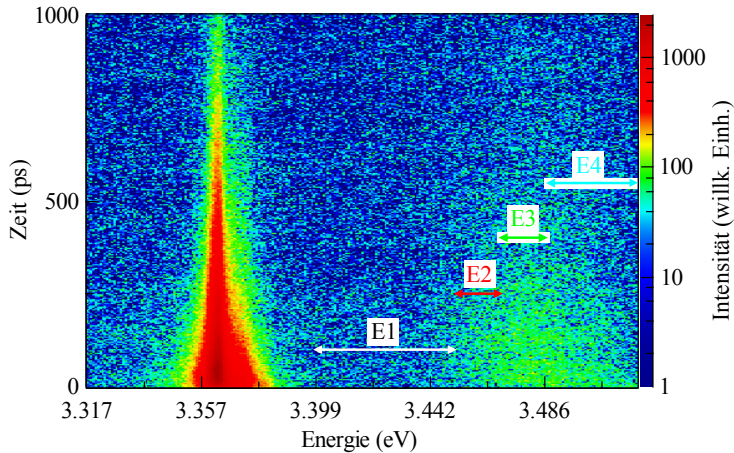


Abbildung D.3: Auswertung von Probe MB380

den bisher gewonnen Erkenntnissen der Barrierenemission zugewiesen werden.

D.4 Probe MB381

Die in Kapitel 5 untersuchte Probe wird der Vollständigkeit halber analog zu den vorigen Proben mit vier Emissionen analysiert. Die Emissionen sind in Abbildung D.4 durchnummeriert. Eine Auswertung mit angepasster exponentieller Funktion ergibt wieder die strahlenden Exzitonenlebenszeiten, welche in Tabelle D.4 dargestellt sind. Hier ist offenbare Quantenfilmemission (E3) hinzugekommen. Die strahlenden Lebensdauern der Quantenfilmemissionen steigen von E1 bis E3. Die Barrierenemission E4 ist etwas kurzlebiger. Da diese Messung im Vergleich zu denen in Abschnitten 5.3 bis 5.6 an anderer Position auf der Probe entstanden ist, ist das geänderte Spektrum ein Indiz für die Inhomogenität der Nanostrukturen auf der Probenoberfläche.

D ZnO-MQW-Nanosäulen

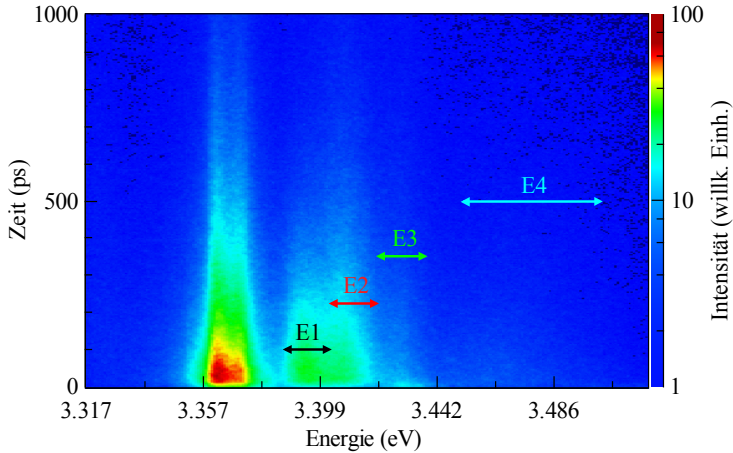


Abbildung D.4: Auswertung von Probe MB381

Emission	strahlende Lebensdauer (ps)
E1	$244,08 \pm 0,85$
E2	$315,35 \pm 1,58$
E3	$329,05 \pm 2,97$
E4	$282,19 \pm 3,04$

Tabelle D.4: Strahlende Lebensdauern der Emissionen von Probe MB381.

D.4.1 Polarisationsverhalten

Das Polarisationsverhalten der Probe mit der Laserenergie bei $E_{\text{laser}} = 3,48 \text{ eV}$ ist in Abbildung D.5 dargestellt. Wie in Abschnitt 5.6 beschrieben verschieben sich die Emissionen mit negativer Polarisation mit der Laserenergie. Der Bereich negativer Polarisation liegt bei $3,4 \text{ eV} = E_{\text{laser}} - 80 \text{ meV}$. Dieser spektrale Abstand ist doppelt so groß im Vergleich zu Abbildung 5.10.

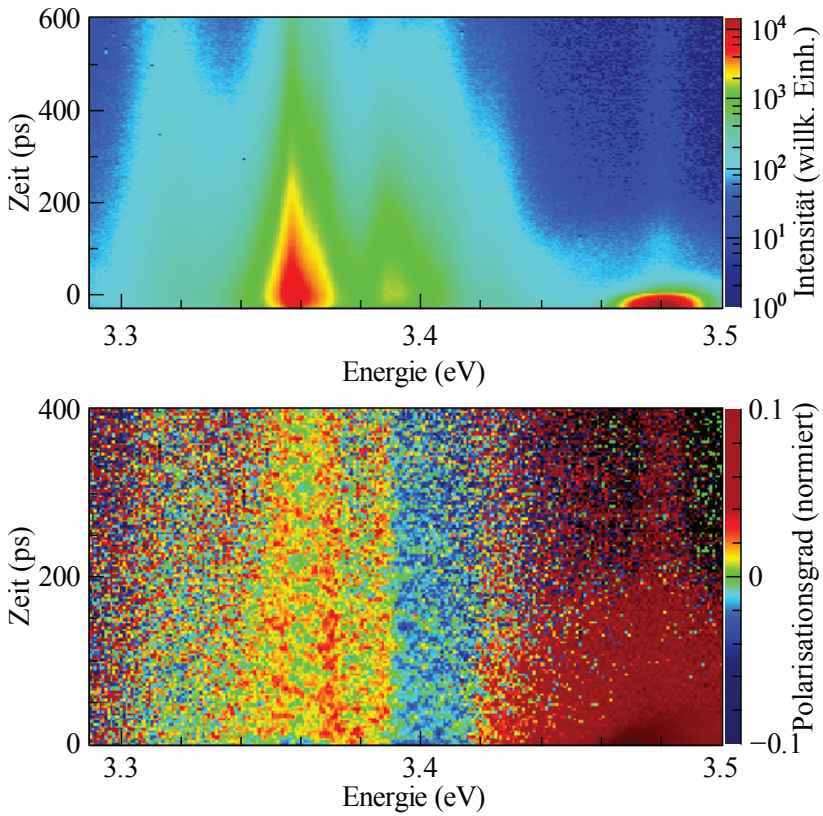


Abbildung D.5: Polarisationspektrum von Probe MB381

D.4.2 Oszillationen

Nun wird die Probe wie in Abschnitt 4.6.1 transversalen Magnetfeldern ausgesetzt. Gleichzeitig wird der Polarisationsgrad der Donatoremission beobachtet. Für einen messbaren Polarisationsgrad wird die Laserenergie von 3,38 eV nah an der D⁰X Rekombination gewählt. Die spektrale Breite des Lasers beträgt $\Delta E = 5$ meV. Abbildung D.6 stellt die Polarisation für verschiedene Magnetfelder (0 (schwarz), 0,1 (rot), 0,2 (grün), 0,4 (blau) und 1 T (cyan)) dar. Mit steigendem Magnetfeld entsteht scheinbar eine Oszillation der PL. Für die vorletzte Messung 0,4 T (cyan) wurde eine Sinuskurve in die Daten gelegt. Aus der Periodendauer der Oszillation (~ 550 ps bei 0,4 mT) wird der effektive g -Faktor zu $g \approx 0,325$ ermittelt. Dieser g -Faktor kann nur schwer zu den bisher in ZnO gemessenen Exzitonen-, Loch- oder Elektronen g -Faktoren in Zusammenhang gebracht werden [53]. Effekte wie z. B. Verspannungen [126] oder elektrische Felder [120] innerhalb der Nanosäulen wirken sich nicht stark auf den Elektronen- g -Faktor aus. Daher wird die hier zu sehende Oszillation entweder auf einen weiteren Effekt, welcher den Exziton- g -Faktor beeinflusst, oder auf ein Messartefakt zurückgeführt. Da diese Messungen für leicht geänderte Wellenlängen reproduziert wurden, ist letzterer Fall zwar unwahrscheinlich, kann aber nicht ganz ausgeschlossen werden. Mit 1 T Magnetfeld bleibt die Polarisation konstant bei 4%. Das Verschwinden der Oszillation bei Magnetfeldern ≥ 1 T kann mit einem spektralen Überlapp mit anderen Emissionslinien erklärt werden.

