

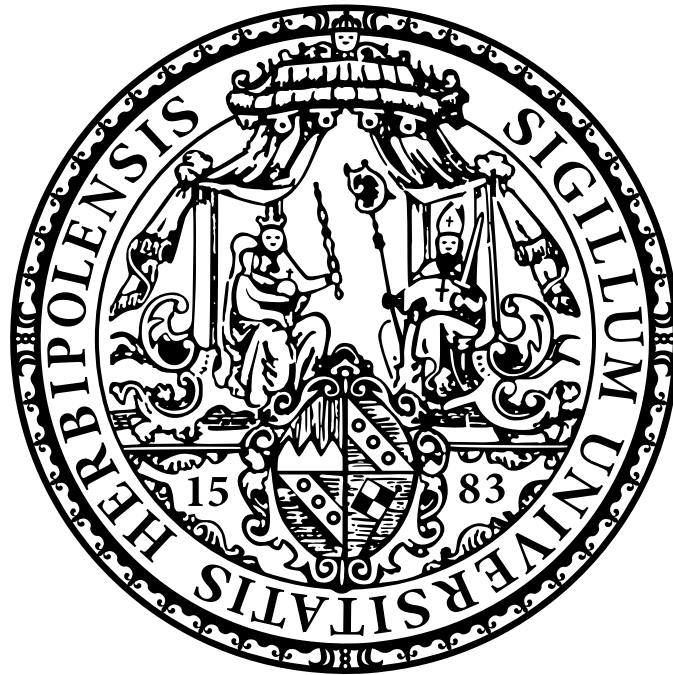
---

---

Festkörperbasierte Einzelphotonenquellen  
als Grundbausteine der  
Quanteninformationstechnologie

---

---



Dissertation zur Erlangung  
des naturwissenschaftlichen Doktorgrades  
der Julius-Maximilians-Universität Würzburg

vorgelegt von

Sebastian Unsleber  
aus Würzburg

Würzburg 2016

Eingereicht am: 02.12.2016  
bei der Fakultät für Physik und Astronomie

1. Gutachter: Dr. Christian Schneider  
2. Gutachter: Prof. Dr. Jean Geurts  
3. Gutachter:  
der Dissertation

Vorsitzender: Prof. Dr. Ansgar Denner

1. Prüfer: Dr. Christian Schneider  
2. Prüfer: Prof. Dr. Jean Geurts  
3. Prüfer: Prof. Dr. Wolfgang Kinzel  
im Promotionskolloquium

Tag des Promotionskolloquiums: 29.03.2017

Doktorurkunde ausgehändigt am: .....

# Inhaltsverzeichnis

<b>Zusammenfassung</b>	<b>1</b>
<b>Summary</b>	<b>5</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>9</b>
<b>2 Grundlagen</b>	<b>15</b>
2.1 Elektronische Eigenschaften von Quantenpunkten . . . . .	16
2.1.1 Niederdimensionaler Einschluss von Ladungsträgern . . . . .	16
2.1.2 Mehrteilchenkomplexe in Quantenpunkten . . . . .	19
2.1.3 Simulation der Energieeigenwerte von InGaAs-Quantenpunkten	21
2.2 Mikrosäulenresonatoren . . . . .	25
2.3 Licht-Materie-Wechselwirkung . . . . .	28
2.3.1 Resonante Anregung von Zwei-Niveau-Systemen . . . . .	29
2.3.2 Quantenpunkte in Mikrokavitäten . . . . .	34
2.4 Korrelationsfunktionen erster und zweiter Ordnung von quantisier-	
ten Lichtfeldern . . . . .	39
2.4.1 Autokorrelationsfunktion erster Ordnung . . . . .	40
2.4.2 Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung . . . . .	42
<b>3 Experimentelle Techniken und Versuchsaufbau</b>	<b>55</b>
3.1 Mikro-Photolumineszenzaufbau und Kreuzpolarisationskonfiguration	55
3.2 Hanbury-Brown und Twiss Messaufbau . . . . .	59
3.3 Laserpulse mit zeitlich variablem Abstand . . . . .	59
3.4 Mach-Zehnder-Interferometer . . . . .	60

---

<b>4</b>	<b>Nanocluster in AlInAs auf InP(111)</b>	<b>63</b>
4.1	Probenaufbau und -herstellung . . . . .	64
4.2	Grundlegende Emissionseigenschaften der AlInAs-Nanocluster . . .	64
4.3	Verifikation indiumreicher Clusterstrukturen als Emissionsquelle . .	71
4.4	Einzelphotonenemission und Bindung multiexzitonischer Komplexe	75
<b>5</b>	<b>„How-to“: Kohärente einzelne Photonen aus Quantenpunkten in Mikro- kavitäten</b>	<b>85</b>
5.1	Probenlayout und Fabrikation . . . . .	86
5.2	Grundcharakterisierung der untersuchten Quantenpunkt-Mikrokavität	88
5.2.1	Lebensdauer- und Kohärenzzeitmessungen . . . . .	91
5.2.2	Nachweis der Einzelphotonenemission . . . . .	96
5.3	Zwei-Photonen Interferenz . . . . .	98
5.4	Mikroskopische Modellierung der Zwei-Photonen Interferenz . . . .	101
<b>6</b>	<b>Resonanzfluoreszenz zur Erzeugung kohärenter Photonen</b>	<b>107</b>
6.1	Spektrale Eigenschaften des untersuchten Quantenpunktes unter resonanter Anregung . . . . .	108
6.2	Zwei-Photonen-Interferenz bei strikt und quasi-resonanter Anregung	113
6.3	Abhängigkeit der Zwei-Photonen Interferenz von Temperatur und Laserpulsabstand . . . . .	117
<b>7</b>	<b>Resonanzfluoreszenz geordneter Quantenpunkt-Strukturen</b>	<b>123</b>
7.1	Herstellung und Probenaufbau . . . . .	124
7.2	Grundlegende Emissionseigenschaften und Einzelphotonenemission .	127
7.3	Strikt-resonante Dauerstrichanregung . . . . .	128
7.4	Deterministische Kontrolle des angeregten Quantenpunktzustandes	135
<b>8</b>	<b>Eine deterministische und effiziente Quelle einzelner kohärenter Pho- tonen</b>	<b>139</b>
8.1	Herstellung und Gütefaktor der Mikrotürmchenprobe . . . . .	141
8.2	In-situ-Lithographie . . . . .	143
8.3	Grundcharakterisierung des in-situ definierten Mikrotürmchens . . .	146
8.4	Effiziente und kohärente Emission einzelner Photonen . . . . .	151

<b>Liste der verwendeten Abkürzungen</b>	<b>159</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>161</b>
<b>A Anhang</b>	<b>191</b>
A.1 Simulation von InAs-Quantenpunkten . . . . .	191
A.2 Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung für die Interferenz zweier bosonischer Teilchen . . . . .	196
A.3 Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung für ununterscheidbare Photonen aus einem Quantenpunkt-Mikrokavität-System . . . . .	200
A.4 Exziton-Phonon Wechselwirkung . . . . .	202
A.5 Einfluss des Messaufbaus auf die Korrelationsmessung . . . . .	203
A.6 Aufbau des Wafers M4056 . . . . .	204
A.7 Aufbau des Wafers M3569 . . . . .	205
A.8 Aufbau des Wafers C4161 . . . . .	205
A.9 Aufbau des Wafers C4020 . . . . .	206
<b>Veröffentlichungen und Konferenzbeiträge</b>	<b>207</b>
<b>Danksagung</b>	<b>211</b>



# Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit hatte das Ziel basierend auf Halbleiternanostrukturen eine effiziente und skalierbare Quelle einzelner und ununterscheidbarer Photonen zu entwickeln. Dies ist eine Basiskomponente von zukünftigen quantenphysikalischen Anwendungen wie der Quantenkommunikation oder dem Quantencomputer. Diese Konzepte nutzen gezielt quantenmechanische Systeme um einerseits Kommunikation absolut abhörsicher zu machen oder um neuartige Computer zu konstruieren, die bestimmte Aufgaben – wie die Produktzerlegung großer Zahlen – effizienter lösen als heutige Systeme. Ein mögliche Realisierung der Quantenkommunikation ist beispielsweise die Schlüsselverteilung zwischen zwei Parteien durch Verwendung des BB84-Protokolls. Dazu wird eine Lichtquelle benötigt, welche die physikalisch kleinstmögliche Lichtmenge – ein einzelnes Photon – aussendet. Der Kommunikationskanal wird dann über verschiedene Polarisationszustände dieser Photonen gegen ein Abhören nach außen hin abgesichert. Da die maximale Kommunikationsdistanz aufgrund von Verlusten im Quantenkanal beschränkt ist, muss das Signal für größere Distanzen mit Hilfe eines sog. Quantenrepeaters aufbereitet werden. Ein solcher kann ebenfalls unter Verwendung von Einzelphotonenquellen realisiert werden. Das Konzept des Quantenverstärkers stellt aber die zusätzliche Anforderung an die Einzelphotonenquelle, dass die ausgesendeten Lichtteilchen in der Summe ihrer Eigenschaften wie Energie und Polarisation immer gleich und somit ununterscheidbar sein müssen.

Auf Basis solcher ununterscheidbarer Photonen gibt es zudem mit dem linear optischen Quantenrechner auch mögliche theoretische Ansätze zur Realisierung eines Quantencomputers. Dabei kann über die Quanteninterferenz von ununterscheidbaren Photonen an optischen Bauteilen wie Strahlteilern ein Quanten-NOT-

Gatter zur Berechnung spezieller Algorithmen realisiert werden.

Als vielversprechende Kandidaten für eine solche Lichtquelle einzelner Photonen haben sich in den letzten Jahren Halbleiter-Quantenpunkte herauskristallisiert. Dank des festkörperbasierten Ansatzes können diese Strukturen in komplexe photonische Umgebungen zur Erhöhung der Photonen-Extraktionseffizienz und -Emissionsrate eingebettet werden. Ziel dieser Arbeit war somit eine effiziente Quelle einzelner ununterscheidbarer Photonen zu realisieren. Im Hinblick auf die spätere Anwendbarkeit wurde der Fokus zudem auf die skalierbare bzw. deterministische Fabrikation der Quantenpunkt-Strukturen gelegt und zwei technologische Ansätze – die kryogene *in-situ*-Lithographie und das positionierte Wachstum von Quantenpunkten – untersucht.

Im ersten experimentellen Kapitel dieser Arbeit wird ein neuartiges Materialsystem vorgestellt, welches sich zur Generation einzelner Photonen eignet. Es können spektral scharfe Emissionslinien mit Linienbreiten bis knapp über 50  $\mu\text{eV}$  aus  $\text{Al}_{0,48}\text{In}_{0,52}\text{As}$  Volumenmaterial beobachtet werden, wenn diese Schicht auf InP(111) Substraten abgeschieden wird. In Querschnitt-Rastertunnelmikroskopie-Messungen wurden ca. 16 nm große Cluster, welche eine um ungefähr 7 % höhere Indiumkonzentration im Vergleich zur nominellen Zusammensetzung des Volumenmaterials besitzen, gefunden. Über die Simulation dieser Strukturen konnten diese als Quelle der spektral scharfen Emissionslinien identifiziert werden. Zudem wurde mittels Auto- und Kreuzkorrelationsmessungen nachgewiesen, dass diese Nanocluster einzelne Photonen emittieren und verschieden geladene exzitonische und biexzitonische Ladungsträgerkomplexe binden können.

Anschließend wurde der Fokus auf InGaAs-Quantenpunkte gelegt und zunächst im Rahmen einer experimentellen und theoretischen Gemeinschaftsarbeit die Kohärenzeigenschaften eines gekoppelten Quantenpunkt-Mikrokavitat-Systems untersucht. Über temperaturabhangige Zwei-Photonen Interferenz Messungen und dem Vergleich mit einem mikroskopischen Modell des Systems konnten gezielt die Bestandteile der Quantenpunkt-Dephasierung extrahiert werden. Auf diesen Ergebnissen aufbauend wurde die gepulste, strikt resonante Anregung von Quantenpunkten als experimentelle Schlüsseltechnik etabliert. Damit konnten bei tiefen



Temperaturen nahezu vollständig ununterscheidbare Photonen durch eine Zwei-Photonen Interferenz Visibilität von über 98 % nachgewiesen werden.

Für ein skalierbares und deterministisches Quantenpunkt-Bauelement ist entweder die Kontrolle über die Position an welcher der Quantenpunkt gewachsen wird nötig, oder die Position an der eine Mikrokavität geätzt wird muss auf die Position eines selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunktes abgestimmt werden. Im weiteren Verlauf werden Untersuchungen an beiden technologischen Ansätzen durchgeführt. Zunächst wurde der Fokus auf positionierte Quantenpunkte gelegt. Mittels in das Substrat geätzter Nanolöcher wird der Ort der Quantenpunkt-Nukleation festgelegt. Durch die geätzten Grenzflächen in Quantenpunkt-Nähe entstehen jedoch auch Defektzustände, die negativen Einfluss auf die Kohärenz der Quantenpunkt-Emission nehmen. Deshalb wurde an diesem Typus von Quantenpunkten die strikt resonante Anregung etabliert und zum ersten Mal die kohärente Kopplung des Exzitons an ein resonantes Lichtfeld demonstriert. Zudem konnte die deterministische Kontrolle der Exzitonbesetzung über den Nachweis einer Rabi-Oszillation gezeigt werden.

Abschließend wird das Konzept der kryogenen *in-situ*-Lithographie vorgestellt. Diese erlaubt die laterale Ausrichtung der Mikrokavität an die Position eines selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunktes. Damit konnte gezielt die Emission eines zuvor ausgewählten, spektral schmalen Quantenpunktes mit nahezu 75 % Gesamteffizienz eingesammelt werden. Die Ununterscheidbarkeit der Quantenpunkt-Photonen war dabei mit einer Zwei-Photonen Interferenz Visibilität von bis zu  $\nu = (88 \pm 3) \%$  sehr hoch. Damit wurde im Rahmen dieser Arbeit eine Einzelphotonenquelle realisiert, aus der sich sehr effizient kohärente Photonen auskoppeln lassen, was einen wichtigen Schritt hin zur deterministischen Fabrikation von Lichtquellen für quantenphysikalischen Anwendungen darstellt.



# Summary

The aim of this thesis was to develop an efficient and scalable source of single and indistinguishable photons. This is a fundamental element of future quantum physical applications like quantum communication or quantum networks. These concepts use quantum mechanical systems to either establish absolute secure communication or to construct new computers, whose calculating capacity for specialized algorithms – like integer factorization – is far beyond today's systems. One possible realization of quantum communication is the key distribution between two parties via using the BB84-protocol. This scheme needs a light source that emits the physical smallest amount of light – a single photon. The communication channel between transmitter and receiver is then secured against eavesdropping by different polarisation states of these photons. The non-avoidable losses in the quantum channel limit the maximum possible communication distance, which is why the signal has to be amplified with a so called quantum repeater after a certain distance. Such a repeater can also be realized with a single photon source. In addition to the BB84-protocol, for realizing the concept of a quantum repeater the photons have to share all their properties like energy and polarization, i. e. they need to be indistinguishable.

Over the past years, semiconductor quantum dots have been identified as a promising candidate for such a light source. Due to the solid state scheme, these structures can be implemented into complex photonic architectures to increase the outcoupling efficiency and the emission rate of single photons. The main goal of the following work was therefore the realization of an efficient source of single and indistinguishable photons. Keeping future applications in mind, the additional focus of this work was lying on the scalable and deterministic fabrication of these

quantum dot structures and two technological approaches – the cryogenic *in-situ*-lithography and the positioned growth of quantum dots – were investigated.

In the first part of this thesis, a novel material system, which serves as a source of single photons is presented. Spectrally sharp emission features with a linewidth down to 50  $\mu\text{eV}$  from bulk  $\text{Al}_{0,48}\text{In}_{0,52}\text{As}$  grown on  $\text{InP}(111)$  substrates were observed. Via cross-section scanning tunneling microscopy measurements, nanoclusters with a diameter of approximately 16 nm and a 7 % increased indium concentration compared to the nominal composition, were found. Additional simulations of these complexes identify these nanoclusters as sources of the spectrally sharp emissions lines. Furthermore, single photon emission as well as the formation of multi excitonic charge complexes within these clusters via auto- and crosscorrelation measurements is confirmed.

Afterwards, the work focusses on  $\text{InGaAs}$ -quantum dots and, as a first step, the coherence properties of a coupled quantum dot microcavity system are investigated within a joint theoretical and experimental work. Via temperature dependent two-photon interference measurements the single dephasing mechanisms of this system are extracted via modelling the results with a microscopic theory. Based on this results, the strict resonant excitation of quantum dots was established as a experimental key technique and quantum dot photons with a two-photon interference visibility above 98 % were generated at low temperatures.

For scalable and deterministic quantum dot devices, one either needs to control the growth spot of a quantum dot or the position of an etched microcavity has to be aligned to the position of a self-organized quantum dot. In the subsequent parts of this work, studies on both technological approaches are presented. First, spectroscopic experiments on site controlled quantum dots were carried out. Via etched nanoholes, the nucleation spot of the quantum dot is defined. These etched surfaces may lead to defect states, which decrease the coherence of the quantum dot emission. In order to avoid these detrimental influence, the strict resonant excitation of such site controlled quantum dots is established and the coherent coupling of the site controlled quantum dot exciton to the resonant laser field is observed. In addition, deterministic control of the site controlled quantum dot

---

population is achieved, which is verified via the observation of the first Rabi-oscillation.

Finally, the so-called *in-situ*-lithography is presented, which allows for the lateral alignment of a self-organized quantum dot and the fundamental mode of a micropillar. Using this technique, an overall collection efficiency of single photons from a pre-selected quantum dot with a small linewidth of almost 75 % is shown. The coherence of this quantum dot was notably, which is demonstrated by a two-photon interference visibility as high as  $\nu = (88 \pm 3) \%$ . In summary, an efficient source of single and indistinguishable photons was realized in this thesis, which is an important step towards the fabrication of deterministic quantum dot devices for quantum mechanical applications.



# 1 Einleitung

Nachdem die Quantenmechanik, die zu Beginn des 20. Jahrhunderts u. a. von Werner Heisenberg und Erwin Schrödinger entwickelt wurde, bereits unser physikalisches Verständnis der Natur revolutioniert hat, ist eine der tragenden Säulen der modernen Forschung die Implementierung von Quantentechnologien in unseren Alltag. Im Vordergrund steht hier vor allem die Erforschung neuer Kommunikation- und Informationstechnologien basierend auf quantenphysikalischen Effekten. Die Notwendigkeit erhöhter Kommunikationssicherheit erscheint vor allem durch die Enthüllungen des ehemaligen Geheimdienstmitarbeiters Edward Snowden in völlig neuem Licht. Um potentielle Lauschangriffe zu vermeiden, lassen sich Quanteneigenschaften ausnutzen um den Informationsaustausch zwischen zwei Parteien abhörsicher zu machen. Basis dafür sind in der Regel einzelne Lichtquanten deren Polarisationszustand nach dem sog. BB84-Protokoll [Ben84] für die Erzeugung und Verteilung eines Schlüssels genutzt wird. Diese Technologie ist bereits soweit gediehen, dass Kommunikationsdistanzen von ca. 100 km realisiert wurden [Pen07, Ros07, SM07, Urs07] und im Rahmen des Projektes SECOQC bereits ein Verbund aus acht Parteien über die sog. Quantenschlüsselverteilung (QKD) kommuniziert [Pee09]. Der Großteil der bisherigen Projekte wurde jedoch mit stark abgeschwächten Laserpulsen als Quelle einzelner Lichtteilchen realisiert. Da diese immer noch Licht emittieren, welches in seiner zeitlichen Verteilung einer Poisson-Statistik folgt, gibt es auch eine endliche Wahrscheinlichkeit, dass ein Laserpuls mehr als ein Photon enthält. Diese Einschränkung kann genutzt werden um die Kommunikation über sog. *photon-number-splitting attacks*<sup>1</sup> abzuhören [Hut95] und

---

<sup>1</sup>englisch für Photonen-Anzahl-Aufteilungs-Angriff. Ein Abhörer fängt hierbei gezielt Photonen aus Pulsen mit mehr als einem Lichtteilchen ab und erhält somit Teile des übertragenen Schlüssels ohne aufzufallen.

muss deshalb durch die Verwendung sog. *decoy*<sup>2</sup>-Zustände verhindert werden. Da dies auf Kosten der übertragenen Schlüsselrate geht [Wan05], eignen sich echte Einzelphotonenquellen (SPSen) besser für die Quantenkommunikation [Wak02]. Eine solche Quelle einzelner Photonen stellen Halbleiter-Quantenpunkte (QPe) dar. Aufgrund der quantisierten Energieniveaus in den QPen und der Wechselwirkung der gebundenen Ladungsträger untereinander, hat jeder Ladungszustand eines QPes eine bestimmte Energie. Rekombiniert nun ein Ladungsträgerpaar dieses Zustandes, sendet der QP auf dieser definierten Energie nur ein einzelnes Photon aus.

Die oben erwähnten Kommunikationsdistanzen sind vor allem durch die Verluste in den Trägermedien des Lichtes (typischerweise Glasfasern mit einer Dämpfung von ca. 0,2 dB/km) beschränkt. Da für die Schlüsselübertragung Quantenzustände benutzt werden, kann das Signal nicht durch einen klassischen Verstärker wieder aufbereitet werden. Dies verbietet das sog. *No-Cloning Theorem* [Woo82]. Deshalb schlugen Briegel *et al.* ein Konzept vor, dass die quantenmechanische Verschränkung zweier Zustände zur Erhöhung der Kommunikationsreichweite benutzt [Bri98]. Basis eines sog. *Quantenrepeaters*<sup>3</sup> ist eine Quelle einzelner ununterscheidbarer Photonen und ein Quantenspeicher der mit den Lichtquanten verschränkt ist. Dies alles lässt sich mit geladenen Exzitonen in QPen realisieren. Das geladene Exziton zerfällt unter Aussendung eines Photons, wobei der Spin des übrig bleibenden Ladungsträgers mit der Polarisation [DG12] oder der Farbe des Lichtquants [Gao12] verschränkt ist. Lässt man nun die Photonen zweier solcher QPe interferieren, verschränkt man die jeweiligen Quantenspeicher miteinander. Beide Parteien teilen nun einen gemeinsamen quantenmechanischen Zustand, der zur Schlüsselgeneration genutzt werden kann. Da dieses Schema beliebig oft repliziert werden kann, ist somit theoretisch eine beliebige Kommunikationsdistanz möglich.

Einzelne ununterscheidbare Photonen lassen sich nicht nur für abhörsichere Kommunikation bzw. zur Vergrößerung der möglichen Kommunikationsdistanz benutzen, auch die Konstruktion neuartiger Computer steht im Fokus der Forschung. Durch

---

<sup>2</sup>englisch für Falle, Köder

<sup>3</sup>Repeater, engl. für Verstärker



---

den immer weiter zunehmenden Rechenleistungsbedarf wurden die Halbleiterstrukturen auf Computerchips immer weiter geschrumpft um immer mehr Transistoren auf kleiner Fläche unterzubringen. George E. Moore erkannte bereits frühzeitig, dass sich die Zahl an Transistoren auf einem Chip alle 12 bis 24 Monate verdoppelt [Moo65, Moo75]. In den nächsten Jahren erreichen die Strukturgrößen eine Art physikalische Untergrenze, bei der quantenmechanische Effekte die Funktionsweise von Transistoren unzuverlässig macht [Wal16]. Eine Erhöhung der Rechenleistung ist aufgrund der damit wachsenden Wärmeabgabe ebenfalls nur bedingt möglich. Um dies zu Umgehen wurden verschiedene theoretische Umsetzungen bzw. Algorithmen für einen Quantencomputer entwickelt [Deu92, Sho94, Gro96]. Dieser verwendet zur Lösung von Rechenproblemen quantenmechanische Zustände. Im einfachsten Fall besteht die Basis eines quantenmechanischen Systems aus den beiden Zuständen  $|0\rangle$  und  $|1\rangle$ , welche in Analogie an die Rechenzustände eines klassischen Computers als Quanten-Bits (Qubits) bezeichnet werden. Der Zustand, in dem sich das System befindet lässt sich dann als Superposition beider Basiszustände beschreiben. Ein Quantencomputer nutzt nun diese Superpositionen um mit mehr als den klassischen Bits 0 und 1 zu rechnen. Dadurch lässt sich ein Problem hochgradig parallelisieren und somit die Rechendauer verkürzen. Eine mögliche Realisierung eines solchen hochkomplexen Quantencomputers ist der linear optische Quantenrechner<sup>4</sup> [Kok07] bzw. das sog. *Boson-sampling* als eine Art Quantenemulator [Aar11, Gar15]. Beiden Ansätzen gemeinsam ist die Interferenz von einzelnen Quanten an einem Strahlteiler um Rechenoperationen durchzuführen.

Somit wird offensichtlich, dass für die Realisierung beider Anwendungen der Quantentechnologie – Quantenrepeater und -computer – eine Quelle einzelner, ununterscheidbarer Photonen hilfreich ist. Bis heute wurden verschiedene Materialsysteme identifiziert, die als nichtklassische Lichtquellen operieren können. Hierzu zählen u. a. kalte Atome [McK04], eingefangene Ionen [Die87, Bas92], optisch aktive Defekte in Diamant [Bro00, Kur00], Siliziumkarbid [Cas14], 2D-Schichtmaterialien [He15, Ton15, Sri15, Cha15, Kop15] und Halbleiter-QPe [Mic00, San02]. Im direkten Vergleich bieten QPe einige Vorteile: Sie sind festkörperbasiert, was

---

<sup>4</sup>im Englischen *linear optical quantum computing*

nicht nur eine kompakte Bauform zulässt sondern auch die elektrische Adressierbarkeit [Yua02, Hei10a, Ell08] und die Einbringung in komplexe photonische Architekturen auf einem Chip ermöglicht [Yao10, Hoa12, Die16]. Weiterhin kann durch die Einbettung von QPen in verschiedene photonische Umgebungen die Auskoppelleffizienz der Photonen erhöht werden [Gre13]. Bisher wurden dabei Mikrokavitäten [Mor01, Pel02], Linsen [Mai14, Gsc15, Sap15] und Wellenleiterstrukturen [Cla10, Hei10b, Rei12, Arc14] realisiert und Effizienzen im Bereich von 70 % demonstriert. Die Realisierung einer Quelle ununterscheidbarer Photonen im Festkörper bringt jedoch auch einige Nachteile mit sich. So sorgt die Kopplung des QPes an Phononen und geladene Störstellen für eine Dephasierung des QP-Zustandes und damit zu einer Verringerung der Kohärenzeigenschaften der emittierten Photonen. Wie bereits gezeigt wurde, kann man dies jedoch wirksam mit Hilfe einer strikt resonanten Anregung umgehen und Quellen reiner Dephasierung weitestgehend eliminieren [He13b, He13a, Gao13, Wei14b]. Die Effizienz der in diesen Arbeiten verwendeten Strukturen war jedoch auf Werte deutlich unter 10 % limitiert.

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich nun mit der Vereinigung all dieser Konzepte um eine möglichst effiziente Quelle einzelner und ununterscheidbarer Photonen zu realisieren, welche sich im Bestfall ebenso durch eine möglichst einfache Fabrikationsmethode auszeichnet. Zunächst wird daher in **Kapitel 4** mit  $\text{Al}_{0,48}\text{In}_{0,52}\text{As}$ , welches auf  $\text{InP}(111)$  Substrat gewachsen wird, ein neuartiges Materialsystem präsentiert, welches als Emitter einzelner Photonen benutzt werden kann. Während des Wachstums bilden sich in der mehr als 100 nm dicken  $\text{Al}_{0,48}\text{In}_{0,52}\text{As}$ -Schicht Nanocluster, die in ihren spektralen Eigenschaften wie Linienbreite und Feinstrukturaufspaltung (FSA) herkömmlichen  $\text{InGaAs}$ -QPen ähnlich sind. Durch Querschnitt-Rastertunnelmikroskopie (XSTM)-Aufnahmen konnten die Ausbildung von ungefähr 16 nm großen Clustern, welche eine um ca. 7 % höhere Indiumkonzentration haben, nachgewiesen werden. Die anschließende Simulation des energetischen Grundzustandes dieser Strukturen ist im Einklang mit den  $\mu$ -PL Ergebnissen, sodass diese Nanocluster zweifelsfrei als Quelle der spektral scharfen Emissionslinien verifiziert wurden. Mit Hilfe von Auto- und Kreuzkorrelationsmessungen konnte zudem der Nachweis erbracht werden, dass diese Cluster

---

einzelne Photonen unter Dauerstrich (cw)- als auch gepulster Anregung emittieren und komplexe exzitonische und multiexzitonische Ladungsträgerkomplexe binden können.

Anschließend wird der Fokus auf die Weiterentwicklung des etablierten InGaAs-Materialsystems für QPe gelegt. Zunächst wird in **Kapitel 5** die Erzeugung ununterscheidbarer Photonen aus einem QP in einem Mikrotürmchen mit adiabatischer Modenanpassung diskutiert. In einer Zusammenarbeit mit theoretischen Physikern wurden zum ersten Mal gezielt die Ursachen der nicht perfekten Ununterscheidbarkeit von Photonen aus einem solchen QP-Mikrokavitat-System ber verstimmungsabhangige Zwei-Photonen Interferenz (ZPI) Messungen untersucht. Dadurch ist es mglich gezielt Verbesserungen, sowohl am experimentellen Aufbau als auch an den Bauteilen, vorzunehmen um hohe Effizienz und Koharenz zu vereinen. Als erster Schritt wird deshalb in **Kapitel 6** die strikt resonante Anregung eines QPes in einer planaren Mikrokavitat vorgestellt. Mit Hilfe dieser Technik gelingt es Fourier-limitierte Photonen mit einer ZPI Visibilitat von fast 99 % zu erzeugen.

Dieses resonante Anregungsschema wird daraufhin in **Kapitel 7** an positionierten QPen etabliert. Diese QPe stellen einen Ansatz fr skalierbare Einzelphotonenemitter dar. Durch das Wachstum von QPen in vorher definierte Nanolocher erhalt man gezielt Kontrolle ber den Nukleationspunkt des Emitters. Durch die geatzten Grenzflachen in der naheren Umgebung der positionierten QPe ist die Linienbreite der Emission typischerweise deutlich hher als die von selbstorganisiert gewachsenen QPen. Deshalb wird hier zum ersten Mal die strikt resonante Anregung eines solchen positionierten QPes sowohl unter cw- als auch unter gepulster Anregung realisiert. Zudem wird die Dephasierung des QP-Exzitons mit zunehmender Temperatur untersucht und es kann gezeigt werden, dass sich diese aus zwei Bestandteilen zusammensetzt. Zum Einen koppelt der QP an Defektzustande die durch die geatzten Nanolocher entstehen, als auch an longitudinal akustische (LA) Phononen, welche einen Beitrag zur Dephasierung liefern, der abhangig von der Leistung des eingestrahelten Lasers ist.

Im nachsten Schritt wird in **Kapitel 8** die gepulste, strikt resonante Anregung auf

einen QP in einem Mikrotürmchen übertragen. Mittels der Technik der kryogenen *in-situ*-Lithographie konnte zudem die Position der geätzten Mikrokavität auf einen ausgewählten, spektral schmalen QP abgestimmt werden. Dadurch konnten aus diesem deterministischen QP-Mikrokavität-System mit einer Effizienz von nahezu 75 % einzelne Photonen ausgekoppelt werden. Durch die strikt resonante Anregung wurde zudem die Erzeugung kohärenter Photonen durch den Nachweis der Hong-Ou-Mandel (HOM) Interferenz mit einer Sichtbarkeit von bis zu  $\nu = (88 \pm 3) \%$  demonstriert.

## 2 Grundlagen

Dieses Kapitel stellt die theoretischen Grundlagen vor, welche zum Verständnis der Arbeit benötigt werden. Beginnend mit dem niederdimensionalen Einschluss von Ladungsträgern werden die grundlegenden elektronischen Eigenschaften von Halbleiter-QPen erläutert. Um ein tiefgreifenderes Verständnis der Zustände in einem QP zu erhalten werden anschließend Simulationen, welche mittels der kommerziellen Software *nextnano++* durchgeführt wurden, präsentiert. Daraufhin werden die theoretischen Grundlagen von Mikrotürmchen diskutiert, bevor anschließend basierend auf dem Jaynes-Cummings-Modell die Licht-Materie-Wechselwirkung erörtert wird. Dies beinhaltet sowohl die Kopplung des QPes an ein strikt resonantes Laserfeld als auch die Wechselwirkung mit der fundamentalen optischen Mode einer Mikrokavität. Für die Charakterisierung von QPen hinsichtlich ihrer Emissionseigenschaften werden daraufhin die Autokorrelationsfunktionen erster und zweiter Ordnung vorgestellt. Erstere dient zur Quantifizierung der Kohärenzeigenschaften der emittierten Photonen, wohingegen die Autokorrelation zweiter Ordnung einen experimentellen Zugang zum Nachweis der Einzelphotonenemission und des HOM Effekts bietet.

Teile der vorliegenden Arbeit sind in Kooperation aus theoretischer und experimenteller Arbeit entstanden. Die theoretische Unterstützung fand dabei durch Dr. Dara P.S. McCutcheon, Prof. Dr. Niels Gregersen und Prof. Dr. Jesper Mørk von der DTU Kopenhagen<sup>1</sup> statt. Dies umfasst sowohl die umfassende Theorie der ZPI eines gekoppelten QP-Mikrokavität-Systems, als auch der Eigenschaften des Mollow-Triplets bei Kopplung des QPes an Phononen.

---

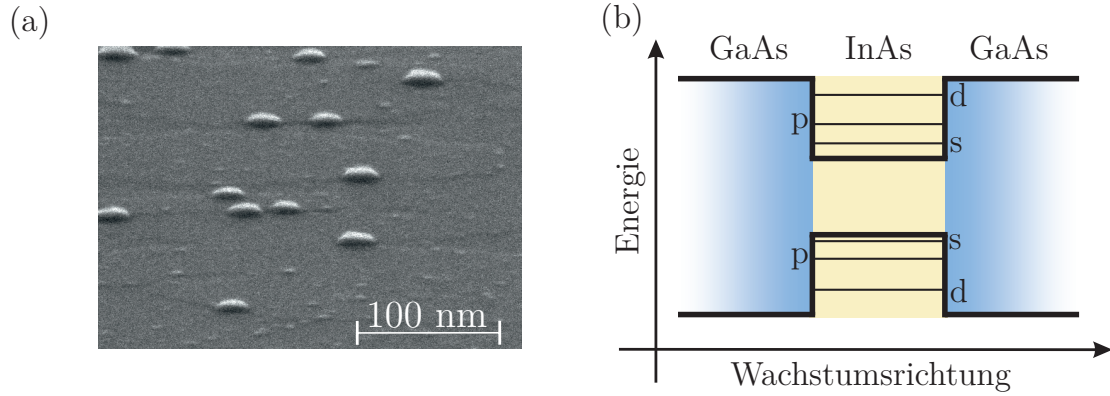
<sup>1</sup>Adresse: Technical University of Denmark, Ørstedes Plads, 2800 Kgs. Lyngby  
Homepage: <http://www.fotonik.dtu.dk/english>

## 2.1 Elektronische Eigenschaften von Quantenpunkten

### 2.1.1 Niederdimensionaler Einschluss von Ladungsträgern

Schränkt man ein physikalisches System soweit ein, dass seine Abmessungen im Bereich der de-Broglie-Wellenlänge  $\lambda_{\text{de-Broglie}} = h/(\sqrt{2m_{\text{eff}}E})$  ( $h$ : Planck'sches Wirkungsquantum;  $m_{\text{eff}}$ : effektive Masse;  $E$ : Energie) der Teilchen liegen, so kommt es zur Quantisierung der Energieeigenwerte. Aus dem Einschluss eines Teilchens in allen drei Raumrichtungen ergibt sich somit ein vollständiger dreidimensionaler Potentialtopf, der nur noch diskrete Energiewerte für das eingeschlossene Teilchen erlaubt. Diesen Einschluss realisiert man im Festkörper durch zwei Materialien mit unterschiedlich großer Bandlücke, wobei bei den hier verwendeten Typ I Heteroübergängen das Material mit kleinerer Bandlücke von dem mit der größeren vollständig umgeben ist. Das Resultat ist eine quasi 0-dimensionale Struktur die auch QP genannt wird. Ein typisches System für Halbleiter-QPe ist InAs, welches in einer GaAs-Matrix eingebettet wurde. Hergestellt werden die hier verwendeten Strukturen durch das Abscheiden von InAs auf einem GaAs Substrat mittels Molekularstrahlepitaxie (MBE)-Wachstum. InAs hat bei Raumtemperatur im Vergleich zu GaAs eine um ca. 7 % größere Gitterkonstante ( $a_{\text{GaAs}} = 5,65\text{\AA}$ ;  $a_{\text{InAs}} = 6,06\text{\AA}$ ). Scheidet man InAs auf GaAs ab, bilden sich zunächst gitterangepasste, verspannte InAs-Schichten. Ab einer gewissen kritischen Schichtdicke ist es energetisch günstiger, wenn sich zusätzliches InAs nicht mehr gitterangepasst ablagert, sondern es zu einem inselförmigen Wachstum und somit zur Ausbildung von QPen kommt [All07].

Eine Rasterelektronenmikroskopie (REM)-Aufnahme einer solchen QP-Schicht ist in Abbildung 2.1(a) zu sehen. Die helleren Bereiche entsprechen den linsenförmigen QPen, welche hier einen lateralen Durchmesser von  $\approx 20$  nm und eine Höhe von  $\approx 5$  nm aufweisen. Die Bandstruktur eines solchen InAs-QPes nach dem Überwachsen mit GaAs ist in Abbildung 2.1(b) entlang der Wachstumsrichtung schematisch



**Abbildung 2.1:** (a) REM Aufnahme von selbstorganisiert gewachsenen InAs-QPens. Die linsenförmigen QPe haben eine laterale Ausdehnung von ungefähr 20 nm bei einer Höhe von ca. 5 nm. (b) Schematische Darstellung von Leitungs- und Valenzband in Wachstumsrichtung. Durch die unterschiedlichen Bandlücken von GaAs und InAs können Ladungsträger dreidimensional im InAs eingefangen werden. Es kommt zur Ausbildung von quantisierten Zuständen, die analog zum Schalenmodell in der Atomphysik als s-, p- und d-Schale bezeichnet werden.

dargestellt. Die Energieniveaus die sich im Leitungs- und Schwerlochband ausbilden nennt man in Analogie zum Schalenmodell bei Atomen s-, p- und d-Schale [Fin01]. Wird in der Umgebung des QPes – z. B. über die Absorption eines Lasers – ein Elektron-Loch-Paar erzeugt, relaxiert dieses anschließend über Streuprozesse mit Phononen in den Grundzustand des QPes und formt durch die attraktive Coulomb-Wechselwirkung ein gebundenes Exziton. Der Hamiltonoperator des QP-Exzitons setzt sich dann zusammen aus den elementaren Beiträgen von Elektron  $\hat{\mathcal{H}}_e$  respektive Loch  $\hat{\mathcal{H}}_h$ , sowie zweier zusätzlicher Summanden für den Coulomb-Anteil  $\hat{\mathcal{H}}_C$ , der die attraktive Wechselwirkung beider Ladungsträger beinhaltet und der Spin-Bahn-Austauschwechselwirkung  $\hat{\mathcal{H}}_A$  [Che04, Nar00]:

$$\hat{\mathcal{H}} = \hat{\mathcal{H}}_e + \hat{\mathcal{H}}_h + \hat{\mathcal{H}}_C + \hat{\mathcal{H}}_A \quad (2.1)$$

Die Coulomb-Wechselwirkung zweier Teilchen  $i$  und  $j$  mit den Ladungen  $q_{i,j}$  lässt sich über

$$\hat{\mathcal{H}}_C = \int \int \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \frac{|\Psi_i(\vec{r}_i)|^2 |\Psi_j(\vec{r}_j)|^2}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} d\vec{r}_i d\vec{r}_j \quad (2.2)$$

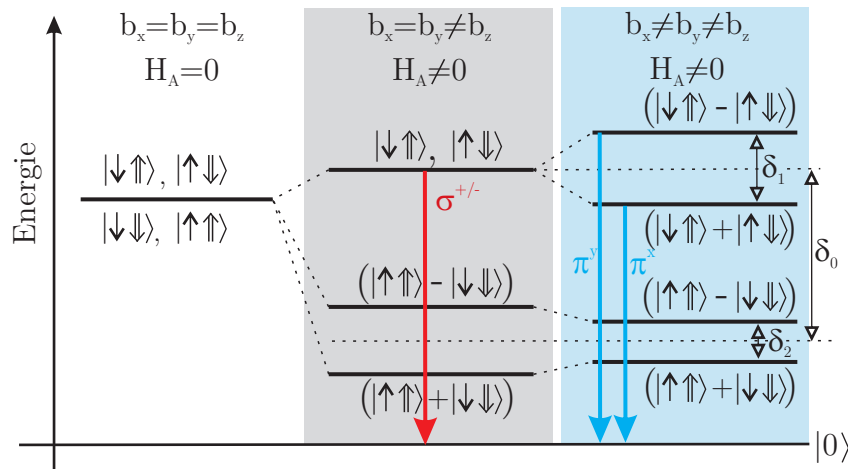
berechnen, wobei  $\epsilon_{0,r}$  die Vakuum- bzw. relative Permittivität und  $\Psi_{i,j}(\vec{r}_{i,j})$  die Wellenfunktion am Ort  $\vec{r}_{i,j}$  ist [War98]. Für ein gebundenes Elektron-Loch-Paar liegt die erwartete Bindungsenergie je nach Größe des QPes bzw. Ausdehnung der Wellenfunktion im Bereich von 10 – 30 meV [Sti99].

