

Ultrafast goes local

A dissertation submitted to the
Swiss Federal Institute of Technology Zürich
for the degree of
Doctor of Natural Sciences

presented by
Marc Achermann
Dipl.-Phys. (ETH Zürich)
born on June 11, 1972
citizen of Switzerland

accepted on the recommendation of
Prof. Dr. Ursula Keller, Supervisor
PD Dr. Uwe Siegner, Co-Examiner
date of examination: October 30, 2001

2001

Abstract

In this thesis, we demonstrate the remarkable performance of a technique that connects the *ultrafast*, femtosecond regime with the *local*, nanometer world. The combination of the ultrafast pump-probe technique with near-field scanning optical microscopy allows to perform optical spectroscopy with simultaneous 250 fs temporal and 150 nm spatial resolution. Such spatiotemporal resolution obtained with the ultrafast near-field scanning optical microscope (NSOM) is crucial for transport studies in nanostructured materials, for the study of carrier dynamics in single nanostructures as well as for the characterization of inhomogeneities in nanostructured ensembles.

The design of an ultrafast NSOM has to be very deliberate. We employ a configuration in which carriers are excited globally by a far-field pump laser pulse and locally measured by a probe pulse sent through an NSOM tip and transmitted through the sample in the near field. A novel detection system allows for either two-color or degenerate pump and probe photon energies, permitting greater measurement flexibility over earlier published work. The capabilities of this instrument are proven through near-field degenerate pump-probe studies of carrier dynamics in GaAs/AlGaAs single quantum well samples locally patterned by focused-ion beam (FIB) implantation.

The details of the measured carrier dynamics in the FIB implanted quantum well sample reveal complex spatiotemporal diffusion dynamics. Implantation induced trapping centers cause carrier density gradients, which are the driving forces for diffusion. The diffusion dynamics is directly observed by measuring carrier density variations in both time and space. A comprehensive experimental study allows us to identify different diffusion regimes. We find an initial diffusion regime, characterized by non-sinusoidal carrier profiles and spatially dependent temporal diffusion decay. In a long-time regime, the carrier profile is quasi-sinusoidal and only weakly position-dependent temporal diffusion decay is observed.

Femtosecond NSOM can also disentangle more complex transport dynamics that involve both carrier drift and carrier diffusion. Such dynamics occurs in metal-semiconductor composite materials, where buried Schottky contacts and

built-in electric fields are formed at the semiconductor-metal interface. We have performed femtosecond NSOM measurements that reveal the dynamics of carrier transfer from a semiconductor into embedded metal clusters in the presence of Schottky contacts and built-in electric fields. The carrier transfer involves transport towards and trapping into the metal clusters. Our experiments show that efficient transport of electrons towards the metal only occurs at higher carrier densities. For these densities, the built-in field is screened. Only in this case, the metal clusters act as efficient trapping centers for electrons.

Beside transport measurements, studies of single nanostructures, such as low-dimensional systems, are one of the most important applications of the femtosecond NSOM technique. Such studies allow one to gain insight into the intrinsic properties of nanostructures, unperturbed by spatial averaging over an ensemble of structures. Moreover, growth inhomogeneities in nanostructured materials can be characterized. As an example, experiments on single one-dimensional semiconductor quantum wires (QWRs) are discussed. We demonstrate that femtosecond NSOM measurements on single V-groove QWRs are possible and reveal ultrafast exciton relaxation dynamics. Furthermore, a novel method is presented for the mapping of quantization energy fluctuations along single quantum wires with nanometer-scale spatial resolution.

Kurzfassung

In dieser Arbeit stellen wir die bemerkenswerte Leistungsfähigkeit einer Technik vor, die den *ultrakurzen* Femtosekunden-Bereich mit der *lokalen* Nanometer-Welt verbindet. Die Kombination von Ultrakurzzeit Pump-Probe Spektroskopie mit Nahfeld Mikroskopie ermöglicht optische Untersuchungen mit gleichzeitig hoher Zeit- und Ortsauflösung. Unser selbst gebautes sogenanntes Ultrakurzzeit Rasternahfeld-Mikroskop (NSOM) erlaubt Messungen mit einer Raumzeitauflösung von 150 nm / 250 fs. Mit diesem Instrument ist es dadurch möglich, Transport in nanostrukturierten Materialien zu studieren, Ladungsträgerdynamik in einzelnen niedrig-dimensionalen Systemen zu untersuchen oder Inhomogenitäten in nanostrukturierten Ensembles zu charakterisieren.