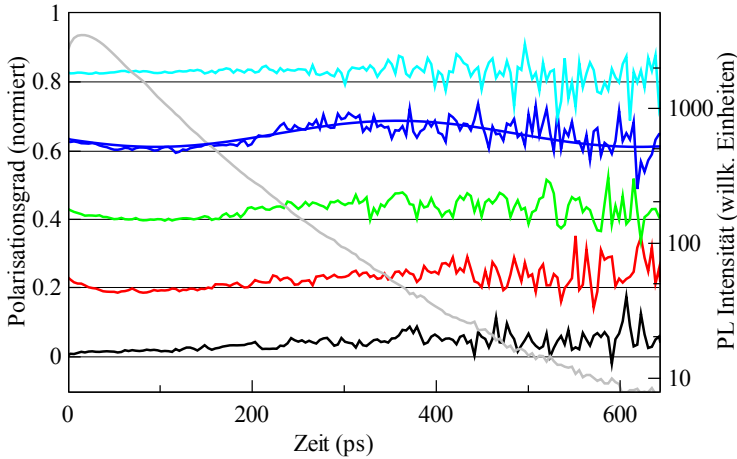


Abbildung D.6:

Polarisationsgrad der donatorgebundenen Exzitonrekombination für 0 (schwarz), 0,1 (rot), 0,2 (grün), 0,4 (blau) und 1 T (cyan) Magnetfeld, jeweils linke Skala. Die Graphen wurden jeweils um 0,2 inkrementell nach oben verschoben, beginnend bei 0 für 0 T. Für die PL (grau) gilt die logarithmische Skala auf der rechten Seite.

D.5 Zusammenfassung

Die strahlenden Rekombinationen der verschiedenen Emissionen wurden analysiert. Grundsätzlich steigen die Lebensdauern der Quantenfilmmissionen innerhalb jeder Probe mit steigender Energie. Eine direkte Abhängigkeit der Lebensdauern von der Quantenfilmdicke oder Mg-Konzentration in den Barrieren wurde jedoch nicht festgestellt.

Insgesamt kann gefolgert werden, dass die Qualität des kristallinen Gitters die Lebensdauern beschränkt. In der Tat wurde bereits im Jahr 2003 ein Zusammenhang zwischen strahlender Exzitonlebensdauer und Defektkonzentration aufgestellt [88]. Die bessere Kristallqualität der Barrieren führt zu einer größeren Barrierenbandlücke. Hieraus resultiert eine stärkere Einschränkung der Elektronenwellenfunktion, was wiederum zu einer höheren Rekombinationsenergie der Exziton führt (siehe

D ZnO-MQW-Nanosäulen

Abschnitt 5.1.1). Dies wird dadurch bestätigt, dass sich die strahlende Lebensdauer mit steigender Energie verlängert.

Literaturverzeichnis

In dieser Arbeit verwendete Referenzen in Zitierungsreihenfolge:

- [1] MOORE, G. E.: Cramming More Components Onto Integrated Circuits. In: *Proceedings of the IEEE* 86 (1998), Januar, Nr. 1, 82–85. <http://dx.doi.org/10.1109/JPROC.1998.658762>. – DOI 10.1109/JPROC.1998.658762. – ISSN 0018–9219 19
- [2] FUECHSLE, M. ; MIWA, J. ; MAHAPATRA, S. ; RYU, H. ; LEE, S. ; WARSCHKOW, O. ; HOLLENBERG, L. C. L. ; KLIMECK, G. ; SIMMONS, M. Y.: A single-atom transistor. In: *Nature nanotechnology* 7 (2012), April, Nr. 4, 242–6. <http://dx.doi.org/10.1038/nnano.2012.21>. – DOI 10.1038/nnano.2012.21. – ISSN 1748–3395 19
- [3] FABIAN, J. ; MATOS-ABIAGUE, A. ; ERTLER, C. ; STANO, P. ; ŽUTIĆ, I.: Semiconductor spintronics. In: *Acta Physica Slovaca. Reviews and Tutorials* 57 (2007), August, Nr. 4, 565–907. <http://dx.doi.org/10.2478/v10155-010-0086-8>. – DOI 10.2478/v10155-010-0086-8. – ISSN 0323–0465 20, 116
- [4] KUBO, R.: The fluctuation-dissipation theorem. In: *Reports on Progress in Physics* 29 (1966), Januar, Nr. 1, 255–284. <http://dx.doi.org/10.1088/0034-4885/29/1/306>. – DOI 10.1088/0034-4885/29/1/306. – ISSN 00344885 20, 21
- [5] RASHED, R.: A Pioneer in Anaclastics: Ibn Sahl on Burning Mirrors and Lenses. In: *Isis* 81 (1990), Nr. 3, 464–491. <http://www.jstor.org/stable/233423> 20
- [6] ENCYCLOPEDIA.COM: Snel (Snellius or Snel van Royen), Willebrord. In: *Complete Dictionary of Scientific Biography* (2008). <http://www.encyclopedia.com> 21

- [7] FARADAY, M.: On the magnetic affection of light, and on the distinction between the ferromagnetic and diamagnetic conditions of matter. In: *Philosophical Magazine Series 3* 26 (1846), Nr. 193, S. 153–156 & 249–258 21, 34
- [8] BLOCH, F. ; HANSEN, W. ; PACKARD, M.: The Nuclear Induction Experiment. In: *Physical Review* 70 (1946), Oktober, Nr. 7-8, 474–485. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.70.474>. – DOI 10.1103/PhysRev.70.474. – ISSN 0031–899X 21
- [9] ALEKSANDROV, E. B. ; ZAPASSKY, V. S.: Magnetic-Resonance In The Faraday-Rotation Noise Spectrum. In: *ZHURNAL EKSPERIMENTALNOI I TEORETICHESKOI FIZIKI* 81 (1981), Nr. 1, S. 132–138. – ISSN 0044–4510 21
- [10] SLEATOR, T. ; HAHN, E. ; HILBERT, C. ; CLARKE, J.: Nuclear-spin noise. In: *Physical Review Letters* 55 (1985), Oktober, Nr. 17, 1742–1745. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.55.1742>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.55.1742. – ISSN 0031–9007 21
- [11] YABUZAKI, T. ; MITSUI, T. ; TANAKA, U: New type of high-resolution spectroscopy with a diode laser. In: *Physical Review Letters* 67 (1991), Oktober, Nr. 18, 2453–2456. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.67.2453>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.67.2453. – ISSN 0031–9007 21
- [12] MITSUI, T.: Spontaneous Noise Spectroscopy of an Atomic Magnetic Resonance. In: *Physical Review Letters* 84 (2000), Juni, Nr. 23, 5292–5295. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.84.5292>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.84.5292. – ISSN 0031–9007 21
- [13] CROOKER, S. A. ; RICKEL, D. G. ; BALATSKY, a. V. ; SMITH, D. L.: Spectroscopy of spontaneous spin noise as a probe of spin dynamics and magnetic resonance. In: *Nature* 431 (2004), September, Nr. 7004, 49–52. <http://dx.doi.org/10.1038/nature02804>. – DOI 10.1038/nature02804. – ISSN 1476–4687 21
- [14] OESTREICH, M. ; RÖMER, M. ; HAUG, R. ; HÄGELE, D.: Spin Noise Spectroscopy in GaAs. In: *Physical Review Letters* 95