Neben der Coulomb-Wechselwirkung muss auch die Spin-Bahn-Wechselwirkung der Ladungsträger berücksichtigt werden. In den hier untersuchten III-V-Materialsystemen gibt es drei Lochbänder, das Schwerloch-, Leichtloch- und das energetisch abgespaltene Lochband, wobei das Schwerloch- und das Leichtloch-Band energetisch entartet am  $\Gamma$ -Punkt sind. Durch die kompressive Verspannung im Kristallgitter des QPes wird die energetische Entartung aufgehoben und das Schwerlochband bildet den energetisch niedrigsten Lochzustand [He04, Bay02a, Jas06]. Der Gesamtspin des Exzitons als Projektion auf die z-Achse (Wachstumsrichtung) bildet sich somit aus den Lochspins mit  $j_{z,hh} = |\pm 3/2\rangle$  und den Elektronenspins mit  $s_{z,e} = |\pm 1/2\rangle$ . Für den Gesamtdrehimpuls des Exzitons  $M_z = j_z + s_z$  ergeben sich somit die vier Möglichkeiten  $|\pm 2\rangle$  und  $|\pm 1\rangle$ . In Dipolnäherung sind nur solche Übergänge erlaubt bei denen eine Drehimpulsänderung um  $\Delta M = \pm 1$  stattfindet. Daraus folgt, dass nur die beiden Zustände  $M = |\pm 1\rangle$  strahlend zerfallen. Diese werden daher auch *helle Exzitonen* genannt. Die beiden Zustände  $M = |\pm 2\rangle$  sind dipolverboten und werden *dunkle Exzitonen* genannt [Nir95, Bay99]. Der Hamilton-Operator  $\hat{\mathcal{H}}_A$  der Wechselwirkung der Spins untereinander in Gleichung 2.1 ist gegeben als [VK90, Bay02a]

$$\hat{\mathcal{H}}_A = - \sum_{i=x,y,z} \left( a_i \hat{j}_{i,hh} \hat{s}_{i,e} + b_i \hat{j}_{i,hh}^3 \hat{s}_{i,e} \right), \quad (2.3)$$

wobei die Parameter  $a_i$  und  $b_i$  material- und symmetrieabhängige Parameter sind. Durch die linsenförmige Struktur der QPe (siehe Abbildung 2.1(a)) hat dieser eine zweidimensionale Symmetrie und es gilt  $b_x = b_y \neq b_z$ . Dies führt zu einer energetischen Abspaltung der beiden dunklen Zustände um  $\delta_0 = 1,5(a_z + 2,25b_z)$ . Die beiden Zustände  $M = |\pm 2\rangle$  spalten dabei zueinander um  $\delta_2 = 0,75(b_x + b_y)$  auf. Die hellen Zustände sind energetisch entartet und zerfallen unter Aussendung eines  $\sigma^+$  bzw  $\sigma^-$  polarisierten Photons. Wird die laterale Symmetrie gebrochen und es gilt  $b_x \neq b_y \neq b_z$  spalten auch die beiden hellen Zustände auf. Die Energiese-





**Abbildung 2.2:** Das Exzitonenniveau spaltet durch die Austauschwechselwirkung zwischen Elektron- und Lochspin energetisch auf. Je nach Symmetrie des QPes bleibt das helle Exziton energetisch entartet (grauer Kasten) oder spaltet in zwei Zustände auf, die linear polarisiertes Licht emittieren (blauer Kasten).

paration des hellen Exzitons  $\delta_1 = 0,75(b_x - b_y)$  nennt man auch FSA des Exzitons. Für die hier untersuchten InGaAs-QPe liegt die FSA typischerweise im Bereich einiger  $10 \mu\text{eV}$  [Sei08, Tre12], sie kann jedoch auch Werte deutlich über  $100 \mu\text{eV}$  annehmen [Seg05]. Die Emission ist nun nicht mehr zirkular polarisiert, durch die Mischung der beiden Zustände zerfällt das Exziton nun unter Aussendung eines linear polarisierten Photons. Abbildung 2.2 fasst die hier beschriebene energetische Entwicklung der vier Spin-Zustände mit abnehmender QP-Symmetrie schematisch zusammen.

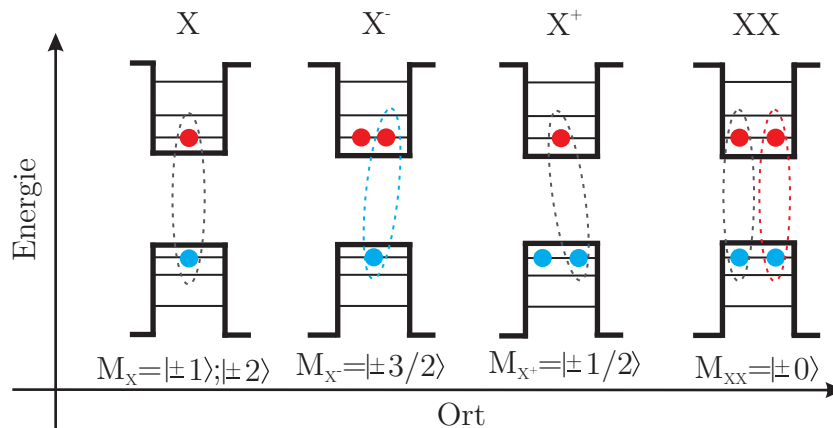
### 2.1.2 Mehrteilchenkomplexe in Quantenpunkten

Da die Besetzung der quantisierten Zustände in einem QP mit Fermionen erfolgt und somit dem Pauli-Prinzip unterliegt, kann jedes Energieniveau im Valenz- bzw. Leitungsband zwei Ladungsträger mit entgegengesetzt ausgerichtetem Spin aufnehmen. Ein QP kann also eine Vielzahl von Ladungskomplexen einschließen. Die Gesamtenergie des jeweiligen Zustandes ist dabei durch die Coulomb-Wechselwirkung (siehe Gleichung 2.2) abhängig von der Anzahl an Ladungsträgern im QP,

wodurch das Spektrum eines einzelnen QPes in der Regel aus mehreren Linien besteht [Seg06, Fin01, Rod05].

Abbildung 2.3 stellt schematisch die verschiedenen Ladungszustände mit dem jeweiligen Gesamtspin für eine sukzessive Auffüllung des QPes mit Ladungsträgern dar. Erhöht man die Ladungsträgeranzahl im QP erhält man aus dem ungeladenen Exziton das Trion  $X^{+/-}$ . Hier befindet sich zusätzlich zum Exziton ein weiteres Elektron respektive Loch im QP. Der Gesamtspin des Trions ist somit  $M_{X^-} = |\pm 3/2\rangle$  für das  $X^-$  bzw.  $M_{X^+} = |\pm 1/2\rangle$  für das  $X^+$ . Den Grundzustand des Trions bildet somit der nach Zerfall eines Elektron-Loch-Paares übrig bleibende Ladungsträger. Aufgrund der möglichen Spin-Einstellungen gibt es für beide Trionen keine dunklen Zerfallskanäle wodurch es bei der Rekombination eines Elektron-Loch-Paares immer zur Aussendung eines Photons kommt. Die Quanteneffizienz dieses Zustandes ist somit im Extremfall doppelt so hoch wie für das neutrale Exziton, wodurch das Trion der bevorzugte Zustand für effiziente SPSen ist. Weiterhin lässt sich mit einem Trion eine Spin-Photon-Schnittstelle für die Quanteninformationstechnologie realisieren [Yao05, Yil10, Kim08, DG11]. Hier nutzt man aus, dass der Spin des übrig bleibenden Ladungsträgers mit der Polarisation [DG12] oder der Wellenlänge des emittierten Photons verschränkt ist [Gao12]. Um die Bildung von Trionen in QPen zu bevorzugen kann man entweder eine  $\delta$ -Dotierschicht knapp unterhalb der QP-Schicht einbringen oder die QPe in eine Diodenstruktur einbauen. Die Dotierschicht lädt den QP probabilistisch vorab mit einem Ladungsträger, sodass bei der Absorption eines Lasers bevorzugt das Trion im QP gebildet wird [Pre08]. Im Falle der Diodenstruktur lässt sich über die angelegte Spannung der Ladungszustand des QPes steuern [Bra05, Sei05].

Neben Exziton und Trion nimmt das Biexziton ebenfalls eine wichtige Rolle ein. Es bildet sich aus zwei aneinander gebundenen neutralen Exzitonen und zerfällt somit kaskadiert über das Exziton-Niveau in den leeren Grundzustand. Da für den Gesamtspin des Biexzitons gilt  $M_{XX} = |0\rangle$ , zerfällt es immer strahlend in einen der beiden hellen Exziton-Zustände  $M_X = |\pm 1\rangle$ . Da sich die Austauschwechselwirkung durch die gegenläufige Orientierung der Spins kompensiert, besitzt das Biexziton-Niveau keine energetische Aufspaltung. Besitzt nun auch das Exziton eine verschwindend

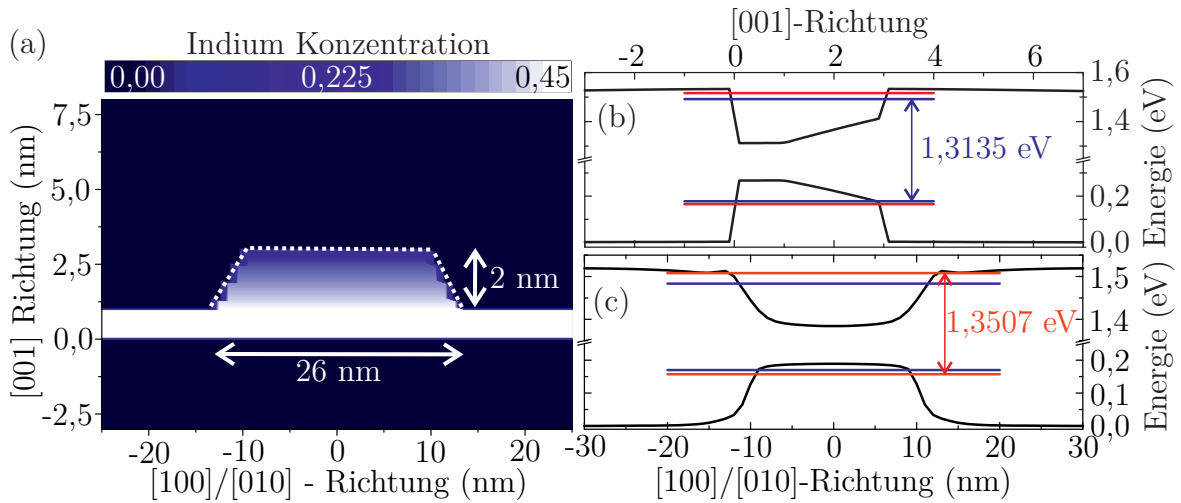


**Abbildung 2.3:** Die quantisierten Zustände eines QPES werden unter Berücksichtigung des Pauli-Prinzips mit Ladungsträgern gefüllt. Die einzelnen Zustände (von links nach rechts) sind das Exziton (X,  $1e + 1h$ ), das negativ geladene Exziton (X<sup>-</sup>,  $2e + 1h$ ), das positiv geladene Exziton (X<sup>+</sup>,  $1e + 2h$ ) und das Biexziton (XX,  $2e + 2h$ ).

kleine FSA, so ist es nicht möglich durch eine Messung der Photonenenergie auf die Polarisation der emittierten Photonen zu schließen. Die beiden Photonen die beim Zerfall des Biexzitons in den leeren Grundzustand ausgesendet werden sind somit in ihrer Polarisation quantenmechanisch verschränkt [Ako06, Haf07, Jus13]. Dies kann beispielsweise im Rahmen des Ekert91-Protokolls [Eke91] – alternativ zu einzelnen Photonen im BB84-Protokoll – für sichere Quantenkommunikation verwendet werden [Gis02, Gis07].

### 2.1.3 Simulation der Energieeigenwerte von InGaAs-Quantenpunkten

Für ein detaillierteres Verständnis der elektronischen Struktur von QPES sollen nun Simulationen dieser Nanostrukturen vorgestellt werden, welche mit Hilfe der kommerziellen Software *nextnano++* durchgeführt wurden [Bir07]. Diese erlaubt es die elektronischen Eigenschaften von Halbleiterstrukturen auf Basis quantenmechanischer Modelle zu berechnen [Bir06, Tre06] und bietet hierfür die Lösung der Einband-Schrödingergleichung, sowie die 6-Band und 8-Band  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ -Methode zur Berechnung der Bandstruktur an. Das Programm berücksichtigt dabei sowohl



**Abbildung 2.4:** (a) Indiumprofil des simulierten QPes als Konturplot. Für die Simulation wurde eine lineare Abnahme des Indiumanteils zur QP-Oberseite hin angenommen. Der QP ist ein Konus mit 26 nm Durchmesser in lateraler Ebene an der Unterseite, einer Konizität von 0,75 und einer Höhe von  $h_{QP} = 2$  nm. Die Dicke der Benetzungsschicht beträgt  $h_{BS} = 1$  nm. (b) und (c) Bandverlauf des QPes in (a) axialer und (b) lateraler Richtung. Die Grundzustände von Elektron und Loch sind jeweils in rot eingezeichnet. Die blaue Linie stellt die Energie des nächst höheren Zustandes dar.

Gitterverspannungen als auch piezoelektrische Felder in der Struktur. Neben der Bandstruktur können auch die Wellenfunktionen bzw. Aufenthaltswahrscheinlichkeiten von Elektron und Loch sowie die quantisierten Energieniveaus im Potentialtopf simuliert werden.

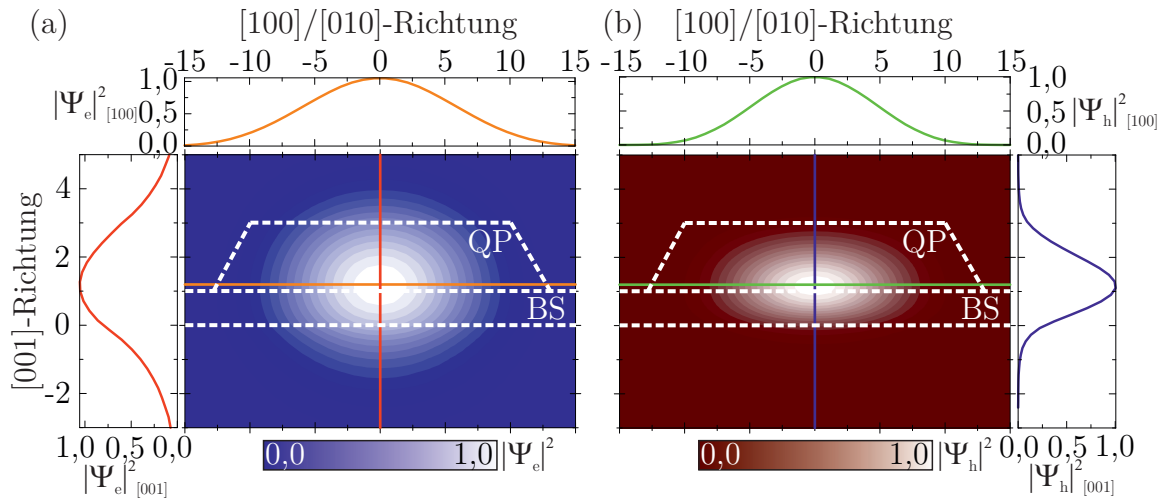
Ausgangspunkt der Simulation ist ein konischer QP mit 26 nm Durchmesser an der Unterseite, einer Konizität von 0,75 und einer Höhe von 2 nm, welcher in Abbildung 2.4(a) dargestellt ist. Diese Abmessungen sind konform mit Raster-Transmissionselektronenmikroskopie (STEM)-Aufnahmen von QPen, welche auf ähnliche Weise gewachsen wurden wie die in dieser Arbeit verwendeten [Bra16]. Die Höhe der QPe wird beim Wachstum maßgeblich von der Höhe der Benetzungsschicht vor dem thermischen Ausheilungsschritt (*partial capping and annealing*, siehe Abschnitt 5.1) bestimmt. Durch den thermischen Ausheilungsschritt kommt es zur Diffusion zwischen Gallium und Indium Atomen, sodass effektiv InGaAs-QPe

entstehen, bei denen die Indiumkonzentration zur Spitze der QPe hin abnimmt. Für die Simulation wurde diese Konzentration mit einem linearen Gradienten von 45 % Indium an der Unterseite der QPe auf 35 % an der Spitze reduziert. Ein qualitativ ähnlicher Verlauf konnte in STEM Messungen an *in-situ* ausgeheilten QPen nachgewiesen werden<sup>2</sup>. Die Dicke der Benetzungsschicht wurde als 1 nm angenommen [Sek06], wobei die Indiumkonzentration dem maximalen Anteil im QP entspricht.

Die Struktur wurde für die Simulation in ein Netz zerlegt, bei dem die einzelnen Gitterpunkte in lateraler Ebene 1 nm und in axialer Richtung 0,1 nm Abstand haben. Der Quelltext ist in Anhang A.1 vollständig aufgelistet. Für die Simulation wurde die 6-Band  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ -Methode gewählt, welche die Wechselwirkung der Lochbänder untereinander berücksichtigt. Die Abbildungen 2.4(b) und 2.4(c) zeigen den Bandverlauf entlang der [001] und [100] Kristallachse (welcher aufgrund der Symmetrie identisch zur [010] Achse ist). Die eingezeichneten blauen Linien entsprechen dem energetischen Grundzustand, welcher sowohl für Elektronen als auch Löcher im Potentialtopf eingeschlossen ist. Der Einschluss des Elektrons ist mit 24 meV etwas geringer als der des Lochs mit 178 meV, was sich auf die unterschiedlichen Banddiskontinuitäten zurückführen lässt. Aus der Energiedifferenz der beiden Zustände ergibt sich die Emissionsenergie des Exzitons zu  $E_1 = 1,3135$  eV. Dies entspricht der Photonenenergie der in dieser Arbeit untersuchten InGaAs-QPe, welche etwa einen Bereich von 1,3776 eV bis 1,305 eV (900 nm bis 950 nm) abdeckt. In der Simulation wird sowohl die Coulomb-Wechselwirkung der beiden Ladungsträger als auch die Austauschwechselwirkung der Spins von Elektron und Loch vernachlässigt. Dies führt in realen Systemen zu einer Absenkung der Grundzustandsenergie von 10 bis 30 meV [Sti99]. Auch der nächsthöhere Zustand – genannt p-Schale – mit einer Übergangsenergie von  $E_2 = 1,3507$  eV ist noch im Potentialtopf eingeschlossen. Die Energiedifferenz von ungefähr 24 meV ist in Einklang zu experimentell beobachteten Werten [Gol14, San02, Ate09a, Fin01]. Für den energetischen Grundzustand ist weiterhin in Abbildung 2.5 die simulierte Aufenthaltswahrscheinlichkeit von (a) Elektron und (b) Loch dargestellt. Die Wellenfunktion des Lochs ist dabei gänzlich

---

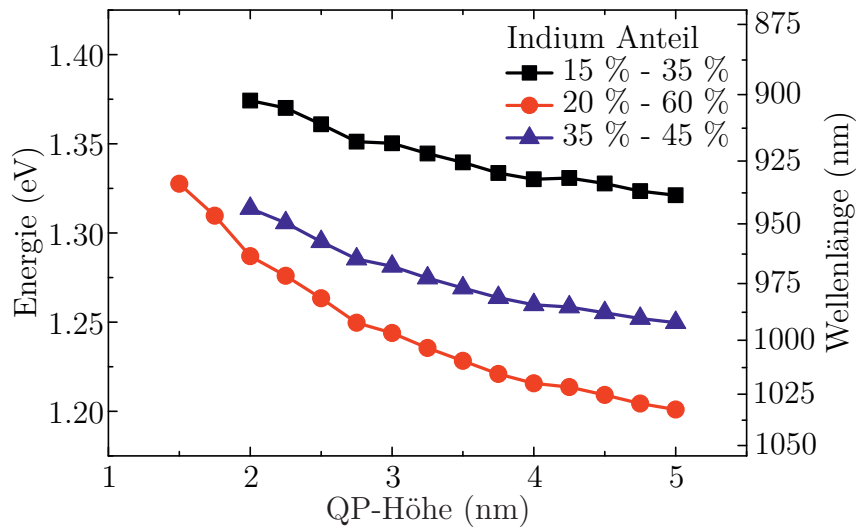
<sup>2</sup>*Transmission Electron Microscopy Analysis of Semiconductor Quantum Dots*, Master Thesis, Nils Lundt, Lehrstuhl für Technische Physik, Universität Würzburg, 2015



**Abbildung 2.5:** Simulierte Aufenthaltswahrscheinlichkeit von (a) Elektron und (b) Loch. Durch die kleinere effektive Masse erstreckt sich die Wellenfunktion des Elektrons über einen größeren Bereich, sodass sich das Elektron sogar mit einer endlichen Wahrscheinlichkeit außerhalb des QPes befindet. Das Loch ist hingegen vollständig auf das Volumen des QPes beschränkt.

auf den Bereich des QPes und der darunterliegenden Benetzungsschicht beschränkt. Im Vergleich dazu nimmt das Elektron einen deutlich größeren Bereich ein und hat auch eine endliche Aufenthaltswahrscheinlichkeit oberhalb und unterhalb des QPes. Dies ist eine direkte Konsequenz aus der geringeren effektiven Masse des Elektrons. Durch den energetischen Einschluss von 24 meV ist das Elektron trotzdem lokal eingefangen, sodass immer noch ein quasi 0-dimensionales System vorliegt.

Abschließend wurde diese Simulation sowohl für andere Indiumprofile, als auch verschiedene Höhen des QPes durchgeführt. Abbildung 2.6 fasst die Emissionsenergien des Grundzustandes von diesen Berechnungen zusammen. In Abbildung 2.6 lassen sich insgesamt zwei Trends ausmachen. Mit zunehmendem maximalen Indiumanteil an der QP-Unterseite sinkt die Energie des Grundzustandes im QP. Dies resultiert aus der abnehmenden Bandlücke des ternären  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Systems mit zunehmendem Indiumanteil  $x$ . Weiterhin nimmt die Übergangsenergie innerhalb jeder Indiumkonfiguration mit abnehmender QP-Höhe zu. Sinkt die QP-Höhe – beispielsweise durch eine dünnere Ga-Bedeckungsschicht beim Wachstum – nimmt durch die



**Abbildung 2.6:** Simulierte Übergangsenergie zwischen den Grundzuständen von Elektron und Loch. Die Simulationen wurden für QP-Höhen von 1,5 nm bis 5 nm und drei verschiedene Indiumkonzentrationen durchgeführt. Durch den zunehmenden Einschluss nimmt die Energie mit abnehmender QP-Höhe sukzessive zu. Weiterhin sinkt die Übergangsenergie, je indiumreicher im Mittel der QP ist. Es gibt somit verschiedene Konfigurationen aus Höhe und Indiumkonzentration um den Wellenlängenbereich von 900 nm bis 950 nm abzudecken.

verringerte Abmessung des endlichen Potentialtopfs die Quantisierung des Systems und damit die Übergangsenergie zwischen dem Elektron- und Lochgrundzustand zu. Somit gibt es mehrere Möglichkeiten die Emissionswellenlänge der QPe auf den in dieser Arbeit relevanten Bereich von 900 nm bis 950 nm einzustellen.

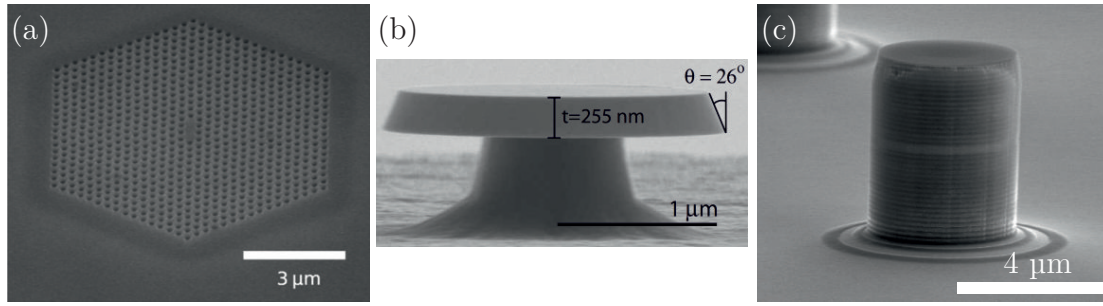
## 2.2 Mikrosäulenresonatoren

Durch die Einbettung in eine GaAs-Halbleitermatrix mit einem Brechungsindex von  $n_{GaAs} \approx 3,6$  ist der kritische Einfallswinkel, unter dem Photonen die Probe an der Grenzfläche zu Vakuum verlassen können sehr steil. Dadurch können in einer reinen QP-Struktur nur ca. 3 % der emittierten Photonen die Probe

verlassen [Bar02]. Über eine Kombination aus nanoskaliger Lithographie und anschließendem Ätzen können die photonischen Eigenschaften der Halbleiterstruktur modifiziert werden und das emittierte Licht kann gezielt in eine bestimmte Richtung geführt werden. Je nachdem in welche Raumrichtung dies geschehen soll, gibt es verschiedene photonische Architekturen um dies zu bewerkstelligen. Eine Übersicht über häufig verwendete Resonatorstrukturen ist in Abbildung 2.7 gezeigt. Um eine gerichtete Emission in lateraler Ebene der Probe zu erzielen, werden üblicherweise zwei Strukturen verwendet. Zum einen handelt es sich dabei um photonische Kristalle, bei denen über das periodische Ätzen von Löchern in die GaAs Matrix eine Bandstruktur für Licht erzeugt wird [Noz10, Eng05]. Durch das gezielte Auslassen eines oder mehrerer solcher Löcher wird ein Defekt in der Bandlücke dieser Struktur erzeugt, welcher die optische Fundamentalmode der Struktur darstellt. Ein alternativer Ansatz, bei dem die Lichtpropagation hauptsächlich in lateraler Ebene stattfindet, ist der in Abbildung 2.7(b) gezeigte Mikroscheibenresonator [Arm03, Pet05, Sri06, Sri07]. Durch den hohen Indexkontrast zum Vakuum wird das Licht sehr stark in der Scheibe eingeschlossen. Es bilden sich daraufhin sog. Flüstergaleriemoden, an die ein Emitter ankoppeln kann. Auf Basis dieser beiden Strukturen sollen Experimente und Anwendungen direkt auf dem Chip realisiert werden [Die16]. Im Rahmen dieser Arbeit fand das Konzept der Mikrosäulenresonatoren (Abbildung 2.7(c)) Verwendung, da für die durchgeführten Experimente eine Lichtquelle benötigt wird, die senkrecht zu ihrer Oberfläche eine effiziente Lichtauskopplung ermöglicht [Gér99, Rei04, Rei09].

Die Mikrotürmchen basieren zumeist auf einer Kavität aus GaAs, welche von zwei Bragg-Spiegeln (DBRs) umgeben ist. Die Dicke der Kavität gibt dabei die Resonanzwellenlänge  $\lambda$  des Systems vor. Jeder DBR besteht aus mehreren Spiegelpaaren, welche jeweils aus einer Schicht GaAs und AlAs gebildet werden. Durch den Brechungsindexunterschied kommt es zu einer teilweisen Reflexion des Lichtes an der Grenzfläche der beiden Materialien. Für eine Dicke der Einzelschichten von  $\frac{\lambda}{4n_i}$  ( $n_i$ : Brechungsindex der jeweiligen Schicht) erhält man konstruktive Interferenzbedingungen für die Reflexion und destruktive für Transmission. Da die maximal mögliche Reflexion – bedingt durch den geringen Indexunterschied – klein





**Abbildung 2.7:** Dargestellt werden verschiedene Realisierungen von Mikroresonatoren. (a) SEM Aufnahme einer photonischen Kristall Kavität (entnommen aus [Bee13]). (b) SEM Aufnahme eines Mikroscheibenresonators (entnommen aus [Sri06]). (c) SEM Aufnahme eines Mikrosäulenresonators.

ist, wächst man mehrere dieser Spiegelpaare. Die Gesamtrefektivität  $R$  eines DBRs ergibt sich dann zu [Iga03]

$$\sqrt{R} = \frac{1 - \frac{n_{oben}}{n_{unten}} \left( \frac{n_{AlAs}}{n_{GaAs}} \right)^{2i}}{1 + \frac{n_{oben}}{n_{unten}} \left( \frac{n_{AlAs}}{n_{GaAs}} \right)^{2i}}, \quad (2.4)$$

wobei  $n_{oben}$  und  $n_{unten}$  die Brechungsindizes der Materialien über bzw. unter dem DBR sind und  $i$  die Anzahl der GaAs/AlAs Spiegelpaare ist. Eine gerichtete Lichtemission in Richtung des Mikroskopobjektivs wird durch eine ungleiche Anzahl an Spiegelpaaren gewährleistet. Die Reflektivität der beiden DBR bestimmt ebenfalls die Zeit  $\tau$  wie lange sich ein Photon in der jeweiligen Mode des Resonators aufhält und definiert damit die Güte  $Q$  eines Resonators mit der Resonanzfrequenz  $\omega_0$  [Rei10]:

$$Q = \tau \omega_0 \quad (2.5)$$

Obige Gleichung lässt sich ebenfalls in eine experimentell einfacher zugängliche Form umwandeln:

$$Q = \frac{E}{\Delta E} = \frac{\lambda}{\Delta \lambda}, \quad (2.6)$$

wobei  $E$  und  $\lambda$  die Resonanzenergie bzw. -wellenlänge ist und  $\Delta E/\Delta \lambda$  die Halbwertsbreite der Mode darstellt. Für die hier verwendeten Mikrosäulenresonatoren wird zunächst eine planare Mikroresonanz hergestellt, die aus einem oberen und unteren DBR besteht. Anschließend werden über eine Kombination aus Litho-

graphie und anschließendem Ätzen die Mikrotürmchen hergestellt. Die optische Mode ist nun im Vergleich zur planaren Struktur durch den Indexkontrast an der Seitenwand der Kavität in allen drei Raumrichtungen eingeschränkt. Der Q-Faktor eines solchen Mikrotürmchens ist im Idealfall identisch zum intrinsischen Q-Faktor der planaren Struktur  $Q_{int}$ . In realen Systemen wird er jedoch zumeist von mehreren Verlustmechanismen beeinflusst, welche zu einer Abnahme führen. Je nach Durchmesser der Struktur und dem daraus folgendem Verhältnis aus Oberfläche zu Volumen des Türmchens dominiert die Streuung an den Rändern des Mikrotürmchens  $Q_{Rand}$  über die Absorptionsverluste in den Spiegeln  $Q_{Abs.,DBR}$  und im aktiven Material  $Q_{Abs.,QP}$ . Die einzelnen Beiträge summieren sich reziprok und ergeben den Q-Faktor der Struktur zu [Böc08, Riv99, Eng06]

$$\frac{1}{Q} = \frac{1}{Q_{int}} + \frac{1}{Q_{Abs.,QP}} + \frac{1}{Q_{Abs.,DBR}} + \frac{1}{Q_{Rand}}. \quad (2.7)$$

## 2.3 Licht-Materie-Wechselwirkung

In dieser Arbeit manifestiert sich die Licht-Materie-Wechselwirkung durch zwei Effekte. Zum einen ist für die effiziente Erzeugung einzelner Photonen die Ankopplung eines Zwei-Niveau-Systems an die optische Mode einer Mikrokavität von Bedeutung. Zum anderen beschäftigt sich ein großer Teil dieser Arbeit mit der resonanten Anregung eines QPes, welche grundsätzlich die Kopplung eines QPes an ein resonantes Laserfeld darstellt. Beide Effekte lassen sich im Rahmen des Jaynes-Cummings-Modells beschreiben. Dabei wird ein Zwei-Niveau-System mit Übergangsenergie  $\hbar\omega_A$  angenommen, das an ein Lichtfeld der Energie  $\hbar\omega_L$  mit der Stärke  $g = \Omega_R/2$  ( $\Omega_R$ : Rabi-Frequenz) koppelt. Der resultierende Hamilton-Operator lässt sich dann als die Summe aus den Einzeloperatoren für das Zwei-Niveau-System bzw. Lichtfeld und einem zusätzlichen Term, der die Wechselwirkung zwischen beiden beinhaltet schreiben [Jay63, Sho93]:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{ZNS} + \mathcal{H}_{Licht} + \mathcal{H}_{WW} = \hbar\omega_A \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma} + \hbar\omega_L \hat{a}^\dagger \hat{a} + \hbar g (\hat{a}^\dagger \sigma + \sigma_+ \hat{a}) \quad (2.8)$$

$\hat{\sigma}_+ = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}$  bzw.  $\hat{\sigma}_- = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}$  ist der Auf- bzw. Absteigeoperator der beiden Zustände des Zwei-Niveau-System und  $\hat{a}$  bzw.  $a$  ist der Erzeugungs- respektive Vernichtungsoperator des Lichtfeldes. Basierend auf Gleichung 2.8 werden nun verschiedene Zustände des Systems betrachtet und deren spektrale Eigenschaften abgeleitet.

### 2.3.1 Resonante Anregung von Zwei-Niveau-Systemen

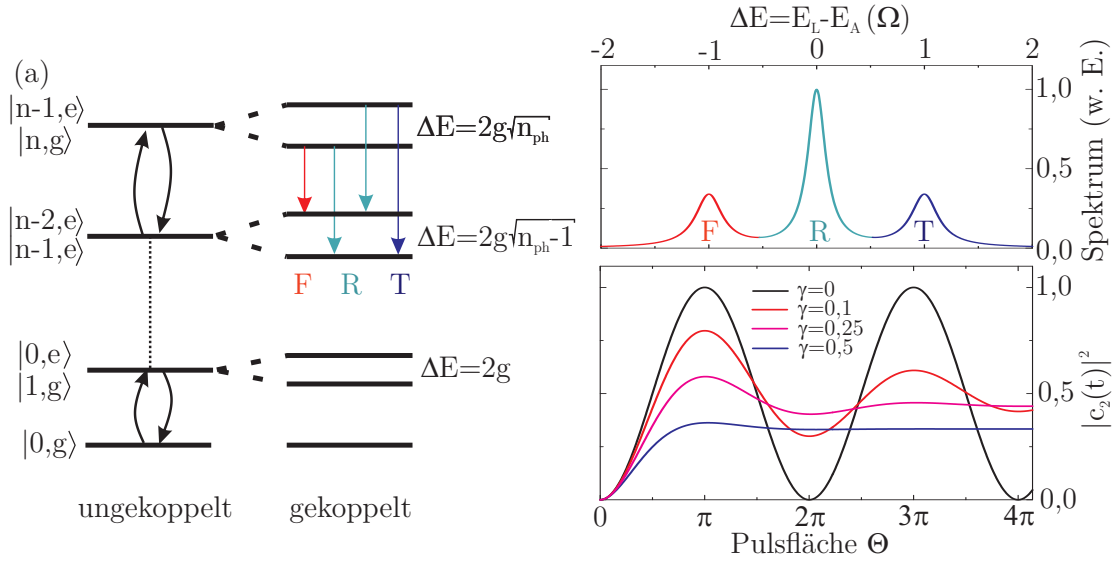
Ausgehend von Gleichung 2.8 lassen sich die Energieeigenwerte des Systems für den einfachsten Fall der Besetzung des Lichtfeldes mit einem bzw. keinem Photon berechnen zu:

$$E_{\pm} = \frac{1}{2}\hbar(\omega_A + \omega_L) \pm \sqrt{g^2 + \left(\frac{\Delta}{4}\right)^2}. \quad (2.9)$$

Hierbei ist  $\Delta = E_A - E_L$  die energetische Verstimmung zwischen dem Zwei-Niveau-System und dem Lichtfeld. Für spektrale Resonanz zwischen Emitter und Lichtfeld spaltet das System um den Wert  $\Delta E = 2g$  auf. Mit steigender Besetzungszahl  $n_{Ph}$  der Photonmode nimmt die Aufspaltung wurzelförmig zu:

$$\Delta E = 2g\sqrt{n_{Ph}} \quad (2.10)$$

Abbildung 2.8(a) zeigt die Energiestruktur eines solchen gekoppelten Systems – auch Jaynes-Cummings-Leiter genannt – für verschiedene Besetzungszahlen des Lichtfeldes. Sendet das gekoppelte System ein Photon aus und steigt damit die Leiter um eine Stufe herunter, gibt es insgesamt vier mögliche Zerfallskanäle falls Anfangs zwei oder mehr Photonen in der Mode waren. Für sehr hohe Photonenzahlen  $n_{Ph}$  sind zwei dieser Übergänge in guter Näherung energetisch entartet, da gilt  $n_{Ph} \approx (n_{Ph} - 1)$ . Im Spektrum, welches beispielhaft in Abbildung 2.8(b) dargestellt ist, sind somit drei Übergänge sichtbar, die in energetisch aufsteigender Reihenfolge als **F**luoreszenz-, **R**ayleigh- und **D**rei-Photonen-Linie (engl. **T**hree-photon-line) bezeichnet werden. Dieses charakteristische Spektrum wird auch als Mollow-Triplett bezeichnet [Mol69] und konnte zuerst von Wu *et al.* an Natrium Atomen [Wu75]



**Abbildung 2.8:** (a) Energiediagramm des ungekoppelten (links) und des gekoppelten (rechts) Systems aus Licht und Materie. Durch die Wechselwirkung kommt es zu einer Aufspaltung der gekoppelten Zustände, welche wurzelförmig mit der Besetzungszahl des Lichtfeldes skaliert. (b) Spektrum eines gekoppelten Licht-Materie-Systems, welches mit einem starken resonanten cw betriebenen Laser wechselwirkt. Es sind drei Spektrallinien beobachtbar, welche aus Übergängen in der Jaynes-Cummings-Leiter in (a) resultieren. Die Linien werden in aufsteigender energetischer Reihenfolge als **F**luoreszenz-, **R**ayleigh- und **D**rei-Photonen-Linie (engl. **T**hree-photon-line) bezeichnet. (c) Besetzungswahrscheinlichkeit des angeregten Zustandes eines Zwei-Niveau-System, aufgetragen über der Pulsfläche des gepulsten resonanten Laserfeldes. Für ein ungedämpftes Systems treten die charakteristischen Rabi-Oszillationen auf, welche entsprechend Gleichung 2.22 mit zunehmender Dephasierung des Systems abnehmen.

nachgewiesen werden. Der energetische Abstand der beiden Seitenpeaks zur zentralen Linie wird als Rabi-Aufspaltung bezeichnet und hängt wie zuvor bereits erwähnt von der Besetzungszahl des Lichtfeldes ab (siehe Gleichung 2.10).

In Realität unterliegt ein solches System immer Dephasierungsprozessen, welche bisher nicht berücksichtigt wurden. Da QPe eine festkörperbasierte Plattform darstellen, ist die Kopplung an quantisierte Gitterschwingungen eine der Hauptursachen für eine Dephasierung des QP-Zustandes. Es kann gezeigt werden, dass im Falle der resonanten Anregung eines QP-Zwei-Niveau-Systems die Auswirkungen

der Kopplung an LA Phononen hinreichend genau durch eine Renormalisierung der Rabi-Aufspaltung, sowie der Einführung einer phononeninduzierten Dephasierungsrate wiedergegeben werden [McC13]. Die renormalisierte Rabi-Aufspaltung (in Einheiten der Energie) ist dann gegeben durch

$$\Omega_r = \vec{\mu} \vec{E}_0 R = \Omega_R R, \quad (2.11)$$

wobei  $\vec{\mu}$  das Dipolmoment des Emitters ist,  $\vec{E}_0$  die elektrische Feldstärke des Lasers und  $R$  der Renormalisierungsparameter. Die Exziton-Phonon Wechselwirkung mit der Kopplungsstärke  $\alpha$  ist proportional zur spektralen Dichte  $\mathcal{J}(\omega)$  der Gitterschwingungen, welche sich darstellen lässt als [Ram10b, Ram10a]:

$$\mathcal{J}(\omega) = \alpha \omega^3 \exp\left(-\left(\frac{\omega}{\omega_C}\right)^2\right), \quad (2.12)$$

mit der Abschneidefrequenz  $\omega_C$  die invers proportional zur QP- Ausdehnung ist. Damit kann man den Renormalisierungsfaktor  $R$  aus Gleichung 2.11 schreiben als [McC10, McC13, Wei14a]:

$$R = \exp\left(-\frac{1}{2} \int_0^\infty \frac{\mathcal{J}(\omega)}{\omega^2} \coth\left(\frac{\omega}{2k_B T}\right) d\omega\right) \quad (2.13)$$

Die Gesamtdephasierung  $\Gamma_2$  des gekoppelten Systems ist durch

$$\Gamma_2 = \frac{1}{2}\Gamma_1 + \gamma_{PD} + \gamma_0 \quad (2.14)$$

gegeben [Wei14b], wobei  $\Gamma_1 = 1/T_1$  die spontane Emissionsrate des QPes,  $\gamma_0$  eine konstante, phononenunabhängige Dephasierung und  $\gamma_{PD}$  die durch Phononen verursachte Dephasierung ist. Es kann gezeigt werden, dass für schwache Exziton-Phonon-Wechselwirkung gilt:

$$\gamma_{PD} = \frac{\pi}{2} \mathcal{J}(\Omega_R) \coth\left(\frac{\omega}{2k_B T}\right) \quad (2.15)$$

$$\approx_{\Omega_r \ll k_B T} \pi \alpha k_B T \Omega_r^2. \quad (2.16)$$

Die Linienbreite der Mollow-Seitenpeaks, welche im späteren Verlauf dieser Arbeit zur Charakterisierung des gekoppelten QP-Laser-Systems verwendet wird, ist gegeben als

$$\Delta\omega = \frac{3}{2}\Gamma_1 + \gamma_{PD} + \gamma_0 \underset{\Omega_r \ll k_B T}{\approx} \frac{3}{2}\Gamma_1 + \pi\alpha k_B T \Omega_r^2 + \gamma_0 \quad (2.17)$$

Bisher wurde die Kopplung zwischen Zwei-Niveau-System und Laser nur für ein zeitunabhängiges Laserfeld betrachtet. Da im Hinblick auf spätere Anwendungen die Erzeugung einzelner Photonen auf „Knopfdruck“ jedoch von essentieller Bedeutung ist, soll nun noch auf die Licht-Materie-Wechselwirkung für ein zeitabhängiges elektro-magnetisches Feld  $E_0(t)$  eingegangen werden. Dazu wird die zeitabhängige Schrödingergleichung betrachtet, wobei sich der Hamilton-Operator des Systems in einen zeitunabhängigen Term, der dem ungestörten Zwei-Niveau-System ohne Lichtfeld entspricht und einen Störungsterm für die Licht-Materie-Wechselwirkung aufspalten lässt. Die allgemeine Lösung der Schrödingergleichung ist dann gegeben durch [Fox06]:

$$\Psi(\mathbf{r}, t) = c_1(t)\psi_1(\mathbf{r})e^{-iE_1 t/\hbar} + c_2(t)\psi_2(\mathbf{r})e^{-iE_2 t/\hbar}, \quad (2.18)$$

mit den beiden Energien  $E_1$  sowie  $E_2$  des Zwei-Niveau-Systems.  $c_1(t)$  und  $c_2(t)$  stellen die zeitabhängige Superposition zwischen den beiden Zuständen während der Wechselwirkung mit dem Laser dar. Darauf aufbauend lässt sich unter Anwendung der *rotating wave approximation*<sup>3</sup> und unter der Annahme, dass Laser und der Zwei-Niveau-System-Übergang resonant sind folgendes Gleichungssystem ableiten:

$$\begin{aligned} \dot{c}_1(t) &= \frac{i}{2}\Omega_R c_1(t) \\ \dot{c}_2(t) &= \frac{i}{2}\Omega_R c_2(t) \end{aligned} \quad (2.19)$$

Dabei ist  $\Omega_R = \mu E_0(t)/\hbar$  analog zu Gleichung 2.11 die Rabi-Frequenz, wobei hier die Renormalisierung durch Phononen vernachlässigt wird und die Feldamplitude

<sup>3</sup>engl. für Drehwellennäherung. Bei der Lösung der Schrödingergleichung treten Terme auf, die mit  $\pm(\omega + \omega_0)$  rotieren ( $\omega$ : Frequenz des Lasers;  $\omega_0$  Frequenz des Zwei-Niveau-System-Überganges), somit nicht energieerhaltend sind und daher vernachlässigt werden können.

zeitabhängig ist. Löst man dieses Gleichungssystem erhält man für die Besetzungswahrscheinlichkeiten von Grundzustand respektive angeregtem Zustand:

$$\begin{aligned} |c_1(t)|^2 &= \cos^2(\Omega_R t/2) \\ |c_2(t)|^2 &= \sin^2(\Omega_R t/2) \end{aligned} \quad (2.20)$$

Daraus erkennt man, dass das ungedämpfte System zwischen dem Grundzustand und dem angeregten Zustand mit der Rabi-Frequenz  $\Omega_R$  oszilliert, was auch als *Rabi-Oszillation* bezeichnet wird. Wie leicht ersichtlich ist, befindet sich das System für  $\Omega_R t = \pi$  im angeregten Zustand. Da die Rabi-Frequenz abhängig von der Feldamplitude  $E_0$  ist kann die Besetzung des Zwei-Niveau-System extern durch die Stärke des Lasers eingestellt werden, was auch als *kohärente Kontrolle* bezeichnet wird. Dazu ist es hilfreich die Pulsfläche  $\Theta$  zu definieren, welche im Prinzip die zeitliche Entwicklung von  $\Omega_R t$  in Gleichung 2.20 darstellt und somit angibt in welchem Zustand sich das System nach der Wechselwirkung mit dem Laser befindet. Mathematisch wird die Pulsfläche definiert als [Fox06, Mel08]:

$$\Theta = \left| \frac{\mu}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} E_0(t) dt \right| \quad (2.21)$$

Liefert dieses Integral den Wert  $\pi$  spricht man auch von einem  **$\pi$ -Puls**, welcher das System im angeregten Zustand präpariert. Bei einem  **$2\pi$ -Puls** rotiert das System einmal in den angeregten Zustand und wieder zurück in den Grundzustand. Von außen betrachtet sieht es somit aus, als ob das System keinerlei Störung erfahren hätte. Die bisherige zeitabhängige Betrachtung hat Verluste des gekoppelten Systems vernachlässigt, in realen QP-Systemen wird man immer eine zeitliche Dämpfung des Systems beobachten können, die zum Abklingen der Rabi-Oszillationen führt. Zullererst sei hier die spontane Emission des angeregten Zustandes genannt, die dazu führt, dass die mittlere Besetzungsdichte des angeregten Zustandes abnimmt. Weitere mögliche Dephasierungen sind, wie zuvor schon erwähnt die Kopplung an Phononen oder Störstellen. Fasst man alle diese Beiträge in einer Dephasierungsrate  $\gamma$  zusammen, lässt sich zeigen, dass für die Besetzungswahrscheinlichkeit des Zwei-

Niveau-System gilt [Fox06, Lou00]:

$$|c_2(t)|^2 = \frac{1}{2(1 + 2\xi^2)} \left( 1 - \left( \cos(\Omega't) + \frac{3\xi}{\sqrt{4 - \xi^2}} \sin(\Omega't) \right) \exp\left(-\frac{3\gamma t}{2}\right) \right), \quad (2.22)$$

wobei  $\xi$  und  $\Omega'$  gegeben sind über

$$\begin{aligned} \xi &= \gamma/\Omega_R \\ \Omega' &= \Omega_R \sqrt{1 - \xi^2/4} \end{aligned} \quad (2.23)$$

Abbildung 2.8(c) zeigt die Besetzungswahrscheinlichkeit des angeregten Zustandes für verschiedene Dämpfungen des Systems. Die Rabi-Frequenz wurde dabei  $\Omega_R = 1$  gesetzt und es wurden Rabi-Oszillationen für verschiedene Dämpfungsraten  $\gamma$  aufgetragen. Das ungedämpfte System oszilliert Sinus-förmig mit zunehmender Pulsfläche zwischen maximaler Inversion für ungerade Faktoren von  $\pi$  und verschwindender Besetzung für geradzahlige Vielfache von  $\pi$ . Eine Anregung mit einem  $\pi$ -Puls entspricht daher der maximalen Wahrscheinlichkeit ein Photon aus dem Zwei-Niveau-System zu generieren, was auch als *deterministische Erzeugung* von Photonen bezeichnet wird. Für eine geringe Dämpfung des Systems oszilliert das System für hohe Pulsflächen nur noch sehr schwach um den Wert  $|c_2|^2 = 0,5$ . Für starke Dephasierungsprozesse wird dieses Niveau deutlich unterschritten, eine Invertierung des Zwei-Niveau-System ist somit nicht mehr möglich. Dieser Effekt konnte bereits häufig an QPen beobachtet werden [Ard14, Rei14, Bou15].

