ETH zürich

ETH Library

Coherent femtosecond spectroscopy of exciton-continuum interaction in semiconductors

Doctoral Thesis

Author(s):
Arlt, Sebastian

Publication date:
1999

Permanent link:
https://doi.org/https://doi.org/10.3929/ethz-a-003880190

Rights / license:
In Copyright - Non-Commercial Use Permitted

This page was generated automatically upon download from the ETH Zurich Research Collection.
For more information, please consult the Terms of use.

Diss. ETH Nr. 13475

Coherent Femtosecond Spectroscopy of Exciton-Continuum Interaction in Semiconductors

A dissertation submitted to the

Swiss Federal Institute of Technology Zürich

for the degree of

Doctor of Natural Sciences

presented by

Sebastian Arlt

Dipl.-Phys. (Georg-August-Universität Göttingen, Germany)

born on February 9, 1969

citizen of Germany

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. Ursula Keller, examiner

PD Dr. Uwe Siegner, co-examiner

date of examination: December 20, 1999

December, 1999

Abstract

This thesis investigates the coherent interaction between exciton and continuum transitions in semiconductors and semiconductor quantum wells with transient four-wave-mixing spectroscopy.

The advent of ultrashort and, consequently, ultrabroadband laser pulses generated with Titanium:Sapphire lasers allows for the study of coherent properties of continuum transitions, exciton transitions and interactions among them in gallium arsenide (GaAs) and aluminum gallium arsenide ($Al_xGa_{1-x}As$) semiconductors.

The linear optical properties of energetically degenerate exciton and continuum transitions in semiconductor quantum wells are investigated by means of linear absorption measurements. It is shown that energetically degenerate exciton and continuum transitions in semiconductor quantum wells form exciton Fano continua. The coupling between the degenerate exciton and continuum transitions is due to the bare Coulomb potential in the linear regime. The linear optical properties of exciton Fano continua can be described by the atomic physics Fano model.
The nonlinear optical properties of energetically degenerate exciton and continuum transitions in semiconductor quantum wells in the coherent regime are investigated by means of four-wave-mixing spectroscopy. It is shown that the nonlinear optical properties of exciton Fano continua strongly disagree with the predictions of the atomic physics Fano model due to strong many-body Coulomb coupling between exciton and continuum transitions in the coherent regime. These discrepancies manifest themselves in a pulse-width limited decay of the temporally integrated four-wave-mixing signal although the four-wave-mixing power spectrum shows narrow lines and the dephasing times are much longer than the pulse width. This many-body Coulomb coupling is also important for the coherent

dynamics of non-degenerate exciton and continuum transitions in semiconductors. To account for this many-body Coulomb coupling, a density dependent dephasing term has to be included into the semiconductor Bloch equations. This mechanism is also known as excitation induced dephasing.

Coherent optical properties of continuum transitions can be transferred to discrete exciton resonances due to the many-body Coulomb coupling by means of specially designed four-wave-mixing experiments. This mechanism can also be used in the reversed direction to transfer coherent properties of discrete excitons to continuum transitions. The transfer process can be understood in a common ground state picture of strongly interacting transitions. The underlying concept is applicable to other systems with a common ground state.

At higher carrier densities the many-body Coulomb coupling between exciton and continuum transitions becomes weaker and normal dephasing behavior dominates. The dephasing can be described accounting for carrier-carrier and carrier-phonon scattering. In this density regime, the nonlinear optical properties of semiconductors can be described by the semiconductor Bloch equations.

This thesis shows that the exciton continuum coupling due to many-body Coulomb interaction strongly affects the nonlinear optical properties of semiconductors in the coherent regime.

Kurzfassung

In der vorliegenden Arbeit wird die kohärente Wechselwirkung zwischen Exziton- und Kontinuumsanregungen in Halbleitern und Halbleiterquantenfilmen mit Hilfe des transienten Vierwellenmischens untersucht.