- (2005), November, Nr. 21, 216603. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.95.216603>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.95.216603. – ISSN 0031–9007 21
- [15] MÜLLER, G. M. ; OESTREICH, M. ; RÖMER, M. ; HÜBNER, J.: Semiconductor spin noise spectroscopy: Fundamentals, accomplishments, and challenges. In: *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures* 43 (2010), Dezember, Nr. 2, 569–587. <http://dx.doi.org/10.1016/j.physe.2010.08.010>. – DOI 10.1016/j.physe.2010.08.010. – ISSN 13869477 21, 124
- [16] DAHBASHI, R. ; HÜBNER, J. ; BERSKI, F. ; WIEGAND, J. ; MARIE, X. ; PIERZ, K. ; SCHUMACHER, H. W. ; OESTREICH, M.: Measurement of heavy-hole spin dephasing in (InGa)As quantum dots. In: *Applied Physics Letters* 100 (2012), Nr. 3, 031906. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3678182>. – DOI 10.1063/1.3678182. – ISSN 00036951 21, 124
- [17] LI, Yan ; SINITSYN, N. ; SMITH, D. ; REUTER, D. ; WIECK, A. ; YAKOVLEV, D. ; BAYER, M. ; CROOKER, S.: Intrinsic Spin Fluctuations Reveal the Dynamical Response Function of Holes Coupled to Nuclear Spin Baths in (In,Ga)As Quantum Dots. In: *Physical Review Letters* 108 (2012), Mai, Nr. 18, 1–5. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.108.186603>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.108.186603. – ISSN 0031–9007 21
- [18] HORN, H.: *Spinrauschspektroskopie*. 2008 22, 52, 63
- [19] BLOCH, F.: Nuclear Induction. In: *Physical Review* 70 (1946), Oktober, Nr. 7-8, 460–474. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.70.460>. – DOI 10.1103/PhysRev.70.460. – ISSN 0031–899X 26
- [20] BRONSTEIN, I. N. ; SEMENDJAJEW, K. A. ; MUSIOL, G. ; MÜHLIG, H.: *Taschenbuch der Mathematik*. 5. Thun und Frankfurt am Main : Harry Deutsch, 2001. – ISBN 3817120152 28, 32, 33
- [21] RÖMER, M.: *Spinrauschspektroskopie in Halbleitern*, Leibniz Universität Hannover, Diss., 2010 30, 116

Literaturverzeichnis

- [22] JOHNSON, E.: Physical limitations on frequency and power parameters of transistors. In: *IRE International Convention Record* Bd. 13, Institute of Electrical and Electronics Engineers, 1965, 27–34 31
- [23] CHINTCHIN, A: Korrelationstheorie der stationären stochastischen Prozesse. In: *Mathematische Annalen* 109 (1934), Nr. 1, 604–615. <http://dx.doi.org/10.1007/BF01449156> 31
- [24] VERDET, M: Recherches sur les propriétés optiques développées dans les corps transparents par l'action du magnétisme. In: *Annales de Chimie et de Physique* 41 (1854), September, Nr. 3, S. 3 34
- [25] KLINGSHIRN, C. F.: *Semiconductor Optics*. 3rd. Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 2007. – 809 S. – ISBN 978–3–540–38345–1 35, 110
- [26] KINSLER, P.: Refractive index and wave vector in passive or active media. In: *Physical Review A* 79 (2009), Februar, Nr. 2, 1–5. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.79.023839>. – DOI 10.1103/PhysRevA.79.023839. – ISSN 1050–2947 37
- [27] ALEKSANDROV, E. B. ; ZAPASSKII, V. S.: Spin Noise Spectroscopy. In: *Journal of Physics: Conference Series* 324 (2011), Oktober, 012002. <http://dx.doi.org/10.1088/1742-6596/324/1/012002>. – DOI 10.1088/1742-6596/324/1/012002. – ISSN 1742–6596 39
- [28] RICCI, L. ; WEIDEMÜLLER, M. ; ESSLINGER, T. ; HEMMERICH, A. ; ZIMMERMANN, C. ; VULETIC, V. ; KÖNIG, W. ; HÄNSCH, T. W.: A compact grating-stabilized diode laser system for atomic physics. In: *Optics Communications* 117 (1995), Nr. 5-6, 541–549. <http://www.sciencedirect.com/science/article/B6TVF-3XWS0SK-80/2/155d9c814d3261b70ffbd5e8c505a0eb> 41, 50, 145
- [29] HILBORN, R. C.: Einstein coefficients, cross sections, f values, dipole moments, and all that. In: *American Journal of Physics*

- 50 (1982), Nr. 11, 982. <http://dx.doi.org/10.1119/1.12937>. – DOI 10.1119/1.12937. – ISSN 00029505 43
- [30] LARMOR, J.: The influence of a magnetic field on radiation frequency. In: *Proceedings of the Royal Society* (1896) 43
- [31] FOX, Mark: *Quantum Optics: An Introduction (Oxford Master Series in Physics, 6)*. Oxford : Oxford University Press, 2006 <http://amazon.com/o/ASIN/0198566735/>. – ISBN 9780198566731 45
- [32] MÜLLER, G. M.: *Spin Dynamics of Equilibrium Electrons in Gallium Arsenide*, Leibniz Universität Hannover, Diss., 2010. <http://edok01.tib.uni-hannover.de/edoks/e01dh10/642315396.pdf>. – 143 S. 45, 79
- [33] STECK, D. A.: *Rubidium 87 D Line Data*. [\url{http://steck.us/alkalidata/}](http://steck.us/alkalidata/). <http://steck.us/alkalidata/>. Version: 2010 50, 56, 57, 69
- [34] KORTE, M.: *IGRF-Deklinationrechner*. <http://www-app3.gfz-potsdam.de/Declinationcalc/declinationcalc.html>. Version: 2010 51, 96
- [35] MAYER, Stefan: *Stefan Mayer Instruments*. <http://www.stefan-mayer.com/Lcsing.htm>. Version: 1993 51, 55
- [36] SCHULTE, C. H. H. ; MÜLLER, G. M. ; HORN, H. ; HÜBNER, J. ; OESTREICH, M.: Analyzing atomic noise with a consumer sound card. In: *American Journal of Physics* 80 (2012), Nr. 3, 240. <http://dx.doi.org/10.1119/1.3663275>. – DOI 10.1119/1.3663275. – ISSN 00029505 51
- [37] OAKBERG, T. C.: Modulated interference effects: use of photoelastic modulators with lasers. In: *Optical Engineering* 34 (1995), Nr. 6, 1545. <http://dx.doi.org/10.1117/12.203086>. – DOI 10.1117/12.203086. – ISSN 00913286 55
- [38] POLNAU, E.: Origin of modulated interference effects in photoelastic modulators. In: *Optical Engineering* 35 (1996), Nr.

Literaturverzeichnis

- 11, 3331. <http://dx.doi.org/10.1117/1.601073>. – DOI 10.1117/1.601073. – ISSN 00913286 55
- [39] STECK, D. A.: *Rubidium 85 D Line Data*. [\url{http://steck.us/alkalidata}](http://steck.us/alkalidata). <http://steck.us/alkalidata/>. Version: April 2010 56
- [40] YE, J. ; SWARTZ, S. ; JUNGNER, P. ; HALL, J. L.: Hyperfine structure and absolute frequency of the $^{87}\text{Rb } 5P_{3/2}$ state. In: *Optics Letters* 21 (1996), August, Nr. 16, 1280. <http://dx.doi.org/10.1364/OL.21.001280>. – DOI 10.1364/OL.21.001280. – ISSN 0146-9592 57
- [41] DEMTRÖDER, W.: *Experimentalphysik 2: Elektrizität und Optik*. Berlin : Springer, 2006. – 488 S. <http://d-nb.info/979110610>. – ISBN 3-540-33794-6 59
- [42] WOLFRAM.COM: *mathematica 8.0*. <http://www.wolfram.com/mathematica/> 62, 131
- [43] MCINTYRE, D. H. ; FAIRCHILD, C. E. ; COOPER, J. ; WALSER, R.: Diode-laser noise spectroscopy of rubidium. In: *Optics Letters* 18 (1993), November, Nr. 21, 1816. <http://dx.doi.org/10.1364/OL.18.001816>. – DOI 10.1364/OL.18.001816. – ISSN 0146-9592 65
- [44] FAN, X. ; LIU, Z. ; LIANG, Yi. ; JIA, K. ; TONG, D.: Phase control of probe response in a Doppler-broadened N-type four-level system. In: *Physical Review A* 83 (2011), April, Nr. 4, 1–10. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.83.043805>. – DOI 10.1103/PhysRevA.83.043805. – ISSN 1050-2947 65
- [45] HORN, H. ; MÜLLER, G. M. ; RASEL, E. ; SANTOS, L. ; HÜBNER, J. ; OESTREICH, M.: Spin-noise spectroscopy under resonant optical probing conditions: Coherent and nonlinear effects. In: *Physical Review A* 84 (2011), Oktober, Nr. 4, 43851. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.84.043851>. – DOI 10.1103/PhysRevA.84.043851. – ISSN 1050-2947 70