### 2.3.2 Quantenpunkte in Mikrokavitäten

In Analogie zur Licht-Materie-Wechselwirkung bei der resonanten Anregung eines Zwei-Niveau-Systems, lässt sich ein QP der an die Fundamentalmode einer Mikrokavität koppelt ebenfalls im Rahmen des Jaynes-Cummings-Modells beschreiben. Der Hamiltonoperator des Systems ist wie zuvor durch Gleichung 2.8 beschrieben. Für das QP-Mikrokavität-System wird jedoch nur der Fall der leeren oder mit einem Photon besetzten optischen Mode betrachtet, da ein QP bei dem Zerfall aus einem



angeregten Zustand idealerweise ein einzelnes Photon in die unbesetzte Grundmode emittiert. Der gekoppelte angeregte Zustand spaltet somit in zwei Äste mit einer Energieseparation von  $\Delta E = 2g$  auf. Diese Kopplungsstärke ist maßgeblich von der Oszillatorstärke  $f$  des QP-Exzitons sowie dem effektiven Modenvolumen  $V_M$  der Fundamentalmode abhängig und ist nach [And99] gegeben als

$$g = \sqrt{\frac{1}{4\pi\epsilon_r\epsilon_0} \frac{\pi e^2 f}{2m_0 V_M}}. \quad (2.24)$$

Dabei ist  $\epsilon_0$  die Vakuum- und  $\epsilon_r$  die relative Permittivität,  $m_0$  die freie Elektronenmasse und  $e$  die Elementarladung. Die Eigenenergien des Systems sind identisch zu Gleichung 2.9, das gekoppelte System ist somit durch zwei Spektrallinien gekennzeichnet, die entsprechend ihrer Energie auch als oberes bzw. unteres Polariton (UP/LP) bezeichnet werden. Durch die endliche Lebensdauer des Exzitons besitzt dieses eine homogen verbreiterte Spektrallinie der Breite  $\gamma_X$ . Der Übergang der optischen Mode zeigt infolge der imperfekten Reflektivitäten der DBRs ebenfalls eine Verbreiterung  $\gamma_C$ . Berücksichtigt man diese Abweichungen vom idealen verlustfreien System und fasst die Linienbreiten als Kopplung an externe Reservoirs auf, lässt sich dieses im Rahmen einer Master Gleichung für die Dichtematrix des Systems beschreiben. Die Energieeigenwerte des gekoppelten Systems sind dann gegeben über [And99]

$$E_{UP/LP} = \frac{E_C + E_X}{2} - i\hbar \frac{\gamma_X + \gamma_C}{4} \pm \hbar \sqrt{g^2 - \left(\frac{\gamma_X - \gamma_C}{4}\right)^2}. \quad (2.25)$$

Je nachdem ob die Wurzel einen realen oder imaginären Anteil liefert, enthält das resultierende Spektrum zwei oder nur eine Spektrallinie und man spricht von starker bzw. schwacher Kopplung. Da die natürliche Linienbreite des Exzitons typischerweise viel geringer ist als die der optischen Mode werden beide Regime durch die Ungleichung

$$g > \gamma_C/4 \quad (2.26)$$

voneinander abgetrennt. Ist diese erfüllt überwiegt die Kopplung zwischen Exziton und Photon die Verluste des Systems. Dadurch kommt es zum kohärenten

Energieaustausch zwischen beiden Teilchen, wodurch der Prozess der spontanen Emission reversibel wird. An QPEn in Mikroresonatoren konnte dieser Effekt zum ersten Mal von Reithmaier *et al.* an Mikrotürmchen [Rei04] und von Yoshie *et al.* in photonischen Kristallen [Yos04] gezeigt werden. Für diese Arbeit ist jedoch das Regime der schwachen Licht-Materie-Wechselwirkung von größerer Bedeutung, da hier die Verluste des Systems gezielt genutzt werden, um das Photon an der oberen Facette des Mikrotürmchens auszukoppeln, was in Abbildung 2.9(a) verdeutlicht wird. Mathematisch wird dies durch Fermis Goldene Regel verdeutlicht, welche zeigt, dass die Zerfallsrate  $\Gamma$  eines Emitters direkt proportional zur optischen Modendichte  $\rho_{\text{Cav}}(\omega)$  ist [Gér98]:

$$\Gamma = \frac{1}{T_1} = \frac{4\pi}{\hbar} \rho_{\text{Cav}}(\omega) \left\langle \left| \vec{d} \vec{E}(\vec{r}) \right| \right\rangle^2. \quad (2.27)$$

Hierbei ist  $\vec{d}$  das Dipolmoment des Emitters und  $\vec{E}(\vec{r})$  die Feldamplitude am Ort  $\vec{r}$ . Die Modendichte in einem Resonator mit Resonanzfrequenz  $\omega_C$  und der Güte  $Q = \frac{E_C}{\gamma_C}$  ist durch eine Lorentzfunktion der Form

$$\rho_{\text{Cav}}(\omega) = \frac{2}{\pi} \frac{\gamma_C}{4(\omega - \omega_C)^2 + \gamma_C^2} \quad (2.28)$$

gegeben [Kav07]. Damit lässt sich das Verhältnis aus der Emissionsrate  $\Gamma_C$  eines Emitters in einer Kavität im Vergleich zu Rate  $\Gamma_{3D}$  zum Volumenmaterial wie folgt ausdrücken [Gay03]

$$\frac{\Gamma_C}{\Gamma_{3D}} = \underbrace{\frac{3Q(\lambda/n)^3}{4\pi^2 V_M}}_{F_{P,Max}} \underbrace{\frac{\gamma_C^2}{4(\omega_X - \omega_C)^2 + \gamma_C^2}}_{\text{Verstimmung zwischen QP und FM}} \underbrace{\frac{\left| \vec{E}(\vec{r}) \right|^2}{\left| \vec{E}_{Max} \right|^2}}_{\text{Position im Resonator}}. \quad (2.29)$$

Die Erhöhung der spontanen Emissionsrate infolge der Kopplung an einen Resonator wird nach Edward M. Purcell, der diesen Effekt 1946 theoretisch vorhergesagt hat, auch Purcell-Effekt genannt [Pur46]. Die maximal mögliche Erhöhung der Zerfallsrate  $F_{P,Max}$  hängt nur von den Eigenschaften des Resonators bzw. dem Verhältnis  $Q/V_M$  ab. In dem in dieser Arbeit untersuchten Durchmesserbereich

von  $1 \mu\text{m} < d < 4 \mu\text{m}$  skaliert das Modenvolumen in guter Näherung quadratisch mit dem Türmchendurchmesser [Gre13], weshalb grundsätzlich kleinere Durchmesser bevorzugt werden. Als gegenläufiger Trend nimmt jedoch der Q-Faktor mit sinkendem Durchmesser ab, da das Verhältnis aus Volumen zu Oberfläche des Türmchens abnimmt und somit die Seitenwandstreuung der optischen Mode zunimmt [Rei10]. Deshalb gilt es im Experiment den Mittelweg zwischen hohem Q-Faktor und geringem Modenvolumen zu finden um eine hohe Purcell-Verstärkung zu erhalten.

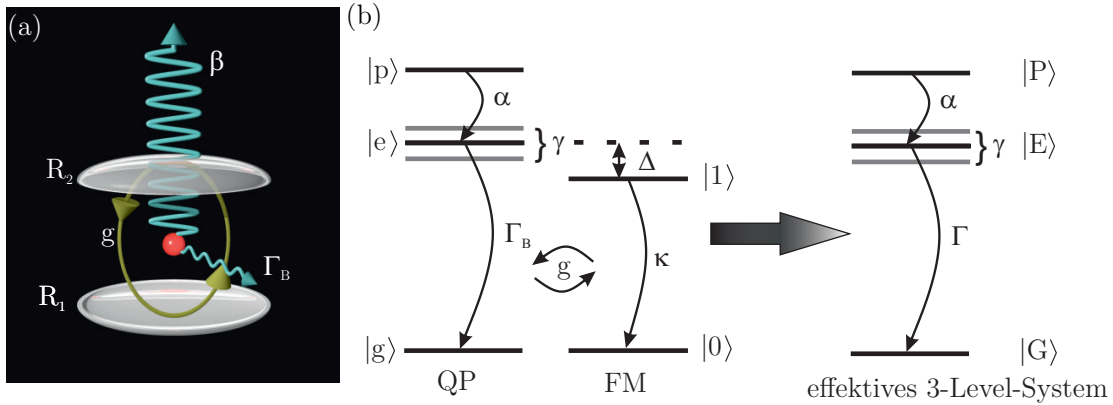
Der Purcell-Faktor bestimmt weiterhin den Anteil  $\beta$  der QP-Emission der in die Fundamentalmode des Resonators emittiert wird [Bar02]:

$$\beta = \frac{F_P}{F_P + \gamma_{Leck}}, \quad (2.30)$$

dabei ist  $\gamma_{Leck} = \Gamma_B/\Gamma_{3D}$  das Verhältnis aus der Emission des QPes in Leckmoden  $\Gamma_B$  zur Emissionsrate im Volumenmaterial  $\Gamma_{3D}$ . Für die hier verwendeten Mikrotürmchen wird der laterale Einschluss durch den hohen Brechungsindexunterschied zwischen Kavität und Vakuum und der damit einhergehenden hohen Reflektivität der Grenzfläche erzielt. Damit ist die Modendichte in der Ebene nahezu unverändert, womit angenommen werden kann, dass keine Unterdrückung der Volumenemissionsrate stattfindet. Die Emissionsrate in Leckmoden entspricht somit in etwa der Rate im Volumenmaterial, woraus man in guter Näherung  $\gamma_{Leck} = 1$  annehmen kann [Bar02]. Für den nutzbaren, d. h. an der Oberseite des Türmchens emittierten Anteil der QP-Emission müssen die relativen Verluste der Grundmode im Vergleich zur Güte der planaren Struktur  $Q_{2D}$  berücksichtigt werden, sodass sich für die Extraktionseffizienz einer Mikrotürmchenstruktur ergibt

$$\eta = \frac{Q}{Q_{2D}} \cdot \beta \quad (2.31)$$

Wie leicht ersichtlich ist, muss für eine hohe nutzbare Effizienz sowohl das Verhältnis aus  $Q/Q_{2D}$  als auch der Purcell-Faktor groß sein. Erste Bedingung ist typischerweise für größere Türmchendurchmesser erfüllt, letztere für kleine Durchmesser. Es gilt somit einen Mittelweg für die Durchmesser der Strukturen zu finden, bei dem sowohl hohe Kopplungsstärken zwischen QP und Fundamentalmode, als auch die



**Abbildung 2.9:** (a) Schematische Darstellung eines QPes in einem Mikroresonator. (b) Das Zwei-Niveau-System koppelt an die Mode mit Stärke  $g$ . Zusätzlich wird ein Pumplevel  $|p\rangle$  und eine Dephasierung  $\gamma$  des angeregten QP-Zustandes eingeführt. Aus der adiabatischen Eliminierung der Kavitätsfreiheitsgrade resultiert ein effektives Drei-Niveau-System.

Vermeidung von Verlusten der Struktur erfüllt werden.

Für eine realistischere Beschreibung des schwach gekoppelten QP-Mikrokavitäts-Systems – welche im weiteren Verlauf der Arbeit noch benötigt wird – soll im Folgenden ein erweitertes Modell, welches in Abbildung 2.9(b) schematisch dargestellt ist, erläutert werden. Zusätzlich zu den Zuständen  $|g\rangle$  und  $|e\rangle$  des Zwei-Niveau-Systems mit der spontanen Zerfallsrate  $\Gamma_B$  wird ein Pumpzustand  $|p\rangle$  mit Zerfallsrate  $\alpha$  und eine Dephasierungsrate  $\gamma$  des angeregten QP-Zustandes eingeführt. Das Zwei-Niveau-System ist dabei mit der Wechselwirkungsstärke  $g$  an eine optische Mode mit Übergangsrate  $\kappa$  gebunden, wobei zwischen Zwei-Niveau-System und Fundamentalsmode eine Verstimmung  $\Delta$  angenommen wird. Es lässt sich zeigen, dass im Grenzwert der schwachen Licht-Materie-Wechselwirkung die Freiheitsgrade der Kavitätsmode adiabatisch eliminiert werden können, da die Kavitätszerfallsrate sehr viel größer ist als die Zerfallsrate des QPes. Die dynamischen Freiheitsgrade der Kavität können sich somit hinreichend schnell auf die Dynamik des QPes einstellen. Die Mastergleichung des System im Lindblad Formalismus [Bre02] ist dann gegeben als [Kae13a]:

$$\frac{d\rho}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [\Delta |E\rangle \langle E|, \rho] + (L_\Gamma (|G\rangle \langle E|) + L_{2\gamma} (|E\rangle \langle E|) + L_\alpha (|E\rangle \langle P|)) \rho. \quad (2.32)$$

Dabei ist  $\rho$  die Dichtematrix des Systems und die Zustände  $|E\rangle = |e, n = 0\rangle$ ,  $|G\rangle = |g, n = 1\rangle$  und  $|P\rangle = |p, n = 0\rangle$  spiegeln die verschiedenen Zustände des QPes ( $|g\rangle$ ,  $|e\rangle$ ,  $|p\rangle$ ) gekoppelt an die leere oder mit einem Photon besetzte Grundmode wider.  $L_i$  sind die Lindblad Operatoren, welche benutzt werden um die zeitliche Entwicklung des Systems zu beschreiben. Die gesamte Zerfallsrate  $\Gamma$  des angeregten QP-Zustandes nach Elimination der Kavitätsfreiheitsgrade lässt sich daraus berechnen zu

$$\Gamma = \Gamma_B + 2g^2 \frac{\gamma_{tot}}{\gamma_{tot}^2 + \Delta^2}, \quad (2.33)$$

wobei  $\gamma_{tot} = \gamma + \frac{1}{2}(\kappa + \Gamma_B)$  die gesamte Zerfallsrate (vgl. Abbildung 2.9) des QP-Mikrokavitäts-Systems ist, mit der Zerfallsrate des QPes in Leckmoden  $\Gamma_B$  (vgl. Gleichung 2.30).

## 2.4 Korrelationsfunktionen erster und zweiter Ordnung von quantisierten Lichtfeldern

Um experimentellen Zugang zu den Kohärenzeigenschaften und der zeitlichen Emissionscharakteristik eines Emitters zu erhalten, bedient man sich in der Regel der Korrelationsfunktionen  $g^{(n)}(\tau)$  [Gla63]. Der Grad der Korrelation  $n$  gibt dabei die Anzahl an Feldern an, die miteinander korreliert werden. Die Korrelation erster Ordnung  $g^{(1)}(\tau)$  ist somit die Interferenz eines Feldes mit sich selbst und trifft somit Aussagen über die Kohärenz eines elektromagnetischen Feldes. Die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung  $g^{(2)}(\tau)$  untersucht hingegen die Abhängigkeiten zweier Felder zueinander und kann somit zur Analyse der zeitlichen Verteilung der emittierten Photonen benutzt werden. Je nachdem ob man die Intensität einer Quelle mit sich selbst oder mit einer zweiten Quelle korreliert spricht man von Auto- respektive Kreuzkorrelation. Nachfolgend sollen die mathematischen Grundlagen für die Korrelationsfunktionen erster und zweiter Ordnung erläutert und Modelle für die zu erwartenden Eigenschaften der untersuchten Systeme präsentiert werden.

### 2.4.1 Autokorrelationsfunktion erster Ordnung

Die Autokorrelationsfunktion erster Ordnung stellt die Interferenz eines Lichtfeldes mit elektrischer Feldamplitude  $E$  mit sich selbst dar und ist für plan parallele Wellen gegeben über [Kav07]:

$$g^{(1)}(\tau) = \frac{\langle E^*(t)E(t+\tau) \rangle}{\langle |E(t)|^2 \rangle} \quad (2.34)$$

Sie bietet somit Zugang zu den Kohärenzeigenschaften eines Lichtfeldes und lässt sich experimentell beispielsweise mit einem Mach-Zehnder-Interferometer (MZI) oder einem Michelson-Interferometer (MI) bestimmen. Beide Interferometer basieren auf demselben Grundkonzept, eine elektromagnetische Welle an einen 50/50-Strahlteiler aufzuteilen und anschließend wieder zur Interferenz zu bringen. Der optische Weg eines Teilstrahls wird dabei um die Strecke  $\Delta l = c \cdot \tau$  ( $c$ : Lichtgeschwindigkeit,  $\tau$ : Laufzeitdifferenz) verlängert. Beim MZI findet die Interferenz an einem zweiten 50/50-Strahlteiler statt, beim MI werden beide Teilstrahlen wieder auf den ersten Strahlteiler zurückgespiegelt. Variiert man nun die Phase der Welle in einem Arm über eine sehr feine Variation der Laufzeitdifferenz, so kommt es alternierend zu destruktiver bzw. konstruktiver Interferenz am Strahlteiler. Der Kontrast  $K(\tau)$  der Interferenz ist dann definiert als [Sal08]:

$$K(\tau) = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}} = |g^{(1)}(\tau)| \quad (2.35)$$

und entspricht dem Betrag der Korrelationsfunktion erster Ordnung aus Gleichung 2.34.  $I_{\max/\min}$  stellt in Gleichung 2.35 die maximale bzw. minimale Intensität des Lichtfeldes am Ausgang des Interferometers dar. Um die Kohärenzzeit eines Signals zu bestimmen, nimmt man den Kontrast des Lichtfeldes  $K(\tau)$  in Abhängigkeit der Laufzeitdifferenz  $\tau$  und somit des Weglängenunterschiedes  $\Delta l = c\tau$  der beiden Arme des Interferometers auf. Der sich daraus ergebende Verlauf ist abhängig vom elektromagnetischen Spektrum  $S(\nu)$  des Lichtfeldes. Gemäß dem Wiener-Khinchin-Theorem lassen sich Autokorrelation und Spektrum durch eine

Fourier-Transformation ineinander überführen und es gilt somit [Sal08, Lou00]

$$S(\nu) = \int_{-\infty}^{\infty} g^{(1)}(\tau) \exp(-i2\pi\nu\tau) d\tau. \quad (2.36)$$

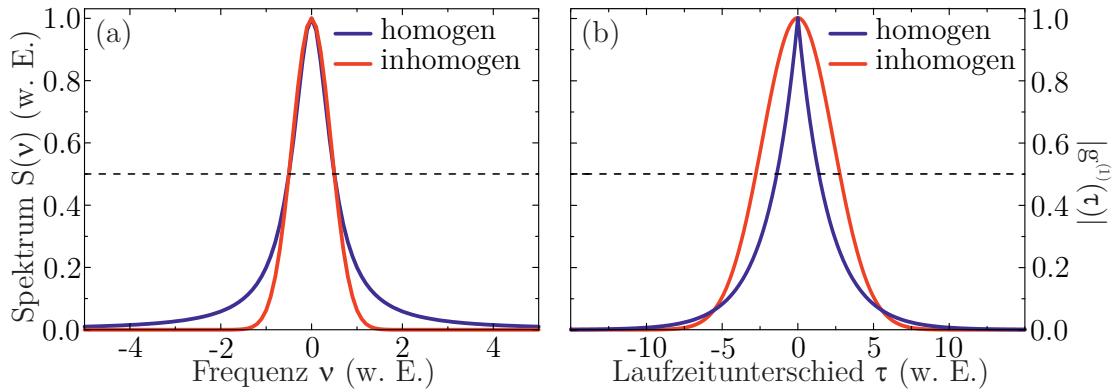
Homogen verbreiterte Spektrallinien zeichnen sich durch ein lorentzförmiges Spektrum  $S(\nu)$  mit Halbwertsbreite  $\Delta\omega$  aus. Aus der Fourier-Transformation folgt somit für die Autokorrelationsfunktion erster Ordnung

$$|g^{(1)}(\tau)|_{\text{homogen}} \propto \exp\left(-\frac{|\tau|}{T_2}\right). \quad (2.37)$$

$T_2$  entspricht der Kohärenzzeit des Lichtfeldes und lässt sich aus der Linienbreite über  $T_2 = 2/\Delta\omega$  berechnen. Entsprechend lässt sich für die Autokorrelation einer inhomogen verbreiterten Linie mit gaussförmigem Spektrum (beispielsweise durch thermische Verbreiterung) zeigen [Gol14]

$$|g^{(1)}(\tau)|_{\text{inhomogen}} \propto \exp\left(-\frac{\pi}{2} \left(\frac{\tau}{T_2}\right)^2\right). \quad (2.38)$$

Hier bestimmt sich die Kohärenzzeit zu  $T_2 = 2\sqrt{2\pi \ln 2}/\Delta\omega$  aus der Linienbreite  $\Delta\omega$ . Abbildung 2.10(a) zeigt beispielhaft jeweils ein Spektrum einer homogen sowie inhomogen verbreiterten Spektrallinie. Beide Emitter weisen in diesem Beispiel eine identische Linienbreite auf. Im Bereich um das Maximum herum sehen beide Kurvenformen sehr ähnlich aus, große Unterschiede ergeben sich jedoch für Werte abseits davon. Die Lorentz-verbreiterte Linie weißt für Frequenzen weitab des Maximum ein deutlich höheres Signal auf als die Gauss-verbreiterte Spektrallinie. Abbildung 2.10(b) zeigt die Fourier-Transformierten der beiden Emissionslinien aus Abbildung 2.10(a). Nach Gleichung 2.36 und 2.38 zeigt die Autokorrelation der inhomogen verbreiterten Linie ebenfalls eine Gauss-förmige Funktionalität, wohingegen die homogen verbreiterte Spektrallinie entsprechend Gleichung 2.37 einer exponentiell abfallenden Funktion entspricht. Haben die Emitter wie in Abbildung 2.10(a) dieselbe Linienbreite, hat die inhomogen verbreiterte Emissionslinie eine um einen Faktor  $\sqrt{2\pi \ln 2}$  größere Kohärenzzeit.



**Abbildung 2.10:** (a) Elektromagnetische Spektren einer homogenen bzw. inhomogenen verbreiterten Lichtquelle mit identischer Linienbreite. (b) Korrelationsfunktionen erster Ordnung die sich aus der Fourier-Transformation dieser Spektren ergeben.

## 2.4.2 Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung

Die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung beschreibt mathematisch die Korrelation der Intensität eines Lichtfeldes und ist in nicht normierter Schreibweise gegeben durch [Bec01]:

$$G^{(2)}(t_1, t_2) = \langle I(t_1)I(t_2) \rangle \quad (2.39)$$

$I(t_1)$  und  $I(t_2)$  sind dabei die Intensitäten des Lichtfeldes zur Zeit  $t_1$  respektive  $t_2$ . Da dies noch die klassische Darstellung der Autokorrelationsfunktion ist muss  $\langle \rangle$  als zeitliche Mittelung verstanden werden. Da in dieser Arbeit der Grenzfall behandelt wird, dass das Lichtfeld nur ein einzelnes Photon enthält, muss Gleichung 2.39 auf ihr quantenmechanisches Analogon umgeformt werden. Dazu wird die Intensität des Lichtfeldes mit den entsprechenden Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren  $\hat{a}$  bzw.  $\hat{a}^\dagger$  eines Lichtquants ersetzt und man erhält:

$$G^{(2)}(t_1, t_2) = \langle \hat{a}^\dagger(t_1)\hat{a}^\dagger(t_2)\hat{a}(t_2)\hat{a}(t_1) \rangle \quad (2.40)$$

Diese Funktion kann man i. A. nutzen um die zeitliche Statistik eines Lichtfeldes zu bestimmen. Dies beinhaltet z. B. die Emissionsstatistik einer SPS oder auch



die Interferenz zweier ununterscheidbarer Teilchen. Beide Effekte sollen nun in den folgenden Unterabschnitten diskutiert werden.

### 2.4.2.1 Korrelation einzelner Photonen

In dieser Arbeit wird die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung über die Korrelation von Detektionsereignissen an den Ausgängen eines 50/50-Strahlteilers gemessen. Für eine mathematische Beschreibung dieses Aufbaus wird nun angenommen, dass die Feldoperatoren aus Gleichung 2.40 bereits den Erzeugern und Vernichtern an den beiden Ausgängen des Strahlteilers entsprechen. Die einlaufenden Moden  $\hat{e}_1(t)$  und  $\hat{e}_2(t)$  eines perfekten verlustfreien Strahlteilers sind dann mit den beiden auslaufenden Moden  $\hat{a}_1(t)$  und  $\hat{a}_2(t)$  über die folgende unitäre Operation verknüpft [Kir04]:

$$\begin{pmatrix} \hat{a}_1^\dagger(t) \\ \hat{a}_2^\dagger(t) \end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ -1 & 1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \hat{e}_1^\dagger(t - \tau_D) \\ \hat{e}_2^\dagger(t) \end{pmatrix} \quad (2.41)$$

Dabei stellt  $\tau_D$  den Unterschied in der Ankunftszeit der beiden einlaufenden Photonen dar. Ausgehend von dieser allgemeinen quantenmechanischen Betrachtung eines Strahlteilers in Verbindung mit der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung aus Gleichung 2.40, werden im Folgenden die beiden Fälle für einzelne sowie ununterscheidbare Photonen betrachtet.

Für den Nachweis der Einzelphotonenemission wird die Emission nicht auf beide Eingänge des ST aufgeteilt, sondern man benutzt eine sog. Hanbury-Brown und Twiss (HBT)-Messanordnung. Dabei wird das emittierte Licht an einem 50/50-Strahlteiler auf die beiden Detektoren an den Ausgängen aufgeteilt und die Korrelation zwischen beiden gemessen. Setzt man Gleichung 2.41 – bei der der erste Eingang keinen Beitrag liefert – in die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung (Gleichung 2.40) erhält man für die Korrelationsfunktion  $G_{HBT}^{(2)}(t_1, t_2)$  des HBT-Aufbaus:

$$G_{HBT}^{(2)}(t_1, t_2) = \frac{1}{4} \langle a^\dagger(t_2) a^\dagger(t_1) a(t_1) a(t_2) \rangle \quad (2.42)$$

Die Indizes wurden dabei weggelassen, da sie gleichwertig sind bzw. das System in sich symmetrisch ist. Für die Wahrscheinlichkeit zwei Photonen zur gleichen Zeit zu detektieren muss Gleichung 2.42 über alle Zeiten  $t_1$  und  $t_2$  integriert werden und zudem noch normiert werden. Für die Normierung wird angenommen, dass  $t_1$  und  $t_2$  hinreichend unterschiedlich sind, sodass die zugehörigen Feldoperatoren bzw. Lichtfelder keinerlei Korrelation zueinander mehr aufweisen. Praktisch gesprochen ist dies die Wahrscheinlichkeit zwei Photonen aus zwei aufeinanderfolgenden Pulsen zu detektieren, sofern die beiden Pulse nicht miteinander korreliert sind. Dies ist gegeben, wenn die Zerfallszeit des angeregten Zustandes deutlich kürzer ist als der Abstand der Laserpulse und wenn das System keinen Speichereffekt über frühere Zustände hat. Die Korrelationsfunktion für zwei unkorrelierte Lichtfelder an den Ausgängen des Strahlteilers lässt sich somit darstellen als:

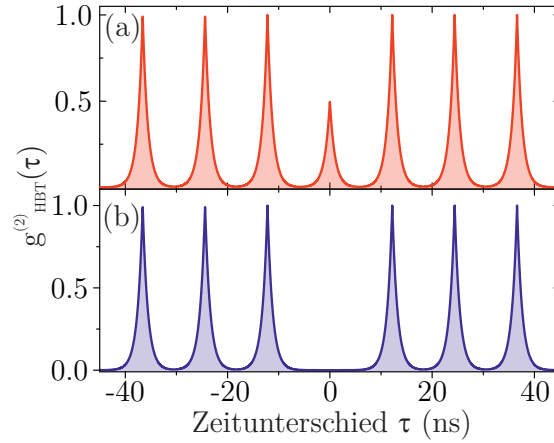
$$G_{HBT,Unkorr.}^{(2)}(t_1, t_2) = \frac{1}{4} \langle a^\dagger(t_2)a(t_2) \rangle \langle a^\dagger(t_1)a(t_1) \rangle = \frac{1}{4} \mathcal{G}^{(2)}(t_1, t_2) \quad (2.43)$$

Die Wahrscheinlichkeit zwei Photonen gleichzeitig zu detektieren  $g^{(2)}(0)$  ergibt sich somit aus den Gleichungen 2.42 und 2.43 zu:

$$g^{(2)}(0) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 G_{HBT}^{(2)}(t_1, t_2)}{\int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 G_{HBT,Unkorr.}^{(2)}(t_1, t_2)} \quad (2.44)$$

$$= \frac{\int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 \langle a^\dagger(t_2)a^\dagger(t_1)a(t_1)a(t_2) \rangle}{\int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 \langle a^\dagger(t_2)a(t_2) \rangle \langle a^\dagger(t_1)a(t_1) \rangle} \quad (2.45)$$

Für eine perfekte SPS gilt  $\langle a^\dagger(t_2)a^\dagger(t_1)a(t_1)a(t_2) \rangle = 0$ , da nach Erzeugung eines Photons zur Zeit  $t_1$  nicht noch ein zweites zur Zeit  $t_2$  erzeugt werden kann (für hinreichend kleine Differenzen zwischen  $t_1$  und  $t_2$ ). Für Gleichung 2.44 folgt somit  $g^{(2)}(0) = 0$ . Anstelle mit Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren lässt sich Gleichung 2.45 auch mit Hilfe eines Photonenzahloperators  $\hat{n}$  ausdrücken, welcher angibt wie viele Teilchen sich in der optischen Mode eines Lichtfeldes



**Abbildung 2.11:** Simulierte Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung: (a) Die Quelle ist mit  $g^{(2)}(0) = 0,5$  kein perfekter Einzelphotonenemitter. (b) Das Fehlen des zentralen Peaks zeigt mit  $g^{(2)}(0) = 0$  die Einzelphotonenemission.

befinden [Tho04]:

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle \hat{n}(\hat{n} - 1) \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2} = \frac{\langle \hat{n}^2 \rangle - \langle \hat{n} \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2} \quad (2.46)$$

Diese Gleichung lässt sich unter Verwendung der Varianz  $(\Delta \hat{n})^2 = \langle \hat{n}^2 \rangle - \langle \hat{n} \rangle^2 = 0$  eines Fock-Zustandes umformulieren zu [Lou00]

$$g^{(2)}(0) = 1 - \frac{1}{n}, \quad (2.47)$$

wobei  $n$  die Anzahl an Emittlern ist, die zur detektierten Emission beitragen. Aus Gleichung 2.47 lässt sich eine Grenze definieren, ab welcher man von Einzelphotonenemission einer Quelle sprechen kann. Emittiert die Quelle im Mittel immer zwei Photonen gilt somit  $g^{(2)}(0) = 0,5$ . Unterschreitet der gemessene  $g^{(2)}(0)$ -Wert diese Schwelle kann man somit von der Emission einzelner Photonen sprechen. Diese Schwelle wird von SPSen die dem derzeitigen Stand der Forschung entsprechen sehr deutlich unterschritten und es werden  $g^{(2)}(0)$ -Werte sehr nahe an null erreicht [San02, He13b, Wei14b]. Wird eine SPS gepulst zur Emission angeregt, besteht das gemessene  $g^{(2)}(\tau)$ -Histogramm aus einzelnen Peaks, welche mit dem zeitlichen Abstand der Anregung aufeinander folgen. Abbildung 2.11 zeigt zwei simulierte Autokorrelationsmessungen zweiter Ordnung. Dabei wird eine SPS mit

einer Frequenz von 82 MHz angeregt wird, was der typischen Repetitionsrate eines Ti:Saphir Lasers entspricht. Jeder einzelne Peak entspricht einer zweiseitig abfallenden exponentiellen Funktion, mit der radiativen Lebensdauer  $T_{rad}$  des angeregten Zustandes der SPS als Zeitkonstante der Funktion:

$$f(\tau) \propto e^{-\frac{|\tau|}{T_{rad}}} \quad (2.48)$$

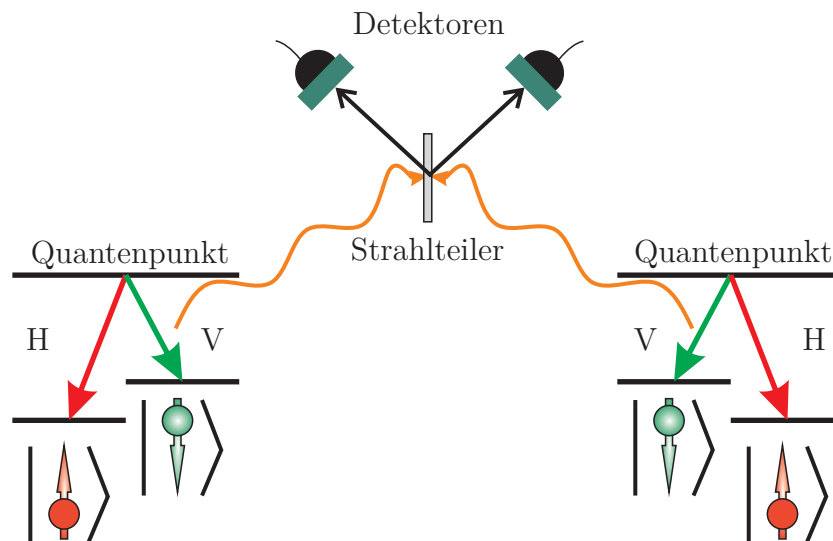
Für Abbildung 2.11(a) wurde eine Lichtquelle angenommen, welche mit  $g^{(2)}(0) = 0,5$  von einer idealen SPS abweicht. Dementsprechend zeigt die Autokorrelationsmessung für  $\tau = 0$  einen Peak, welcher die halbe Fläche der benachbarten Peaks aufweist. Emittiert die Quelle – wie es in Abbildung 2.11(b) simuliert wurde – immer nur ein einzelnes Photon pro Puls, verschwindet der zentrale Peak um  $\tau = 0$  gänzlich und es gilt  $g^{(2)}(0) = 0,0$ .

#### 2.4.2.2 Ununterscheidbare Photonen und deren Korrelation

Stimmen zwei quantenmechanische Teilchen, wie z. B. Photonen, in allen ihren Eigenschaften überein, so nennt man diese ununterscheidbar. Diese Eigenschaft ist von zentraler Bedeutung für quantenoptische Anwendungen wie z. B. dem Quantenrepeater. Einen zentralen Bestandteil eines solchen Verstärkers stellt das sog. *entanglement swapping*<sup>4</sup> dar [Ben93, Ž93]. Dieses nutzt zwei Quellen verschränkter Photonenpaare um über die Interferenz jeweils eines der Photonen die beiden übrigen miteinander zu verschränken.

Da dieses System nur funktioniert wenn die beiden Kommunikationsparteien *simultan* über einen verschränkten Zustand verfügen, ist es für zukünftige Anwendungen wünschenswert, wenn Sender und Empfänger zudem über einen Quantenspeicher verfügen. Darauf basierend schlugen Duan *et al.* ein Schema vor, um zwei voneinander entfernte Quantenspeicher mit Hilfe von Photonen miteinander zu verschränken [Dua01]. Dieses Konzept – welches nach seinen Entdeckern *DLCZ*-Protokoll genannt wird – lässt sich im Prinzip mit QPen realisieren. Dazu wird zunächst im QP ein Trion erzeugt. Zerfällt dieses ist die Polarisation den ausgesendeten

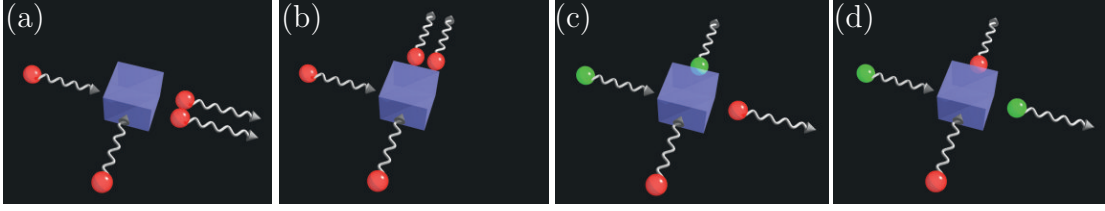
<sup>4</sup>Engl. für Verschränkungsvertauschung



**Abbildung 2.12:** Schematische Darstellung des *DLCZ*-Protokolls zur Realisierung eines Quantenrepeaters auf Basis von QP-Trionen. Über die Interferenz der beiden Photonen am Strahlteiler werden die beiden Spins in den QPn miteinander verschränkt.

Photons mit dem Spin der zurückbleibenden Ladungsträgers verschränkt [DG12]. Lässt man dieses Photon – wie es in Abbildung 2.12 schematisch dargestellt wird – an einem Strahlteiler mit dem Photon eines zweiten QP-Trions interferieren, so sind anschließend die beiden Spins miteinander verschränkt. Sender und Empfänger teilen somit einen im Festkörper gespeicherten quantenmechanisch verschränkten Zustand, welcher zur Quantenkommunikation genutzt werden kann.

Das zentrale Element dieses Konzepts ist die Interferenz der beiden Photonen am Strahlteiler. Diese kann nur stattfinden, wenn die beiden Photonen in ihren physikalischen Eigenschaften wie Polarisierung und Energie identisch sind. Erfüllen die Lichtteilchen diese Anforderung spricht man auch von *ununterscheidbaren* Photonen. Abbildung 2.13 zeigt die Möglichkeiten, wie zwei gleichzeitig am 50/50-Strahlteiler eintreffende Photonen diesen wieder verlassen können. Sind beide Teilchen ununterscheidbar und von bosonischem Charakter, so verlassen sie den Strahlteiler gemeinsam durch den gleichen Ausgang (siehe Abbildung 2.13(a) und (b)). Sind die beiden Quanten unterscheidbar, können sie den Strahlteiler auch an unterschiedlichen Ausgängen verlassen (siehe Abbildung 2.13(c) und (d)). Dieser



**Abbildung 2.13:** Schematische Darstellung des HOM-Effekts. (a) und (b): Treffen zwei ununterscheidbare Bosonen auf einen 50/50-Strahlteiler so verlassen sie diesen immer zusammen. (c) und (d): Sind die Teilchen unterscheidbar, so können sie den ST auch an getrennten Ausgängen verlassen.

Effekt wird nach seinen Entdeckern C. K. Hong, Z.-Y. Ou und L. Mandel auch HOM-Effekt genannt [Hon87].