Ultrakurze und spektral extrem breite Laserpulse, die von einem Titan-Saphir-Laser erzeugt werden, ermöglichen die Untersuchung kohärenter Eigenschaften von Kontinuumsanregungen und Exzitonanregungen und die Untersuchung der kohärenten Wechselwirkung zwischen diesen Anregungen in Galliumarsenid (GaAs) und Aluminium-Galliumarsenid ($Al_xGa_{1-x}As$) Halbleitern.

Die linearen optischen Eigenschaften von energetisch entarteten Exziton- und Kontinuumsanregungen in Halbleiterquantenfilmen werden mit linearen Absorptionsmessungen untersucht. Diese Messungen zeigen, dass energetisch entartete Exziton- und Kontinuumsanregungen in Halbleiterquantenfilmen exzitonische Fano-Kontinua bilden. Die Kopplung zwischen den Exziton- und Kontinuumsanregungen wird durch das blosse Coulombpotential vermittelt. Die linearen optischen Eigenschaften dieser exzitonischen Fano-Kontinua können mit dem atomaren Fano-Modell beschrieben werden.
Die nichtlinearen optischen Eigenschaften energetisch entarteter Exziton- und Kontinuumsanregungen in Halbleiterquantenfilmen werden im kohärenten Regime mit Hilfe der transienten Vierwellenmischspektroskopie untersucht. Dabei stellt sich heraus, dass die nichtlinearen optischen Eigenschaften der exzitonischen Fano-Kontinua stark von den Voraussagen des atomaren Fano-Modells abweichen. Die Abweichung kommt durch die starke Vielteilchen-Coulomb-Kopplung zwischen Exziton- und Kontinuumsanregungen zustande. Diese Abweichungen äussern sich unter anderem durch einen pulsbegrenzten Abfall des zeitintegrierten

Vierwellenmischsignals, obwohl das Vierwellenmischspektrum schmale Linien zeigt und die Dephasierungszeiten viel länger als die Laserpulsbreiten sind. Diese Vielteilchen-Kopplung ist auch wichtig für die kohärente Dynamik energetisch nicht-entarteter Exziton- und Kontinuumsanregungen in Halbleitern. Um diese Vielteilchen-Kopplung theoretisch zu beschreiben, müssen dichteabhängige Dephasierungsterme in die Halbleiter-Blochgleichungen eingefügt werden. Diese Vorgehensweise nennt man auch *excitation induced dephasing*.
Kohärente Eigenschaften der Kontinuumsanregungen können mit Hilfe spezieller Vierwellenmischtechniken auf diskrete Exzitonanregungen übertragen werden. Der Übertragungsprozess lässt sich umkehren, und kohärente Eigenschaften diskreter Exzitonanregungen können auf Kontinuumsanregungen übertragen werden. Der Übertragungsprozess kann im Rahmen eines Mehr-Niveau-Modells mit einem gemeinsamen Grundzustand erklärt werden. Dieses zugrundeliegende Konzept ist auch ausserhalb der Halbleiterphysik für andere Mehr-Niveau-Systeme mit einem gemeinsamen Grundzustand anwendbar.
Die Vielteilchen-Coulomb-Kopplung zwischen Exziton- und Kontinuumsanregungen verliert ihre Stärke bei höheren Ladungsträgerdichten und normales Dephasieren überwiegt. Das Dephasieren lässt sich durch Ladungsträger-Ladungsträger Streuung und Ladungsträger-Phonon Streuung beschreiben. In diesem Ladungsträgerdichteregime können die nichtlinearen optischen Eigenschaften von Halbleitern wieder mit den normalen Halbleiter-Blochgleichungen beschrieben werden.

Die vorliegende Arbeit zeigt, dass die Vielteilchen-Coulomb-Kopplung zwischen Exziton- und Kontinuumsanregungen die nichtlinearen optischen Eigenschaften von Halbleitern im kohärenten Regime stark beeinflusst.