- [46] MAKER, P. ; TERHUNE, R.W. ; SAVAGE, C.: Intensity-Dependent Changes in the Refractive Index of Liquids. In: *Physical Review Letters* 12 (1964), Mai, Nr. 18, 507–509. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.12.507>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.12.507. – ISSN 0031–9007 70
- [47] BUDKER, D. ; GAWLIK, W. ; KIMBALL, D. ; ROCHESTER, S. ; YASHCHUK, V. ; WEIS, A.: Resonant nonlinear magneto-optical effects in atoms. In: *Reviews of Modern Physics* 74 (2002), November, Nr. 4, 1153–1201. <http://dx.doi.org/10.1103/RevModPhys.74.1153>. – DOI 10.1103/RevModPhys.74.1153. – ISSN 0034–6861 70
- [48] BINDER, K.: *Applications of the Monte Carlo Method in Statistical Physics*. 2nd. Berlin : Springer, 1987. – 341 S. – ISBN 3–540–17650–0 70
- [49] KLINGSHIRN, C. F. ; MEYER, B. K. ; WAAG, A. ; HOFFMANN, A. ; GEURTS, J. ; HULL, R (Hrsg.) ; PARISI, J (Hrsg.) ; JAGADISH, C (Hrsg.) ; WANG, Z (Hrsg.) ; OSGOOD, Jr. R M. (Hrsg.) ; WARLIMONT, H (Hrsg.): *Springer Series in Materials Science*. Bd. 120: *Zinc Oxide*. Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 2010. <http://dx.doi.org/10.1007/978-3-642-10577-7>. <http://dx.doi.org/10.1007/978-3-642-10577-7>. – ISBN 978–3–642–10576–0 73, 75, 76, 110
- [50] IFA, Institut für Arbeitsschutz der Deutschen Gesetzlichen U.: *GESTIS Stoffdatenbank*. <http://gestis.itrust.de/> 74
- [51] MARDER, M. P.: *Condensed Matter Physics*. New York : Wiley, 2000. – 895 S. 74
- [52] OHGAKI, T. ; OHASHI, N. ; SUGIMURA, S. ; RYOKEN, H. ; SAKAGUCHI, I. ; ADACHI, Y. ; HANEDA, H.: Positive Hall coefficients obtained from contact misplacement on evident n-type ZnO films and crystals. In: *Journal of Materials Research* 23 (2011), Januar, Nr. 09, 2293–2295. <http://dx.doi.org/10.1557/jmr.2008.0300>. – DOI 10.1557/jmr.2008.0300. – ISSN 0884–2914 75

- [53] MEYER, B. K. ; ALVES, H. ; HOFMANN, D. M. ; KRIEGSEIS, W. ; FORSTER, D. ; BERTRAM, F. ; CHRISTEN, J. ; HOFFMANN, A. ; STRASSBURG, M. ; DWORZAK, M. ; HABOECK, U. ; RODINA, a. V.: Bound exciton and donor-acceptor pair recombinations in ZnO. In: *physica status solidi (b)* 241 (2004), Februar, Nr. 2, 231–260. <http://dx.doi.org/10.1002/pssb.200301962>. – DOI 10.1002/pssb.200301962. – ISSN 0370–1972 75, 76, 77, 89, 158
- [54] SAIDI, I. ; BEN RADHIA, S. ; BOUJDARIA, K.: Band parameters of GaAs, InAs, InP, and InSb in the 40-band k-p model. In: *Journal of Applied Physics* 107 (2010), Nr. 4, 043701. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3295900>. – DOI 10.1063/1.3295900. – ISSN 00218979 75
- [55] FONOBEROV, V. a. ; BALANDIN, A. a.: ZnO Quantum Dots: Physical Properties and Optoelectronic Applications. In: *Journal of Nanoelectronics and Optoelectronics* 1 (2006), April, Nr. 1, 19–38. <http://dx.doi.org/10.1166/jno.2006.002>. – DOI 10.1166/jno.2006.002. – ISSN 1555130X 75, 78
- [56] THOMAS, D.G.: The exciton spectrum of zinc oxide. In: *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 15 (1960), August, Nr. 1-2, 86–96. [http://dx.doi.org/10.1016/0022-3697\(60\)90104-9](http://dx.doi.org/10.1016/0022-3697(60)90104-9). – DOI 10.1016/0022-3697(60)90104-9. – ISSN 00223697 75
- [57] HOPFIELD, J. J.: Fine structure in the optical absorption edge of anisotropic crystals. In: *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 15 (1960), August, Nr. 1-2, 97–107. [http://dx.doi.org/10.1016/0022-3697\(60\)90105-0](http://dx.doi.org/10.1016/0022-3697(60)90105-0). – DOI 10.1016/0022-3697(60)90105-0. – ISSN 00223697 75
- [58] REYNOLDS, D. ; LITTON, C. ; COLLINS, T.: Zeeman Effects in the Edge Emission and Absorption of ZnO. In: *Physical Review* 140 (1965), November, Nr. 5A, A1726–A1734. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.140.A1726>. – DOI 10.1103/PhysRev.140.A1726. – ISSN 0031-899X 75
- [59] LASKOWSKI, R. ; CHRISTENSEN, N.: Ab initio calculation of excitons in ZnO. In: *Physical Review B* 73 (2006), Januar, Nr. 4,

- 1–7. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.73.045201>. – DOI 10.1103/PhysRevB.73.045201. – ISSN 1098–0121 75
- [60] JANOTTI, A. ; VAN DE WALLE, C. G.: Fundamentals of zinc oxide as a semiconductor. In: *Reports on Progress in Physics* 72 (2009), Dezember, Nr. 12, 126501. <http://dx.doi.org/10.1088/0034-4885/72/12/126501>. – DOI 10.1088/0034-4885/72/12/126501. – ISSN 0034–4885 76, 78
- [61] MCCLUSKEY, M. D. ; JOKELA, S. J.: Defects in ZnO. In: *Journal of Applied Physics* 106 (2009), Nr. 7, 071101. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3216464>. – DOI 10.1063/1.3216464. – ISSN 00218979 76, 78
- [62] TEKLEMICHAEL, S. T. ; OO, W. M. H. ; MCCLUSKEY, M. D. ; WALTER, E. D. ; HOYT, D. W.: Acceptors in ZnO nanocrystals. In: *Applied Physics Letters* 98 (2011), Nr. 23, 232112. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3598411>. – DOI 10.1063/1.3598411. – ISSN 00036951 76
- [63] YANG, L. L. ; ZHAO, Q. X. ; XING, G. Z. ; WANG, D. D. ; WU, T. ; WILLANDER, M. ; IVANOV, I. ; YANG, J. H.: A SIMS study on Mg diffusion in Zn_{0.94}Mg_{0.06}O/ZnO heterostructures grown by metal organic chemical vapor deposition. In: *Applied Surface Science* 257 (2011), August, Nr. 20, 8629–8633. <http://dx.doi.org/10.1016/j.apsusc.2011.05.038>. – DOI 10.1016/j.apsusc.2011.05.038. – ISSN 01694332 76
- [64] BLAKEMORE, J. S.: *Semiconductor Statistics*. Mineola : Dover Publications, 2002 <http://amazon.com/o/ASIN/0486495027/>. – ISBN 9780486495026 77
- [65] AHN, C. H. ; KIM, Y. Y. ; KIM, D. C. ; MOHANTA, S. K. ; CHO, H. K.: A comparative analysis of deep level emission in ZnO layers deposited by various methods. In: *Journal of Applied Physics* 105 (2009), Nr. 1, 013502. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3054175>. – DOI 10.1063/1.3054175. – ISSN 00218979 78