Für eine mathematische Beschreibung der Quanteninterferenz von Photonen soll nun wiederum von der allgemeinen Transfermatrix eines 50/50-Strahlteilers (siehe Gleichung 2.41) und der allgemeinen Formulierung der Autokorrelation zweiter Ordnung (siehe Gleichung 2.40) ausgegangen werden. Im Gegensatz zur HBT-Messanordnung befinden sich nun in beiden einlaufenden Moden Photonen, sodass man insgesamt 16 Terme erhält wenn man Gleichung 2.41 in Gleichung 2.40 einsetzt. Entsprechend Anhang A.2 lässt sich daraus die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung für die Interferenz zweier Teilchen an einem Strahlteiler ableiten:

$$g_{HOM}^{(2)}(\tau_D) = \frac{1}{2}g_{HBT}^{(2)}(0) + \frac{1}{2}(1 - C(\tau_D)) \quad (2.49)$$

Dabei stellt  $g_{HBT}^{(2)}(0)$  eine mögliche Abweichung von einer perfekten Einzelphotonenemission dar.  $C(\tau_D)$  ist der Interferenzkontrast der beiden Teilchen für eine gegebene Zeitdifferenz  $\tau_D$  mit der beide Teilchen am Strahlteiler eintreffen und kann in vereinfachter Darstellung geschrieben werden als [Gol14]

$$C(\tau_D) = \nu * e^{-\frac{|\tau_d|}{T_1}}, \quad (2.50)$$

mit der radiativen Lebensdauer  $T_1$  und der Visibilität der ZPI  $\nu = C(0)$ . Im Allgemeinen kann man diese Visibilität als Verhältnis von der Kohärenzzeit  $T_2$  zur

radiativen Zerfallszeit  $T_1$  der Quelle darstellen [Byl03]:

$$\nu = \frac{T_2}{2T_1} \quad (2.51)$$

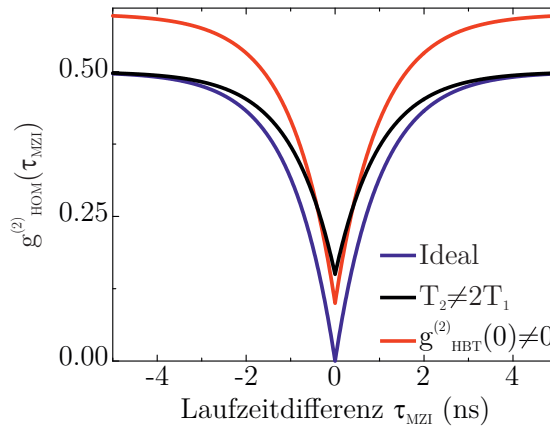
Aus Gleichung 2.36 und 2.37 lässt sich für einen Zustand, dessen Linienbreite der natürlichen Lorentz-Verbreiterung entspricht die maximale Kohärenzzeit bestimmten zu  $T_2 = 2T_1$ . In diesem Fall spricht man auch von Fourier-limitierten Photonen, welche entsprechend Gleichung 2.51 eine ZPI Visibilität von 100 % aufweisen. Befinden sich im untersuchten System Quellen von reiner Dephasierung<sup>5</sup> so ändert sich auch die Kohärenzzeit der emittierten Photonen über den Zusammenhang [Wei11]:

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2^*} \quad (2.52)$$

Mögliche Dephasierungsquellen sind beispielsweise die Ankopplung des Emitters an ein Phononenbad. Diese Kopplung stört das System und sorgt für einen energetischen Jitter der Emissionslinie. Dies führt zu einer zusätzlichen Verbreiterung der Spektrallinie und somit zu einer Abnahme der Kohärenz des Systems. Abbildung 2.14 zeigt eine Simulation des sog. HOM-Dip nach Gleichung 2.49. Dabei wurden drei unterschiedliche Systeme simuliert, für die jeweils eine radiative Zerfallszeit von  $T_1 = 1$  ns angenommen wurde. Für Simulation 1 (blau) wurde eine absolut kohärente Einzelphotonenquelle angenommen, sodass der HOM-Dip bis auf  $g_{HOM}^{(2)}(0) = 0$  hinabreicht. Der geringere zeitliche Überlapp der Photonen für  $\tau_D \neq 0$  führt weiterhin zu einer Abnahme der Quanteninterferenz und zu einer Zunahme von  $g_{HOM}^{(2)}(\tau_D)$ . Simulation 2 (rot) stellt eine kohärente Lichtquelle dar, die aber mit  $g_{HBT}^{(2)} = 0,1$  von einer idealen SPS abweicht. Dementsprechend weist der gesamte Graph eine Verschiebung um diesen Wert entlang der y-Achse auf. Simulation 3 (schwarz) stellt wiederum eine SPS dar. Hierbei weicht die Kohärenz der Photonen mit  $T_2 = 0,7 \cdot 2T_1$  von einer idealen Quelle ab, sodass der HOM-Dip nach Gleichung 2.49 nur ein Minimum von  $g_{HOM}^{(2)} = 0,15$  aufweist.

---

<sup>5</sup>im Englischen *pure dephasing*



**Abbildung 2.14:** Simulierte Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung für die Interferenz zweier Photonen am Strahlteiler nach Gleichung 2.49.

Aus den Gleichungen 2.51 und 2.52 wird ersichtlich, dass es grundsätzlich zwei Wege gibt, die Visibilität der ZPI zu steigern. Entweder muss  $T_1$  minimiert werden, oder  $T_2^*$  muss vergrößert werden. Ersteres lässt sich durch die Einbettung der QPe in Resonatorstrukturen erreichen, wie es in Abschnitt 2.3.2 theoretisch beschrieben wurde. Auch verdeutlicht dies einen möglichen Vorteil von Mikrosäulenresonatoren im Vergleich zu Nanodrähten, welche ebenfalls eine Effizienz bis zu 80 % Lichtauskopplung ermöglichen [Cla10], jedoch nicht den Vorteil der herabgesetzten Lebensdauer durch den Purcell-Effekt bieten, was einen positiven Einfluss auf die Kohärenz der emittierten Photonen hat.

Auf die Dephasierung  $T_2^*$  kann man durch das Anregungsschema Einfluss nehmen. So kann man beispielsweise das zeitlich fluktuierende elektrostatische Potential durch andere Ladungsträger weitestgehend unterdrücken, indem statt eines nichtresonanten Pumpschemas eine quasi- oder sogar strikt resonante Anregung benutzt wird.

### 2.4.2.3 Ununterscheidbare Photonen aus einem Quantenpunkt-Mikrokavitat-System

Ausgehend von der Master Gleichung 2.32 eines gekoppelten QP-Mikrokavitat-Systems lasst sich ber Gleichung 2.49 das Ma der ZPI berechnen. Folgt man den



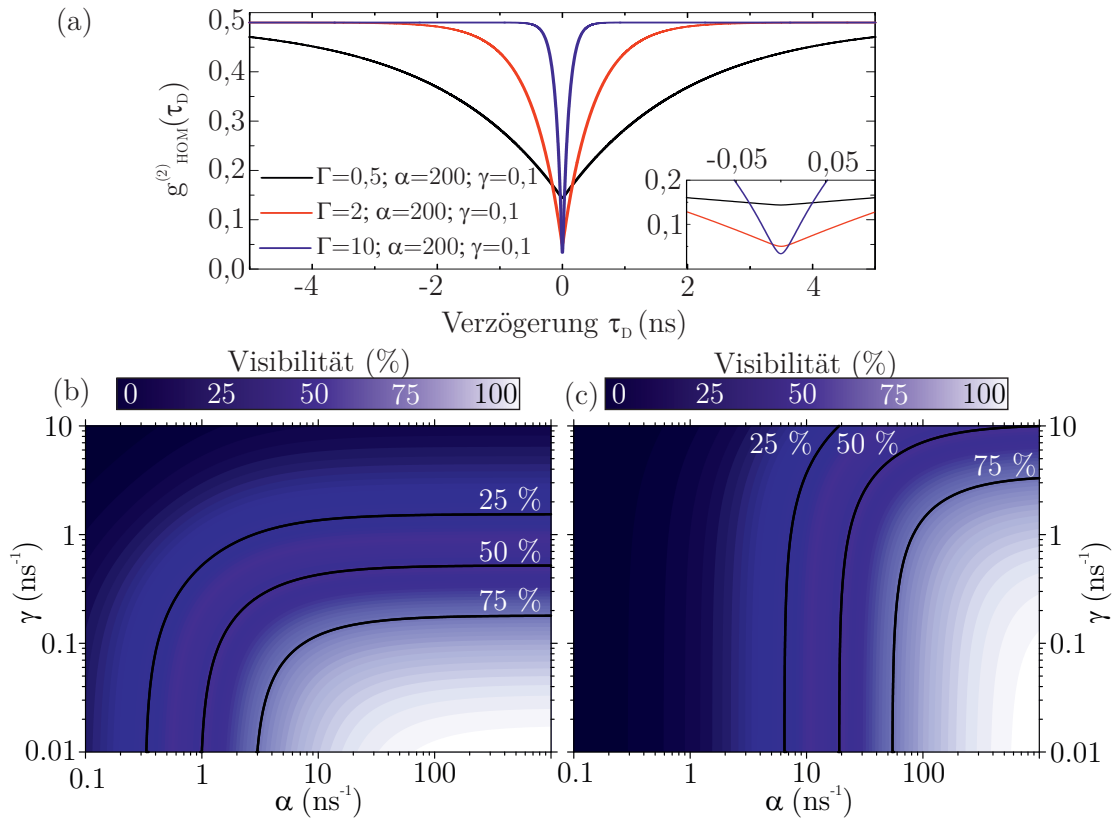
Schritten in Anhang A.3 kann man den Zusammenhang der ZPI mit den relevanten Systemparametern in kompakter analytischer Form darstellen :

$$g_{HOM}^{(2)}(\tau_D) = \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{\nu}{\Gamma - \alpha} [\Gamma e^{-|\tau_D|\alpha} - \alpha e^{-|\tau_D|\Gamma}] \right), \quad (2.53)$$

mit der ZPI Visibilität  $\nu = [\Gamma / (\Gamma + 2\gamma)] [\alpha / (\Gamma + \alpha)]$ . Diese Gleichung beschreibt die Photonen Ununterscheidbarkeit eines gekoppelten QP-Mikrokavitat-Systems vollstandig, da eine Verstimmung  $\Delta$  zwischen QP und Fundamentalmode uber die Emissionsrate  $\Gamma$  (siehe Gleichung 2.33) in obige Gleichung eingeht. Zudem wurde ein Pumpzustand angenommen, der mit einer Zerfallsrate  $\alpha$  in das QP Niveau zerfallt.

Ausgehend von Gleichung 2.53 sollen nun die Einflusse der verschiedenen Komponenten genauer betrachtet werden. Abbildung 2.15(a) zeigt die graphische Darstellung von Gleichung 2.53 fur drei unterschiedliche Lebensdauern des QPes. Der zeitliche Jitter wurde dabei als  $T_\alpha = 5$  ps ( $\alpha = 200$  ns<sup>-1</sup>) und die Dephasierungszeit als  $T_2^* = 10$  ns ( $\gamma = 0,1$  ns<sup>-1</sup>) angenommen, was typischen experimentell beobachteten Werten in dieser Arbeit entspricht und sich mit den in der Literatur berichteten Messungen deckt. Die Lebensdauer der drei Kurven ist  $T_{1, \text{schwarz}} = 2$  ns,  $T_{1, \text{rot}} = 500$  ps und  $T_{1, \text{blau}} = 100$  ps, was gut die in dieser Arbeit gemessenen Werte abdeckt. Es lassen sich zwei Trends am sog. HOM-Dip ausmachen: Der minimale Wert  $g_{HOM}^{(2)}(0)$  und die zeitliche Breite der Vertiefung nehmen mit zunehmender Zerfallsrate ab. Da die Dephasierungsrate konstant ist, nahert sich das System fur kurzere Lebensdauern dem Fourier-Limit der Photonen an (vgl. Gleichung 2.52) wodurch das Minimum des HOM-Dips abnimmt. Durch die kurzere Lebensdauer des angeregten Zustandes wird die zeitliche Differenz welche die beiden Photonen haben durfen um interferieren zu konnen ebenfalls kurzer, was zu dem schmaleren Dip fuhrt. Dies verdeutlicht zudem die zeitliche Prazision, mit der die beiden Teilarme eines Interferometers justiert sein mussen, um den HOM-Effekt nachweisen zu konnen.

Ausgehend von Gleichung 2.52 lasst sich der Eindruck gewinnen, dass ein Purcell-Effekt fur die Koharenzeigenschaften der Photonen immer einen positiven Effekt



**Abbildung 2.15:** (a) Simulierter HOM-Dip entsprechend Gleichung 2.53. (b) und (c) Simulierte Visibilität ausgehend von Gleichung 2.53. Variiert wurden die Dephasierungsrate  $\gamma$  und die Zerfallsrate  $\alpha$  aus dem Pumpzustand. Für (b) wurde eine Lebensdauer des angeregten Zustandes von  $T_1 = 1$  ns angenommen, für (c)  $T_1 = 50$  ps.

hat. Um dies genauer zu untersuchen wurde in den Abbildungen 2.15(b) und 2.15(c) der Einfluss von Dephasierung und zeitlichem Jitter für zwei Systeme mit unterschiedlicher Zerfallsrate simuliert. Für Abbildung 2.15(b) wurde mit  $T_1 = 1$  ns eine Lebensdauer gewählt, welche einem QP im Volumenmaterial bzw. in Strukturen ohne Purcell-Verstärkung entspricht. Für Abbildung 2.15(c) hingegen wurde eine Resonatorstruktur mit einem Purcell-Faktor von  $F_P = 20$  angenommen, sodass sich eine sehr kurze Zerfallsdauer von  $T_1 = 50$  ps ergibt. Abseits von einem idealen System mit  $\gamma \rightarrow 0$  ns<sup>-1</sup> und  $\alpha \rightarrow \infty$ , ergeben sich für beide Simulationen qualitativ unterschiedliche Verläufe. Der QP mit längerer Zerfallsdauer zeigt ein robusteres Verhalten gegen einen zeitlichen Jitter der dem Emissionsprozess überlagert ist, wohingegen das System stark an Kohärenz mit zunehmender Dephasierung einbüßt.

Die simulierte Resonatorstruktur mit sehr kurzer Lebensdauer in Abbildung 2.15(c) zeigt ein zu Abbildung 2.15(b) exakt gegenläufiges Verhalten. Das System baut mit zunehmenden Jitter stark an Sichtbarkeit ab und zeigt kaum Beeinflussung durch zunehmende Dephasierungsprozesse. Durch die lange Lebensdauer des ersten Systems muss  $\alpha = 1/T_\alpha$  sehr kleine Werte erreichen, sodass Lebensdauer und zeitlicher Jitter auf ähnlicher Zeitskala stattfinden und dadurch eine Beeinflussung der ZPI stattfindet. In ähnlicher Weise wird dementsprechend ein System mit sehr kurzer Lebensdauer sehr schnell von einer zeitlichen Unsicherheit im Emissionsprozess beeinträchtigt. Entsprechende Überlegungen gelten für etwaige Dephasierungsprozesse des Systems. Geschehen diese auf kurzen Zeitskalen, wird ein System mit größerer Zerfallsdauer stärker beeinflusst als ein solches mit kurzer. Aus beiden Simulationen lässt sich somit folgern, dass eine hohe Purcell-Verstärkung nicht für jedes System hilfreich ist um Fourier-limitierte Photonen zu erzeugen. Nur QPe, deren Kohärenz von Dephasierungsprozessen beeinträchtigt wird, können durch die Einbettung in eine Resonatorstruktur an Kohärenz gewinnen. Ist das System maßgeblich durch zeitlichen Jitter beeinflusst nimmt die Sichtbarkeit der ZPI sogar ab für eine ausgeprägte Kopplung an einen Resonator. Hierauf lässt sich somit auch die Notwendigkeit einer strikt resonanten Anregung des QPes zurückführen. Dadurch lassen sich nicht nur Dephasierungsprozesse minimieren sondern auch der zeitliche Jitter auf dem Emissionsprozess komplett umgehen ( $\alpha \rightarrow \infty$ ). Hiermit kann man Gleichung 2.53 vereinfachen zu

$$g_{HOM}^{(2)}(\tau_D) = \frac{1}{2} (1 - \nu e^{-|\tau_D|\Gamma}), \quad (2.54)$$

mit  $\nu \approx \frac{\Gamma}{\Gamma+2\gamma} = \frac{T_2}{2T_1}$ .

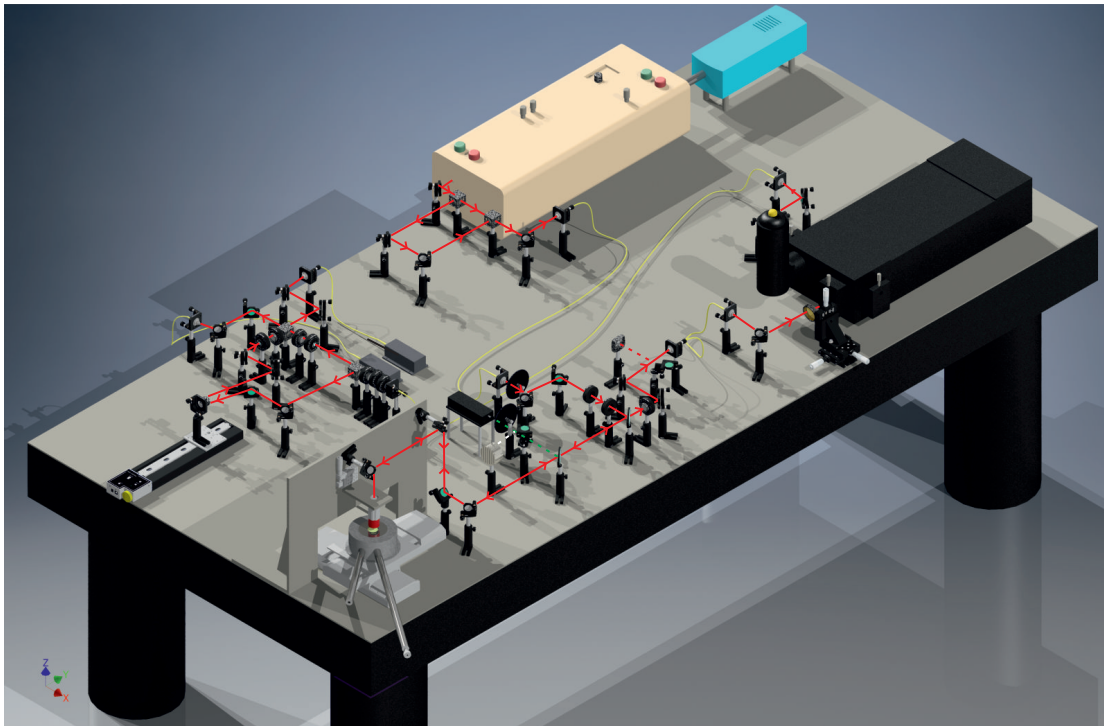


# 3 Experimentelle Techniken und Versuchsaufbau

In diesem Kapitel werden die experimentellen Techniken erläutert, welche für die in dieser Arbeit präsentierten Messungen genutzt wurden. Dies beinhaltet als Basiskomponenten einen Mikro-Photolumineszenz ( $\mu\text{PL}$ ) Messaufbau mit integrierter Kreuzpolarisationskonfiguration zur resonanten und quasiresonanten Anregung der QPe, das Lasersystem zur Erzeugung von Laserpulsen mit unterschiedlichem zeitlichem Abstand, einem unbalancierten MZI zur Messung der Korrelationsfunktion erster Ordnung sowie für den experimentellen Nachweis des HOM-Effektes und eine fasergekoppelte HBT-Anordnung für den Nachweis der Einzelphotonenemission. Abbildung 3.1 zeigt eine maßstabsgetreue Nachbildung des verwendeten Messaufbaus, der die o. g. Komponenten enthält. In den folgenden Abschnitten werden diese ausführlich erläutert.

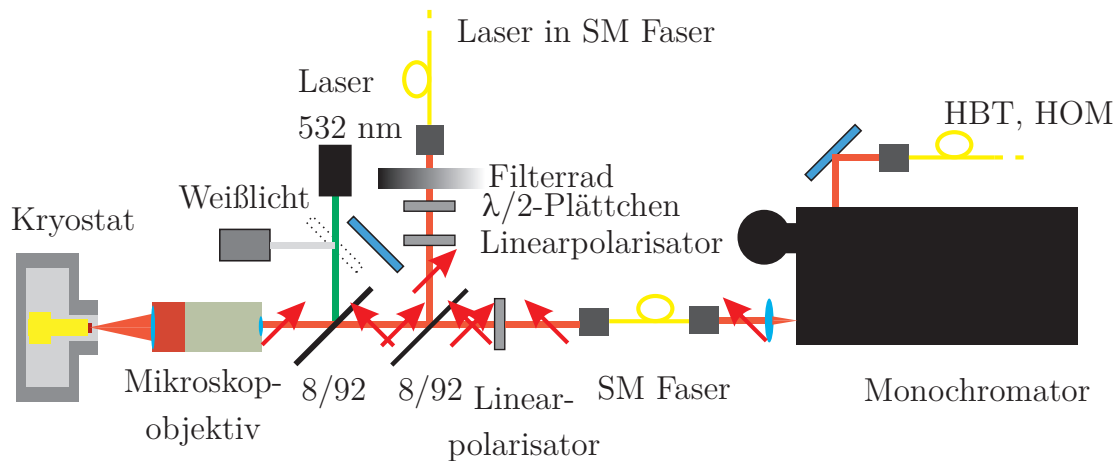
## 3.1 Mikro-Photolumineszenzaufbau und Kreuzpolarisationskonfiguration

Abbildung 3.2 zeigt die schematische Darstellung eines  $\mu\text{PL}$ -Messaufbaus. Als Basiskomponenten beinhaltet dieser einen flüssig-Helium Durchflusskryostaten (Modell *Janis ST500*) in dem die Halbleiterprobe auf einem Kältefinger montiert ist. Bedingt durch eindringende Wärmestrahlung liegt die minimale erreichbare Temperatur bei  $T \approx 4,6$  K. Mittels eines Heizwiderstandes kann die Probe bei einer



**Abbildung 3.1:** (a) Maßstabsgetreue Abbildung des verwendeten Versuchsaufbaus.

beliebigen Temperatur oberhalb dieses Schwellwertes stabilisiert werden. Die Temperaturkontrolle erfolgt hierbei über einen Temperaturfühler, der am Kältefinger unterhalb der Probe angebracht ist. Um die Probe unter dem Mikroskopobjektiv positionieren zu können ist der Kryostat auf zwei zueinander orthogonal orientierten Linearaktuatoren (Modell *Physik Instrumente PI M-511.DD*) montiert. Diese bieten zum einen einen großen Verfahrbereich von 100 mm, als auch eine sehr präzise Positionierung auf ca. 100 nm genau. Zur Vorcharakterisierung steht ein grüner cw-Diodenlaser ( $\lambda = 532 \text{ nm}$ ) zur Verfügung. Dieser wird mittels eines 8/92-Pellicle-Strahlteilers in den optischen Strahlengang eingekoppelt. Mittels eines Mikroskopobjektivs wird der Laser auf die Probe fokussiert und gleichzeitig das von der Halbleiterstruktur emittierte Licht aufgesammelt. Zur Wahl stehen drei Objektive mit unterschiedlicher Vergrößerung und numerischer Apertur (20-fach  $NA=0,40$ ; 50-fach  $NA=0,42$ ; 100-fach  $NA=0,70$ ). Zur spektralen Analyse dient ein Monochromator, bei dem zwischen drei Gittern ( $300 \frac{\text{Linien}}{\text{mm}}$ ,  $1200 \frac{\text{Linien}}{\text{mm}}$ ,  $1500 \frac{\text{Linien}}{\text{mm}}$ )



**Abbildung 3.2:** (a) Schematischer  $\mu$ PL-Aufbau zur resonanten und nichtresonanten Anregung der QP Strukturen.

gewählt werden kann. Die Detektion erfolgt über eine Silizium-basierte CCD<sup>1</sup>. Die maximale Auflösung wird mit dem  $1500 \frac{\text{Linien}}{\text{mm}}$  Gitter erreicht und liegt bei  $\Delta E \approx 30 \mu\text{eV}$  für eine Wellenlänge um 900 nm. Mittels eines Klappspiegels kann statt des grünen Lasers auch eine Weißlichtlampe in den Strahlengang eingekoppelt werden. Dadurch kann direkt die Probenoberfläche auf eine CMOS<sup>2</sup>-Kamera abgebildet werden.

Der Aufbau zur strikt- oder quasiresonanten Anregung basiert auf einem Schema, bei dem Anregung und Detektion jeweils in einer definierten Polarisation geschehen. Die beiden Polarisationsachsen sind dabei zueinander orthogonal orientiert, sodass der anregende Laser aus dem Detektionspfad herausgefiltert wird. Über die Ein- und Auskopplung aus einer monomodigen (SM) Faser erhält der Laser zuerst ein Gauß-förmiges Intensitätsprofil. Anschließend wird die Polarisation über einen Linearpolarisator festgelegt und der Laser mittels eines 8/92-Pellicle-Strahlteilers in den Strahlengang eingekoppelt. Über ein  $\lambda/2$ -Wellenplättchen kann die Polarisation des Lasers auf den Linearpolarisator zur Maximierung der Transmission abgestimmt werden. Ein Filterrad mit variierender optischer Dichte dient zur Einstellung

<sup>1</sup>Akronym für englisch *charge-coupled device*, zu deutsch ladungsgekoppeltes Bauelement

<sup>2</sup>Akronym für englisch *complementary metal-oxide-semiconductor*, zu deutsch sich ergänzender Metall-Oxid-Halbleiter

der an der Probe ankommenden Laserleistung. Da von dem Mikroskopobjektiv sowohl reflektierter Laser als auch das Resonanzfluoreszenz (RF)-Signal der Probe eingesammelt wird, erfolgt die Filterung des reflektierten Lasers über einen zweiten Linearpolarisator, der orthogonal zu dem ersten Polarisator orientiert ist. So erreicht man bereits eine Unterdrückung des Lasersignals um einen Faktor von ca.  $10^4$ . Um die Unterdrückung noch weiter zu steigern, wird das Probensignal in eine SM Faser eingekoppelt. Das System aus Mikroskopobjektiv und Kollimator mit SM Faser bildet ein Konfokalmikroskop. Dadurch wird die Fläche aus dem Fokus des Mikroskopobjektivs, welche in die Faser eingekoppelt wird, maßgeblich durch den Kerndurchmesser der Faser bestimmt. Somit lässt sich die Laserunterdrückung des Messaufbaus auf einen Faktor von ca.  $10^6 - 10^7$  steigern. Erst so ist es möglich, das eigentliche QP Signal aus dem gesamten Signal herauszufiltern und z. B. den Einzelphotonencharakter der QP Emission nachzuweisen.

Das Signal wird anschließend wieder aus der SM Faser ausgekoppelt und durch eine Linse auf den Eingangsspalt des Monochromators fokussiert. Das durch das Gitter spektral aufgelöste Signal kann mittels eines Klappspiegels auf den Ausgangsspalt des Monochromators geleitet werden. Je nach Öffnung des Spalts kann somit ein enges spektrales Fenster aus dem gesamten Signal herausgefiltert werden und anschließend mittels eines Kollimators wieder in eine Faser eingekoppelt werden. An diese kann nun z. B. der HBT-Aufbau zur Nachweis der Einzelphotonenemission oder das MZI zur Messung der ZPI angeschlossen werden. Die fasergekoppelten Signale werden mittels Silizium-basierter einzelphotonensensitiver Lawinenphotodioden (APDs) detektiert. Die Signale der APDs werden mit zwei Eingängen einer Zeit-zu-Amplituden-Konverter (TAC)-Karte (Modell *Becker & Hickl SPC-130*) verbunden. Detektiert die Karte an einem Eingang ein Signal von der APD wird ein Spannungswert solange erhöht, bis an dem zweiten Eingang der Karte ein Signal ankommt. Der resultierende Spannungswert ist somit proportional zur Zeit zwischen den beiden Signalen. Die Anzahl an Detektionsereignissen für ein bestimmtes Zeitintervall wird in einem Koinzidenzhistogramm aufsummiert und somit die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung gemessen. Die Karte kann den Spannungswert auf insgesamt 4096 einzelne Kanäle stückeln, die jeweils einer minimalen zeitlichen Differenz von  $\Delta t_{TAC} = 12.2$  ps entsprechen. Je nach Messung



stehen weiterhin verschiedene APDs zur Verfügung, welche sich hinsichtlich ihrer Quanteneffizienz und Zeitauflösung unterscheiden. Als Standardsystem für HBT und ZPI Messungen werden APDs des Typs *PicoQuant*  $\tau$ -SPAD verwendet, die sich durch eine hohe Effizienz sowie einer Zeitauflösung von  $\Delta t_{Res} \approx 370$  ps auszeichnen. Für zeitaufgelöste  $\mu$ PL-Messungen zur Bestimmung der Lebenszeit des angeregten QP-Zustands schließt man die APD direkt an eine Faser am Kollimator nach dem Ausgangsspalt des Monochromators an. Ein *Trigger*<sup>3</sup>-Ausgang des Lasers dient dann als Referenzsignal an der TAC-Karte. Da für diese Art an Messungen eine besonders hohe Zeitauflösung nötig ist (in dieser Arbeit sind die kürzesten gemessenen Lebenszeiten bei  $\approx 60$  ps), werden hierfür besonders schnelle APDs vom Typ *id Quantige id100-MMF50* verwendet. Im Vergleich zu den PicoQuant APDs liegt hier die Zeitauflösung bei  $\Delta t_{Res} \approx 40$  ps was jedoch mit einer geringeren Detektionseffizienz einhergeht.

## 3.2 Hanbury-Brown und Twiss Messaufbau

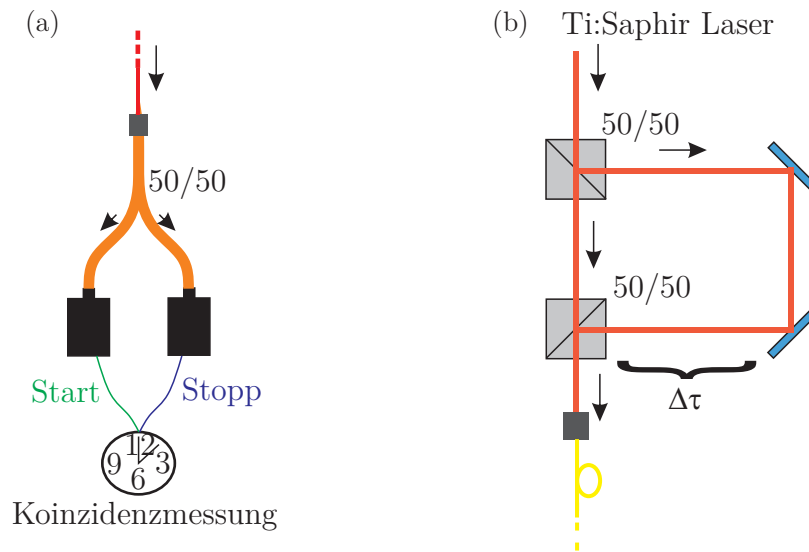
In Abbildung 3.3(a) wird der schematische Aufbau der fasergekoppelten HBT-Messanordnung dargestellt. Das mittels des Monochromators spektral selektierte QP Signal wird nach dem Ausgangsspalt in eine Faser eingekoppelt. Mittels eines 50/50-Faserstrahlteilers werden die QP Photonen zufällig auf die beiden Ausgänge des Faserstrahlteilers verteilt, an denen sich jeweils eine APD befindet. Die APDs sind wiederum mit der TAC-Karte verbunden, womit das Koinzidenzhistogramm zur Messung der Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung erstellt wird.

## 3.3 Laserpulse mit zeitlich variablem Abstand

Abbildung 3.3(b) zeigt schematisch das unbalancierte MZI, dass zur Erzeugung von Laserpulsen mit variablem zeitlichem Abstand dient. Ein Laserpuls wird am

---

<sup>3</sup>engl. für Auslöser

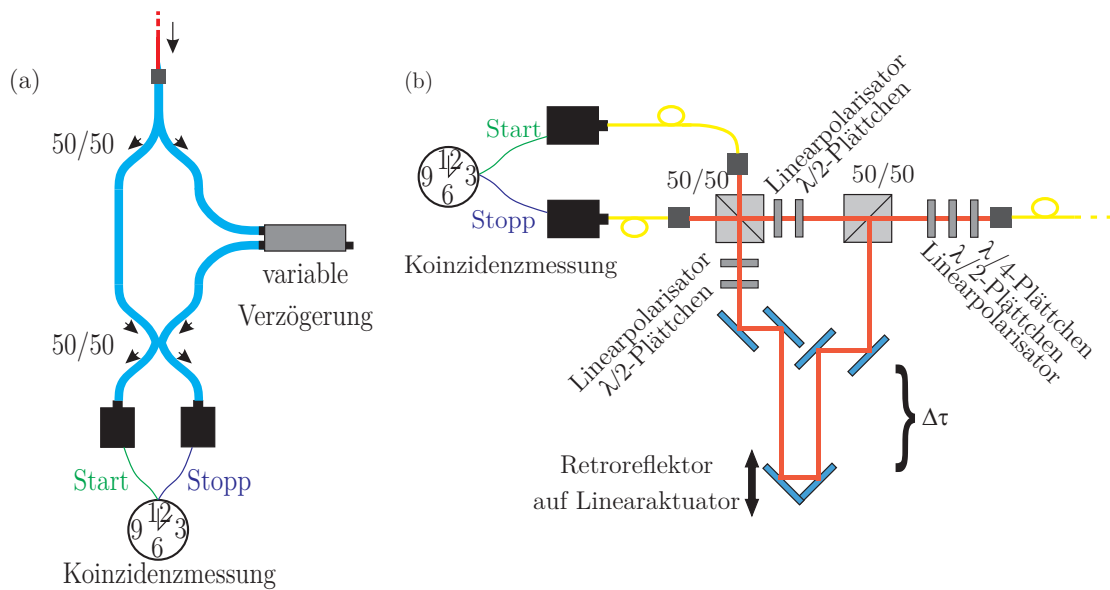


**Abbildung 3.3:** (a) Schematische Darstellung der fasergekoppelten HBT-Versuchsanordnung. (b) Schematische Anordnung des Laserpulsdopplers.

ersten 50/50-Strahlteiler zu gleichen Teilen auf die beiden Pfade des MZI aufgeteilt. Die Laufzeit eines Arms ist nun um eine definierte Zeitspanne  $\delta t$  länger als die des Anderen. Somit erhält man nach dem zweiten 50/50-Strahlteiler Pulszüge in einem zeitlichen Abstand von 12,2 ns, wobei jeder Pulszug aus zwei Einzelpulsen mit Abstand  $\delta t$  besteht.

### 3.4 Mach-Zehnder-Interferometer

Für den experimentellen Nachweis des HOM-Effektes stehen zwei unbalancierte MZI zur Verfügung. Abbildung 3.4(a) zeigt die fasergekoppelte Versuchsanordnung, wohingegen Abbildung 3.4(b) eine Freistrahls-Variante darstellt. Bei beiden Aufbauten wird die QP-Emission zunächst über den Monochromator spektral gefiltert und anschließend in eine Faser eingekoppelt. Für das fasergekoppelte Interferometer werden polarisationserhaltende Fasern verwendet, für das Freistrahls-MZI Einzelmodenfasern. Im Falle der fasergekoppelten Version wird die Emission anschließend am ersten 50/50-Strahlteiler auf die beiden Arme des MZI aufgeteilt. Ein Arm ist nun exakt soviel länger, dass der Pulsabstand des Lasers von 12,2 ns kompensiert



**Abbildung 3.4:** (a) Schematische Darstellung des unbalancierten fasergekoppelten MZI. (b) Schematische Darstellung des unbalancierten Freistrahl-MZI.

wird. Zwei direkt nacheinander emittierte Photonen können somit gleichzeitig am zweiten 50/50-Strahlteiler ankommen und dort interferieren. Um die Wellenpakete unterscheidbar zu machen, befindet sich im längeren Arm des MZI zusätzlich eine variable, fasergekoppelte Verzögerungsstrecke. Damit kann die Ankunftszeit des Photons mit einer Genauigkeit von ca. 1,5 ps variiert werden. Verlängert bzw. verkürzt man schrittweise den Gangunterschied zwischen den beiden Armen nimmt der Grad der ZPI schrittweise durch den verringerten zeitlichen Überlapp ab, bis die einzelnen Photonen schließlich nicht mehr interferieren können und somit unterscheidbar sind. An den Ausgängen des zweiten 50/50-Strahlteilers befinden sich die beiden APDs, über die die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung gemessen wird. Wie in Abschnitt 2.4.2.2 beschrieben, verlassen zwei nacheinander emittierte Photonen das MZI an demselben Ausgang, falls am Strahlteiler die ZPI stattgefunden hat.

Das Freistrahl-MZI aus Abbildung 3.4(b) basiert grundsätzlich auf demselben Funktionsprinzip. Die mittels des Monochromators spektral gefilterten Photonenpaare

werden über eine SM Faser in das MZI geleitet. Über ein  $\lambda/4$ - und ein  $\lambda/2$ -Wellenplättchen werden Störungen der Linearpolarisation kompensiert, anschließend erfolgt eine Filterung mit einem Linearpolarisator. Die Photonen werden am ersten 50/50-Strahlteiler zu gleichen Teilen auf die beiden Arme des MZI aufgeteilt. Der Laufzeitunterschied der beiden Arme kann durch einen beweglichen Retroreflektor im langen Teil des MZI so eingestellt werden, das die Zeitdifferenz  $\delta t$  zwischen den beiden Photonen kompensiert wird. Um etwaige Änderungen in der Polarisation auf dem Weg durch das MZI kompensieren zu können, befinden sich in beiden Armen vor dem zweiten Strahlteiler jeweils ein  $\lambda/2$ -Wellenplättchen sowie ein polarisierender Strahlteiler. Um den Interferenzkontrast des Aufbaus zu erhöhen wird das Signal an beiden Ausgängen in SM Fasern eingekoppelt an deren Enden sich zwei APDs zur Messung des Korrelationshistogramms befinden. Um die beiden Wellenpakete vor der Überlagerung unterscheidbar zu machen wird im kurzen Arm des MZI vor dem zweiten ST ein weiteres  $\lambda/2$ -Wellenplättchen eingebracht. Die Achse dieses Wellenplättchens ist dabei um  $45^\circ$  zur Achse des Linearpolarisators gedreht, was in einer  $90^\circ$ -Drehung der Polarisation der Photonen resultiert.

Zusätzlich zur Ununterscheidbarkeit von aufeinander folgend emittierten Photonen, kann man mit dem oben beschriebenen MZI auch die Autokorrelationsfunktion erster Ordnung messen. Dabei wird ein Lichtfeld am ersten 50/50-Strahlteiler auf die beiden Arme des Interferometers aufgeteilt und anschließend am zweiten Strahlteiler mit sich selbst zur Interferenz gebracht. Über den Linearaktuator wird dann der Laufzeitunterschied des MZI eingestellt. Über einen Piezoaktuator am Retroreflektor kann die Phasendifferenz am zweiten Strahlteiler variiert werden, wodurch es abwechselnd zu konstruktiver und destruktiver Interferenz an einem Ausgang des Strahlteilers kommt. Bestimmt man diesen Interferenzkontrast für verschiedene Laufzeitunterschiede zwischen den beiden Armen ergibt sich die Autokorrelationsfunktion erster Ordnung.

## 4 Nanocluster in AlInAs auf InP(111)

Wie bereits in Kapitel 2 erläutert wurde, stellen einzelne Lichtteilchen eine zentrale Komponente bei Anwendungen wie der Quantenkryptographie dar, die sich Prinzipien der Quantenphysik zu Nutze machen. Über die letzten Dekaden hinweg wurden vielzählige Materialsysteme entdeckt und erforscht, die als Quelle einzelner Photonen genutzt werden können. Dazu zählen kalte Atome [McK04], eingefangene Ionen [Die87], einzelne Moleküle [Bas92], Stickstoffpaare in GaP [Ike07], optisch aktive Defekte in Diamant [Bro00, Kur00], Siliziumkarbid [Cas14], lokalisierte Exzitonen in zweidimensionalen Schichtmaterialien [He15, Ton15, Sri15, Cha15, Kop15] und die in den weiteren Kapiteln behandelten Halbleiter-QPe. Für eine Anwendung, die auch die Herstellung der Strukturen in industriellem Maßstab und in kompakter Größe ermöglicht, ist eine halbleiterbasierte Quelle von höchstem praktischen Nutzen. Gründe hierfür sind die mögliche Einbringung in Resonatorstrukturen wie Mikrotürmchen [Gér98, Rei10] oder photonische Wellenleiter [Cla10, Rei12, Arc14] und die elektrische Adressierbarkeit [Yua02, Hei10a, Ell08]. Weiterhin sollte möglichst gewährleistet sein, dass der Herstellungsprozess hochgradig beherrschbar ist um die Fertigung in hoher Qualität und unter Minimierung von Probenausschuss zu gewährleisten. In diesem Kapitel wird ein neuartiges Materialsystem vorgestellt, das auf einer einzigen abgeschiedenen Schicht Volumenmaterial und damit einer – im Vergleich zu den oben genannten Alternativsystemen – bemerkenswert einfachen Herstellungstechnik beruht. Es wird gezeigt, dass sich bei dem Wachstum von  $\text{Al}_{0,48}\text{In}_{0,52}\text{As}$  (AlInAs) auf InP(111) Substraten indiumreiche Nanocluster im Volumenmaterial bilden. Die verringerte Bandlücke in diesen Clustern führt zu

räumlich und energetisch eingeschlossenen Exzitonen, welche somit – analog zu QPen – eine Quelle einzelner Lichtquanten darstellen können.

## 4.1 Probenaufbau und -herstellung

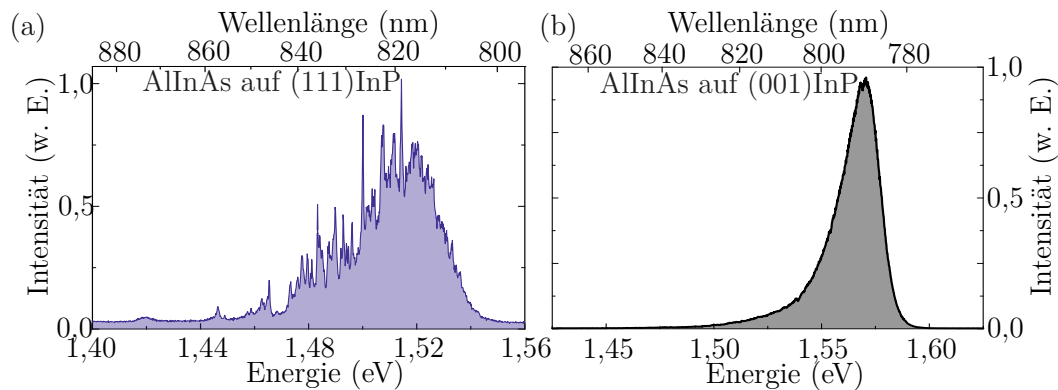
Bevor die physikalischen Eigenschaften der lokalisierten Exzitonen und deren Emission näher untersucht werden, soll zunächst kurz die Herstellung der verwendeten Proben erläutert werden. Diese wurden auf InP(111) Substrat mittels MBE gewachsen. Um die Oberfläche des Substrates zu glätten wurde eine 50 nm dicke Schicht  $\text{In}_{0,53}\text{Ga}_{0,47}\text{As}$  gewachsen, bevor im Anschluss eine 200 nm dicke AlInAs Schicht abgeschieden wurde. Auf diese wurde wiederum eine Schicht GaAs(111)-QPe<sup>1</sup> gewachsen, bevor die Schichtstruktur durch eine 100nm dicke AlInAs Passivierungsschicht abgeschlossen wurde. Um die Auskoppelleffizienz und somit die Lichtmenge, die mit dem Mikroskopobjektiv eingesammelt wird zu steigern, wurde zudem mittels *Buehler mounting wax* eine Feststoffimmersionslinse auf die Probe geklebt. Diese Linse erhöht durch eine vergrößerte numerische Apertur die Anzahl an Photonen, welche vom Objektiv aufgesammelt werden [Wu99]. Zusätzlich zu den auf InP(111)-Substraten gewachsenen Proben wurden Strukturen bestehend aus 1  $\mu\text{m}$  dickem AlInAs auf InP(001)-Substrat hergestellt, um die Rolle der (111)-Wachstumsrichtung auf die Formation dieser Nanocluster zu untersuchen.