Das Ultrakurzzeit NSOM muss konzeptionell sehr gut durchdacht sein, damit seine Leistungsfähigkeit voll genutzt werden kann. Wir wenden eine Konfiguration an, bei der Ladungsträger global durch einen Fernfeld Laserpuls angeregt werden und deren Dynamik dann lokal durch einen Testpuls im Nahfeld ausgelesen wird. Ein neuartiges Detektionssystem berücksichtigt sowohl zwei Farben wie auch entartete Pump- und Probephotonenenergien, womit eine höhere Flexibilität gegenüber früheren Arbeiten erreicht wird. Das Leistungsvermögen des Instruments wird demonstriert durch zeitaufgelöste entartete Nahfelduntersuchungen der Ladungsträgerdynamik in GaAs/AlGaAs Quantenfilmen, welche lokal durch einen fokussierten Ionenstrahl (FIB) bearbeitet wurden.

Die Details der gemessenen Ladungsträgerdynamik im FIB implantierten Quantenfilm zeigen komplexe Diffusionsdynamik. Durch die Implantation erzeugte Haftzentren bewirken Ladungsträgergradienten, welche als treibende Kräfte für Diffusion agieren. Die Diffusionsdynamik wird direkt betrachtet durch Messung der räumlichen und zeitlichen Variationen der Ladungsträgerdichte. Wir stellen fest, dass die anfängliche Diffusionsdynamik charakterisiert ist durch nicht sinusförmige Ladungsträgerdichteprofile und räumlich abhängige Zerfallszeiten. Auf einer längeren Zeitskala hingegen ist das

Ladungsträgerdichtepprofile quasi sinusförmig und der Dichtezerfall hängt nur noch schwach von der Position ab.

Das Femtosekunden NSOM kann auch kompliziertere Transportdynamik entflechten, wenn sowohl Drift wie auch Diffusion involviert ist. Solche Dynamik findet man in Metall-Halbleiter Verbundmaterialien, in denen Schottkykontakte und elektrische Felder an der Halbleiter-Metallgrenzfläche vorhanden sind. Die durchgeführten Nahfeldmessungen erörtern die Transferdynamik von Ladungsträgern aus einem Halbleiter in eingebettete Metallkugeln hinein unter dem Einfluss von Schottkykontakten und eingebauten elektrischen Feldern. Unsere Experimente zeigen, dass effizienter Elektronentransport zum Metall nur bei hohen Ladungsträgerdichten vorkommt. Bei diesen Dichten sind die eingebauten Felder abgeschirmt. Nur in diesem Fall können die Metallkugeln die Elektronen effizient einfangen.

Neben Transportmessungen ist die Erforschung einzelner Nanostrukturen, wie z.B. niedrig-dimensionaler Systeme, eines der wichtigsten Anwendungsgebiete der Femtosekunden NSOM Technik. Dabei wird ein Einblick in die spezifischen Eigenschaften der Nanostruktur gewonnen, ungestört vom räumlichen Mittel über ein Ensemble von Strukturen. Ausserdem können Wachstums-inhomogenitäten in nanostrukturierten Materialien charakterisiert werden. Als Beispiel werde Experimente an einzelnen eindimensionalen Quantendrähten (QWRs) diskutiert. Wir zeigen, dass Femtosekunden NSOM Messungen an QWRs möglich sind und dadurch schnelle Exziton Relaxationsdynamik untersucht werden kann. Zudem wird eine neuartige Methode vorgestellt, um Fluktuationen der Quantisierungsenergie entlang einzelner Quantendrähte mit einer räumlichen Auflösung im Nanometerbereich aufzuzeichnen.