- [66] ORLINSKII, S. ; SCHMIDT, J. ; BARANOV, P. ; LORRMANN, V. ; RIEDEL, I. ; RAUH, D. ; DYAKONOV, V.: Identification of shallow Al donors in Al-doped ZnO nanocrystals: EPR and ENDOR spectroscopy. In: *Physical Review B* 77 (2008), März, Nr. 11, 115334. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.77.115334>. – DOI 10.1103/PhysRevB.77.115334. – ISSN 1098–0121 78, 82
- [67] LANE, P. ; GREENE, R.: Shallow donors in multiple-well GaAs-Ga_{{1-x}Al_{x}}As heterostructures. In: *Physical Review B* 33 (1986), April, Nr. 8, 5871–5874. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.33.5871>. – DOI 10.1103/PhysRevB.33.5871. – ISSN 0163–1829 78
- [68] QUANG, D. N. ; TUAN, L. ; TIEN, N. T.: Electron scattering from roughness-induced fluctuations in the donor density in ZnO surface quantum wells. In: *Journal of Applied Physics* 107 (2010), Nr. 12, 123709. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3383048>. – DOI 10.1063/1.3383048. – ISSN 00218979 79
- [69] BECK, M.: *Electron spin relaxation, transport and strain-induced precession in n-GaAs*, Univ. Nürnberg-Erlangen, Diss., 2004 79
- [70] DZYALOSHINSKY, I: A thermodynamic theory of "weak"ferromagnetism of antiferromagnetics. In: *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 4 (1958), Januar, Nr. 4, 241–255. [http://dx.doi.org/10.1016/0022-3697\(58\)90076-3](http://dx.doi.org/10.1016/0022-3697(58)90076-3). – DOI 10.1016/0022–3697(58)90076–3. – ISSN 00223697 79
- [71] MORIYA, T.: Anisotropic Superexchange Interaction and Weak Ferromagnetism. In: *Physical Review* 120 (1960), Oktober, Nr. 1, 91–98. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.120.91>. – DOI 10.1103/PhysRev.120.91. – ISSN 0031–899X 79
- [72] KAVOKIN, K.: Anisotropic exchange interaction of localized conduction-band electrons in semiconductors. In: *Physical Review B* 64 (2001), Juli, Nr. 7, 75305. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.64.075305>. – DOI 10.1103/PhysRevB.64.075305. – ISSN 0163–1829 79

- [73] DYAKONOV, M. I. ; PEREL, V. I.: Spin Relaxation of Conduction Electrons in Noncentrosymmetric Semiconductors. In: *Sov. Phys. Solid State* 13 (1972), Nr. 12, S. 3023–80
- [74] WU, M. W. ; NING, C. Z.: Dyakonov-Perel Effect on Spin Dephasing in n-Type GaAs. In: *physica status solidi (b)* 222 (2000), November, Nr. 2, 523–534. [http://dx.doi.org/10.1002/1521-3951\(200011\)222:2<523::AID-PSSB523>3.0.CO;2-0](http://dx.doi.org/10.1002/1521-3951(200011)222:2<523::AID-PSSB523>3.0.CO;2-0). – DOI 10.1002/1521-3951(200011)222:2<523::AID-PSSB523>3.0.CO;2-0. – ISSN 0370-1972 80
- [75] HARMON, N. ; PUTIKKA, W. ; JOYNT, R.: Theory of electron spin relaxation in ZnO. In: *Physical Review B* 79 (2009), März, Nr. 11, 115204. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.79.115204>. – DOI 10.1103/PhysRevB.79.115204. – ISSN 1098-0121 80
- [76] HAUG, H. ; JAUHO, A.-P. ; CARDONA, Manuel (Hrsg.) ; FULDE, Peter (Hrsg.) ; KLITZING, Klaus von (Hrsg.) ; QUEISSER, Hans-Joachim (Hrsg.) ; MERLIN, Roberto (Hrsg.) ; STÖRMER, Horst (Hrsg.): *Solid-State Sciences*. Bd. 123: *Quantum Kinetics in Transport and Optics of Semiconductors*. 2. Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 2008. <http://dx.doi.org/10.1007/978-3-540-73564-9>. <http://dx.doi.org/10.1007/978-3-540-73564-9>. – ISBN 978-3-540-73561-8 80
- [77] MERKULOV, I A.: Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots. In: *Physical Review B* 65 (2002), April, Nr. 20, 205309. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.65.205309>. – DOI 10.1103/PhysRevB.65.205309. – ISSN 1098-0121 80, 81
- [78] SANSONETTI, J. E.: Handbook of Basic Atomic Spectroscopic Data. In: *Journal of Physical and Chemical Reference Data* 34 (2005), Nr. 4, 1559. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1800011>. – DOI 10.1063/1.1800011. – ISSN 00472689 80
- [79] WHITAKER, K. M. ; OCHSENBEIN, S. T. ; SMITH, A. L. ; ECHODU, D. C. ; ROBINSON, B. H. ; GAMELIN, D. R.: Hyperfine Coupling

- in Colloidal n-Type ZnO Quantum Dots: Effects on Electron Spin Relaxation. In: *The Journal of Physical Chemistry C* 114 (2010), August, Nr. 34, 100811135629041. <http://dx.doi.org/10.1021/jp106356y>. – DOI 10.1021/jp106356y. – ISSN 1932-7447 81, 94, 128
- [80] BRAUN, P.-F. ; MARIE, X. ; LOMBEZ, L. ; URBASZEK, B. ; AMAND, T. ; RENUCCI, P. ; KALEVICH, V. ; KAVOKIN, K. ; KREBS, O. ; VOISIN, P. ; MASUMOTO, Y.: Direct Observation of the Electron Spin Relaxation Induced by Nuclei in Quantum Dots. In: *Physical Review Letters* 94 (2005), März, Nr. 11, 116601. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.94.116601>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.94.116601. – ISSN 0031-9007 81
- [81] LIANG, W. ; YOFFE, A.: Transmission Spectra of ZnO Single Crystals. In: *Physical Review Letters* 20 (1968), Januar, Nr. 2, 59–62. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.20.59>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.20.59. – ISSN 0031-9007 85, 91
- [82] LAMBERT, J. H.: Photometria, sive de mensura et gradibus luminis, colorum et umbrae. In: *Sumptibus Vidae Eberhardi Klett* 1 (1760), S. 547 85
- [83] BEER, A.: Bestimmung der Absorption des rothen Lichts in farbigen Flüssigkeiten. In: *Annalen der Physik und Chemie* 86 (1852), S. 78–88 85
- [84] WEINER, A. M.: *Ultrafast Optics*. Hoboken, NJ, USA : John Wiley & Sons, Inc., 2009. – 580 S. <http://dx.doi.org/10.1002/9780470473467>. <http://dx.doi.org/10.1002/9780470473467>. – ISBN 9780470473467 87
- [85] WAGNER, M. ; CALLSEN, G. ; REPARAZ, J. ; SCHULZE, J.-H. ; KIRSTE, R. ; COBET, M. ; OSTAPENKO, I. ; RODT, S. ; NENSTIEL, C. ; KAISER, M. ; HOFFMANN, A. ; RODINA, A. ; PHILLIPS, M. ; LAUTENSCHLÄGER, S. ; EISERMANN, S. ; MEYER, B.: Bound excitons in ZnO: Structural defect complexes versus shallow impurity centers. In: *Physical Review B* 84 (2011), Juli, Nr. 3,

035313. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.84.035313>. – DOI 10.1103/PhysRevB.84.035313. – ISSN 1098–0121 88, 111
- [86] THONKE, K. ; GRUBER, T. ; TEOFILOV, N. ; SCHÖNFELDER, R. ; WAAG, A. ; SAUER, R.: Donor-acceptor pair transitions in ZnO substrate material. In: *Physica B: Condensed Matter* 308-310 (2001), Dezember, 945–948. [http://dx.doi.org/10.1016/S0921-4526\(01\)00877-8](http://dx.doi.org/10.1016/S0921-4526(01)00877-8). – DOI 10.1016/S0921-4526(01)00877-8. – ISSN 09214526 88
- [87] TRAVNIKOV, V.V. ; FREIBERG, A. ; SAVIKHIN, S.F.: Surface excitons in ZnO crystals. In: *Journal of Luminescence* 47 (1990), Oktober, Nr. 3, 107–112. [http://dx.doi.org/10.1016/0022-2313\(90\)90006-w](http://dx.doi.org/10.1016/0022-2313(90)90006-w). – DOI 10.1016/0022-2313(90)90006-W. – ISSN 00222313 89, 109
- [88] KOIDA, T. ; CHICHIBU, S. F. ; UEDONO, A. ; TSUKAZAKI, A. ; KAWASAKI, M. ; SOTA, T. ; SEGAWA, Y. ; KOINUMA, H.: Correlation between the photoluminescence lifetime and defect density in bulk and epitaxial ZnO. In: *Applied Physics Letters* 82 (2003), Nr. 4, 532. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1540220>. – DOI 10.1063/1.1540220. – ISSN 00036951 90, 125, 127, 159
- [89] MEYER, B. ; SANN, J. ; EISERMANN, S. ; LAUTENSCHLAEGER, S. ; WAGNER, M. ; KAISER, M. ; CALLSEN, G. ; REPARAZ, J. ; HOFFMANN, A.: Excited state properties of donor bound excitons in ZnO. In: *Physical Review B* 82 (2010), September, Nr. 11, 1–8. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.82.115207>. – DOI 10.1103/PhysRevB.82.115207. – ISSN 1098–0121 90, 91
- [90] GONZALEZ, C. ; BLOCK, D. ; COX, R. T. ; HERVÉ, A.: Magnetic resonance studies of shallow donors in zinc oxide. In: *Journal of Crystal Growth* 59 (1982), September, Nr. 1-2, 357–362. [http://dx.doi.org/10.1016/0022-0248\(82\)90351-7](http://dx.doi.org/10.1016/0022-0248(82)90351-7). – DOI 10.1016/0022-0248(82)90351-7. – ISSN 00220248 94
- [91] GHOSH, S. ; SIH, V. ; LAU, W. H. ; AWSCHALOM, D. D. ; BAE, S.-Y. ; WANG, S. ; VAIDYA, S. ; CHAPLINE, G.: Room-temperature