## 4.2 Grundlegende Emissionseigenschaften der AlInAs-Nanocluster

Abbildung 4.1(a) zeigt ein charakteristisches  $\mu\text{PL}$ -Spektrum einer AlInAs/InP(111)-Probe, welches unter nichtresonanter cw-Anregung mit einem grünen Laser aufgenommen wurde. Man erkennt deutlich die spektral scharfen Emissionslinien im

---

<sup>1</sup>Die Probe wurde zudem für Untersuchungen an GaAs(111) -QPen verwendet, welche jenseits von 950 nm emittieren [Yer14]. Diese Arbeit beschäftigt sich jedoch nur mit der Emission aus der AlInAs-Schicht, welche unterhalb von 950 nm beobachtet werden konnte.



**Abbildung 4.1:** (a) Spektrum einer Probe mit 200 nm AlInAs auf (111)InP Substrat. Die spektral scharfen Emissionslinien entstammen Exzitonen, die – wie in Abschnitt 4.3 noch detailliert gezeigt wird – lokal in indiumreichen Nanoclustern gebunden sind. Diese Cluster entstehen nur beim Wachstum auf (111)-orientierte Substrate, da diese charakteristischen QP-ähnlichen Spektrallinien in (b), dem Spektrum der Kontrollprobe welche auf (001)InP Substrat gewachsen wurde, fehlt.

spektralen Bereich um 1,5 eV. Da diese Emission nahe an der Bandlücke von gitterangepasstem AlInAs auf InP Substrat von  $E_G \approx 1,55$  eV bei tiefen Temperaturen ist [Rou97], liegt die Vermutung nahe, dass diese Spektrallinien ihren Ursprung in indiumreichen Bereichen in der AlInAs Schicht haben. Da InAs eine sehr viel geringere Bandlücke als AlAs hat, können bereits geringe Anreicherungen von Indium zu einer energetischen Falle für Ladungsträger werden [Vur01].

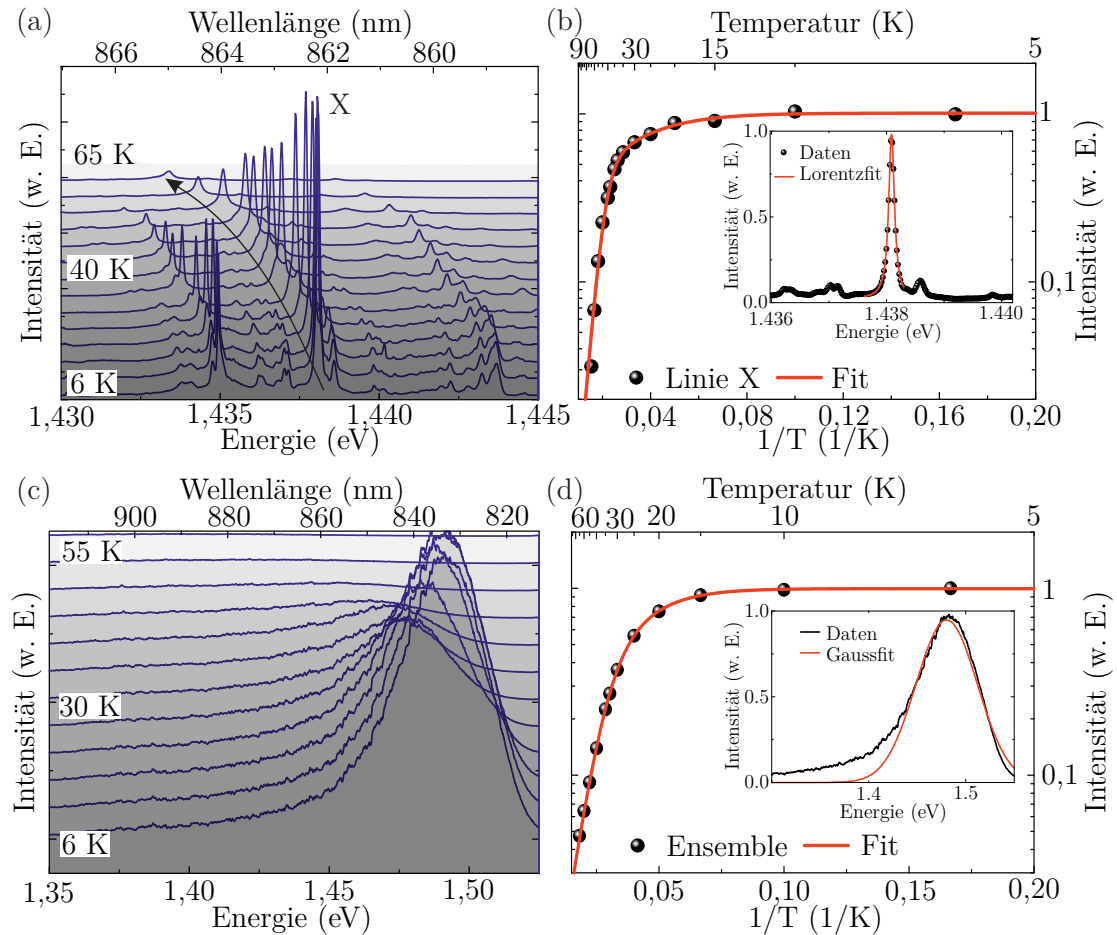
Wie sich in Abschnitt 4.3 zeigen wird, bilden sich im AlInAs Volumenmaterial tatsächlich  $(16 \pm 4)$  nm große Cluster, welche eine um ca. 6 % höhere Indiumkonzentration vorweisen. Um die Einflüsse der Wachstumsrichtung auf die Emissionseigenschaften der AlInAs Schicht zu untersuchen, wurden  $\mu$ PL-Messungen an einer Referenzprobe durchgeführt, bei der eine Schicht AlInAs auf InP(001) Substrat gewachsen wurde. Die Emission der Referenzprobe ist in Abbildung 4.1(b) dargestellt. Die Emission um 1,55 eV herum entstammt der AlInAs Schicht. Der Vergleich zum Spektrum der AlInAs/InP(111)-Probe in Abbildung 4.1(a) zeigt, dass die spektral scharfen Emissionslinien bei der auf InP(001) gewachsenen Probe fehlen. Somit zeigt die Referenzprobe keinerlei Anzeichen einer Emission aus lokal gebundenen

Exzitonen. Die QP-ähnliche Emission ist somit ein Charakteristikum der (111) Wachstumsrichtung. Dies liegt mutmaßlich an Verspannungen im Materialsystem, welche scheinbar nur beim Wachstum in (111)-Richtung auftreten. Die Formation von indiumreichen Bereichen ist dann ein Mechanismus, diese Verspannungsenergie zu minimieren. Weiterhin ist das AlInAs-Wachstum dominiert durch die Nukleation von 2D-Inseln, was in einer hohen Dichte an Schichtstufen resultiert [Yer14]. Diese Stufen stellen Einbauorte für ankommende adsorbierte Atome dar und können durch die unterschiedliche Mobilität von Indium und Aluminium ebenfalls zu der Anreicherung von Indium führen.

Im nächsten Schritt wurde in Abbildung 4.2 die Temperaturabhängigkeit der Spektrallinien näher untersucht, um Rückschlüsse über die thermische Aktivierbarkeit sowie über das Einschlusspotential der beiden gebundenen Ladungsträger ziehen zu können. Dazu wurden Messungen an einzelnen Linien, als auch an dem gesamten Ensemble durchgeführt. In Abbildung 4.2(a) und Abbildung 4.2(c) wird das  $\mu$ PL-Signal für eine einzelne Linie (markiert mit einem schwarzen Pfeil) bzw. für das gesamte Ensemble gezeigt. Um eine möglichst gute Mittelung über viele Einzelemitter zu erhalten, wurde der Strahl bei der Messung in Abbildung 4.2(c) leicht defokussiert. Somit wird Licht aus einem größeren Bereich eingesammelt und es lassen sich im Spektrum keine Einzellinien mehr durch die hohe spektrale Liniendichte erkennen. In beiden Fällen wurden Spektren in einem Temperaturbereich von 6 K bis ca. 60 K aufgezeichnet. Man erkennt für beide Messungen eine deutliche Abnahme der Intensität mit steigender Temperatur durch die zunehmende thermische Aktivierung der Ladungsträger. Es sei nun angenommen, dass diese Abnahme hauptsächlich durch zwei Verlustkanäle in Form der thermischen Entleerung der beiden gebundenen Ladungsträger bestimmt wird. Damit lässt sich für die temperaturabhängige Intensität über ein Ratengleichungsmodell folgender Zusammenhang herleiten [Bim71]:

$$I(T) = I_0 \cdot \left( 1 + C_1 e\left(-\frac{E_1}{k_B T}\right) + C_2 e\left(-\frac{E_2}{k_B T}\right) \right)^{-1}. \quad (4.1)$$





**Abbildung 4.2:** Dargestellt sind temperaturabhängige  $\mu$ PL-Messungen für (a) eine einzelne Emissionslinie und (c) ein gesamtes Ensemble von Nanoclustern. Die integrierte Intensität von Einzellinie und Ensemble wurde in (b) bzw. (d) in Arrhenius-Auftragung dargestellt und über Gleichung 4.1 angepasst. Für (b) ergeben sich Aktivierungsenergien der beiden gebundenen Ladungsträger von  $E_1 = (5 \pm 1)$  meV und  $E_2 = (34 \pm 4)$  meV, welche Loch bzw. Elektron zugeordnet werden.

Die Einzellinie wurde nun mit einer Lorentzfunktion angepasst (siehe Inset in Abbildung 4.2(b)), wohingegen das Ensemble –trotz einer leichten Asymmetrie – mit einer Gaussfunktion hinreichend genau reproduziert wird (siehe Inset in Abbildung 4.2(d)). Für beide Messreihen wird die daraus extrahierte integrierte Intensität in Abhängigkeit der Temperatur ausgewertet. In den Abbildungen 4.2(b) und 4.2(d) sind die Ergebnisse in Arrhenius-Darstellung gezeigt und mittels Gleichung 4.1 angepasst. Die Fitergebnisse sind in Tabelle 4.1 zusammengefasst. Für die Temperaturserie der Einzellinie in Abbildung 4.2(b) ergeben sich Aktivierungsenergien von  $E_1 = (5 \pm 1)$  meV und  $E_2 = (34 \pm 4)$  meV. Die Auswertung der Messserie an dem Linienensemble in Abbildung 4.2(b) zeigt mit  $E_1 = (6 \pm 1)$  meV und  $E_2 = (18 \pm 1)$  meV ähnliche Aktivierungsenergien wie die Einzellinie.

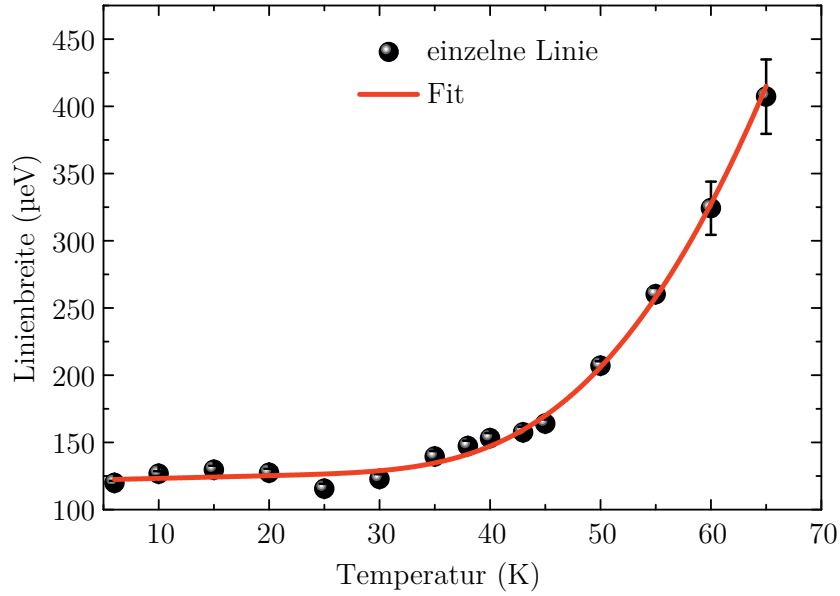
Messreihe	$E_1$ (meV)	$E_2$ (meV)	$E_{LO}$ (meV)
einzelne Linie	$5 \pm 1$	$34 \pm 4$	$23 \pm 1$
Ensemble	$6 \pm 1$	$18 \pm 1$	–

**Tabelle 4.1:** Die aus den Anpassungen von Abbildung 4.2 und Abbildung 4.3 extrahierten Aktivierungsenergien und LO Phonon Energie.

Neben der Tiefe des energetischen Einschlusses in Valenz- und Leitungsband lassen sich aus den temperaturabhängigen Spektren über die Entwicklung der Linienbreite auch Rückschlüsse über die Kopplung an akustische und optische Phononen ziehen. Nach [Bay02a] ergibt sich für die Linienbreite in Abhängigkeit der Temperatur folgender Zusammenhang

$$\gamma(T) = \gamma_0 + \gamma_{AC} \cdot T + \gamma_{OP} \left( e^{\frac{E_{LO}}{k_B T}} - 1 \right)^{-1}, \quad (4.2)$$

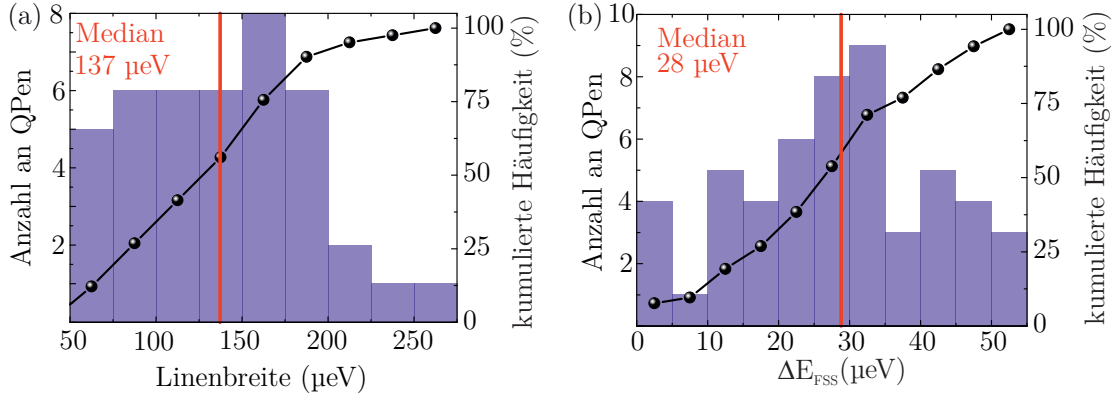
dabei ist  $\gamma_0$  die Linienbreite bei 0 K,  $\gamma_{AC}$  ist die lineare Verbreiterung durch die Kopplung an LA Phononen und  $\gamma_{OP}$  die entsprechende Verbreiterung durch die Wechselwirkung mit den LO Phononen der Energie  $E_{LO}$ . Abbildung 4.3(a) zeigt die aus den temperaturabhängigen Spektren der einzelnen Emissionslinie aus Abbildung 4.2(a) ausgewertete Linienbreite. Die Daten wurden mittels Gleichung 4.2 angepasst. Die unverbreiterte Linienbreite ergibt sich aus der Anpassung



**Abbildung 4.3:** Dargestellt ist die aus den temperaturabhängigen Spektren der einzelnen Linie in Abbildung 4.2(a) extrahierte Linienbreite, aufgetragen über der Temperatur. Aus der Datenanpassung lässt sich eine Energie des LO Phonons von  $E_{LO} = (23 \pm 1)$  meV extrahieren.

zu  $\gamma_0 = (121 \pm 3)$   $\mu\text{eV}$  und der LO Phonon Fitparameter zu  $\gamma_{OP} = (22 \pm 13)$  meV. Die Energie des LO Phonons ergibt sich aus der Anpassung zu  $E_{LO} = (23 \pm 1)$  meV. Dies ist in sehr guter Übereinstimmung mit den von Watanabe *et al.* berichteten 26 meV [Wat01]. Bei den gezeigten Daten war kein Verbreiterungsmechanismus durch die Kopplung an LA Phononen erkennbar. Die vergleichsweise geringe LO Phonon Energie und die damit frühzeitig einsetzende Verbreiterung durch optische Gitterschwingungen überdecken den Einfluss des akustischen Phononenreservoirs weitestgehend. Die unverbreiterte Linienbreite  $\gamma_0$  liegt deutlich über den typischen Werten um 10 – 20  $\mu\text{eV}$ , die für selbstorganisiert gewachsene InGaAs-QPe berichtet werden [Ate09b, Ric10, Bay02a]. Es lässt sich jedoch erwarten, dass die Linienbreite durch quasi- oder strikt resonante Anregungsschemata sinkt [Ate09b, Gol14, Pre16].

Im nächsten Schritt wurde systematisch die Linienbreite von insgesamt 41 Spektrallinien untersucht. Die Spektren wurden dabei unter moderater Anregung und



**Abbildung 4.4:** (a) Statistik über die Linienbreite der Emissionslinien aus den AlInAs Nanoclustern. Die Auswertung ergibt einen Median von  $\Delta w_{\text{Median}} = 137 \mu\text{eV}$ . Die minimale gefundene Linienbreite liegt dabei bei  $\Delta w_{\text{Min}} = (54 \pm 4) \mu\text{eV}$ .  
 (b) Statistische Verteilung der FSA. Der Median der FSA liegt bei  $\Delta E_{\text{FSA, Median}} = 28,5 \mu\text{eV}$ .

bei tiefen Temperaturen aufgenommen um eine leistungs- bzw. temperaturinduzierte Verbreiterung der Emission auszuschließen. Die statistische Verteilung ist in Abbildung 4.4(a) dargestellt. Als Medianwert ergibt sich eine Linienbreite von  $\Delta w_{\text{Median}} = 137 \mu\text{eV}$ . Die schmalste Emissionslinie zeigte eine Linienbreite von  $\Delta w_{\text{Min}} = (54 \pm 4) \mu\text{eV}$ . Der überwiegende Teil der untersuchten Linien zeigte eine gaußförmige Spektrallinie, die nahelegt, dass der Hauptmechanismus der Linienverbreiterung die spektrale Diffusion ist [Usk01].

Bei QPen führt das Wachstum entlang der (111) Kristallachse durch die dreifache Rotationssymmetrie der (111) Oberfläche im Idealfall zu QPen mit einer  $C_{3\theta}$ -Symmetrie oder höher. Des Weiteren entsteht durch die entlang der Wachstumsrichtung wirkenden internen piezoelektrischen Felder keine Herabsetzung der Symmetrie, sodass man eine Entartung der beiden hellen Exzitonenzustände erwartet [Sch09a, Sin09, Sto10, Tre12]. Um zu überprüfen, ob das Wachstum entlang der (111) Kristallrichtung auch für die exzitonischen Komplexe in den hier untersuchten Nanoclustern zu ähnlichen Symmetrieeigenschaften führt, wurde systematisch die FSA der gebundenen Exzitonen untersucht. Dazu wurde über ein zusätzliches  $\lambda/2$ -Wellenplättchen in Verbindung mit einem Linearpolarisator im Strahlengang die

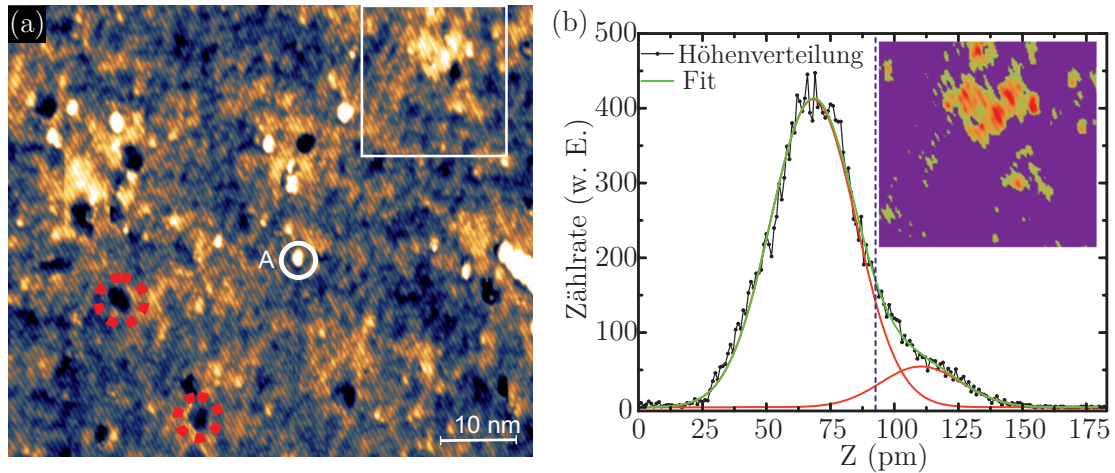
polarisationsaufgelöste Emissionsenergie gemessen. Die Achse des Linearpolarisators wird dabei entlang der Hochreflexionsachse des Gitters im Monochromator ausgerichtet. Über eine schrittweise Rotation des Wellenplättchens wird somit abwechselnd horizontal oder vertikal polarisiertes Licht am Linearpolarisator transmittiert. Aus der Anpassung der Spektren lässt sich daraufhin eine FSA bis hinab zu  $\approx 2 \mu\text{eV}$  extrahieren. Ist kein eindeutiger sinusförmiger Verlauf in der polarisationsabhängigen Energie einer Emissionslinie erkennbar, wurde das Ergebnis nicht in die Statistik inkludiert. Da beispielsweise das Trion keine FSA zeigt, kann ohne weiterführende Messungen nicht geklärt werden, welchem exzitonischen Komplex die untersuchte Linie mit verschwindender FSA zugrunde liegt. Insgesamt fanden somit 52 Emissionslinien Einzug in die in Abbildung 4.4(b) gezeigte Statistik. Der Median der FSA ergibt sich daraus zu  $\Delta E_{\text{FSA, Median}} = 28,5 \mu\text{eV}$ . Dies ist leicht höher als die Median-FSA von GaAs(111)-QPen von  $7,6 \mu\text{eV}$  [Yer14] und von InGaAs(111)-QPen von  $5,6 \mu\text{eV}$  [Tre12], aber gut vergleichbar mit den Werten von  $10 \mu\text{eV}$  bis einigen  $100 \mu\text{eV}$  die typischerweise für InGaAs-QPe berichtet werden, welche entlang der (001) Kristallachse gewachsen wurden [Bay02b, Tre12, Sei08, Seg05, Kow05]. Daraus lässt sich schließen, dass die Symmetrie des elektronischen Einschlusspotentials der Nanocluster  $C_{2v}$  oder niedriger ist und die dreifache Rotationssymmetrie für diese Strukturen nicht erhalten bleibt.

### 4.3 Verifikation indiumreicher Clusterstrukturen als Emissionsquelle

Durch die energetische Nähe zur AlInAs Bandlücke liegt die bereits zuvor geäußerte Vermutung nahe, dass die QP-ähnlichen Emissionslinien aus indiumreichen Nanoclustern innerhalb des Volumenmaterials stammen. Um diese Vermutung zu überprüfen wurden in Zusammenarbeit mit Christian M. Krammel und Prof. Dr. Paul M. Koenraad von der Universität Eindhoven<sup>2</sup> XSTM-Messungen an den hier untersuchten Strukturen durchgeführt. XSTM-Messungen werden oftmals genutzt,

---

<sup>2</sup>Adresse: Department of Applied Physics, Eindhoven University of Technology, Eindhoven 5612 AZ, The Netherlands



**Abbildung 4.5:** (a) Hochaufgelöste *filled state* XSTM-Messung, aufgenommen bei einer hohen negativen Spannung zwischen Probe und Spitze von  $U_P = -2,6$  V und einem konstanten Tunnelstrom von  $I_T = 30$  pA. Durch die hohe Spannung werden direkt die Gruppe III Elemente sichtbar. Helle Bereiche entsprechen indiumreichen Bereichen, dunkle aluminiumreichen. Der weiße Kreis markiert einen Adsorbenten A, der durch das Spalten entstanden ist. (b) Auswölbung  $z$  der Probenoberfläche durch die unterschiedlichen Gitterkonstanten des Bereiches innerhalb des weißen Quadrates in (a). Die beiden Gaußverteilungen entsprechen der AlInAs-Matrix und dem indiumreichen Nanocluster. In dem Inset wurden alle Höhenwerte unterhalb des FWHM der kleineren Gaußverteilung abgeschnitten um zu verdeutlichen, dass dieser dem Nanocluster entspricht.

um die Beschaffenheit nanoskaliger Strukturen zu untersuchen, welche unter der Probenoberfläche verborgen sind. Dazu wird die Probe zunächst gespalten. Auf dem dadurch zugänglichen Probenquerschnitt kann anschließend die XSTM-Messung durchgeführt werden. Aus dem Tunnelstrom zwischen Probenoberfläche und Messspitze des Mikroskops kann dann auf die elektronischen Eigenschaften der Probe und somit auch auf die Zusammensetzung zurückgeschlossen werden.

Abbildung 4.5(a) zeigt eine typische sog. *filled-state*<sup>3</sup>-XSTM-Messung. Dabei wird bei konstantem Tunnelstrom von  $I_P = 30$  pA und einer starken negativen Probenspannung von  $U_P = -2,6$  V hauptsächlich das Höhenprofil der Oberfläche

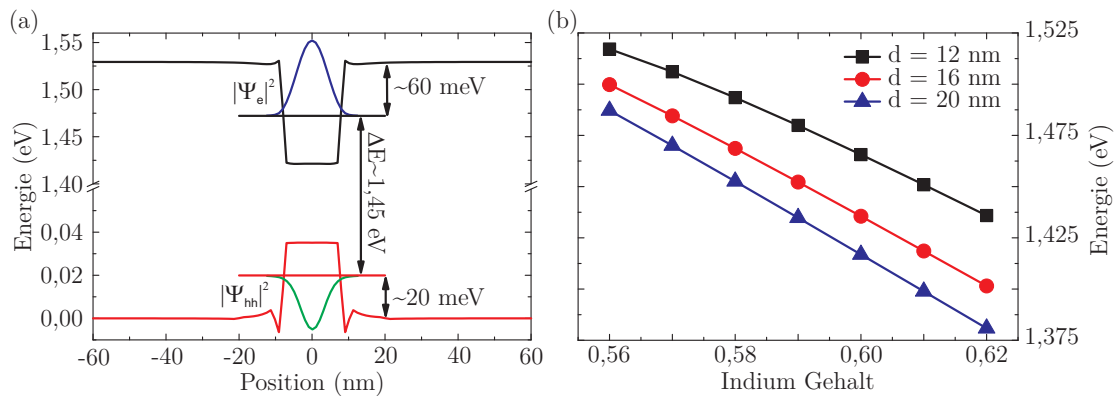
<sup>3</sup>engl. für besetzte Zustände

aufgezeichnet und der elektronische Kontrast unterdrückt. Da InAs eine größere Gitterkonstante hat als AlAs kommt es zu einer kompressiven Verspannung in indiumreichen Bereichen. Dadurch wölbt sich die Oberfläche an dieser Stelle aus der Probenoberfläche heraus um die Verspannung zu minimieren. Durch den geringeren Abstand zur Messspitze erscheinen indiumreiche Bereiche in Abbildung 4.5(a) hell und aluminiumreiche durch den größeren Abstand entsprechend dunkel. Man erkennt sehr gut die großflächigen Kompositionsfluktuationen, die spontan im AlInAs Volumenmaterial auftreten und indiumreiche Cluster formen. Einer dieser Nanocluster ist beispielhaft mit einem weißen Rahmen markiert. Die ebenfalls sichtbaren sehr kleinen und hellen Bereiche, wie beispielsweise der markierte Bereich A in Abbildung 4.5(a), sind höchstwahrscheinlich adsorbierte Fremdatome auf der Probenoberfläche und werden daher im Folgenden vernachlässigt. Die übrigbleibenden, größeren Cluster sind im Schnitt ungefähr 16 nm ausgedehnt. Aus dem Höhenprofil der Probe und damit aus der Oberflächenrelaxation durch die Verspannung aufgrund der unterschiedlichen Gitterkonstanten lassen sich Rückschlüsse auf die Kompositionsunterschiede in den untersuchten Bereichen ziehen. Diese Methode wurde bereits zur Untersuchung der Zusammensetzung von QPen und Benetzungsschichten mittels XSTM genutzt [Len02, Off05]. Abbildung 4.5(b) zeigt die Höhenverteilung in einem kleinen Bereich um den Nanocluster, welcher in Abbildung 4.5(a) mit einem weißen Quadrat markiert wurde. Man erkennt zwei gaußförmige Höhenprofile. Für den Inset in Abbildung 4.5(b) wurden alle Punkte abgeschnitten, deren Höhe unterhalb der Halbwertsbreite der niedrigeren Gaußfunktion liegt (blau gestrichelte Linie). Ein Vergleich mit Abbildung 4.5(a) zeigt, dass die schwächere der beiden Gaußverteilungen dem indiumreichen Nanocluster zuzuordnen ist, und das stärker auftretende Profil der AlInAs Matrix. Aus der Differenz der beiden Gaußprofile folgt, dass die Oberfläche des Nanoclusters im Durchschnitt um  $(54 \pm 16)$  pm aus der Oberfläche herausragt. Ein Vergleich mit der simulierten Oberflächenrelaxation eines indiumreichen Clusters mittels COMSOL legt nahe, dass die Komposition des Nanoclusters nahe an  $\text{In}_{0,60}\text{Al}_{0,40}\text{As}$  liegt [Off05, Gid11]. Zusätzlich zu den großflächig hellen und somit indiumreichen Bereichen in Abbildung 4.5(a) sind kleinere, dunkle Stellen zu sehen, wovon zwei exemplarisch mit einem roten Ring markiert wurden. Da die atomaren Reihen

durch diese Strukturen und die umliegende Matrix kontinuierlich verlaufen kann ausgeschlossen werden, dass beim Spalten an diesen Stellen Material aus der Oberfläche herausgerissen wurde. Die scharfe Abgrenzung der dunklen Bereiche spricht weiterhin dafür, dass Ladungseffekte wie sie z. B. an Donatoren und Akzeptoren beobachtet wurden ausgeschlossen werden können [Wij11]. Darauf aufbauend ist die wahrscheinlichste Ursache eine Anlagerung von Aluminiumatomen an diesen Stellen um die indiumreichen Bereiche zu kompensieren und lokale Verspannungen zu minimieren.

Um zu überprüfen ob die durch XSTM-Messungen gefundenen lokalen Inhomogenitäten der AlInAs-Komposition tatsächlich zu den beobachteten QP-ähnlichen Emissionslinien führen, wurden Simulationen mit dem kommerziellen Programm *nextnano++* durchgeführt, welches bereits in Abschnitt 2.1.3 zur Simulation von QPen genutzt wurde. Der Quelltext der Simulation ist ähnlich zu dem der QP-Simulationen in Anhang A.1. Insgesamt wurden drei verschiedene Durchmesser – 12 nm, 16 nm und 20 nm – der Nanocluster simuliert. Die Indiumkonzentration innerhalb der Cluster wurde von 56 % bis 62 % mit Inkrementen von 1 % variiert, wobei die Grenzfläche Cluster-Matrix scharf, ohne einen Übergangsbereich ist. Abbildung 4.6(a) zeigt die simulierte Valenz- und Leitungsbandkante eines 16 nm großen Clusters mit einer Indiumkonzentration von 60 %. Die simulierten Übergangsenergien zwischen den Grundzuständen von Elektron und Loch sind in Abbildung 4.6(b) dargestellt. Man erkennt, dass sich wie erwartet durch die Indiumanreicherung in Abbildung 4.6(a) ein energetischer Potentialtopf bildet. Die simulierten Grundzustände für Elektron und Loch sind mit 60 meV und 20 meV gut im Cluster eingeschlossen, was auch durch die simulierte Aufenthaltswahrscheinlichkeit  $|\Psi|^2$  in Abbildung 4.6(a) verdeutlicht wird. Der Energiebereich des Grundzustandsübergangs reicht in Abbildung 4.6(b) von 1,375 eV bis zu 1,525 eV und deckt somit den Spektralbereich ab, in dem QP-ähnliche Emissionslinien in Abbildung 4.1(a) beobachtet wurden. Die Tiefe des energetischen Einschlusses reichte dabei von 10 – 100 meV für das Elektron sowie 5 – 35 meV für das Loch und deckt somit die in Abschnitt 4.2 experimentell bestimmten Werte ab. Der energetische Einschluss ist dennoch tendenziell leicht höher als die Aktivierungsenergien von  $\approx 5\text{meV}$  und  $\approx 30\text{meV}$  die aus den temperaturabhängigen





**Abbildung 4.6:** (a) Simulierte Bandstruktur eines AlInAs Nanoclusters mit einem Durchmesser von 16 nm und einem Indiumgehalt von 60 %. Beide Ladungsträger sind sehr gut im entstehenden Potentialtopf lokalisiert. (b) Simulation der Übergangsenergie zwischen Elektron und Loch. Der simulierte Größenbereich von 12 nm bis 20 nm mit einer Variation im Indiumgehalt von 56 % bis 62 % deckt sich sehr gut mit dem Energieintervall in dem die Emissionslinien beobachtet wurden.

Spektren in Abschnitt 4.2 extrahiert wurden. Mögliche Gründe hierfür sind die Vernachlässigung von Ladungsträgerwechselwirkungen in der Simulation sowie die Approximation des Clusters mit scharfen Grenzflächen. Die XSTM-Aufnahme in Abbildung 4.5 legt einen fließenderen Übergang in der Indiumkonzentration nahe, was für die Simulation vernachlässigt wurde. Insgesamt lässt sich somit aus den XSTM-Messungen in Verbindung mit den Simulationen feststellen, dass die beobachteten Spektrallinien tatsächlich aus indiumreichen Nanoclustern stammen, die sich beim Wachstum von AlInAs-Volumenmaterial auf InP(111) Substrat bilden.

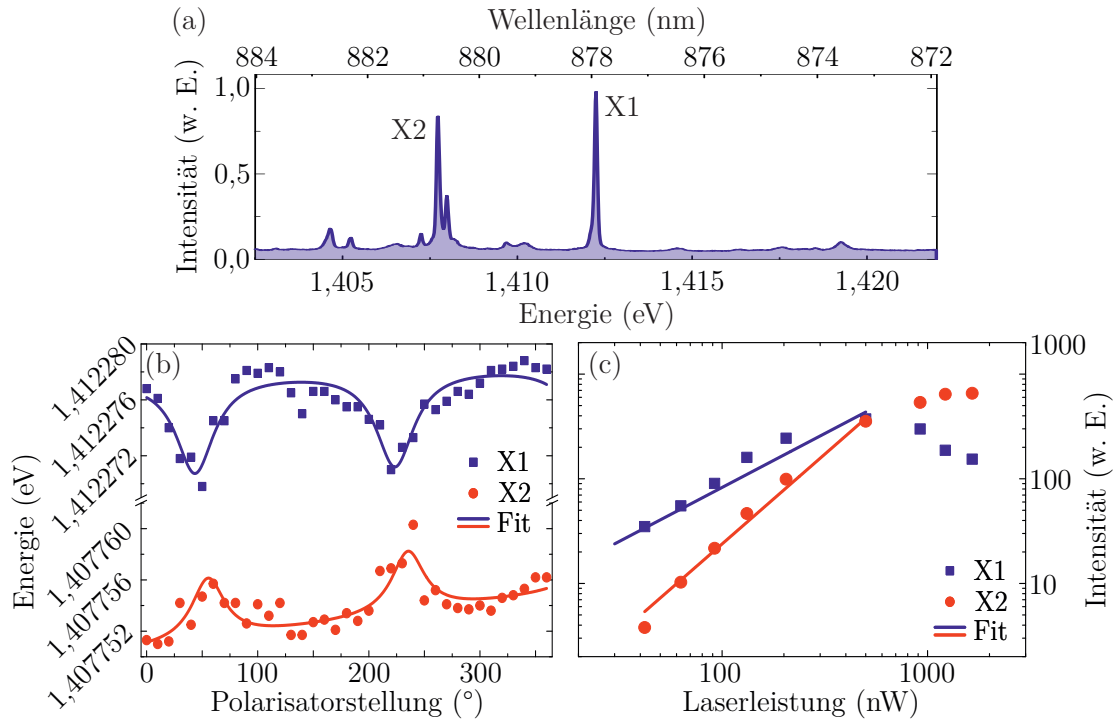
## 4.4 Einzelphotonenemission und Bindung multiexzitonischer Komplexe

Nachdem nun indiumreiche Cluster als Ursprung der QP-ähnlichen Spektrallinien identifiziert werden konnten und gezeigt wurde, dass AlInAs-Nanocluster in vielen Bereichen – wie Linienbreite, Temperaturverhalten und FSA – Analogien zu QPen

aufweisen, wird in diesem letzten Abschnitt untersucht, ob diese Strukturen sich auch als Emittter einzelner Photonen eignen. Dazu wurden zunächst Messungen mit nichtresonanter cw-Anregung durchgeführt. Abbildung 4.7(a) zeigt ein hochaufgelöstes Spektrum, aufgenommen bei einer Temperatur von  $T = 12$  K. Die beiden hellsten Linien im Spektrum, die im Folgenden näher untersucht werden sollen, sind mit  $X_1$  bzw.  $X_2$  benannt. Zunächst werden die grundlegenden spektralen Eigenschaften der beiden Emissionslinien untersucht. Dazu wurden wiederum polarisationsabhängige Spektren aufgenommen und die Energie der Emissionslinie über der Polarisation in Abbildung 4.7(b) aufgetragen. Zunächst einmal lässt sich feststellen, dass beide Linien eine FSA aufweisen, die zudem noch antizyklisch verläuft. Detektiert man die minimale Energie von  $X_1$ , wird zeitgleich die Komponente mit maximaler Energie von  $X_2$  am Linearpolarisator transmittiert. Dies legt die Vermutung nahe, dass beide Linien demselben Nanocluster entstammen [Rod02, Seg05]. Im Verlauf ergeben sich jedoch Abweichungen von einem sinusförmigen Verlauf, was sich auf eine Linearpolarisation der Emission entlang einer ausgezeichneten Kristallachse zurückführen lässt. Die Anpassungsfunktion besteht dann aus der Transmissionswahrscheinlichkeit am Linearpolarisator – welche mit  $\cos^2 x$  skaliert – und einer Gewichtung des Polarisationsgrades beider Linien:

$$E(\theta) = m * \theta + \frac{E_1 \cdot a \cdot \cos^2(\theta + \phi) + E_2 \cdot (1 - a) \cdot \cos^2(\theta - \pi/2 + \phi)}{a \cdot \cos^2(\theta + \phi) + (1 - a) \cdot \cos^2(\theta - \pi/2 + \phi)}. \quad (4.3)$$

$E_1$  und  $E_2$  sind dabei die Energie der beiden orthogonal zueinander polarisierten Zerfallskanäle,  $\theta$  der Winkel des Linearpolarisators (bzw. der doppelte Winkel des  $\lambda/2$ -Plättchens),  $\phi$  ist eine Phasenverschiebung,  $a$  bzw.  $(1 - a)$  ist die relative Intensität der jeweiligen Linie und  $m$  ist ein Korrekturterm der eine konstante lineare Steigung z. B. durch einen Temperaturdrift während der Messung kompensiert. Aus der Anpassung ergibt sich für die Linie  $X_1$  eine FSA von  $\Delta E_{FSA} = (6,3 \pm 0,6) \mu\text{eV}$  und für  $X_2$   $\Delta E_{FSA} = (4,6 \pm 0,7) \mu\text{eV}$ . Der Polarisationsgrad (DOP), welcher über  $DOP = \frac{I_H - I_V}{I_H + I_V}$  definiert ist, ergibt sich für beide Linien zu  $DOP_{X_1} = (78 \pm 3) \%$  und  $DOP_{X_2} = (83 \pm 4) \%$ . Eine solche Linearpolarisation wurde beispielsweise auch für *InP/GaInP-QPe* beobachtet [Sug99, Bra13] und wurde dabei auf eine anisotrope Form der QPe zurückgeführt.



**Abbildung 4.7:** (a)  $\mu$ PL-Spektrum bei einer Temperatur von  $T = 12$  K und cw-Anregung. Die beiden mit  $X_1$  und  $X_2$  markierten Linien werden im folgenden genauer analysiert. (b) Polarisationsabhängige Emissionsenergie von  $X_1$  und  $X_2$ . Aus der Anpassung der Daten mittels Gleichung 4.3 ergibt sich die FSA zu  $\Delta E_{FSA,X_1} = (6,3 \pm 0,6) \mu\text{eV}$  bzw.  $\Delta E_{FSA,X_2} = (4,6 \pm 0,7) \mu\text{eV}$ . (c) Leistungsabhängige integrierte Intensität der beiden Emissionslinien. Aus der Anpassung ergeben sich die Koeffizienten der Leistungsabhängigkeit zu  $\alpha_{X_2} = 1,72 \pm 0,08$  und  $\alpha_{X_1} = 1,03 \pm 0,11$ .

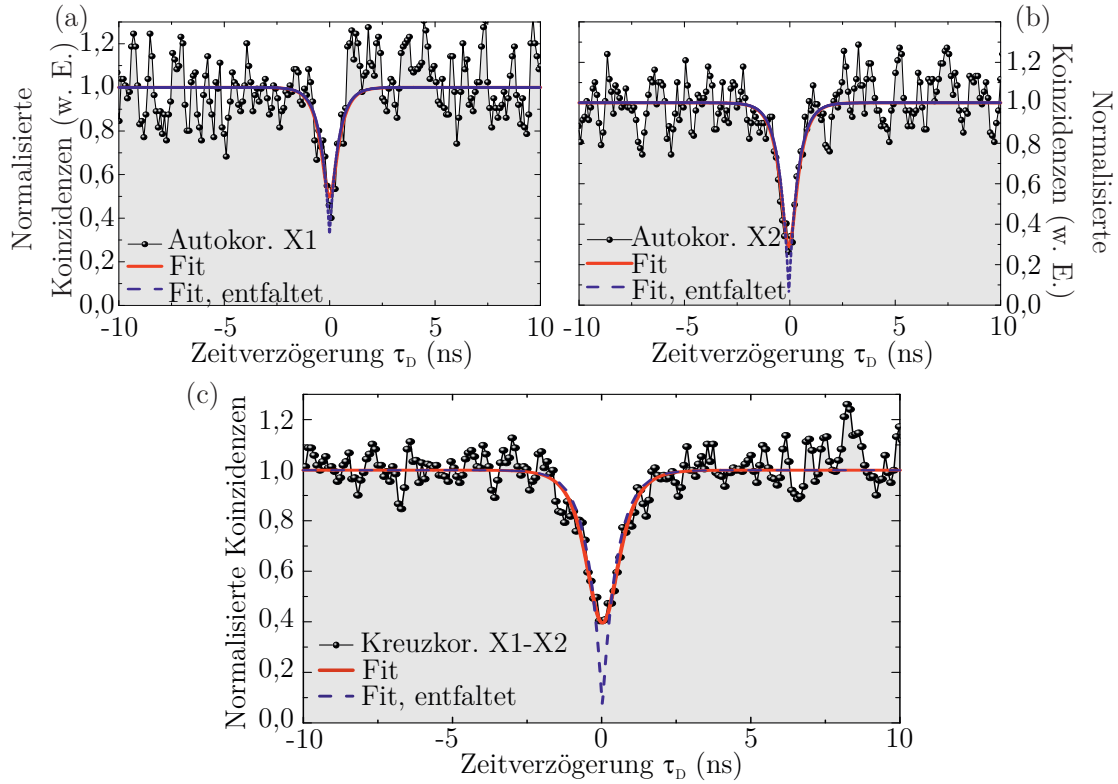
Abbildung 4.8(c) zeigt die leistungsabhängige Intensität der beiden Linien  $X_1$  und  $X_2$  in log-log-Auftragung. Die Daten werden unterhalb der Sättigung mit einer Funktion der Form  $I(P) \propto P^\alpha$  angepasst. Aus den Anpassungen der beiden Kurven ergeben sich Steigungen von  $\alpha_{X_1} = 1,03 \pm 0,11$  respektive  $\alpha_{X_2} = 1,72 \pm 0,08$ .

Um die zeitlichen Emissionseigenschaften der beiden Spektrallinien und eine mögliche Korrelation der beiden Zustände zu untersuchen wurde die Auto- und Kreuzkorrelationsfunktion zweiter Ordnung experimentell gemessen. Die Kreuzkorrelation unterscheidet sich dahingehend von der Autokorrelation, dass die Intensitäten zweier verschiedener Lichtfelder miteinander korreliert werden und lässt sich in Analogie an die Autokorrelation darstellen als [Kir02]:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I_1(t) I_2(t + \tau) \rangle}{\langle I_1(t) \rangle \langle I_2(t) \rangle} \quad (4.4)$$

Damit ist es beispielsweise möglich kaskadierte Zerfälle wie die Biexziton-Exziton-Zerfallsreihe nachzuweisen [Ako06, Ben10c, Dou10]. Experimentell wurde dies in dieser Arbeit mittels der Integration eines zweiten Monochromators in den  $\mu$ PL-Messaufbau realisiert. Das Messsignal wird mittels eines 50/50-Strahlteiler auf beide Monochromatoren aufgeteilt und an beiden jeweils eine Emissionslinie spektral gefiltert. Das gefilterte Signal wird anschließend in eine Faser eingekoppelt, an deren Ende sich eine Si-APD befindet. Das Signal beider APDs wird dann mittels der TAC-Messkarte miteinander korreliert und ein Koinzidenzhistogramm erstellt. Filtert man an beiden Monochromatoren dieselbe Spektrallinie, so misst man effektiv die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung analog zu einer HBT-Messanordnung (siehe Abschnitt 3.2).

Die Abbildungen 4.8(a) und 4.8(b) zeigen die Autokorrelationsmessungen der Linien  $X_1$  und  $X_2$ . Um  $\tau \approx 0$  herum kann man in beiden Fällen ein deutliches *Antibunching* erkennen, was den eindeutigen Nachweis der nichtklassischen Lichtemission aus den AlInAs-Nanoclustern darstellt. Die Anpassung der Daten wurde mit einer



**Abbildung 4.8:** (a) Histogramm der Autokorrelation von  $X_1$ . (b) Histogramm der Autokorrelation von  $X_2$ . Beide Messungen zeigen ein deutliches *Antibunching* als Nachweis der Einzelphotonenemission. Aus der Anpassung mittels Gleichung 4.5 ergeben sich  $g^{(2)}(0)$ -Werte von  $g_{X_1}^{(2)}(0) = 0,20 \pm 0,13$  und  $g_{X_2}^{(2)}(0) = 0,05^{+0,17}_{-0,05}$ . (c) Kreuzkorrelation zwischen  $X_1$  und  $X_2$ . Das Antibunching ist der Nachweis, dass beide Linien aus demselben Nanocluster stammen.

zweiseitig abfallenden Exponentialfunktion durchgeführt, welche die folgende Form hatte [Zwi01]:

$$g^{(2)}(\tau_D) = 1 - \underbrace{\left( (1 - g^{(2)}(0)) \cdot \exp\left(\frac{|\tau_D|}{T_1}\right) \right)}_{\text{QP-Signal}} * \underbrace{\left( e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{\tau}{\sigma}\right)^2} \right)}_{\text{Messaufbau}}. \quad (4.5)$$

$T_1$  ist dabei die Lebensdauer des untersuchten Zustandes. Die endliche Zeitauflösung des Aufbaus wird über eine Faltung von Gleichung 4.5 mit einer Gaußfunktion entsprechend Gleichung A.19 berücksichtigt. Es ergeben sich  $g^{(2)}(0)$ -Werte für beide

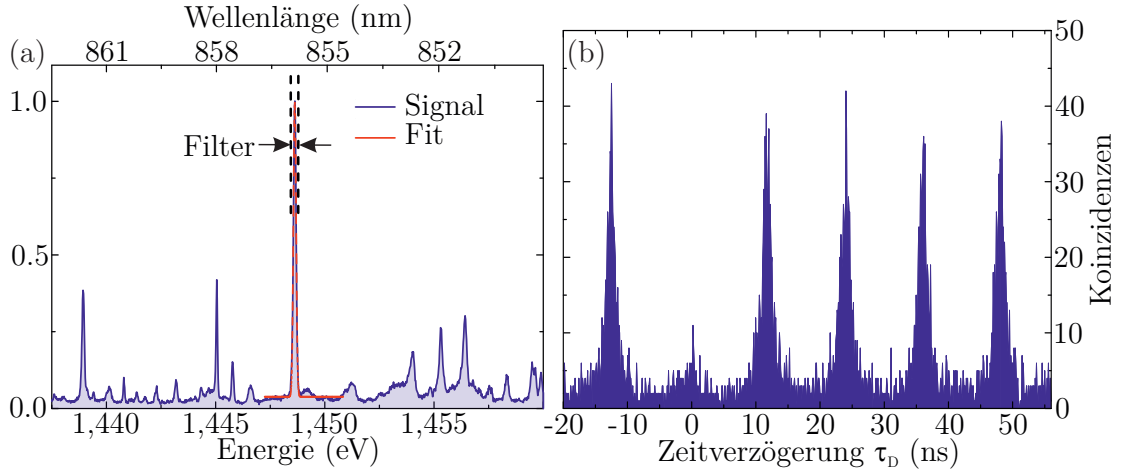
Zustände von  $g_{X_1}^{(2)}(0) = 0,20 \pm 0,13$  und  $g_{X_2}^{(2)}(0) = 0.05_{-0,05}^{+0,17}$ . Damit unterschreiten beide Spektrallinien die Grenze für Einzelphotonenemission von  $g^{(2)}(0) < 0,5$  deutlich, wobei der Zustand  $X_2$  einem idealen Einzelphotonenemitter sehr nahe kommt. Der etwas höhere Wert für  $X_1$  ergibt sich höchstwahrscheinlich aus dem Überlapp mit einer zweiten Linie, die in der höher-energetischen Flanke der Emissionslinie von  $X_1$  in Abbildung 4.7(a) erkennbar ist. Die aus den Fits extrahierten Zerfallskonstanten sind  $T_{X_2} = (459 \pm 115)$  ps und  $T_{X_1} = (332 \pm 142)$  ps. Dies ist insoweit bemerkenswert, da die Lebensdauer deutlich kürzer ist als bei InGaAs-QPen ( $\approx 1$  ns, [Bor02, Zre02]), welche etwas langwelliger emittierten oder InP-QPen (2,3 ns, [Zwi03]), welche im roten Spektralbereich Licht aussenden. Daraus lässt sich folgern, dass die hier untersuchten Zustände über vergleichsweise hohe Oszillatorstärken  $f$  verfügen, da diese direkt proportional zur spontanen Emissionsrate  $\Gamma$  des Zustandes ist [And99, Hou05]. Über die Kopplung an die optische Mode eines Resonators würden sich somit extrem kurze Zerfallszeiten realisieren lassen, da zum einen die spontane Emissionsrate ohne Resonator vergleichsweise groß ist. Zudem folgt nach Gleichung 2.24, dass die Licht-Materie-Wechselwirkung mit größer werdender Oszillatorstärke ebenfalls zunimmt und somit die Zerfallsrate weiter steigt. Damit besitzen die hier untersuchten Nanocluster ein hohes Potential für effiziente und kohärente SPSen.

Im nächsten Schritt wurde die Kreuzkorrelation  $g_{X_2-X_1}^{(2)}(\tau)$  zwischen den beiden Linien gemessen. Das Koinzidenzhistogramm ist in Abbildung 4.8(c) dargestellt. Man erkennt wiederum eine deutlich verminderte Detektionswahrscheinlichkeit um  $\tau \approx 0$ , welche auf unter 0,5 herab reicht. Dies ist der experimentelle Nachweis, dass beide Linien von demselben Nanocluster emittiert werden. Da jedoch das charakteristische *Bunching* fehlt, kann ein kaskadierter Zerfall der beiden Linien ausgeschlossen werden. Unter Berücksichtigung der bisherigen Ergebnisse handelt es sich bei  $X_1$  aufgrund der linearen Leistungsabhängigkeit um einen exzitonen Komplex. In Verbindung mit der nicht verschwindenden FSA handelt es sich bei der Spektrallinie  $X_1$  wahrscheinlich um ein neutrales Exziton [Bay02b]. Die Emissionslinie  $X_2$  resultiert durch den stark superlinearen Anstieg höchstwahrscheinlich aus einem multiexzitonischen Zustand, der jedoch nicht kaskadiert zu  $X_1$  zerfällt.

Die Datenanpassung von Abbildung 4.8(c) erfolgte mit einer ähnlichen Funktion wie Gleichung 4.5, mit dem Unterschied, dass die Funktion nicht achsensymmetrisch um den Nullpunkt ist, sondern beide Flanken unterschiedliche Zerfallskonstanten haben. Aus dem Fit ergeben sich diese zu  $T_{<0} = (490 \pm 149)$  ps und  $T_{>0} = (505 \pm 149)$  ps und sind damit recht ähnlich zu den aus den Autokorrelationsmessungen bestimmten Lebensdauern der Zustände. Der  $g^{(2)}(0)$ -Wert für diese Messung beträgt  $g^{(2)}(0) = 0,06_{-0,06}^{+0,12}$ . Somit konnte der Nachweis erbracht werden, dass das hier vorgestellte Materialsystem auch geeignet ist multiexzitonische Komplexe zu binden und somit eine weitere Analogie zu QPen aufweist. Dies lässt somit die Möglichkeit offen bei entsprechend niedriger FSA auch polarisationsverschränkte Photonennpaare mit diesen AlInAs Nanoclustern zu erzeugen.

Da die Emission einzelner Photonen aus den AlInAs-Nanoclustern für cw-Anregung bereits erfolgreich nachgewiesen werden konnte, soll abschließend in diesem Kapitel noch die Einzelphotonenemission bei gepulster Anregung und somit auf Abruf untersucht werden. Dazu wird der grüne Laser durch einen gepulsten Ti:Saphir Laser substituiert. Damit die Laserwellenlänge unterhalb der Bandlücke der AlInAs-Schicht liegt, werden die Laserpulse über einen nichtlinearen Kristall frequenzverdoppelt woraus sich eine Wellenlänge von  $\lambda_{Laser} = 475$  nm für den Anregungslaser ergibt. Abbildung 4.9(a) zeigt das Spektrum der AlInAs-Probe, welches unter gepulster Anregung aufgenommen wurde. Die hellste Linie im Spektrum mit einer Linienbreite von  $\Delta w = (147 \pm 1)$   $\mu$ eV wird über den Ausgangspalt des Monochromators spektral selektiert und in eine fasergekoppelte HBT-Messanordnung geleitet.

Abbildung 4.9(b) zeigt das Histogramm der Autokorrelationsmessung dieser Spektrallinie für eine moderate Anregungsleistung unterhalb der Sättigungsschwelle. Die Unterdrückung des zentralen Peaks um  $\tau \approx 0$  ist abermals der Nachweis der nichtklassischen Lichtemission. Aus der Summation der Koinzidenzen innerhalb von 12,2 ns breiten Zeitfenstern ergibt sich ein unkorrigierter  $g^{(2)}(0)$ -Wert von  $g_{gepulst}^{(2)}(0) = 0,35 \pm 0,02$ . Dies unterschreitet die Nachweisgrenze für die Emission einzelner Lichtquanten. Für die Abweichung von einer perfekten Quelle einzelner



**Abbildung 4.9:** (a) Spektrum welches unter gepulster Anregung aufgenommen wurde. Die Markierung verdeutlicht das Fenster der spektralen Filterung für die Autokorrelationsmessung. (b) Koinzidenzhistogramm für gepulste Anregung. Die Unterdrückung um  $\tau \approx 0$  ist der Nachweis der nichtklassischen Lichtemission. Die Auswertung der Pulsflächen ergibt  $g_{\text{gepulst}}^{(2)}(0) = 0,35 \pm 0,02$  und zeigt den Einzelphotonencharakter der Emission.

Lichtquanten kann eine mögliche spektrale Hintergrundemission, die mit der untersuchten Spektrallinie überlappt verantwortlich sein. Aus der Anpassung der Emissionslinie in Abbildung 4.9(a) lässt sich innerhalb des Fensters spektraler Filterung – markiert durch die beiden gestrichelten Linien im Spektrum – ein Signal zu Rausch Verhältnis  $\rho = \frac{S}{S+H}$  ( $S$ : Signal;  $H$ : Hintergrund) bestimmen von  $\rho = 0,92 \pm 0,01$ . Der  $g^{(2)}(0)$ -Wert im Beisein spektralen Hintergrundes lässt sich darstellen als [Mic02]

$$g_{\text{Hintergrund}}^{(2)}(0) = 1 + \rho^2 \left( g_{\text{Quelle}}^{(2)}(0) - 1 \right). \quad (4.6)$$

Damit ergibt sich ein korrigierter Wert von  $g_{\text{Quelle}}^{(2)}(0) = 0,24 \pm 0,02$ . Die verbleibende Abweichung lässt sich auf das nichtresonante Anregungsschema und die damit einhergehende Wiederbefüllung des Nanoclusters innerhalb einer Repetition des Lasers zurückführen. Dabei werden durch die Anregung der Nanocluster über die Bandkante sehr viele Elektron-Loch-Paare in der Umgebung des untersuchten Nanoclusters gebildet. Aus diesem Reservoir kann der Nanocluster nach



Emission eines Photons erneut befüllt<sup>4</sup> werden, falls sich der Ladungsträgervorrat nicht auf kürzeren Zeitskalen als die Zerfallszeit des gebundenen Exzitons abbaut. Wie in Kapitel 8 gezeigt wird, ist die strikt oder quasi-resonante Anregung ein probates Mittel um sehr reine Einzelphotonenemission sicherzustellen und einen Wiederbefüllungseffekt zu unterdrücken.

## Zusammenfassung des Kapitels

In diesem experimentellen Kapitel wurde mit AlInAs auf InP(111) Substrat ein neuartiges Materialsystem zur Generation einzelner Lichtquanten auf Abruf vorgestellt. Durch Verspannungen aufgrund der (111) Wachstumsrichtung kommt es zu einer Segregation von Indium und Aluminium. Damit bilden sich sowohl (sehr kleine) aluminiumreiche Bereiche als auch  $(16 \pm 4)$  nm große Bereiche mit erhöhter Indiumkonzentration. Durch die unterschiedlichen Bandlücken können in den indiumreichen Clustern Ladungsträger eingefangen werden und es lassen sich spektral scharfe Emissionslinien – in Analogie zu QPen – beobachten. Über temperaturabhängige  $\mu$ PL-Messungen konnte die Energie des LO Phonons zu  $E_{LO} = (23 \pm 1)$  meV bestimmt werden. Die Aktivierungsenergien von Elektron und Loch wurden zu etwa  $\approx 30$  meV und  $\approx 5$  meV gemessen. Über XSTM Messungen und Simulation via *nextnano++* konnten diese Emissionslinien eindeutig den indiumreichen Nanoclustern im AlInAs-Volumenmaterial zugeordnet werden. Abschließend wurden noch Auto- und Kreuzkorrelationsmessungen an diesen Emissionslinien vorgestellt, wobei zum Einen die Emission einzelner Lichtquanten – sowohl unter cw als auch gepulster Anregung – demonstriert, als auch der Nachweis erbracht wurde, dass diese Nanocluster multiexzitonische Komplexe binden können.

Die Resultate dieses Kapitels wurden in „S. Unsleber *et al.*, Optics Express **24**, 23198-23206 (2016)“ publiziert.

---

<sup>4</sup>im Englischen wird dieser Effekt *refilling* genannt



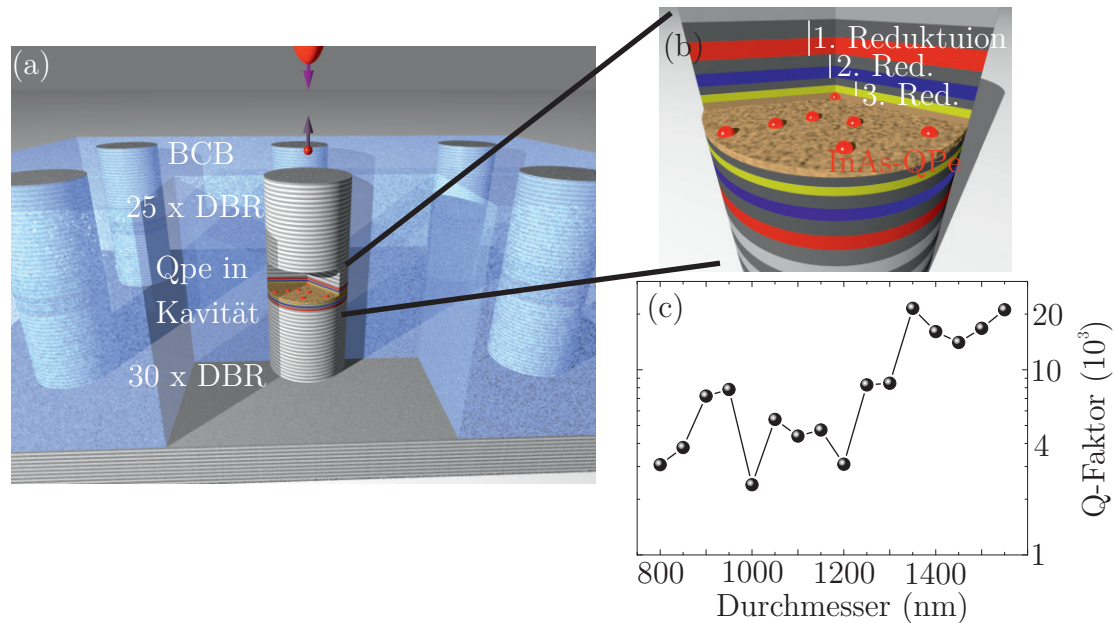
# 5 „How-to“: Kohärente einzelne Photonen aus Quantenpunkten in Mikrokavitäten

Im Rahmen dieses Kapitels werden die Ergebnisse einer Kooperation aus theoretischer und experimenteller Forschung vorgestellt, welche das Ziel hatte die genauen physikalischen Einflüsse auf die Kohärenzeigenschaften eines gekoppelten QP-Mikrokavität-Systems zu erforschen. Damit soll durch Kenntnis der verschiedenen Einschränkungen des Systems der Grundstein für die Fabrikation möglichst heller und kohärenter SPSen gelegt werden. Zudem wird für die hier untersuchten Mikrotürmchen das Konzept der adiabatischen Modenanpassung angewendet, welches erlaubt Q-Faktoren von ca.  $10^4$  für sehr kleine Resonatordurchmesser um  $\approx 1 \mu\text{m}$  zu realisieren. In diesem Kapitel wird das Regime der schwachen Licht-Materie-Wechselwirkung untersucht, wobei ein hoher Purcell-Faktor von  $F_P = (7.8 \pm 2.3)$  bei gleichzeitig sehr reiner Einzelphotonenemission demonstriert wird. In einem weiteren Schritt kann die Ununterscheidbarkeit der emittierten Photonen mit einer maximalen Visibilität von  $\nu = (83 \pm 5) \%$  nachgewiesen werden. Um den Einflüssen auf den Grund zu gehen, die in diesem Experiment für eine Verringerung der ZPI Sichtbarkeit sorgen, wird eine neuartige Theorie der Quanteninterferenz von Photonen aus gekoppelten QP-Mikroresonator-Systemen vorgestellt.

## 5.1 Probenlayout und Fabrikation

In diesem Abschnitt wird der Aufbau sowie die Herstellung der hier verwendeten QP-Mikrotürmchen-Proben mit adiabatischer Modenanpassung vorgestellt. Durch diese Anpassung erfolgt eine verbesserte Unterdrückung von Verlustkanälen für Türmchendurchmesser  $< 1,5 \mu\text{m}$ , da die optische Fundamentalmode einen stärkeren Einschluss in den zentralen Bereich des Türmchens erfährt. Zuerst wurde dieses Konzept von Lalanne *et al.* im Jahr 2003 für nichtperiodische Strukturen vorgeschlagen [Lal03]. Anfangs wurde das Konzept nur in Systemen, bei denen der Resonator konzeptionell aus Bereichen mit hohem Brechungsindexunterschied gebildet wird, realisiert. Dazu zählen z. B. eindimensionale [Vel07] und zweidimensionale photonische Kristalle [Son05]. In Strukturen, bei denen der Einschluss der optischen Mode durch Materialien mit kleinem Unterschied in den Brechungsindizes generiert wird, gelang der experimentelle Nachweis zuerst Lerner *et al.* im Jahr 2012 [Ler12]. Die von Lerner *et al.* verwendeten Strukturen sind identisch zu dem hier verwendeten Wafer M4056, dessen Schichtaufbau in Anhang A.6 erläutert wird und in Abbildung 5.1 illustriert wird.

Die verwendete mittels MBE hergestellte Struktur ist ein Fabry-Pérot-Resonator, bei dem die beiden Spiegel aus  $\lambda/4$ -dicken GaAs/AlAs DBR Spiegelpaaren gebildet werden (siehe Abschnitt 2.2). Um eine gezielte Auskopplung der Photonen an der oberen Facette des späteren Mikrotürmchens zu gewährleisten, besteht der untere Spiegel aus insgesamt 29,5 Paaren, der obere jedoch nur aus 25. Zwischen den beiden Spiegeln befindet sich die Kavität, die entgegen des „Standarddesigns“ [Gér96, Rei07] nicht aus einer  $\lambda$ -dicken GaAs Schicht sondern aus insgesamt sechs einzelnen GaAs/AlAs Schichten besteht. Die Dicke dieser einzelnen Schichtpaare wird dabei – ausgehend von den  $\lambda/4$ -dicken Spiegelpaaren – schrittweise zur Mitte der Kavität hin reduziert (siehe Abbildung 5.1(b)). Als aktives Medium befindet sich eine Schicht InAs-QPe in der Mitte der Kavität, eingebettet in eine 59,4 nm dicke GaAs Schicht. Das Wachstum der QPe findet im sog. „Stranski-Krastanov-Wachstumsmodus“ statt (siehe Abschnitt 2.1.1). Um die optische Qualität zu erhöhen und die Emissionswellenlänge in den Bereich um 900 nm zu schieben,



**Abbildung 5.1:** (a) Illustrierter Aufbau der Mikrotürmchen mit adiabatischer Modenanpassung. Der Bereich mit zunehmend reduzierter Schichtdicke um die InAs-QPe ist vergrößert in (b) dargestellt. Durch die adiabatische Modenanpassung werden Verlustkanäle bei kleinen Türmchendurchmessern kleiner als 1  $\mu\text{m}$  unterdrückt, wodurch sich sehr hohe Q-Faktoren von einigen Tausend ergeben.

erfahren die QPe direkt nach dem Wachstum einen PCA -Schritt<sup>1</sup> [Gar97]. Darüber wird die Wellenlänge des QP-Ensembles durch eine Reduktion der QP-Höhe und der Interdiffusion von GaAs und InAs blauverschoben [Bra16].

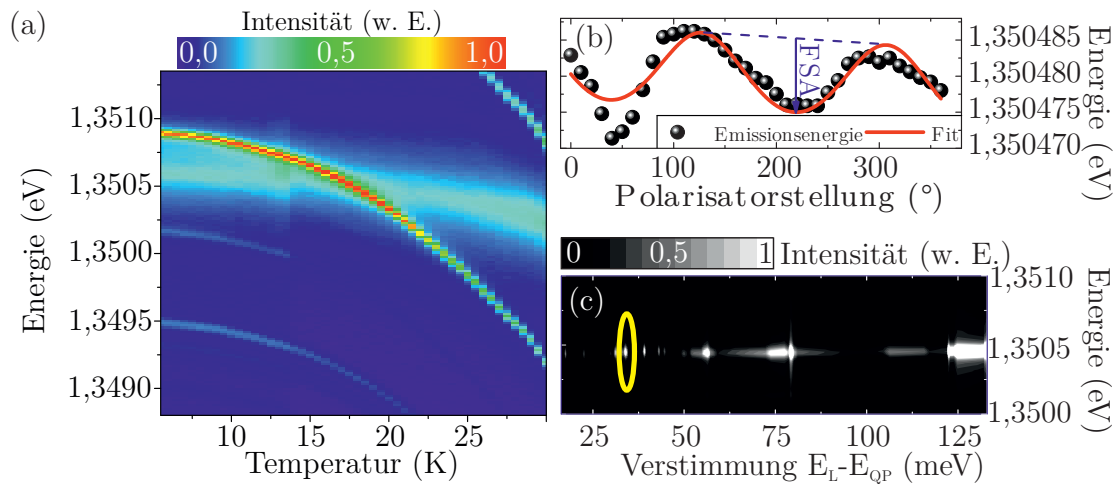
Nach dem Wachstum des planaren Wafers M4056 (genaue Schichtstruktur siehe Anhang A.6) wird eine Schicht Polymethylmethacrylat (PMMA) als Positiv-Photolack aufgebracht. Mittels Elektronenstrahlolithographie werden Kreise unterschiedlichen Durchmessers in den Lack belichtet, wodurch die späteren Mikrotürmchen definiert werden. Die so belichteten Bereiche werden anschließend durch ein Lösungsmittel entfernt und es wird eine Nickel-Ätzmaske aufgetragen. Anschließend wird der übrige Photolack entfernt, sodass nur an den anfangs beleuchteten Stellen Nickel übrig bleibt. Abschließend werden die Mikrotürmchen mittels reaktivem Ionenätzen

<sup>1</sup>Akronym für engl. *partial capping and annealing*, zu deutsch „teilweise bedecken und ausheilen“

durch Argon- und Chlorionen in die Struktur transferiert. Die Nickelmaske wird während des Ätzens ebenfalls abgetragen, jedoch viel geringer als die freiliegenden Halbleiterbereiche. Durch eine Optimierung des Ätzprozesses gelingt es, dass zum Schluss nur eine sehr dünne Schicht Nickel auf dem Türmchen verbleibt. Zur Sicherstellung der Fabrikationsqualität der Mikrotürmchen werden zunächst – abhängig vom Durchmesser – die Gütefaktoren der Probe bestimmt. Abbildung 5.1(c) zeigt die gemessenen Q-Faktoren auf dieser Probe für  $d = 750 - 1550$  nm. Wie man deutlich erkennen kann, liegen die gemessenen Q-Faktoren immer über einem Wert von  $Q_{Min} \approx 3000$ . Dies übersteigt deutlich die Gütefaktoren von  $Q_{Standard} < 2000$ , die auf dieser Größenskala und mit einer  $\lambda$ -dicken Kavität gemessen wurden [Lal04, Lec07, Ler12] und ist eine direkte Konsequenz aus der optimierten Struktur mit adiabatischer Modenanpassung. Weiterhin lässt sich eine Abnahme des Q-Faktors zu kleineren Durchmessern hin erkennen, was vermutlich an einem schlechteren Volumen zu Oberflächenverhältnis mit der einhergehenden Zunahme an Verlusten durch Seitenwandstreuung liegt [Rei07].

## 5.2 Grundcharakterisierung der untersuchten Quantenpunkt-Mikrokavität

Abbildung 5.2(a) zeigt als Konturdarstellung temperaturabhängige Spektren eines QPes in einem Mikrotürmchen mit adiabatischer Modenanpassung, welche bei nicht resonanter cw-Anregung aufgenommen wurden. Die Intensität der Spektren wird dabei durch eine farbcodierte Konturdarstellung wiedergegeben. Aus der Anpassung der Grundmode ergibt sich der Gütefaktor des untersuchten Mikrotürmchens ( $d = 1050$  nm) zu  $Q = 3200$ . Durch die Temperaturabhängigkeit der Bandlücke in einem Halbleiter kann man eine deutliche Blauverschiebung der QP-Emission zu tieferen Temperaturen hin erkennen. Im Vergleich zur Bandlücke ändert sich die Energie der fundamentalen optischen Mode nur sehr wenig im dargestellten Temperaturbereich, da sich die Brechungsindizes der verwendeten Halbleitermaterialien nur geringfügig ändern. Bei einer Temperatur von  $T = 17.5$  K kommt es zur Resonanz zwischen dem angeregten Zustand des QPes und der Grundmode. Damit einhergehend kann



**Abbildung 5.2:** (a) Temperaturabhängige Spektren des untersuchten QPes. Durch die schwache Licht-Materie-Wechselwirkung kommt es zu einer starken Erhöhung der emittierten Intensität für spektrale Resonanz zwischen QP und Fundamentalmode. (b) Polarisationsaufgelöste Energie der QP Emission. Es ist eine FSA von  $\Delta E_{FSA} = (13 \pm 7) \mu\text{eV}$  erkennbar. (c) Intensität des QP-Exzitons in Abhängigkeit von der Verstimmung zwischen Laser und QP. Es sind mehrere Resonanzen erkennbar, die sich auf Phononenreplika und höhere Zustände im QP zurückführen lassen.

man eine deutliche Erhöhung der vom QP emittierten Intensität erkennen, die in der schwachen Licht-Materie-Wechselwirkung begründet liegt.

Um zunächst den QP-Zustand genauer zu charakterisieren, wurde mittels eines zusätzlichen Linearpolarisators und eines  $\lambda/2$ -Wellenplättchens im Strahlengang untersucht, ob der QP Zustand eine FSA besitzt und wie groß diese gegebenenfalls ist. Der Linearpolarisator wird dazu so eingestellt, dass die transmittierte Polarisation der Achse mit höchster Reflektivität des Monochromators entspricht. Mittels des Wellenplättchens wird dann die Polarisation der QP-Emission gedreht und somit Spektren in Abhängigkeit dieser aufgenommen. Abbildung 5.2(b) zeigt als Ergebnis einer solchen Polarisationsserie die Emissionsenergie des QPes in Abhängigkeit der Polarisatorstellung. Es lässt sich ein oszillierendes Verhalten durch die nicht verschwindende FSA des QPes erkennen. Daraus lässt sich schließen, dass es sich beim spektroskopierten Zustand höchstwahrscheinlich um ein neutrales Exziton

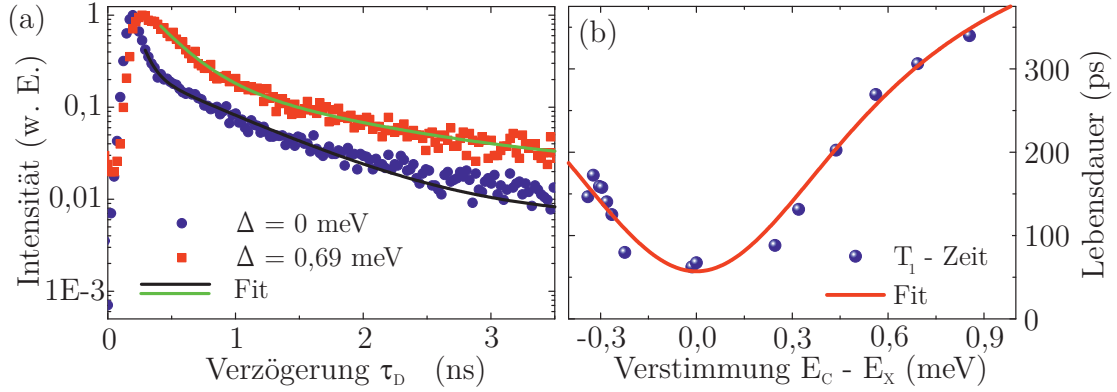
handelt. Aus einer sinusförmigen Anpassung dieses Verlaufs lässt sich die FSA als Peak-zu-Peak-Differenz zu  $\Delta E_{FSA} = (13 \pm 7) \mu\text{eV}$  bestimmen.

Um die Reinheit der Einzelphotonenemission als auch die Kohärenz der emittierten Photonen zu erhöhen, wird häufig eine quasi-resonante oder sogar strikt-resonante Anregung des QP Überganges verwendet [San02, Gol14, He13b]. Um Resonanzen des QPes – wie beispielsweise die p-Schale – in dem hier untersuchten System zu identifizieren, wurden Spektren des QP-Mikrokavität-System in Abhängigkeit der Wellenlänge des anregenden Lasers gemessen. Die Temperatur betrug bei dieser Messung  $T = 5,5 \text{ K}$ , sodass der QP leicht verstimmt zur Grundmode war. Dadurch kann die Unterscheidung zwischen QP- und Grundmodenemission gewährleistet werden. Abbildung 5.2(c) zeigt das Spektrum des untersuchten QPes in Abhängigkeit der Laserwellenlänge, wobei die Intensität des QPes als Konturplot dargestellt wird. Man kann deutlich mehrere, verschieden helle Resonanzen erkennen, welche sichtbar werden wenn der Laser resonant mit einem höheren Zustand des QPes ist. Diese Zustände können beispielsweise quantisierte Energieniveaus des Potentialtopfes – wie die p-Schale – sein. Der Laser regt dann effektiv diesen Zustand an, woraufhin das erzeugte Ladungsträgerpaar in den energetischen Grundzustand – welcher der hier untersuchten Spektrallinie entspricht – relaxiert. Weiterhin ist auch eine Anregung des QPes über die Benetzungsschicht denkbar oder auch die Besetzung des QP-Grundstandes bei gleichzeitiger Generation eines optischen Phonons. Für alle weiteren Experimente wurde eine Blauverstimmung des Lasers um  $32 \text{ meV}$  gewählt. Dies entspricht höchstwahrscheinlich der Anregung eines Exzitons unter Zuhilfenahme eines LO Phonons, da diese Verstimmung mit der LO-Phononenenergie von  $33 \text{ meV}$  übereinstimmt, welche für  $\text{In}_{0,53}\text{Ga}_{0,47}\text{As}$  berichtet wurde [Pea83]. Durch den PCA-Schritt beim Wachstum kommt es zur Interdiffusion zwischen Gallium und Arsen, sodass sich näherungsweise eine Komposition von  $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$  ergibt. Bei der Anregung des QPes über den LO-Phonon Zustand lässt sich zudem erwarten, dass es kaum zeitlichen Jitter beim Emissionsprozess gibt, da die Phononen eine Relaxationszeit von einigen  $10 \text{ ps}$  aufweisen, was deutlich unterhalb der typischen Lebensdauer eines QP- Exzitons liegt [Gra07].



### 5.2.1 Lebensdauer- und Kohärenzzeitmessungen

Um die Kopplungsstärke des QP-Mikrotürmchen-Systems zu quantifizieren, eignet sich die experimentelle Bestimmung des Purcell-Faktors. Wie in Kapitel 2.3.2 bereits erklärt wurde, stellt der Purcell-Faktor das Verhältnis aus Lebensdauer des QP-Exzitons in das umgebende dreidimensionale Volumenmaterial ohne Resonator und der Zerfallszeit in Resonanz mit der optischen Mode dar. Um die Zerfallsrate zu messen wird die durch den Monochromator spektral gefilterte Emission des QPs in eine Faser eingekoppelt, an deren Ende sich eine zeitlich hochauflösende APD ( $\Delta t_{Res} \approx 40$  ps) befindet. Als Referenzsignal an der TAC-Karte dient der Trigger-Ausgang des Lasers. Der Laser startet damit die Zeitmessung der TAC-Karte, welche durch die Detektion eines Photons in der APD gestoppt wird. Wiederholt sich diese Messung sehr häufig ergibt sich daraus das zeitaufgelöste  $\mu$ PL-Signal, wie in Abschnitt 3.1 erläutert. Zwei dieser Messungen an dem o. g. QP-Mikrotürmchen sind in Abbildung 5.3(a) gezeigt. In roten Quadraten dargestellt ist die Zerfallskurve des Exzitons für eine Verstimmung zwischen QP und Fundamentalmode von  $\Delta = E_C - E_X = 0,69$  meV, wohingegen die blauen Kreise dem zeitaufgelösten Signal für spektrale Resonanz zwischen QP und Fundamentalmode entsprechen. Vor allem für geringe Zeitdifferenzen von unter 1 ns ist deutlich der schnellere Zerfall für spektrale Resonanz erkennbar. Um die Daten hinreichend gut reproduzieren zu können, musste für beide Zerfallskurven eine biexponentiell abfallende Funktion mit zwei unterschiedlichen Zeitkonstanten zur Anpassung verwendet werden. Die in Abbildung 5.3(a) gezeigten Anpassungskurven haben deshalb die Form  $f(\tau_D) = y_0 + A_1 * e^{-\tau_D/T_{\text{schnell}}} + A_2 * e^{-\tau_D/T_{\text{langsam}}}$ . Dabei stellt  $y_0$  einen konstanten Untergrund z. B. durch die Dunkelzählrate der APDs dar,  $T_{\text{schnell}}$  ist die schnellere Zerfallskonstante und entspricht hier der Lebensdauer  $T_1$  des Exzitonzustands und  $T_{\text{langsam}}$  die langsamere Zeitkonstante. Diese beiden Signale lassen sich der Emission des Quantenpunktes mit der Zerfallskonstanten  $T_1$  sowie einem weiteren Beitrag aus der Emission der Grundmode mit der Zerfallszeit  $T_{NR}$  (NR: nicht resonant) zuordnen. Die Emission der Kavität setzt sich dann aus Beiträgen von dem hier untersuchten QP sowie anderen nicht resonant an die Mode gekoppelten Emissionslinien zusammen. Diese Emission kann dabei entweder



**Abbildung 5.3:** (a) Zeitaufgelöstes  $\mu$ PL-Signal der QP-Emission für spektrale Resonanz und für eine Verstimmung zwischen QP und Fundamentalmode von  $\Delta = 0,69$  meV. Es ist ein deutlich schnellerer Abfall des Signal für  $\Delta = 0$  meV erkennbar. Die Daten werden mit einer biexponentiellen Zerfall angepasst wodurch sich eine QP-Lebensdauer von  $T_1(\Delta = 0 \text{ meV}) = (67 \pm 8)$  ps ergibt. (b) Lebensdauer des QPes in Abhängigkeit der Verstimmung des QPes zur Fundamentalmode. Eine Anpassung mit einer Lorentz-Funktion mit Halbwertsbreite  $\Delta w = \gamma_C$  ergibt einen Purcell-Faktor von  $F_P = 7,8 \pm 2,3$ .

von anderen QPen im Mikrotürmchen stammen, oder von einem anderen Zustand des hier untersuchten QPes. In beiden Fällen ist die Emission spektral verstimmt zur Grundmode, jedoch gelangt ein nicht verschwindender Anteil beispielsweise über die Streuung mit LA Phononen in die Grundmode und kann deshalb auf der hier gefilterten Wellenlänge detektiert werden. Da diese Spektrallinien energetisch verstimmt zur optischen Mode sind ist ihre Lebensdauer deutlich länger als die des hier untersuchten, mit der Grundmode resonanten QPes. Da die QP-Emission – wie im Folgenden noch gezeigt wird – für spektrale Resonanz einen sehr reinen Einzelphotonencharakter aufweist, entstammen diese nicht resonanten bzw. spektral verstimmten Emissionslinien wahrscheinlich demselben QP. Aus den Datenanpassungen in Abbildung 5.3(a) ergeben sich radiative Lebensdauern in bzw. außerhalb der Resonanz zu  $T_1(\Delta = 0 \text{ meV}) = (67 \pm 8)$  ps bzw.  $T_1(\Delta = 0,69 \text{ meV}) = (306 \pm 13)$  ps.

Um den Purcell-Effekt im Detail auswerten zu können, wurden die zeitaufgelösten Messungen für insgesamt 14 verschiedene Temperaturen und somit 14 verschiedene

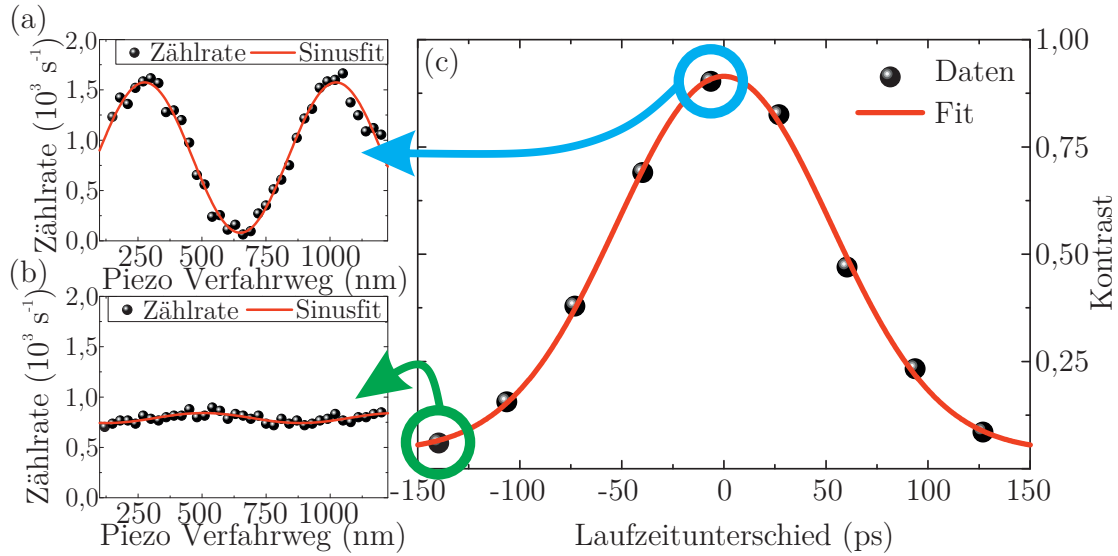
Verstimmungen wiederholt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.3(b) dargestellt. Nach Gleichung 2.29 hängt die Zerfallsrate des QPes vom spektralen Überlapp zwischen QP-Exziton und Fundamentalmode ab. Mathematisch entspricht dieser Zusammenhang einem Lorentzprofil, wobei die Halbwertsbreite der Kurve  $\Gamma_X(\Delta)$  ( $\Gamma_X$ : Zerfallsrate des Exzitons,  $\Delta$ : Verstimmung zur optischen Mode) identisch mit der Linienbreite der optischen Mode ist. Die aus der biexponentiellen Anpassung der einzelnen zeitaufgelösten Messungen extrahierten Lebensdauern werden über der jeweiligen Verstimmung aufgetragen und mit einem inversen Lorentzprofil angepasst. Die Halbwertsbreite der Anpassungsfunktion wurde dabei auf die der optischen Mode ( $\gamma_C = 0,42$  meV) gesetzt. Nach [Mun09] ergibt sich der Purcell-Faktor über den Zusammenhang

$$F_P = \frac{T_1(\Delta \rightarrow \infty)}{T_1(\Delta = 0)} - 1, \quad (5.1)$$

wobei angenommen wurde, dass es keine Unterdrückung der Leckmoden gibt. Daraus folgt für das untersuchte QP-Mikrotürmchen-System ein Purcell-Faktor von  $F_P = 7,8 \pm 2,3$ .

Als nächster Schritt werden die Kohärenzeigenschaften der von diesem QP emittierten Photonen untersucht. Dazu bestimmt man die Autokorrelationsfunktion erster Ordnung (siehe Abschnitt 2.4.1) der QP Emission, was einer Interferenz des Lichtfeldes mit sich selbst entspricht. Experimentell misst man diese durch ein MI oder ein MZI mit gleich langen Armen (siehe Abschnitt 3.4).