- spin coherence in ZnO. In: *Applied Physics Letters* 86 (2005), Nr. 23, 232507. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1946204>. – DOI 10.1063/1.1946204. – ISSN 00036951 94, 121
- [92] LIU, W. ; WHITAKER, K. ; SMITH, A. ; KITTLSTVED, K. ; ROBINSON, B. ; GAMELIN, D.: Room-Temperature Electron Spin Dynamics in Free-Standing ZnO Quantum Dots. In: *Physical Review Letters* 98 (2007), Mai, Nr. 18, 186804. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.98.186804>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.98.186804. – ISSN 0031–9007 94, 97
- [93] JANSSEN, N. ; WHITAKER, K. M. ; GAMELIN, D. R. ; BRATSCHITSCH, R.: Ultrafast spin dynamics in colloidal ZnO quantum dots. In: *Nano letters* 8 (2008), Juli, Nr. 7, 1991–4. <http://dx.doi.org/10.1021/nl801057q>. – DOI 10.1021/nl801057q. – ISSN 1530–6984 94
- [94] HUANG, Q. ; STEEL, D.: Optical excitation effects on spin-noise spectroscopy in semiconductors. In: *Physical Review B* 83 (2011), April, Nr. 15, 1–7. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.83.155204>. – DOI 10.1103/PhysRevB.83.155204. – ISSN 1098–0121 97
- [95] BLOCK, D. ; HERVÉ, A. ; COX, R.: Optically detected magnetic resonance and optically detected ENDOR of shallow indium donors in ZnO. In: *Physical Review B* 25 (1982), Mai, Nr. 9, 6049–6052. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.25.6049>. – DOI 10.1103/PhysRevB.25.6049. – ISSN 0163–1829 99
- [96] HOFMANN, D. ; HOFSTAETTER, A. ; LEITER, F. ; ZHOU, H. ; HENECKER, F. ; MEYER, B. ; ORLINSKII, S. ; SCHMIDT, J. ; BARANOV, P.: Hydrogen: A Relevant Shallow Donor in Zinc Oxide. In: *Physical Review Letters* 88 (2002), Januar, Nr. 4, 1–4. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.88.045504>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.88.045504. – ISSN 0031–9007 99
- [97] PARK, W.I. .. ; YI, G.-C. ; KIM, M. Y. ; PENNYCOOK, S. J.: Quantum Confinement Observed in ZnO/ZnMgO Nanorod Heterostructures. In: *Advanced Materials* 15 (2003), März, Nr. 6,

- 526–529. <http://dx.doi.org/10.1002/adma.200390122>. – DOI 10.1002/adma.200390122. – ISSN 09359648 106, 107
- [98] CAO, B. Q. ; ZUNIGA-PEREZ, J. ; BOUKOS, N. ; CZEKALLA, C. ; HILMER, H. ; LENZNER, J. ; TRAVLOS, A. ; LORENZ, M. ; GRUNDMANN, M.: Homogeneous core/shell ZnO/ZnMgO quantum well heterostructures on vertical ZnO nanowires. In: *Nanotechnology* 20 (2009), Juli, Nr. 30, 305701. <http://dx.doi.org/10.1088/0957-4484/20/30/305701>. – DOI 10.1088/0957-4484/20/30/305701. – ISSN 1361-6528 106, 120
- [99] PARK, W. I. ; AN, S. J. ; YANG, J. L. ; YI, G.-C. ; HONG, S. ; JOO, T. ; KIM, M.: Photoluminescent Properties of ZnO/Zn 0.8 Mg 0.2 O Nanorod Single-Quantum-Well Structures. In: *The Journal of Physical Chemistry B* 108 (2004), Oktober, Nr. 40, 15457–15460. <http://dx.doi.org/10.1021/jp046559t>. – DOI 10.1021/jp046559t. – ISSN 1520-6106 106, 112
- [100] JAEGER, R. C. ; NEUDECK, Gerold W. (Hrsg.) ; PIERRET, Robert F. (Hrsg.): *Introduction to Microelectronic Fabrication*. 2nd. New Jersey : Prentice Hall, 2002. – ISBN 0-201-44494-7 106
- [101] BHATTACHARYA, P. ; DAS, Rasmi R. ; KATIYAR, Ram S.: Comparative study of Mg doped ZnO and multilayer ZnO/MgO thin films. In: *Thin Solid Films* 447-448 (2004), Januar, 564–567. <http://dx.doi.org/10.1016/j.tsf.2003.07.017>. – DOI 10.1016/j.tsf.2003.07.017. – ISSN 00406090 107
- [102] CHO, J. Y. ; KIM, I. K. ; JUNG, I. O. ; MOON, J.-H. ; KIM, J. H.: Effects of Mg doping concentration on the band gap of ZnO/Mg_xZn_{1-x}O multilayer thin films prepared using pulsed laser deposition method. In: *Journal of Electroceramics* 23 (2008), April, Nr. 2-4, 442–446. <http://dx.doi.org/10.1007/s10832-008-9485-3>. – DOI 10.1007/s10832-008-9485-3. – ISSN 1385-3449 107, 112
- [103] LAGARDE, D. ; BALOCCHI, A. ; RENUCCI, P. ; CARRÈRE, H. ; ZHAO, F. ; AMAND, T. ; MARIE, X. ; MEI, Z. ; DU, X. ; XUE,

- Q.: Exciton and hole spin dynamics in ZnO investigated by time-resolved photoluminescence experiments. In: *Physical Review B* 78 (2008), Juli, Nr. 3, 3–6. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.78.033203>. – DOI 10.1103/PhysRevB.78.033203. – ISSN 1098–0121 108, 116
- [104] IZUKA, K.: *ELEMENTS OF PHOTONICS Volume I*. Bd. I. John Wiley & Sons, Inc., 2002. – 1–604 S. – ISBN 0471839388 108
- [105] GRABOWSKA, J. ; MEANEY, A. ; NANDA, K. ; MOSNIER, J.-P. ; HENRY, M. ; DUCLÈRE, J.-R. ; MCGLYNN, E.: Surface excitonic emission and quenching effects in ZnO nanowire/nanowall systems: Limiting effects on device potential. In: *Physical Review B* 71 (2005), März, Nr. 11, 1–7. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.71.115439>. – DOI 10.1103/PhysRevB.71.115439. – ISSN 1098–0121 109
- [106] VOSS, T. ; RICHTERS, J.-P. ; DEV, A.: Surface effects and nonlinear optical properties of ZnO nanowires. In: *physica status solidi (b)* 247 (2010), August, Nr. 10, 2476–2487. <http://dx.doi.org/10.1002/pssb.201046191>. – DOI 10.1002/pssb.201046191. – ISSN 03701972 109
- [107] AL-SULEIMAN, M. ; CHE MOFOR, A. ; EL-SHAER, A. ; BAKIN, A. ; WEHMANN, H.-H. ; WAAG, A.: Photoluminescence properties: Catalyst-free ZnO nanorods and layers versus bulk ZnO. In: *Applied Physics Letters* 89 (2006), Nr. 23, 231911. <http://dx.doi.org/10.1063/1.2399349>. – DOI 10.1063/1.2399349. – ISSN 00036951 109, 110
- [108] JEN, F.-Y. ; LU, Y.-C. ; CHEN, C.-Y. ; WANG, H.-C. ; YANG, C. C. ; ZHANG, B.-P. ; SEGAWA, Y.: Ultrafast biexciton dynamics in a ZnO thin film. In: *Applied Physics Letters* 87 (2005), Nr. 7, 072103. <http://dx.doi.org/10.1063/1.2012539>. – DOI 10.1063/1.2012539. – ISSN 00036951 109
- [109] CORFDIR, P. ; ABID, M. ; MOUTI, A. ; STADELMANN, P. a. ; PAPA, E. ; ANSERMET, J.-P. ; GANIÈRE, J.-D. ; DEVEAUD-PLÉDRAN, B.:

- Biexciton emission and crystalline quality of ZnO nano-objects. In: *Nanotechnology* 22 (2011), Juli, Nr. 28, 285710. <http://dx.doi.org/10.1088/0957-4484/22/28/285710>. – DOI 10.1088/0957-4484/22/28/285710. – ISSN 1361-6528 109, 120
- [110] KO, H. J. ; CHEN, Y. F. ; YAO, T. ; MIYAJIMA, K. ; YAMAMOTO, a. ; GOTO, T.: Biexciton emission from high-quality ZnO films grown on epitaxial GaN by plasma-assisted molecular-beam epitaxy. In: *Applied Physics Letters* 77 (2000), Nr. 4, 537. <http://dx.doi.org/10.1063/1.127036>. – DOI 10.1063/1.127036. – ISSN 00036951 110
- [111] AL-SULEIMAN, M. ; BAKIN, A. ; WAAG, A.: Mechanisms for high internal quantum efficiency of ZnO nanorods. In: *Journal of Applied Physics* 106 (2009), Nr. 6, 063111. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3226071>. – DOI 10.1063/1.3226071. – ISSN 00218979 110
- [112] YANG, L. L. ; ZHAO, Q. X. ; ISRAR, M. Q. ; SADAF, J. R. ; WILLANDER, M. ; POZINA, G. ; YANG, J. H.: Indirect optical transition due to surface band bending in ZnO nanotubes. In: *Journal of Applied Physics* 108 (2010), Nr. 10, 103513. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3511345>. – DOI 10.1063/1.3511345. – ISSN 00218979 111, 116
- [113] OGATA, K. ; KOIKE, K. ; TANITE, T. ; KOMURO, T. ; YAN, F. ; SASA, S. ; INOUE, M. ; YANO, M.: ZnO and ZnMgO growth on a-plane sapphire by molecular beam epitaxy. In: *Journal of Crystal Growth* 251 (2003), April, Nr. 1-4, 623-627. [http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248\(02\)02277-7](http://dx.doi.org/10.1016/S0022-0248(02)02277-7). – DOI 10.1016/S0022-0248(02)02277-7. – ISSN 00220248 112
- [114] HAYNES, J. R. R.: Experimental Proof of the existence of a new electronic complex in Si. In: *Physical Review Letters* 4 (1960), Nr. 7, S. 361 115
- [115] CHASSAING, P.-M. ; BALOCCHI, A. ; AMAND, T. ; SAINT-MACARY, L. ; KAHN, M. L. ; CHAUDRET, B. ; MARIE, X.: Optical alignment

- of the exciton in ZnO nanoparticles. In: *Applied Physics Letters* 97 (2010), Nr. 19, 192112. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3504252>. – DOI 10.1063/1.3504252. – ISSN 00036951 116
- [116] LAGARDE, D. ; BALOCCHI, A. ; RENUCCI, P. ; CARRÈRE, H. ; AMAND, T. ; MARIE, X. ; MEI, Z. ; DU, X.: Hole spin quantum beats in bulk ZnO. In: *Physical Review B* 79 (2009), Januar, Nr. 4, 1–5. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.79.045204>. – DOI 10.1103/PhysRevB.79.045204. – ISSN 1098–0121 116, 127
- [117] BUYANOVA, I. a. ; MURAYAMA, A. ; FURUTA, T. ; OKA, Y. ; NORTON, D. P. ; PEARTON, S. J. ; OSINSKY, A. ; DONG, J. W. ; TU, C. W. ; CHEN, W. M.: Spin Dynamics in ZnO-Based Materials. In: *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism* 23 (2009), September, Nr. 1, 161–165. <http://dx.doi.org/10.1007/s10948-009-0551-0>. – DOI 10.1007/s10948-009-0551-0. – ISSN 1557–1939 116, 121, 127
- [118] HEISENBERG, W.: Über den anschaulichen Inhalt der quantentheoretischen Kinematik und Mechanik. In: *Zeitschrift für Physik* 43 (1927), März, Nr. 3-4, 172–198. <http://dx.doi.org/10.1007/BF01397280>. – DOI 10.1007/BF01397280. – ISSN 1434–6001 117
- [119] HÄGELE, D. ; PFALZ, S. ; OESTREICH, M.: Towards Bose-Einstein Condensation of Semiconductor Excitons: The Biexciton Polarization Effect. In: *Physical Review Letters* 103 (2009), September, Nr. 14, 1–4. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.103.146402>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.103.146402. – ISSN 0031–9007 119
- [120] GHOSH, S. ; STEUERMAN, D. W. ; MAERTZ, B. ; OHTANI, K. ; XU, H. ; OHNO, H. ; AWSCHALOM, D. D.: Electrical control of spin coherence in ZnO. In: *Applied Physics Letters* 92 (2008), Nr. 16, 162109. <http://dx.doi.org/10.1063/1.2913049>. – DOI 10.1063/1.2913049. – ISSN 00036951 121, 127, 158
- [121] LANYON, B. P. ; HEMPEL, C. ; NIGG, D. ; MÜLLER, M. ; GERRITSMAN, R. ; ZÄHRINGER, F. ; SCHINDLER, P. ; BARREIRO, J. T. ; RAMBACH, M. ; KIRCHMAIR, G. ; HENNRICH, M. ; ZOLLER, P. ; BLATT,

- R. ; ROOS, C. F.: Universal digital quantum simulation with trapped ions. In: *Science (New York, N.Y.)* 334 (2011), Oktober, Nr. 6052, 57–61. <http://dx.doi.org/10.1126/science.1208001>. – DOI 10.1126/science.1208001. – ISSN 1095–9203 126
- [122] BERSKI, F. ; KUHN, H. ; LONNEMANN, J. G. ; HÜBNER, J. ; OESTREICH, M.: Ultrahigh Bandwidth Spin Noise Spectroscopy: Detection of Large g-Factor Fluctuations in Highly n-Doped GaAs. (2012), Juni, 5. <http://arxiv.org/abs/1207.0081> 127
- [123] REUTERS, Thomson: *WEB OF KNOWLEDGE*. <http://apps.webofknowledge.com>. Version: 2012 129
- [124] T NGUYEN a ; WANG, L-B ; SCHAUER, M M. ; TORGERSON, J R.: Extended temperature tuning of an ultraviolet diode laser for trapping and cooling single Yb⁺ ions. In: *The Review of scientific instruments* 81 (2010), Mai, Nr. 5, 053110. <http://dx.doi.org/10.1063/1.3386580>. – DOI 10.1063/1.3386580. – ISSN 1089–7623 146
- [125] O'DONNELL, K. P. ; CHEN, X.: Temperature dependence of semiconductor band gaps. In: *Applied Physics Letters* 58 (1991), Nr. 25, 2924. <http://dx.doi.org/10.1063/1.104723>. – DOI 10.1063/1.104723. – ISSN 00036951 146
- [126] WRZESINSKI, J ; FRÖHLICH, D.: Two-photon and three-photon spectroscopy of ZnO under uniaxial stress. In: *Physical Review B* 56 (1997), November, Nr. 20, 13087–13093. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.56.13087>. – DOI 10.1103/PhysRevB.56.13087. – ISSN 0163–1829 158

Publikationsliste

Teile dieser Arbeit sind zur Veröffentlichung eingereicht und/oder erschienen in:

HORN, H.; MÜLLER, G. M.; RASEL, E. M.; SANTOS, L.; HÜBNER, J.; OESTREICH, M.: Spin-noise spectroscopy under resonant optical probing conditions: Coherent and nonlinear effects. In: *Phys. Rev. A* 84 (2011), Oktober, 043851 - DOI: 10.1103/PhysRevA.84.043851

HORN, H.; BALOCCHI, A.; MARIE, X.; BAKIN, A.; WAAG, A.; OESTREICH, M.; HÜBNER, J.: Spin noise spectroscopy of donor bound electrons in ZnO. Eingereicht bei *Phys. Rev. B* (2012), veröffentlicht bei arXiv:1209.5667

HORN, H.; BALOCCHI, A.; MARIE, X.; BAKIN, A.; WAAG, A.; HÜBNER, J.; OESTREICH, M.: Spin noise spectroscopy of ZnO. Angenommen bei *Physica E* (2012), Dezember

Sonstige Veröffentlichung:

SCHULTE, C. H. H.; MÜLLER, G. M.; HORN, H.; HÜBNER, J.; OESTREICH, M.: Analyzing atomic noise with a consumer sound card. In: *Am. J. Phys.* 80 (2012), March, 240 - DOI: 10.1119/1.3663275

Publikationsliste

Beiträge auf Konferenzen und Workshops:

“Spin Noise of Rubidium Atoms”, *Halbleiter Spintronik Sommerschule* in Goslar, September 2008 (Poster).