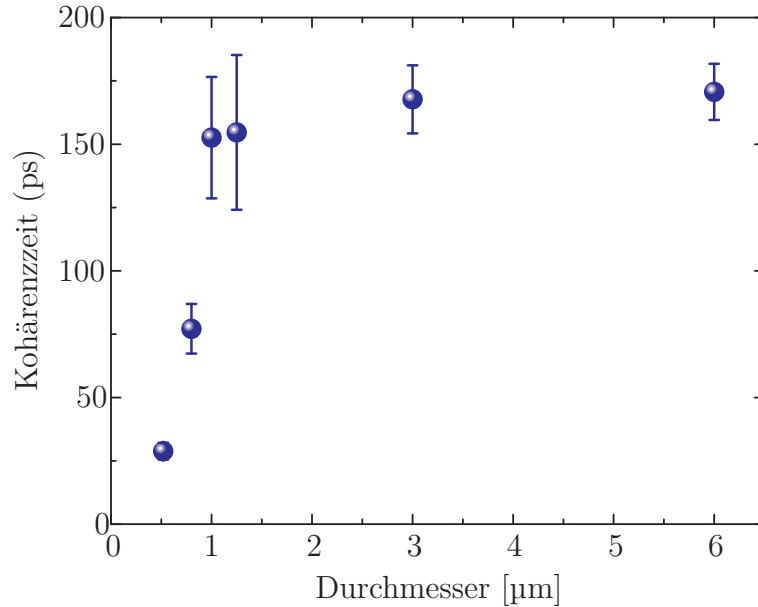
Abbildung 5.4(a) zeigt das periodische Verhalten der Intensität der QP-Emission in Abhängigkeit der Stellung des Piezoaktuators (und somit der Phasendifferenz) für einen nominellen Gangunterschied der beiden Arme von  $\Delta t \approx -7$  ps. Aus einer Anpassung der Daten mit einem Sinusfit der Form  $f(t) = y_0 + A * \sin(\frac{x-x_0}{w})$  lässt sich der Kontrast der Interferenz über  $C = \frac{A}{y_0}$  als das Verhältnis von Amplitude  $A$  zum y-Achsenabschnitt  $y_0$  bestimmen. Für die hier gezeigte Messung ergibt sich ein Interferenzkontrast von  $C_{Max} = (90 \pm 3)$  %. Abbildung 5.4(b) zeigt die Messung des Interferenzkontrastes für einen nominellen zeitlichen Gangunterschied der beiden Arme von  $\Delta t = -140$  ps, bei der kaum noch ein sinusförmiger Verlauf



**Abbildung 5.4:** (a) Zählrate der QP Emission am Ausgang des Interferometers aufgetragen über dem Piezo Verfahrweg für einen nominellen Gangunterschied zwischen den beiden Armen des Interferometers von  $\approx 7$  ps. Die Daten werden mit einer Sinus-Funktion zur Ermittlung des Interferenzkontrastes angepasst. (b) Zählrate in Abhängigkeit des Piezo Verfahrweges für einen Gangunterschied von 140 ps. Es ist fast keine Interferenz mehr sichtbar. (c) Interferenzkontrast der QP-Emission aufgetragen über dem Laufzeitunterschied des Interferometers. Eine Anpassung mit einer gaußförmigen Funktion liefert eine Kohärenzzeit der QP-Emission von  $T_2 = (93 \pm 3)$  ps.

erkennbar ist. Eine erneute Anpassung der Daten mit einem sinusförmigen Fit ergibt einen Kontrast von  $C_{Min} = (6 \pm 1)$  %. Wiederholt man die Messungen des Interferenzkontrastes für verschiedene Gangunterschiede und trägt den Kontrast über der jeweiligen Laufzeitdifferenz auf, ergibt sich der gaußförmige Verlauf in Abbildung 5.4(c). Nach Gleichung 2.38 ergibt sich somit eine Kohärenzzeit der QP Emission von  $T_2 = (93 \pm 3)$  ps. Somit sind die Photonen nicht Fourier-limitiert, da die Lebensdauer für spektrale Resonanz bei  $T_1(\Delta = 0 \text{ meV}) = (67 \pm 8)$  liegt, was eine maximale Kohärenzzeit von  $T_{2,Max} = 2 * T_1 = 134$  ps für Fourier-limitierte Photonen ergibt. Der Grund hierfür ist höchstwahrscheinlich spektrale Diffusion in Folge des sehr kleinen Resonatordurchmessers. Dadurch können Oberflächenzustände – die an den Rändern des Türmchens existieren – an den QP koppeln. Diese Zustände können, beispielsweise durch einen zeitlich veränderlichen Ladungs-

zustand, zu einer energetischen Fluktuation des QP Zustandes und damit zu einer niedrigeren Kohärenz der QP-Emission führen.



**Abbildung 5.5:** Kohärenzzeit der QP-Emission in Abhängigkeit des Türmchendurchmessers. Für jeden Durchmesser wurden mehrere QPe vermessen und der Bestwert hier aufgetragen. Unterhalb von 1  $\mu\text{m}$  bricht die Kohärenzzeit durch den Einfluss der Oberflächenzustände drastisch ein.

Um den Einfluss dieser Oberflächenzustände genauer zu untersuchen, wurde die Messung der Kohärenzzeit für verschiedene Durchmesser der Mikrotürmchen wiederholt. Dabei wurden bei jedem spezifischen Durchmesser mehrere QPe vermessen und der Bestwert in Abbildung 5.5 aufgetragen. Für große Durchmesser konvergiert die gemessene  $T_2$ -Zeit ungefähr gegen  $T_2(d \rightarrow \infty) \approx 170$  ps. Für  $d \leq 1$   $\mu\text{m}$  bricht die Kohärenzzeit der QPe dagegen drastisch ein. Wie bereits erwähnt lässt sich dies auf den negativen Einfluss der Oberflächenzustände zurückführen. Der zuvor untersuchte QP liegt mit einer gemessenen Kohärenzzeit von  $T_2 = (93 \pm 3)$  ps etwas unter dem gemessenen Bestwert für diesen Durchmesser. Grundsätzlich gilt es im Hinblick auf die Erzeugung ununterscheidbarer Photonen das Verhältnis  $T_2/T_1$  zu maximieren (siehe Gleichung 2.51). Basierend auf den durchmesserabhängigen  $T_2$ -Messungen in Abbildung 5.5 sind also größere Durchmesser zu bevorzugen. Für große Mikrotürmchendurchmesser nimmt jedoch auch der laterale Einschluss

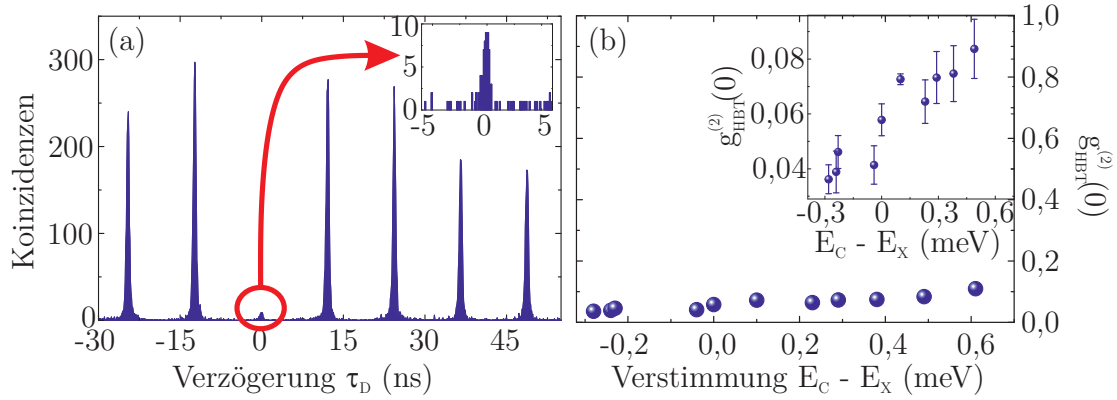
der optischen Mode ab. Damit sinkt die Feldstärke der Mode am Ort des QPes, woraus sich nach Gleichung 2.29 bzw. Gleichung 2.27 eine größere Lebensdauer des Emitters ergibt. Somit gilt es einen Mittelweg zu finden, bei dem sowohl die Kohärenz als auch die Zerfallsrate des QPes hoch ist.

## 5.2.2 Nachweis der Einzelphotonenemission

In diesem Abschnitt wird das bereits vorgestellte QP-Mikrotürmchen-System auf die Emission einzelner Photonen hin untersucht. Dies ist, neben der Ununterscheidbarkeit der Lichtteilchen, eine Kerneigenschaft, die ein solches System erfüllen muss, um als Lichtquelle für weitergehende Experimente auf Basis der Quanteninterferenz zu dienen [Aar11, Spr13]. Das vom QP emittierte Licht wird dazu über den Monochromator spektral gefiltert, in eine Faser eingekoppelt und die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung mittels eines fasergekoppelten HBT-Aufbaus (siehe Abschnitt 3.2) gemessen. In Abbildung 5.6(a) ist das Koinzidenzhistogramm für spektrale Resonanz zwischen QP und Fundamentalmode sowie für gepulste quasi-resonante Anregung gezeigt. Der verschwindende Peak um  $\tau \approx 0$  zeigt bereits die nichtklassische Lichtemission aus dem untersuchten Zustand. Weiterhin ist eine Abnahme der Höhe der einzelnen Peaks zu größeren Zeitunterschieden hin erkennbar. Dieses Verhalten resultiert aus dem sog. *blinking*<sup>2</sup> und lässt sich wahrscheinlich auf einen weiteren Ladungsträgerkomplex des QPes – wie beispielsweise einen Trionzustand – zurückführen. Nach einer charakteristischen Zeit wird im QP ein oder mehrere weitere Ladungsträger gefangen, sodass bei der Injektion eines Exzitons ein anderer Zustand als das neutrale Exziton entsteht. Dieser hat eine leicht unterschiedliche Energie und wird deshalb auf der gemessenen Wellenlänge nicht detektiert. Der QP befindet sich also für die Messung in einem ausgeschalteten Zustand, wodurch die Wahrscheinlichkeit zu höheren Zeitunterschieden hin ein zweites Exziton-Photon zu messen abnimmt, was zu dem beobachteten *blinking*-Verhalten führt. Unterstützt wird diese These ebenfalls durch den zweiten Zerfallskanal, der in den zuvor vorgestellten Lebensdauermessungen beobachtet wurde.

---

<sup>2</sup>engl. für „das Blinken“



**Abbildung 5.6:** (a) Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung für  $\Delta = 0$  meV. Die Unterdrückung des Peaks um  $\tau = 0$  ns ist der Nachweis der Einzelphotonenemission. Eine Auswertung der Pulsflächen liefert  $g^{(2)}(0) = 0,058 \pm 0,006$ . (b)  $g^{(2)}(0)$ -Wert in Abhängigkeit der Verstimmung zwischen QP und Fundamentalmode. Zu höheren Verstimmungen hin ist nur eine leichte Verschlechterung erkennbar, die Einzelphotonenemission bleibt jedoch mit  $g^{(2)}(0) = 0,11 \pm 0,01$  für  $\Delta = 0,61$  meV ( $T = 25,5$  K) sehr rein.

Dieser entspricht aller Wahrscheinlichkeit nach dem „Aus“-Zustand, der das hier beobachtete *blinking* verursacht. Um die Reinheit der Einzelphotonenemission zu quantifizieren wird der  $g^{(2)}(0)$ -Wert über das Verhältnis aus Fläche des zentralen Peaks geteilt durch die durchschnittliche Fläche der umgebenden Peaks berechnet. Für die Messung in Abbildung 5.6(a) ergibt sich  $g^{(2)}(0) = \frac{A_0}{A_{Side}} = 0,058 \pm 0,006$ , was die Grenze einer SPS von  $g^{(2)} < 0,5$  deutlich unterschreitet.

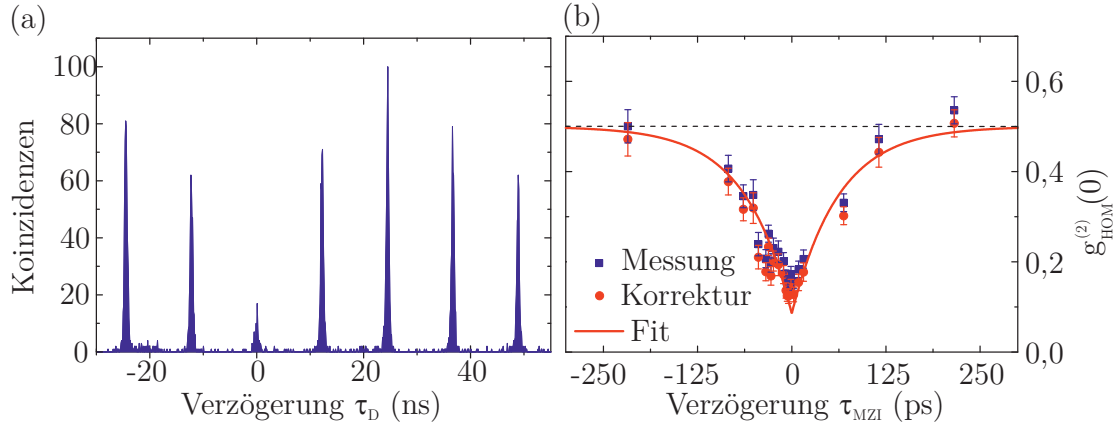
Um weiterhin zu untersuchen, inwieweit die Reinheit der Emission vom spektralen Überlapp zwischen QP- Emissionslinie und Fundamentalmode abhängt, wird der Versuch für verschiedene Temperaturen wiederholt und wiederum der  $g^{(2)}(0)$ -Wert für jede einzelne Verstimmung bestimmt. Das Ergebnis dieser Messreihe ist in Abbildung 5.6(b) dargestellt. Wie man feststellt, unterschreitet der gemessene  $g^{(2)}(0)$ -Wert über den gesamten untersuchten Bereich die Nachweisgrenze der Einzelphotonenemission deutlich. Es ergibt sich nur eine leichte Zunahme des  $g^{(2)}(0)$ -Wertes für hohe Temperaturen bzw. Verstimmungen auf maximal  $g^{(2)}(0) = 0,11 \pm 0,01$  für  $\Delta = 0,61$  meV ( $T = 25,5$  K). Für die Messung in spektraler Resonanz ergab sich ein Signal-Rausch-Verhältnis an den APDs von  $\rho = 0,977$ ,

wobei das Rauschen der Dunkelzählrate der Detektoren entspricht. Berücksichtigt man dies, lässt sich über Gleichung 4.6 der korrigierte  $g^{(2)}(0)$ -Wert zu  $g^{(2)}(0) = 0,014 \pm 0,001$  berechnen. Nun werde angenommen, dass sich dieser korrigierte  $g^{(2)}(0)$ -Wert des Emitters nicht mit variierender Verstimmung ändert. Damit lässt sich aus dem Signal-Rausch-Verhältnis bei einer Verstimmung von  $\Delta = 0,61$  meV von  $\rho = 0,943$  der durch den Hintergrund beeinflussten  $g^{(2)}(0)$ -Wert zu  $g^{(2)}(0) = 0,122 \pm 0,013$  berechnen. Dies stimmt mit dem gemessenen Wert überein, woraus der zunehmende  $g^{(2)}(0)$ -Wert mit zunehmender Verstimmung nahezu ausschließlich aus dem schlechter werdenden Signal-Rausch-Verhältnis resultiert. Ein weiteres bemerkenswertes Merkmal des untersuchten Systems ist die Tatsache, dass die Reinheit der Einzelphotonenemission für spektrale Resonanz keinen Einbruch erfährt. Die Emission aus der Grundmode besteht somit fast ausschließlich aus Photonen, die aus dem hier untersuchten QP in die Fundamentalmode eingekoppelt werden. Dies kann als direkte Konsequenz des sehr kleinen Türmchendurchmessers interpretiert werden. Dadurch befinden sich nur noch sehr wenige QPe im Resonator, sodass die Wahrscheinlichkeit, dass zwei QPe bei ähnlicher Wellenlänge emittieren sehr klein ist. Das quasi-resonante Anregungsschema verhindert zudem durch die direkte Bildung eines Exzitons im QP einen Wiederauffüllungseffekt (siehe Abschnitt 4.4).

### 5.3 Zwei-Photonen Interferenz

In diesem Abschnitt sollen nun die Interferenzeigenschaften des QP-Mikrotürmchen-Systems durch die Interferenz konsekutiv emittierter Photonen an einem 50/50-Strahlteiler untersucht werden. Dazu wird die spektral selektierte QP-Emission in das in Abschnitt 3.4 vorgestellte faserbasierte MZI geleitet. An dessen Ausgang wird mittels zweier APDs die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung gemessen. Nimmt das zuerst emittierte Photon den Weg über den langen Arm des Interferometers und das anschließend emittierte Lichtquant entsprechend den Weg über den kurzen Arm, kann es am zweiten 50/50-Strahlteiler zur Interferenz kommen. Sind die beiden Photonen ununterscheidbar resultiert dies in einem *antibunching*





**Abbildung 5.7:** (a) Histogramm der ZPI für einen Unterschied der Ankunftszeit der beiden Photonen von  $\tau_{MZI} \approx 0$ . Die Unterdrückung des zentralen Peaks ist der Nachweis der Ununterscheidbarkeit der QP-Photonen. (b) Wiederholt man diese Messung für einen variierenden Zeitversatz der beiden Photonen ergibt sich der HOM-Dip. Die Anpassung der Daten liefert eine Sichtbarkeit der ZPI von  $\nu = (83 \pm 5) \%$ .

im gemessenen Koinzidenzhistogramm, mit einem  $g^{(2)}(0)_{HOM}$ -Wert der unter 0,5 liegt (siehe Abschnitt 2.4.2.2).

Abbildung 5.7(a) zeigt das aufgezeichnete Histogramm des untersuchten QPes bei quasi-resonanter Anregung, für spektrale Resonanz zwischen QP und Fundamentalmode und für gleichzeitiges Eintreffen hintereinander emittierter Photonen am zweiten Strahlteiler des MZI. Der Effekt der ZPI ist deutlich am reduzierten Peak um  $\tau \approx 0$  erkennbar. Die verbleibenden Koinzidenzen deuten auf eine nicht perfekte Interferenz der Photonen hin, ausgelöst durch eine Dephasierung des QP-Exzitons nach der erneuten Anregung durch den zweiten Laserpuls. Weiterhin fällt auf, dass die beiden Peaks bei  $\pm 12,2$  ns nicht die volle Höhe der benachbarten Koinzidenzsammlungen erreichen. Insgesamt gibt drei Möglichkeiten, wie Photonen das MZI durchlaufen können, um eine Koinzidenz bei  $\pm 12,2$  ns zu generieren. Alle weiteren Peaks können aus insgesamt vier Möglichkeiten gebildet werden. Dies führt dazu, dass die beiden Peaks bei  $\pm 12,2$  ns in ihrer Fläche nur 75 % der benachbarten Peaks entsprechen. Da auch in dieser Autokorrelationsmessung ein *blinking* Effekt zu sehen ist, wird der  $g^{(2)}(0)$ -Wert nur aus dem Verhältnis des zentralen Peaks zu dem Durchschnitt der beiden Erhöhungen bei  $\pm 24,4$  ns gebildet. Für die hier

gezeigte Messung ergibt sich somit  $g^{(2)}(0) = \frac{A_{0 \text{ ns}}}{\frac{1}{2}(A_{-24,4 \text{ ns}} + A_{24,4 \text{ ns}})} = 0,17 \pm 0,02$ . Dies unterschreitet deutlich die Grenze für unterscheidbare Photonen von  $g_{\perp}^{(2)}(0) = 0.5$  und ist somit der Nachweis, dass signifikante Quanteninterferenz stattgefunden hat.

Um den Grad der ZPI auszumessen wird anschließend schrittweise die variable, fasergekoppelte Verzögerungsstrecke verändert und das Koinzidenzhistogramm aufgenommen. Abbildung 5.7(b) zeigt die aus diesen Messungen hervorgehenden  $g_{HOM}^{(2)}(0)$ -Werte (blaue Quadrate) aufgetragen, gegen die eingestellte Zeitdifferenz der beiden Photonen  $\tau_{MZI}$ . Dieser Kurvenverlauf ist auch als HOM-Dip bekannt. Da der zuvor bestimmte Reinheit der Einzelphotonenemission leicht von  $g^{(2)}(0)_{HBT} = 0$  abweicht, beeinflusst dieser ebenfalls die hier gemessene ZPI. Deshalb werden die gemessenen Datenpunkte nach Gleichung 2.49 entsprechend um  $\frac{1}{2}g_{HBT}^{(2)}(0)$  (siehe Abschnitt 5.2.2) bereinigt. Die korrigierten Daten sind in Abbildung 5.7(b) als rote Kreise dargestellt. Um die Visibilität der ZPI aus der Messung zu extrahieren, werden die korrigierten Daten mit Gleichung 2.54 angepasst, wobei für die Lebensdauer des QP-Exzitons der gemessene Wert von  $T_1 = (67 \pm 8)$  ps (siehe Abschnitt 5.2.1) verwendet wird. Für die ZPI ergibt sich damit eine maximale Visibilität von  $\nu = (83 \pm 5)$  %. Im Vergleich zur Literatur ist dieser Wert in Einklang mit anderen Experimenten die unter quasi-resonanter Anregung stattgefunden haben [San02, Var05, Gaz13, Gol14, Gsc15]. In keiner der bisherigen Arbeiten konnte jedoch aus den Messungen die Ursache der nicht vollständigen Ununterscheidbarkeit explizit ermittelt werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher der Versuch unternommen, durch eine Zusammenarbeit aus experimenteller und theoretischer Ansätze die Limitierungen des QP-Mikrotürmchen-Systems herauszufinden. Diese Ergebnisse werden im folgendem Abschnitt vorgestellt.

## 5.4 Mikroskopische Modellierung der Zwei-Photonen Interferenz

In diesem Abschnitt sollen mittels verstimmungsabhängiger Messungen die verschiedenen Einflüsse die zur Reduktion der Kohärenz des QP-Mikrokavität-Systems beitragen ermittelt werden. Dazu wurde in Zusammenarbeit mit Dr. Dara McCutcheon, Prof. Dr. Niels Gregersen und Prof. Dr. Jesper Mørk der DTU<sup>3</sup> in Lyngby, Kopenhagen ein theoretisches Modell entwickelt, das die ZPI eines QPes der an eine Mikrokavität gekoppelt ist, grundlegend beschreibt. Wie in den Abschnitten 2.3.2 und 2.4.2.3 bereits vorgestellt, handelt es sich hierbei um ein mikroskopisches Modell des Systems, das sowohl einen zeitlichen Jitter durch die quasi-resonante Anregung, die Kopplung von QP und Fundamentalmode, reine Dephasierung des Systems als auch die zeitliche Differenz der interferierenden Photonen am zweiten Strahlteiler beinhaltet. Reine Dephasierung kann man im Allgemeinen als quantenmechanische Ankopplung der QP-Zustände an andere Freiheitsgrade des Systems – welche auch als Bad-Moden<sup>4</sup> bezeichnet werden – auffassen. Diese zusätzlichen Freiheitsgrade können beispielsweise LA Phononen oder auch eine Störstelle sein. Quantenmechanisch werden diese Effekte durch eine Störungsrechnung des Systems behandelt, wodurch Effekte reiner Dephasierung als Zerfall der Nicht-Diagonalelemente der Zustandsdichtematrix des Systems auftreten [Hsu87]. Diese reinen Dephasierungsprozesse können auf Zeitskalen ablaufen, die deutlich kürzer sind als die Lebensdauer des angeregten QP-Zustandes und dadurch die Ununterscheidbarkeit der emittierten Photonen negativ beeinflussen [Kae13b]. Falls die Quelle der reinen Dephasierung die Kopplung an LA Phononen ist, lässt sich erwarten, dass diese eine ausgeprägte Temperaturabhängigkeit zeigt [Kae13a, Kae13b].

Ein weiterer möglicher negativer Einfluss auf die Quanteninterferenz ergibt sich durch ein spektrales Wandern der QP-Emission. Dadurch stimmt die Wellenlänge der beiden interferierenden Photonen nicht mehr exakt überein und der Grad der Ununterscheidbarkeit sinkt. Dieser spektrale Jitter wird beispielsweise durch

---

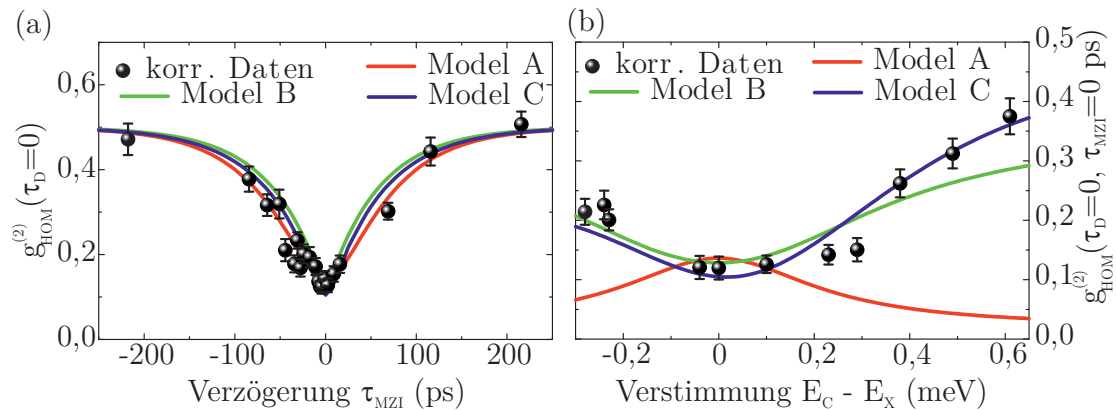
<sup>3</sup>Danmarks Tekniske Universitet

<sup>4</sup>im Englischen *bath modes*

Ladungsträger- oder Spinrauschen hervorgerufen und kann sich auf Zeitskalen von Sekunden bis deutlich unter  $1 \mu\text{s}$  abspielen [Hou12, Kuh13].

Um die einzelnen Einflüsse durch Modellierung der Daten möglichst genau quantifizieren zu können, ist es daher nötig den Versuch zur ZPI des Systems unter Variation möglichst vieler Parameter durchzuführen. Deshalb wird in diesem Abschnitt nicht nur die Veränderung der ZPI unter Varianz der Ankunftszeiten der Photonen am Strahlteiler gemessen, sondern es wird auch die Kopplungsstärke des QP-Mikrotürmchen-Systems durch Änderung der Temperatur variiert. Die Änderung der Temperatur bewirkt gleichzeitig eine mögliche Änderung der reinen Dephasierungsrate des QPes, falls diese durch die Kopplung an ein Phononenbad hervorgerufen wird.

Abbildung 5.8(a) zeigt erneut den bereits im letzten Abschnitt präsentierten HOM-Dip. Nun wurde für diese Versuchsreihe die variable Faserverzögerung auf  $\tau_{MZI} = 0$  ps eingestellt. Anschließend wurden die Messung der Autokorrelation für das Minimum des HOM-Dip bei verschiedenen Temperaturen wiederholt. Abbildung 5.8(b) zeigt die temperatur- bzw. verstimmungsabhängigen  $g^{(2)}(0)$ -Werte die aus dieser Messreihe resultieren. Die Auswertung der Koinzidenzhistogramme wurde analog zu Abschnitt 5.3 durchgeführt. Für die Korrektur einer nicht perfekten Einzelphotonenemission wurden die in Abschnitt 5.2 präsentierten  $g_{HBT}^{(2)}(0)$ -Werte verwendet. Wie man anhand der verstimmungsabhängigen Daten sehen kann, verschlechtern sich die Interferenzeigenschaften der emittierten Photonen sobald QP und Fundamentalmode nicht mehr zueinander resonant sind. Dies demonstriert deutlich, dass die Interferenzeigenschaften des Systems von der schwachen Licht-Materie-Wechselwirkung profitieren und diese genutzt werden kann, um die Ununterscheidbarkeit der QP-Emission zu steigern. Im Vergleich zu den Werten bei großer Verstimmung ( $g^{(2)}(\Delta = 0,61 \text{ meV}) = 0,38 \pm 0,03$ ), verbessert der Purcell Effekt die ZPI für spektrale Resonanz ( $g^{(2)}(\Delta = 0,0 \text{ meV}) = 0,12 \pm 0,01$ ) um mehr als einen Faktor drei. Ein ähnlicher Effekt konnte bereits von Varoutsis *et al.* gezeigt werden. Dort konnte gezeigt werden, dass bei hohen Temperaturen ein gewisses Maß an Ununterscheidbarkeit wiederhergestellt wird durch den Purcell-Effekt [Var05]. Im Gegensatz zu den hier gezeigten Messungen wurde jedoch die größte Ununterscheidbarkeit



**Abbildung 5.8:** (a) HOM-Dip, wie er bereits in Abbildung 5.7 gezeigt wurde. (b) Die Autokorrelationsmessung der ZPI wurde am Minimum des HOM-Dip für variierende Verstimmung zwischen QP und Fundamentalmode wiederholt. Modell A nimmt an, dass ausschließlich ein zeitlicher Jitter durch den Pumpzustand für die unvollständige ZPI verantwortlich ist. Modell B passt die Daten unter der Annahme einer konstanten Dephasierungsrate an. Die Fitergebnisse zeigen, dass es kaum zeitlichen Jitter auf dem Emissionsprozess gibt. Bei Modell C setzt sich die Dephasierungsrate aus einem konstanten Anteil und einem temperaturabhängigen Teil der durch die Kopplung an Phononen verursacht wird zusammen.

nicht bei spektraler Resonanz erreicht und das gekoppelte System wurde generell durch die Temperatur-induzierten Dephasierungsprozesse dominiert.

Um die verschiedenen Einflüsse im System auf die ZPI herauszufinden, wurde an beiden Kurven – unter Berücksichtigung der Ergebnisse der Grundcharakterisierung aus Abschnitt 5.2 – eine Modellierung der Daten unter Verwendung von Gleichung 2.53 durchgeführt. Insgesamt wurde das Modell an die Daten mit drei unterschiedlichen Parametersätzen angepasst, die auf unterschiedlichen Grundannahmen für die unvollständige ZPI basieren. Für Modell A, welches der roten Kurve in Abbildung 5.8 entspricht, wurden die verstimmungsabhängigen Daten zunächst nicht berücksichtigt und nur Abbildung 5.8(a) unter der Annahme, dass nur ein zeitlicher Jitter  $T_\alpha$  für die Limitierung verantwortlich ist angepasst. Die einzelnen Fitparameter sind in Tabelle 5.1 dargestellt. Das Modell reproduziert den HOM-Dip (Abbildung 5.8(a)) sehr gut, der Verlauf bei den verstimmungsabhängigen Daten ist jedoch genau gegensätzlich zu dem gemessenen Trend. Der Grund hierfür

Fitparameter	Modell A	Modell B	Modell C
$T_\alpha = 1/\alpha$ (ps)	21,5	3,2	3,2
$\gamma$ ( $\mu\text{eV}$ )	0	1,6	1
$\eta$ ( $\text{meV}^{-2}$ )	-	-	0,032
$\omega_C$ (meV)	-	-	1,3

**Tabelle 5.1:** Fitparameter zur Anpassung der in Abbildung 5.8(a) und 5.8(b) gezeigten Daten.

ist, das bei einer längeren Zerfallszeit des QPes eine zeitliche Unsicherheit auf dem Emissionsprozess immer weniger Auswirkungen hat, je größer  $T_1$  wird (vgl. Abschnitt 2.4.2.3). Da die Kohärenz des Systems jedoch eindeutig von dem Purcell-Effekt profitiert, lässt sich daraus schließen, dass ein zeitlicher Jitter nicht für die Limitierung des Systems verantwortlich ist. Für Modell B werden somit beide Kurven simultan durch Gleichung 2.53 angepasst, wobei die Dephasierungsrate über alle Temperaturen hinweg konstant gehalten wird. Mit diesen Parametern werden beide Kurven gut modelliert. Nur für hohe Temperaturen, d. h. eine hohe Verstimmung, weichen die gemessenen Datenpunkte in Abbildung 5.8(b) etwas von der Fitkurve ab. Daraus lässt sich folgern, dass die Dephasierung in dem System nicht ausschließlich durch einen temperaturunabhängigen Prozess stattfindet. Beispiele für solch einen – zumindest über den untersuchten Temperaturbereich – stabilen Prozess wäre die Wechselwirkung des gekoppelten Systems mit Oberflächenzuständen an den Seitenwänden des Mikrotürmchens. Weiterhin kommen geladene Störstellen in der Nähe des QPes für eine solche Dephasierung in Frage.

Um die Temperaturabhängigkeit beim Fit berücksichtigen zu können, wurde das Modell zusätzlich um die Exziton-Phonon-Wechselwirkung erweitert. Eine genaue mathematische Beschreibung findet sich im Anhang A.4. Zusammenfassend wird die Ankopplung an das Phononenbad durch die spektrale Dichte  $J(\omega) = \eta\omega^3 \exp[-(\omega/\omega_c)^2]$  des Phononenbades ( $\eta$ : Exziton-Phonon-Kopplung;  $\omega_c$ : Abschneidefrequenz), welches im Rahmen des Dirac-Bildes als Störterm auf das QP-Mikrokavität-System einwirkt, beschrieben. Der aus diesem Modell erhaltene Fit (blaue Kurve) bildet beide Kurven in Abbildung 5.8 sehr gut nach. Es ergibt sich aus dem Fit eine leichter zeitlicher Jitter durch den Pumpzustand von  $T_\alpha = 3,2$

ps, sowie eine Dephasierung, die für spektrale Resonanz zwischen QP und Fundamentalmode zu ca. 40 % aus Phononenbeiträgen und zu 60 % aus einer konstanten Dephasierung von  $\gamma = 1 \mu\text{eV}$  besteht. Der sehr kurze zeitliche Jitter lässt sich auf das quasi-resonante Anregungsschema zurückführen. Die Energiedifferenz zwischen dem anregenden Laser und der QP-Emission von 32 meV deutet daraufhin, dass die Anregung des QPes unter Erzeugung eines LO Phonons vonstatten geht, welches auf dieser Zeitskala relaxiert [Gra07].

Mit Hilfe der aus diesem Modell gewonnenen Kenntnisse, kann man nun versuchen das QP-Mikrotürmchen-System und den experimentellen Aufbau so zu verändern, dass man die Visibilität der ZPI auf Werte nahe an 100 % bringt. So würde eine strikt resonante Anregung sowohl die zeitliche Ungenauigkeit auf dem Emissionsprozess eliminieren, als auch andere negative Einflüsse auf die ZPI wie das spektrale Wandern infolge von Ladungsträgerfluktuationen minimieren. Dephasierungsprozesse, die aus der Ankopplung an Oberflächenzustände des Mikrotürmchens entstehen, können durch die Verwendung größerer Mikrokavitäten eventuell minimiert werden, da der räumliche Abstand und somit die Kopplung des QPes an diese Zustände kleiner wird. Deshalb wird im nächsten Kapitel zunächst die strikt resonante Anregung eines QPes in einer planaren Mikrokavität etabliert.

## Zusammenfassung des Kapitels

In diesem Teil der Arbeit wurde zum ersten Mal die Erzeugung ununterscheidbarer Photonen aus QPen in Mikrotürmchen mit adiabatischer Modenanpassung demonstriert. Die emittierten Photonen wiesen dabei einen sehr reinen Einzelphotonencharakter von  $g^{(2)}(0) = 0,058 \pm 0,006$  auf. Der Überlapp der Zwei-Photonen-Wellenfunktion konnte durch Interferenzmessungen in einem MZI zu  $\nu = (83 \pm 5) \%$  bestimmt werden. Um die verschiedenen Prozesse, die die ZPI beeinflussen genauer zu untersuchen, wurden verstimmungsabhängige Interferenzexperimente durchgeführt. Durch ein neuartiges Modell konnte gezeigt werden, dass die vorherrschende Limitierung in diesem System nicht durch eine zeitliche Unsicherheit beim Emissionsprozess entsteht, sondern vielmehr Dephasierung des QPes dafür verantwortlich ist. Diese Dephasierungsrate setzt sich für spektrale Resonanz zwischen QP und Fundamentalmode zu 40 % aus phononeninduzierter Dephasierung und zu 60 % aus einer konstanten, temperaturunabhängigen Rate zusammen.

Die Resultate dieses Kapitels wurden in „S. Unsleber *et al.*, Physical Review B **91**, 075413 (2015)“ publiziert.



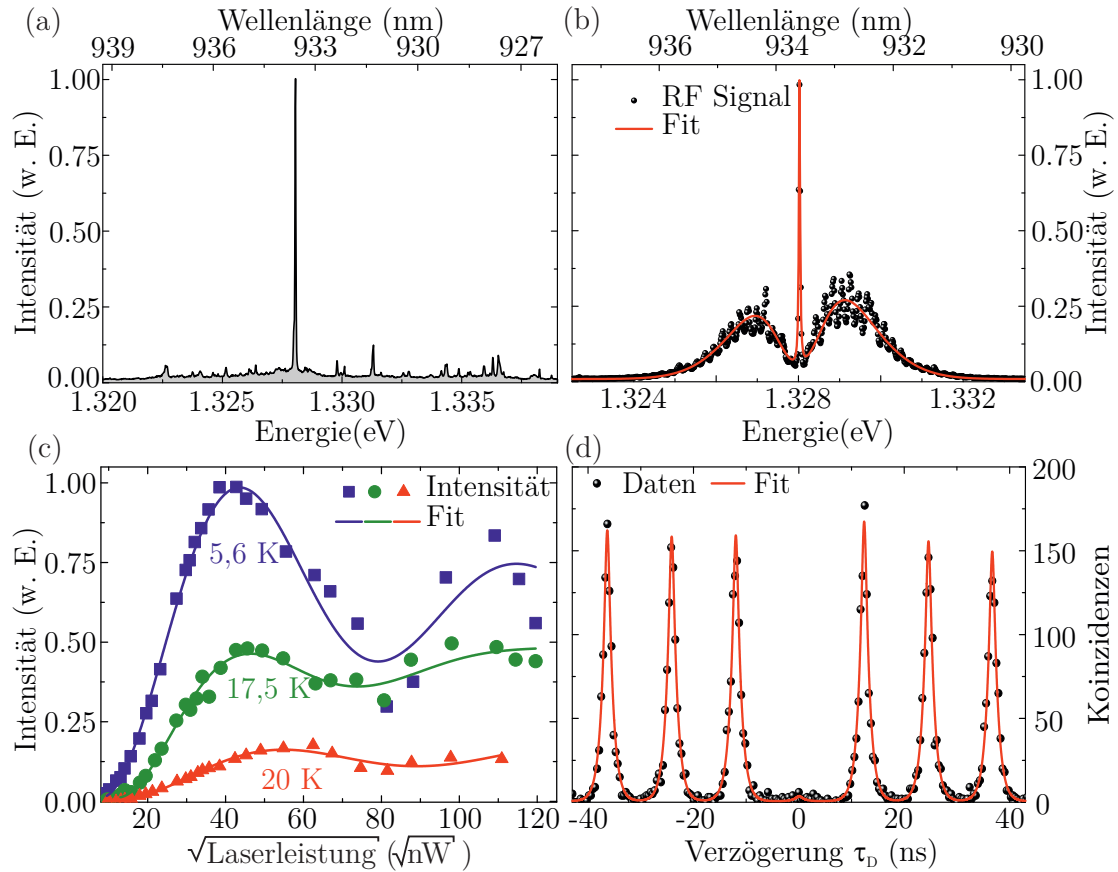
## 6 Resonanzfluoreszenz zur Erzeugung kohärenter Photonen

Wie die theoretische Modellierung der experimentell gewonnenen ZPI-Daten im vorangegangenen Abschnitt gezeigt hat ist die Etablierung eines strikt resonanten Anregungsschemas eine Schlüsselkomponente im Hinblick auf die Erzeugung Fourier-limitierter Photonen, da störende Dephasierungsprozesse durch Störstellen oder Ladungsträgerrauschen minimiert werden. Erst durch diese Technik konnten erstmals in gepulst betriebenen Experimenten ZPI Visibilitäten von nahezu 100 % realisiert werden [He13b, Wei14b]. Da eine energetische Separation von Laser und QP-Signal nicht mehr möglich ist, wurde stattdessen eine Filterung durch zueinander orthogonal orientierten Polarisierungen der beiden Lichtfelder mittels der in Abschnitt 3.1 vorgestellten Kreuzpolarisationskonfiguration etabliert. Zudem wurde statt der Mikrotürmchenprobe zunächst eine planare Struktur zur Untersuchung der strikt resonanten Anregung verwendet, da hier eine hinreichend große Unterdrückung des rückgestreuten Lichts durch die unstrukturierte Oberfläche leichter möglich ist. Um eine möglichst breitbandige Erhöhung ( $Q \approx 200$ ) der Auskoppelleffizienz zu erzielen, wurde der unstrukturierte Wafer M3569 verwendet. Dieser besteht aus 24 unteren und 5 oberen Spiegelpaaren (Schichtstruktur siehe Anhang A.7), welche eine  $\lambda$ -dicke Kavität einschließen. Als aktives Material wird wiederum eine Schicht PCA -InAs QPe verwendet.

## 6.1 Spektrale Eigenschaften des untersuchten Quantenpunktes unter resonanter Anregung

Abbildung 6.1(a) zeigt das Spektrum dieser planaren Probe, aufgenommen unter nichtresonanter Anregung mit dem grünen Laser bei einer Temperatur von  $T = 5$  K. Die einzelne, helle und spektral auflösungslimitierte QP-Linie, welche das Spektrum dominiert, ist der Ausgangspunkt für die weiteren Untersuchungen die unter strikt resonanter Anregung durchgeführt wurden. Dazu wird der gepulste Ti:Saphir Laser auf die Energie des QP-Übergangs abgestimmt. Durch eine sehr feine Justierung der beiden Linearpolarisatoren wird dann die Unterdrückung des Lasers maximiert. Das Resultat ist das in Abbildung 6.1(b) gezeigte Spektrum. Zu sehen ist der breitbandige Hintergrund des gepulsten Lasers. Die Auslöschung des Lasers ist schmalbandiger als die Linienbreite des Lasers, was zu dem beobachtbaren „Auslöschungstal“ führt. Dieses spektrale Fenster in dem der Laser unterdrückt wird verändert sein energetische Position mit der Einstellung des zweiten Linearpolarisators. Daraus lässt sich schließen, dass es im experimentellen Aufbau Komponenten gibt, die die Polarisation des Lasers in Abhängigkeit der Laserwellenlänge drehen. Weiterhin zeigte sich, dass die Orientierung des ersten Linearpolarisators die maximale Unterdrückung des Aufbaus bestimmt. Daraus folgt, dass die Polarisation des Lasers durch den experimentellen Aufbau elliptische Komponenten erhält, die am zweiten Linearpolarisator dann nicht mehr herausgefiltert werden können.