“Spin Noise Spectroscopy of ZnO”, *DPG Frühjahrstagung* in Regensburg, März 2010 (Poster).

“Time resolved photoluminescence spectroscopy of ZnO/Zn_{1-x}Mg_xO MQWs on nanorods”, *NTH autumn workshop* in Hameln, November 2010 (Poster).

“Time resolved photoluminescence studies of ZnO nanorod MQWs”, *NTH winter school* in Bad Hofgastein, Februar 2011 (Vortrag).

“Resonant spin noise spectroscopy at the rubidium D₂ transition”, *DPG Frühjahrstagung* in Dresden, März 2011 (Vortrag).

“Spin Noise Spectroscopy of ZnO”, *NTH autumn workshop* in Hannover, Oktober 2011 (Poster).

“Spin noise spectroscopy on ZnO”, *DPG Frühjahrstagung* in Berlin, März 2012 (Vortrag).

“Spin noise of localized donor electrons in ZnO”, *NTH spring workshop* in Goslar, Mai 2012 (Poster & Vortrag).

“Spin noise spectroscopy of ZnO”, *ICPS* in Zürich, Juli/August 2012 (Poster).

Lebenslauf

von **Hauke Horn**, geboren am 11. Mai 1981 in Tönning

- 07/87–06/01** Schulausbildung mit Abitur in Löhne
- 07/01–10/01** Vorpraktikum zum Elektrotechnikstudium
Convertronic Industrieelektronik GmbH
- 10/01–09/02** Studium Elektrotechnik *Universität Hannover*
- 10/02–03/08** Studium Physik *Universität Hannover*
- 08/05–07/06** Auslandsstudium Physik
Uppsala Universität, Schweden
- 03/08** Physik Diplom *Leibniz Universität Hannover*
- 04/08–12/12** Wissenschaftlicher Mitarbeiter
& Vorbereitung der Dissertation
*Institut für Festkörperphysik,
Abteilung Nanostrukturen,
Leibniz Universität Hannover*

Universitäres Engagement

- 10/02–09/04** Ratsmitglied des Hochschulchores
Universität Hannover
- 04/07–12/12** Studentischer Vertreter bzw. Vertreter der
wissenschaftlichen Mitarbeiter im Institutsvorstand
Institut für Festkörperphysik
- 10/09–04/12** Sportsobmann bzw. stellvertretender Sportsobmann
Institut für Festkörperphysik
- 04/09–12/12** Stellvertretendes Mitglied des Fakultätsrats
Mathematik und Physik
- 10/10–12/12** Webadministrator für die Seiten
nano.uni-hannover.de/gruppe-oestreich
und spinelektronik.de

Danksagungen

An dieser Stelle möchte ich allen Personen danken, die mir im Verlauf meiner Dissertation beigestanden und geholfen haben. Zunächst danke ich Herrn Prof. Dr. Michael Oestreich, der es mir ermöglicht hat, in seiner Arbeitsgruppe diese herausfordernden Aufgabenstellungen zu bearbeiten. Über die Betreuung hinaus konnte er mir viele Erfahrungen für mein zukünftiges Vorankommen vermitteln.

Herrn Prof. Dr. Andreas Waag danke ich für die Übernahme des Korreferates und Herrn Prof. Dr. Holger Frahm für die Übernahme des Vorsitzes der Prüfungskommission.

Herrn Prof. Dr. Rolf Haug danke ich für die Leitung der Abteilung Nanostrukturen und für die meistens kurzen Abteilungssitzungen.

Danken möchte ich auch allen Personen, die sich mit dem Thema Spinrauschspektroskopie auskennen und mir bei vielen wissenschaftlichen Details weitergeholfen haben. Herrn Dr. Jens Hübner danke ich für die zahlreichen Ratschläge und hilfreichen Diskussionen, die ein vorankommen dieser Dissertation ermöglichten. Herrn Dr. Michael Römer und Fabian Berski danke ich für ihre Unterstützung und fruchtbaren Diskussionen nicht nur auf der wissenschaftlichen Ebene, sondern auch in technischen, sowie zwischenmenschlichen Belangen.

Besonders danke ich Herrn *Dr.* Henrik Schmidt für die vielen Diskussionen, Übersetzungshelferchen, Korrekturen, Ratschläge, *geistigen* Streicheleinheiten, Kaffee und überhaupt für eine super Atmosphäre im Büro. Ich wünsche ihm viel Spaß und Erfolg in Singapur! Möge der Alkohol dort nicht zu teuer und die Feiern genauso feucht-fröhlich sein wie hier! ☺

Allen aktuellen sowie ehemaligen Mitgliedern unserer Arbeitsgruppe gilt ein großer Dank für die positive Atmosphäre: hierzu gehören Ramin Dahbashi, Dave English, Peter Eldrige, Jan Gerrit Lonnemann, Hendrik Kuhn, Stefan Oertel, Michael Römer und Georg Müller. Auch meinen

Publikationsliste

ehemaligen Bachelorstudenten Carsten Schulte und Arthur Varkentin gilt großer Dank für ihr Engagement während ihrer Zeit im Institut. Für eine sehr gute Atmosphäre und viel Abwechslung in der Abteilung danke ich allen weiteren aktuellen und ehemaligen Nanos, vor allem aber Alexander Heine, Dmitri Smirnov, Monika Kotzian, Lina Bockhorn, Nandavel Sethubalasubramanian, Max Rogge, Daniel Tutuc, Niels Ubbelohde, Eddy Rugeramigabo, Manfred Marquardt und Christopher Belke.

Ramin Dahbashi danke ich für eine sehr positive Atmosphäre im LNQE: Irgendwas ist immer!

Ronny Hüther danke ich für seinen technischen Support und viele nützliche Tips.

Yvonne Griep danke ich für ihre Unterstützung im Sekretariat und bei allem, was noch so anfiel. Danken möchte ich auch Klara Wernecke für den Schlüssel und ihre aufmunternden Gespräche.

Für das Korrekturlesen danke ich Jens Hübner, Hennrik Schmidt, Fabian Berski, Jan Gerrit Lonnemann, Hendrik Kuhn, Dmitri Smirnov und Karo.

Danken möchte ich besonders auch allen Nicht-Physikern, die mich während meiner Promotion ertragen haben und mir stets eine moralische Stütze bieten:

Meiner Familie, allen voran Doro, Wolfgang und Hinrich. Uwe und seiner Familie danke ich trotz des recht seltenen Kontakts. Für seine guten Ratschläge, das Korrigieren meiner Bewerbung und für seine Hilfestellung finanzieller Art danke ich Friedrich. Harro danke ich für zerstreuende Theorien, mit denen es nicht langweilig wird. Ich danke Susanne für ihre stets gute Laune, außerdem Ingeborg, Hans-Harro, Sven-Iver und Wibke.

Wojciech, Nadine, Yvonne und Gabi danke ich für den notwendigen Ausgleich mit etwaigen Shadowrun-, Vampire-, Jäger- und DSA-Kampagnen.

Und last, but not at all least: Karo – ohne Dich wäre dieses Buch nicht entstanden.

The lesson is that one
should not give up too
soon and one should not
always look for gold at the
ends of the new rainbows.

(William Shockley)