Zentral in dem Fenster maximaler Unterdrückung ist die helle QP-Linie sichtbar. Die Datenanpassung entspricht einer Summe aus zwei Gauß-Funktionen – einer mit positiver Amplitude für den Laser und einer mit negativer für die Laserunterdrückung des Aufbaus – sowie einer Lorentz-Funktion für die QP-Emission. Die Gauß-Form der Laserunterdrückung ergibt sich rein phänomenologisch. Aus der Anpassung erhält man eine spektrale Breite der Laserauslöschung von  $\Delta w = (562 \pm 10) \mu\text{eV}$ . Die Breite dieses Fensters variiert dabei je nach verwendeter Struktur. Dieses Fenster ist für prozessierte Proben signifikant kleiner, da das rückgestreute Licht scheinbar durch die strukturierte Oberfläche elliptische Polarisationskomponenten



**Abbildung 6.1:** (a) Spektrum des untersuchten QPes in einer planaren Mikrokavität, aufgenommen bei nichtresonanter Anregung. (b) Spektrum desselben QPes bei gepulster strikt resonanter Anregung. Die einzelne helle QP-Linie ist überlagert vom gaußförmigen Spektralprofil des Lasers. Durch die Kreuzpolarisation wird der Laser in einem spektralen Fenster der Breite  $\Delta w = (562 \pm 10) \mu\text{eV}$  sehr stark unterdrückt. (c) Integrierte Intensität der QP-Linie in Abhängigkeit der Laserfeldstärke für verschiedene Temperaturen. (d) Autokorrelation zweiter Ordnung des untersuchten QPes, welcher strikt resonant mit einem  $\pi$ -Puls angeregt wurde.

erhält. Ebenso war nicht bei allen untersuchten QPen ein so deutliches Hintergrundsignal abseits vom eigentlichen QP-Signal beobachtbar. Der Grund hierfür liegt höchstwahrscheinlich in der Beschaffenheit der Probenoberfläche und der damit einhergehenden unterschiedlichen Rückstreuung des Lasers. Im Allgemeinen lässt sich jedoch mit dem verwendeten experimentellen Aufbau an der spektralen Position des QPes eine ausreichend große Auslöschung realisieren um beispielsweise Einzelphotonenemission nachzuweisen. So werden von ca. 100  $\mu\text{W}$  Laserleistung vor dem zweiten Linearpolarisator noch ca. 1 nW nach diesem gemessen. Dies ergibt eine Unterdrückung von etwa  $10^5$ . Wie das Resonanzfluoreszenzspektrum in Abbildung 6.1(b) zeigt, ist die Unterdrückung an der Position der QP-Emissionslinie noch einmal höher. Vergleicht man die Amplituden des gaußförmigen Laserhintergrundes mit der (negativen) Laserauslöschung, ergibt sich eine um einen Faktor 10 höhere Unterdrückung im Zentrum der Laserunterdrückung. Insgesamt ergibt sich somit eine maximale Unterdrückung des Lasers an der spektralen Position des QPes von  $10^6$ .

Im nächsten Schritt wurden Spektren wie in Abbildung 6.1(b) für verschiedene Leistungen des Lasers aufgezeichnet. Jedes Spektrum wurde wiederum mit einer Summe aus zwei Gauß- und einer Lorentzfunktion für den QP angepasst. Die daraus extrahierte integrierte Intensität der QP-Emission in Abhängigkeit der Wurzel der eingestrahlten Laserleistung ist in Abbildung 6.1(c) dargestellt. Es ergeben sich die für ein gepulst resonant angeregtes Zwei-Niveau-System charakteristischen Rabi-Oszillationen. Die Daten wurden mit Gleichung 2.22 angepasst, welche einen Dämpfungsterm in Folge der Kopplung an LA Phononen enthält. Erhöht man die Proben temperatur lassen sich drei Effekte an den Rabi-Oszillationen beobachten. Zum einen sinkt die maximale Intensität bei Anregung mit einem  $\pi$ -Puls mit zunehmender Temperatur. Da der QP ebenfalls unter nichtresonanter Anregung eine starken Einbruch in der maximalen Helligkeit gezeigt hat lässt sich daraus folgern, dass dieser Effekt hauptsächlich durch thermische Entleerung hervorgerufen wird und keine Konsequenz aus der zunehmenden Phononwechselwirkung ist. Weiterhin lässt sich eine Verschiebung der  $\pi$ -Puls Leistung hin zu höheren Werten beobachten. Dies lässt sich auf eine Renormalisierung der Rabi-Frequenz durch die zunehmende LA Phonondichte erklären. Dadurch wird die Kopplung des QPes an das resonante

Laserfeld kleiner wodurch eine höhere Laserleistung für eine Inversion des QPes benötigt wird [Wei14a]. Zusätzlich kann man eine zunehmende Dämpfung der Oszillationen beobachten, welche ebenfalls aus der zunehmenden Besetzung des Phononenbades resultiert [Ram10b]. Um die Daten für 17,5 K und 20 K hinreichend gut mit der Fitfunktion reproduzieren zu können, wurde bei diesen beiden Kurven ein zusätzlicher Term der Form  $m \cdot \sqrt{P_{\text{Laser}}}$  zu Gleichung 2.22 addiert. Dieser lässt sich höchstwahrscheinlich auf das schlechter werdende Signal-Rausch-Verhältnis und dem damit zunehmenden Laserhintergrund zurückführen [Pre08]. Durch die abnehmende maximale Intensität der QP-Emission nimmt auch das Signal-Rausch-Verhältnis ab. Zudem wurde die Laserunterdrückung mit zunehmender Temperatur und damit größer werdender Wellenlänge der Emission schlechter. Dies liegt vermutlich an der Wellenlängenabhängigkeit der Unterdrückung, die zuvor bereits erläutert wurde. Es scheint, dass die QP-Emission bei  $T = 20$  K bei einer weniger gut zu unterdrückenden Wellenlänge liegt. Beide Effekte lassen sich am Besten durch den zusätzlichen Term  $m \cdot \sqrt{P_{\text{Laser}}}$  zu Gleichung 2.22 kompensieren.

Um den Einzelphotonencharakter der QP-Emission bei resonanter Anregung zu untersuchen, wurde das spektral gefilterte Signal in die faserbasierte HBT-Anordnung gekoppelt und die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung unter Anregung des QPes mit einem  $\pi$ -Puls gemessen. Das Koinzidenzhistogramm ist in Abbildung 6.1(d) dargestellt. Das Fehlen des Peaks um  $\tau \approx 0$  ist der klare Nachweis der nichtklassischen Lichtemission. Um die Reinheit der Emission zu quantifizieren, wurden alle Peaks mit einer Funktion der Form

$$f(\tau) \propto (A_n * e^{-\frac{|\tau|}{T_1}}) * (e^{-\frac{1}{2}(\frac{\tau}{\sigma})^2}) \quad (6.1)$$

angepasst. Diese Funktion stellt einen zweiseitigen exponentiellen Zerfall mit der Lebensdauer des QPes  $T_1$  als Zerfallskonstante dar, der mit einem Gauß-Profil gefaltet wurde (siehe Anhang A.5). Die Gauß-Verteilung ist dabei die Antwortfunktion des Versuchsaufbaus mit der Zeitauflösung  $t_{\text{Auf.}} = \frac{\sigma}{2\sqrt{2\ln(2)}} \approx 520$  ps. Der gemessene  $g^{(2)}(0)$ -Wert ergibt sich aus der Fläche der Fitfunktionen, indem die Fläche unter dem zentralen Peak durch die durchschnittliche Fläche der insgesamt sechs umgebenen Peaks geteilt wird zu  $g^{(2)}(0) = 0,0194 \pm 0,0007$ . Dies verdeutlicht

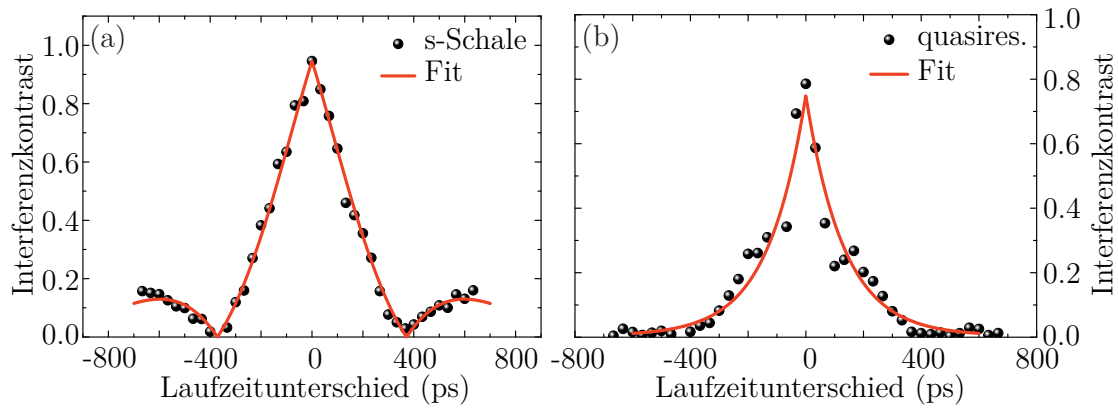
die sehr reine Emission und die erfolgreiche Unterdrückung des resonanten Lasers vom eigentlichen QP-Signal.

Im nächsten Schritt wurde die Korrelationsfunktion erster Ordnung gemessen um daraus die Kohärenzzeit der emittierten Photonen zu bestimmen. Die Messung erfolgte mit dem in Abschnitt 3.4 vorgestellten Freistrahl-MZI. Analog zu den Kohärenzzeitmessungen aus Abschnitt 5.2.1 wurde auch hier der Interferenzkontrast der Emission für verschiedene Laufzeitunterschiede der beiden Arme des MZI bestimmt. Abbildung 6.2(a) zeigt den Interferenzkontrast der QP-Emission aufgetragen über dem Laufzeitunterschied des MZI für die strikt resonante Anregung des QPes mit einem  $\pi$ -Puls. Im Vergleich zu der in Abschnitt 5.2.1 gezeigten Messung fällt der sog. *beating*<sup>1</sup> Effekt auf. Der Kontrast zeigt bei etwa  $\tau \approx \pm 400$  ps einen Einbruch und erholt sich danach wieder. Dieser Effekt lässt sich auf eine FSA des QPes zurückführen. Dadurch besteht die im Spektrum beobachtete Emissionslinie nicht aus einer einzelnen Spektrallinie, sondern aus zwei eng beieinanderliegenden. Der energetische Abstand dieser beiden Linien ist geringer als das Auflösungsvermögen des Monochromators, wodurch die beiden Linien im Spektrum als eine erscheinen. Lässt man die QP-Emission nun mit sich selbst interferieren kommt es zu einem Art Schwebung durch die beiden unterschiedlichen Komponenten der Emission. Die Korrelationsfunktion erster Ordnung wird daher ausgehend von Gleichung 2.36 mit der Fourier-transformierten aus der Summe zweier Lorentzfunktionen angepasst. Die Linienbreite der beiden Funktionen wurde als identisch angenommen. Aus der Anpassung ergibt sich eine Kohärenzzeit von  $T_{2,resonant} = (670 \pm 52)$  ps.

Um vergleichen zu können, ob das strikt resonante Anregungsschema einen positiven Einfluss auf die Kohärenz der QP Emission hat, wurde die Messung unter quasi-resonanter Anregung wiederholt. Dabei war der Laser um 34 meV blauverschoben zu der QP Linie, was einer Anregung in die p-Schale oder der Anregung über ein LO Phonon entspricht. Die Leistung des Lasers wurde so eingestellt, dass die Emission zu etwa 70 % gesättigt war. Der Interferenzkontrast in Abhängigkeit des Laufzeitunterschiedes ist in Abbildung 6.2(b) dargestellt. Im Vergleich zur Messung

---

<sup>1</sup>zu deutsch „schlagend“

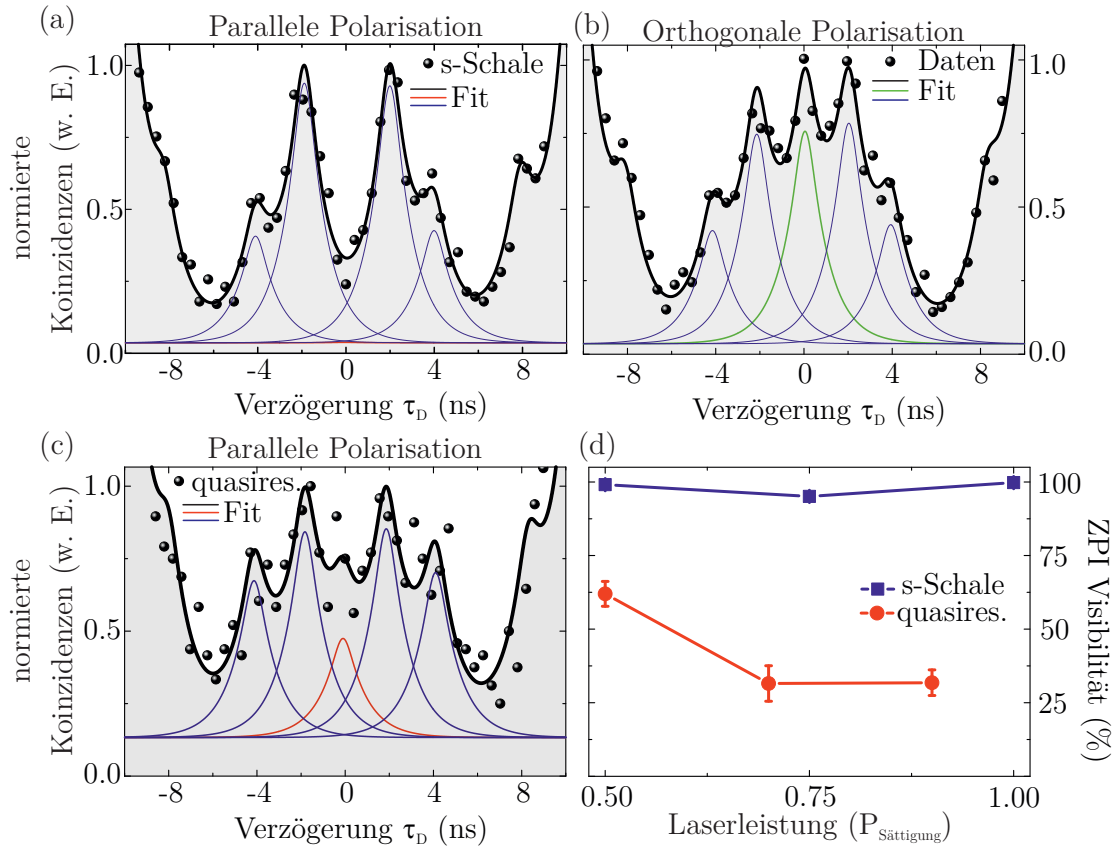


**Abbildung 6.2:** Korrelationsfunktion erster Ordnung für (a) strikt resonante und für (b) quasi-resonante Anregung.

unter strikt resonanter Anregung zeigt sich das deutlich schnellere abklingen der Interferenz, sodass beispielsweise der *beating* Effekt hier kaum sichtbar ist. Aus der Anpassung der Daten mit derselben Funktion wie für Abbildung 6.2(a) ergibt sich eine Kohärenzzeit von  $T_{2,quasi-resonant} = (264 \pm 54) ps$ . Dies ist deutlich kürzer als der Wert für strikt resonante Anregung und lässt sich auf eine größere spektrale Diffusion der QP Emission durch die größere Energie des Lasers zurückführen.

## 6.2 Zwei-Photonen-Interferenz bei strikt und quasi-resonanter Anregung

Um eine größere Flexibilität hinsichtlich des zeitlichen Abstandes der erzeugten Photonen zu erhalten, wurden im nächsten Schritt die beiden in Abschnitt 3.3 und Abschnitt 3.4 erläuterten Freistrah-MZI zur Verdopplung der Laserpulse und zur Messung des HOM-Effektes benutzt. Damit können Photonenpaare in einem beliebigen Zeitabstand bis unter 1 ns erzeugt werden. Die Weglängenunterschiede beider MZI sind dabei identisch, sodass der eingestellte zeitliche Abstand in der Generation der QP-Photonen bei der anschließenden Interferenz im zweiten MZI exakt kompensiert wird. Abbildung 6.3(a) zeigt das gemessene Koinzidenzhistogramm für einen zeitlichen Abstand der beiden Photonen von  $\tau \approx 2 ns$  mit  $\pi$ -Puls Anregung



**Abbildung 6.3:** (a) ZPI aufgenommen unter strikt resonanter Anregung mit einem  $\pi$ -Puls und paralleler Polarisation der beiden Photonen, welche in einem zeitlichen Abstand von 2 ns generiert wurden. Aus dem Vergleich mit der Referenzmessung, bei der die beiden Photonen orthogonal zueinander orientierte Polarisationen haben (in (b)) ergibt sich die Sichtbarkeit der ZPI zu  $\nu = (98,8 \pm 0,2) \%$ . (c) ZPI für eine quasi-resonante Anregung des QPes in die p-Schale. Die Sichtbarkeit ist hier mit  $\nu = (62 \pm 4) \%$  deutlich schlechter als für resonante Anregung in die s-Schale. (d) Leistungsabhängige Sichtbarkeit der ZPI.



und bei einer Temperatur von  $T = 5$  K. Durch die verschiedenen Möglichkeiten wie die beiden Lichtteilchen das MZI durchlaufen können werden pro Repetition des Lasers 5 Peaks bei  $\tau_D = \pm 4; \pm 2; 0$  ns erzeugt. Um eine zeitliche Differenz am zweiten Strahlteiler von 2 ns zu erhalten gibt es insgesamt doppelt so viele Möglichkeiten als für einen Zeitunterschied von 4 ns, weshalb die entsprechenden Peaks auch doppelt so hoch im Histogramm sind. Der verschwindende Peak um  $\tau \approx 0$  ist der Nachweis der Quanteninterferenz der beiden Photonen. Um die Fläche des zentralen Peaks extrahieren zu können, wurden jeder Peak der Messungen mit der Funktion in Gleichung 6.1 angepasst. Die Lebensdauer des QP-Exzitons wurde dabei auf  $T_1 = 920$  ps fixiert, was der aus der Anpassung von Abbildung 6.1(d) extrahierten Zerfallskonstante entspricht. Für die Anpassung wurde zudem ein konstanter Achsversatz auf die Anpassungsfunktion addiert, welcher exakt aus der Dunkelzählrate der APDs berechnet wurde und somit dem Signal-Rausch-Verhältnis der Detektoren entspricht. Es zeigt sich, dass der Peak um  $\tau \approx 0$  verschwindend gering ist, da die Amplitude der angepassten Funktion nur ca. 0,2 % der Höhe der benachbarten Peaks entspricht. Dies lässt auf eine sehr hohe Kohärenz der QP-Photonen schließen.

Für die Referenzmessung wurde die Polarisation der Photonen in einem Arm des MZI um  $90^\circ$  gedreht und die Lichtteilchen somit unterscheidbar gemacht. Das Ergebnis ist in Abbildung 6.3(b) dargestellt. Da keine Interferenz mehr stattfinden kann, ist der zentrale Peak auch nicht mehr unterdrückt sondern in guter Näherung genauso hoch, wie die beiden bei  $\pm 2$  ns. Auch diese Messung wurde über Gleichung 6.1 angepasst. Die ZPI Visibilität ergibt sich dann aus den Flächen der beiden Messungen über die Beziehung

$$\nu = \left(1 - \frac{A_{\parallel}}{A_{\perp}}\right) \cdot 100 \%. \quad (6.2)$$

Aus dem Vergleich der beiden Messungen in Abbildung 6.3(a) und Abbildung 6.3(b) ergibt sich  $\nu = (98,8 \pm 0,2) \%$ . Somit sind die erzeugten Photonen dank des strikt resonanten Anregungsschemas nahezu vollständig ununterscheidbar.

Um den Vorteil dieser Anregungstechnik zu verdeutlichen, wurden zudem Ver-

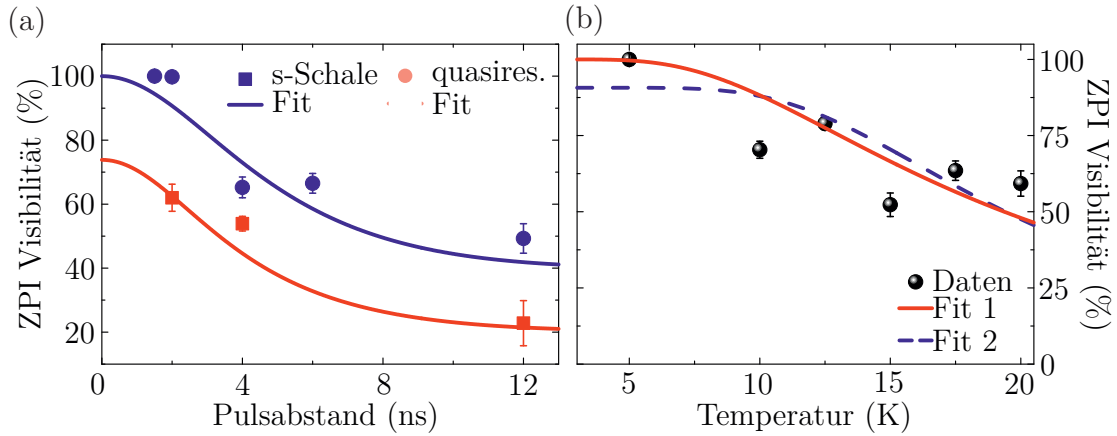
gleichsmessungen mit quasi-resonanter Anregung durchgeführt. Abbildung 6.3(c) zeigt das Koinzidenzhistogramm für parallele Polarisation der Photonen und eine Verstimmung des Lasers um etwa  $\Delta = 34$  meV, welche einer höheren Resonanz des QPes wie der p-Schale oder auch einem LO Phononenreplika entspricht. Für die Messung wurde die Leistung so hoch gewählt, dass die QP-Emission die Hälfte der Sättigungsintensität betrug. Hier ist bei der Messung der ZPI mit paralleler Polarisation der beiden Photonen ein deutlicher Peak um  $\tau \approx 0$  herum sichtbar. Eine Auswertung der Pulsflächen und der Vergleich mit der Messung mit orthogonaler Polarisation liefert eine Sichtbarkeit der ZPI von  $\nu = (62 \pm 4)$  %. Weiterhin sei erwähnt, dass die Messung unter quasi-resonanter Anregung ein höheres Rauschniveau im Histogramm aufweist. Dies liegt am Freistrahlaufbau und der höheren absoluten Laserleistung, welche zur Anregung des QPes benötigt wird. Dadurch ist das Streulicht am Versuchsaufbau größer und das Signal-Rausch-Verhältnis auf den APDs steigt entsprechend an. Die ZPI Visibilität ist zudem deutlich schlechter als der in Abschnitt 5.3 gemessene Wert, welcher ebenfalls mit quasi-resonanter Anregung aufgezeichnet wurde. Dies lässt sich auf die sehr viel größere Lebensdauer des angeregten QP-Zustandes zurückführen. Damit sinkt bei gegebener Dephasierungsrate die mögliche ZPI durch die schlechter werdende Kohärenzzeit (siehe Gleichung 2.52). Der drastische Unterschied zwischen quasi- und strikt resonanter Anregung liegt vermutlich an einer geladenen Störstelle in der Umgebung des QPes. Durch die höhere Energie des Lasers kann diese angeregt werden, wodurch es zu einem energetischen Jitter des QPes kommt.

Ein weiterer Vorteil der strikt resonanten Anregung zeigt sich bei der Untersuchung der Leistungsabhängigkeit der Photonen-Kohärenz. Abbildung 6.3(d) zeigt die gemessene ZPI Visibilität für verschiedene Anregungsleistungen, sowohl für s-Schalen- als auch quasi-resonante Anregung. Es zeigt sich, dass die Interferenzeigenschaften der QP-Emission für die Anregung in die s-Schale äußerst robust gegenüber der Anregungsleistung sind. Dies ist von essentieller Bedeutung für mögliche Anwendungen, da so immer sichergestellt ist, dass die maximale Helligkeit der Probe mit maximaler Kohärenz einhergeht. Im Falle der quasi-resonanten Anregung ist eine deutliche Abnahme mit zunehmender Pumpleistung beobachtbar. Bei 90 % der Sättigungsleistung beträgt die ZPI Visibilität nur noch knapp über 30 %. Die

Interferenzvisibilität von  $\nu = (98,8 \pm 0,2) \%$  unter resonanter Anregung gehört mit zu den besten Werten welche bisher für Halbleiter-QPe berichtet wurden. Vergleichbare Werte wurden bisher von He *et al.* (97,2 %), Wei *et al.* (99,5 %), Somaschi *et al.* (99,6 %) und Ding *et al.* (98,5 %) berichtet. Dies unterstreicht deutlich den Nutzen der strikt resonanten Anregung zur Erzeugung ununterscheidbarer Photonen. Weiterhin verdeutlicht dieses Experiment, dass die Ununterscheidbarkeit durch die resonante Anregung auch für QPe deutlich gesteigert werden kann, welche unter quasiresonanter Anregung mit  $\nu \approx 30 \%$  eher schlechte Interferenzeigenschaften zeigen. Typische Werte in der Literatur für ein quasiresonantes Anregungsschema liegen etwas über 80 % [San02, Gaz13, Gsc15, Gol14], was ein weiteres Mal die Vorteile und Notwendigkeit dieses resonanten Anregungsschemas unterstreicht.

## 6.3 Abhängigkeit der Zwei-Photonen Interferenz von Temperatur und Laserpulsabstand

Im nächsten Schritt soll der Einfluss des Pulsabstands auf die Ununterscheidbarkeit der emittierten Photonen untersucht werden. Dazu wurden am Laserpulsdoppler verschiedene Laufzeitdifferenzen zwischen  $\Delta t = 1,5$  ns und 4 ns realisiert und das Freistrahl MZI zur Messung der ZPI entsprechend justiert. Die Experimente mit einem Pulsabstand von 12,2 ns wurden mit dem fasergekoppelten MZI aus Abschnitt 5.3 durchgeführt. Die Versuche wurden wiederum sowohl für strikt als auch quasi-resonante Anregung durchgeführt. Für die strikt resonant gepumpten Messungen wurde der QP mit einem  $\pi$ -Puls angeregt, die quasi-resonanten Messungen wurden bei 50 % der Sättigungsintensität durchgeführt. In beiden Fällen sinkt die Visibilität für große Pulsseparationen deutlich, die Werte für strikt resonante Anregung sind jedoch durchweg höher. Für sehr kurze Photonenabstände können nahezu vollständig ununterscheidbare Photonen erzeugt werden. Durch die Dephasierung des QPes kommt es bei hinreichend großen Abständen zwischen konsekutiv emittierten Photonen zu der beobachteten Abnahme der Ununterscheidbarkeit. Von Thoma *et al.* wurde bereits ein ähnliches Experiment – jedoch unter quasiresonanter



**Abbildung 6.4:** (a) Sichtbarkeit der ZPI in Abhängigkeit der Separation zwischen den Photonen für quasi- und strikt resonante Anregung. Für beide Anregungsschemata nimmt die Ununterscheidbarkeit der beiden Photonen mit zunehmendem Abstand deutlich ab. (b) ZPI Visibilität in Abhängigkeit der Temperatur für strikt resonante Anregung mit einem  $\pi$ -Puls und einer Photonenseparation von 2 ns. Durch die zunehmende Dephasierung durch Phononen nimmt die Sichtbarkeit mit zunehmender Temperatur ab. Beide Fits wurden unter Verwendung der Gleichungen 6.3 und 6.4 erstellt. Für Fit 2 wurden die temperaturunabhängigen Fitparameter aus (a) verwendet.

Anregung – mit variablen zeitlichen Photonenseparierungen durchgeführt [Tho16]. Um die von Thoma *et al.* gemessenen Ununterscheidbarkeiten modellieren zu können, wurde ein phänomenologisches Modell aufgestellt, welches auch hier zur Anpassung der Daten Anwendung fand. Die grundlegenden Annahmen dieser Theorie beschreiben das System als Zwei-Niveau-System, welches von einem Laser, der als klassisches Lichtfeld beschrieben wird, angeregt wird. Zusätzlich koppelt der QP an ein quantisiertes Lichtfeld mit der Stärke  $g$ , welches hier die optische Mode der planaren Mikrokavität darstellt. Damit wird das System in ähnlicher Art beschrieben wie in Abschnitt 2.4.2.3. Die reine Dephasierung des Systems wird von Thoma *et al.* phänomenologisch durch eine stochastische Kraft  $F(t) = P(t) + D(t)$  im Hamiltonoperator berücksichtigt. Dabei entspricht  $P(T)$  der durch Phononen verursachten Dephasierung, welche als  $\delta$ -korreliertes weißes Rauschen<sup>2</sup> aufgefasst

<sup>2</sup>Als  $\delta$ -korreliertes weißes Rauschen bezeichnet man ein Signal, welches keinerlei Korrelation aufweist. Korreliert man das Rauschsignal mit sich selbst, zeigt es nur für  $t = t'$  eine Korrelation mit sich selbst:  $\langle P(t)P(t') \rangle = \delta(t - t')$ . Weißes Rauschen weist zudem eine konstante spektrale

wird.  $D(t)$  ist ein farbiges Rauschen<sup>3</sup> welches das spektrale Wandern des QPes darstellen soll. Wie von Thoma *et al.* dargelegt wird, zeigt die Dephasierung durch das spektrale Wandern eine ausgeprägte Abhängigkeit von dem zeitlichen Abstand in dem die Photonenpaare erzeugt werden. Basierend auf diesen Annahmen lässt sich folgender analytischer Ausdruck für die ZPI-Visibilität herleiten [Tho16]:

$$\nu(\delta\tau, \tau_C, \Gamma) = \frac{\Gamma}{\Gamma'_0 (1 - \exp(-(\delta t/\tau_C)^2)) + \gamma(T) + \Gamma}. \quad (6.3)$$

Dabei stellt der Ausdruck  $\Gamma' = \Gamma'_0 (1 - \exp(-(\delta t/\tau_C)^2))$  den Anteil der Dephasierung durch spektrale Diffusion dar, dessen maximaler Anteil  $\Gamma'_0$  ist und der eine Korrelationszeit von  $\tau_C$  hat.  $\Gamma = 1/T_1$  ist die spontane Emissionsrate des QPes und  $\gamma(T)$  die phononeninduzierte Dephasierung, welche über

$$\begin{aligned} \gamma(T) &= \gamma_0 \bar{n}(T) (\bar{n}(T) - 1), \text{ mit} \\ \bar{n}(T) &= \left( \exp\left(\frac{\alpha}{T}\right) - 1 \right)^{-1} \end{aligned} \quad (6.4)$$

berücksichtigt wird.  $\gamma_0$  stellt eine Art Kopplungskonstante an das Phononenbad dar, wobei die gesamte Dephasierung durch Phononen mit einer charakteristischen Temperatur  $\alpha$  zunimmt. Mit diesem Satz an Gleichung wurden beide Kurven in Abbildung 6.4 angepasst. Für strikt resonante Anregung ist die Korrelationszeit der spektralen Diffusion mit  $\tau_{C,s} \approx 6$  ns in etwa doppelt so hoch wie für quasi-resonantes Pumpen des QPes mit  $\tau_{C,s} \approx 3$  ns. Die Limitierung der ZPI Visibilität für sehr kurze Pulsabstände auf  $\approx 70$  % wird durch eine Phononen-Dephasierungsrate von  $\gamma(T = 5 \text{ K}) = 0,46$  GHz verursacht. Es zeigte sich, dass für die Anpassung der Daten, welche unter strikt resonante Anregung gemessen wurden, nur ein vernachlässigbarer Phononenbeitrag nötig war. Die Abnahme der ZPI lässt sich hier rein auf das spektrale Wandern des QPes zurückführen. Aus den Anpassungen

---

Leistungsdichte auf, d.h. alle Frequenzen tragen in gleicher Weise zum Rauschsignal bei. Die Dephasierung in Folge der Kopplung an Phononen wird somit als komplett stochastisch aufgefasst.

<sup>3</sup>Im Gegensatz zum weißen Rauschen hat ein farbiges Rauschen eine Abhängigkeit der spektralen Leistungsdichte von der Frequenz des Signals. Für das spektrale Wandern des QPes in diesem Experiment was als farbiges Rauschen aufgefasst wird, bedeutet dies, dass dieses aus unterschiedlich schnellen Prozessen besteht.

ergeben sich zudem charakteristische Korrelationszeiten, welche leicht niedriger sind als die in [Tho16] berichteten Werte.

Im nächsten Schritt wurde der Einfluss der Temperatur auf die Kohärenzeigenschaften des QPes untersucht. Dazu wurden wiederum Interferenzmessungen unter strikt resonanter Anregung mit einem  $\pi$ -Puls und einem Pulsabstand von  $\Delta t = 2$  ns durchgeführt. Die extrahierten Visibilitäten sind in Abbildung 6.4(b) gezeigt. Durch die zunehmende Dephasierung infolge der höheren Besetzungsdichte des Phononenbades kommt es zu einer Abnahme der Ununterscheidbarkeit der QP-Photonen auf  $\nu_{20\text{ K}} = (59 \pm 4) \%$  bei 20 K. Dies ist in qualitativer Übereinstimmung mit der ebenfalls zunehmenden Dämpfung in den Rabi-Oszillationen, welche in Abbildung 6.1 gezeigt wurden. Die Anpassung wurde wiederum mit Gleichung 6.4 vorgenommen. Die rote (durchgezogene) Kurve wurde aus einer Anpassung, bei der alle Parameter außer der spontanen Emissionsrate frei wählbar waren, gewonnen. Der Einfluss der spektralen Diffusion war damit vernachlässigbar und die Phononendephasierung ist durch  $\alpha \approx 37$  K und  $\gamma_0 \approx 6$  GHz gekennzeichnet. Für die blaue (gestrichelte) Kurve wurden die Parameter der spektralen Diffusion auf die aus Abbildung 6.4(a) extrahierten Werte festgesetzt. Damit ergeben sich mit  $\alpha \approx 67$  K und  $\gamma_0 \approx 22$  GHz leicht höhere Werte. Jedoch werden die Daten vor allem für tiefe Temperaturen vom anderen Parametersatz besser reproduziert. Dies lässt für den hier untersuchten QP den Schluss zu, dass vor allem die Dephasierung in Folge der Kopplung an Phononen zu der beobachteten Abnahme der ZPI Visibilität für hohe Temperaturen führt.

## Zusammenfassung des Kapitels

Basierend auf den Erkenntnissen des vorangegangenen Kapitels wurde in diesem Teil der Arbeit ein experimenteller Aufbau zur strikt resonanten Anregung von QPen realisiert. Über zwei zueinander orthogonal orientierte Linearpolarisatoren ist es gelungen, den resonanten Laser so gut aus dem Signal herauszufiltern, dass mit  $g^{(2)}(0) = 0,0194 \pm 0,0007$  eine sehr reine Einzelphotonenemission des untersuchten QPes nachgewiesen werden konnte. Zudem wurde die ZPI des Systems für resonante und quasiresonante Anregung bei verschiedenen Anregungsleistungen sowie für verschiedene zeitliche Abstände der erzeugten Photonenpaare und unterschiedliche Temperaturen untersucht. Im Allgemeinen ließ sich dabei feststellen, dass die Quanteninterferenz der Photonen deutlich robuster bei strikt resonanter Anregung ist. Zudem war der Grad an Ununterscheidbarkeit bei strikt resonanter Anregung immer größer als bei quasiresonanter. Bei tiefen Temperaturen und kurzen Zeitabständen der Photonen waren diese bei resonanter Anregung mit maximal  $\nu = (98,8 \pm 0,2) \%$  nahezu vollständig ununterscheidbar.





# 7 Resonanzfluoreszenz geordneter Quantenpunkt-Strukturen

Für zukünftige Anwendungen der Quanteninformationstechnik ist eine skalierbare Implementation von Festkörper-Quantenbits bzw. Quantenemittern von essentieller Bedeutung. Eine mögliche Realisierung eines solchen skalierbaren Schemas sind positionierte QPe, bei denen das QP-Wachstum an einer definierten Stelle geschieht. Diese Positionskontrolle lässt sich zum einen über flache Nanolöcher [Ish00, Sch07, Sch08, Sch09c, Hug11b] oder das Wachstum in vorstrukturierte, invertierte Pyramiden [Har98, Bai04b] erzielen. Bisher konnten an diesen QPen die Emission einzelner [Bai04a, Sch09b] sowie ununterscheidbarer [J13] Photonen und die Erzeugung polarisationsverschränkter Photonenpaare [Jus13] gezeigt werden. Ebenso wurde bereits die Integration von positionierten QPen in optisch [Sch09b] und elektrisch gepumpte [Sch12] Mikrokavitäten gezeigt. Bei den für diese Arbeit verwendeten Proben wurde die Positionskontrolle durch das Wachstum in vorstrukturierte Probenoberflächen erzielt. Durch die geätzten Grenzflächen in der nahen Umgebung der positionierten QPe erfahren diese jedoch zumeist einen starken Dephasierungsprozess durch geladene Störstellen, sodass die Linienbreite signifikant höher ist als für selbstorganisiert gewachsene QPe [Sch09c].

Als weiterer Schritt hin zu einer effizienten Quelle deterministisch erzeugter und ununterscheidbarer Photonen basierend auf positionierten QPen ist die strikt resonante Anregung – sowohl im cw- als auch im gepulsten Betrieb des Lasers – unumgänglich. Dieses Kapitel beschäftigt sich daher mit der Etablierung dieses Anregungsschemas an positionierten QPen.

## 7.1 Herstellung und Probenaufbau

In diesem Abschnitt sollen zunächst schematisch die einzelnen technologischen Schritte die zur Herstellung der Proben mit positionierten QPen nötig sind vorgestellt werden. Das Wachstum der Proben erfolgte durch Sebastian Maier, in dessen Dissertation die genaue Herstellung beschrieben ist<sup>1</sup>. Zunächst wird auf das Substrat der untere DBR Spiegel bestehend aus 30  $\lambda/4$ -dicken AlAs/GaAs Schichten und anschließend eine 85 nm dicke GaAs Schicht gewachsen. Dies entspricht einer einseitigen planaren Kavität, die unter Verwendung eines 50x Mikroskopobjektivs ( $N=0,42$ ) für Extraktionseffizienzen im Bereich 10 – 12 % sorgt [Roy01]. Anschließend werden in einem mehrstufigen Prozess aus Lithographie und nasschemischem Ätzen zuerst Marker und anschließend die Nanolöcher in die Struktur eingebracht. Daraus resultieren  $300 \times 300 \mu\text{m}^2$  große Mesen<sup>2</sup> (siehe Abbildung 7.1(a)) mit jeweils einem  $200 \times 200 \mu\text{m}^2$  großen Feld Nanolöchern. Die Periodizität dieser Löcher variiert über die Probe hinweg zwischen 500 nm und 4  $\mu\text{m}$ . Anschließend werden die Nanolöcher mit einer 10 nm dicken Pufferschicht überwachsen um Rauigkeiten an den geätzten Grenzflächen zu beseitigen. Daraufhin wird die erste Schicht PCA-InAs-QPe gewachsen (siehe Kapitel 5.1). Durch die Anpassung der Wachstumsparameter wird die Migrationslänge der QP-Elemente maximiert, was zur bevorzugten Nukleation in den geätzten Löchern führt. Diese QP-Schicht wird von einer 35 nm dicken GaAs-Separationsschicht überwachsen. Die unterschiedliche Gitterkonstante von InAs im Vergleich zu GaAs sorgt für Verspannungen in dieser Schicht, wodurch sich die zweite InAs-QP-Schicht exakt über der ersten anlagert. Abbildung 7.1(b) zeigt eine REM Aufnahme von positionierten QPen mit einer Periodizität von 2  $\mu\text{m}$ , aufgenommen unter einem Winkel von 70°. Wie man sehr gut erkennen kann hat die QP Nukleation ausschließlich auf definierten Gitterplätzen stattgefunden, wobei alle Positionen belegt sind. Für diese Aufnahme beträgt der Füllfaktor somit 100 % bei 0 % falschen Nukleationspunkten. Die räumliche Separation zwischen der oberen QP-Schicht und den geätzten Nanolöchern sorgt für eine bessere optische

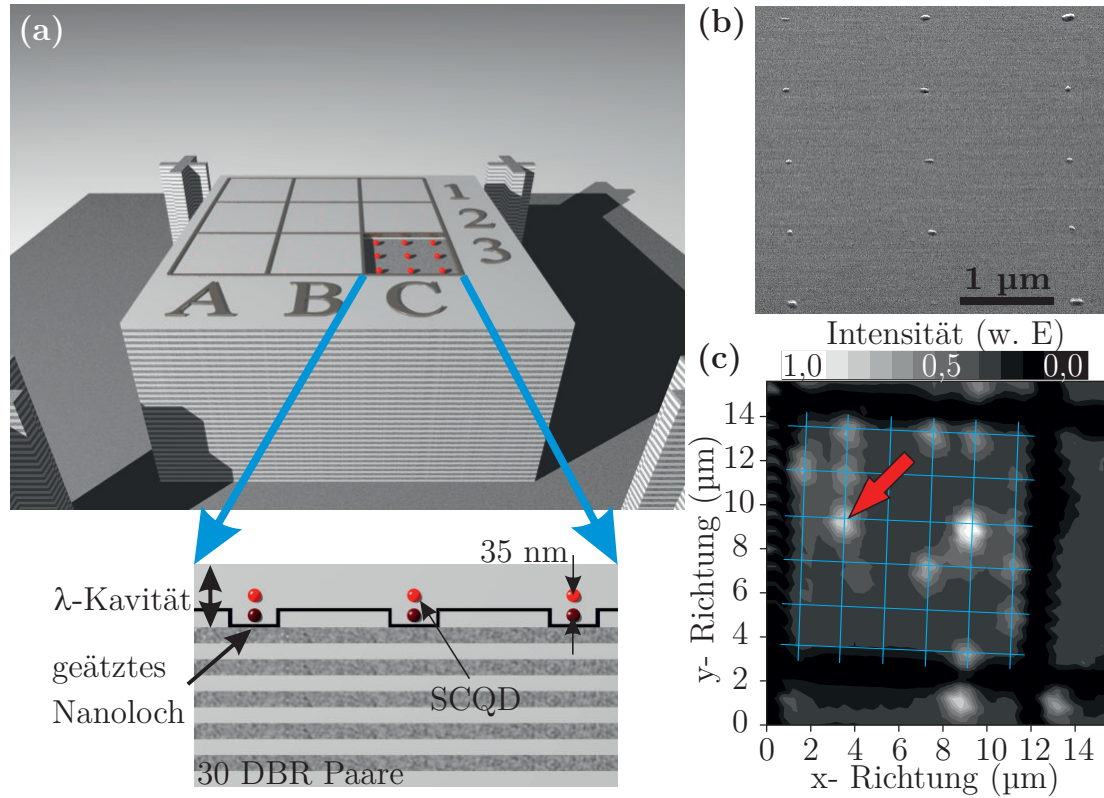
---

<sup>1</sup>Sebastian Maier, „Quantenpunktbasierte Einzelphotonenquellen und Licht-Materie-Schnittstellen“, Dissertation eingereicht an der Universität Würzburg, 2016

<sup>2</sup>von spanisch *la mesa*, zu deutsch „der Tisch“

Qualität dieser QPe im Vergleich zu unteren Schicht. Der Grund hierfür ist, dass Defekte an der geätzten Grenzfläche durch Ladungsträgereinfang eine spektrale Diffusion des QP-Zustandes verursachen [Sch12, Hug11a]. Durch eine größere Separation von diesen Defekten wird deren Einfluss verringert und die optische Qualität erhöht sich. Mittels eines weiteren PCA -Schrittes wird die Emissionswellenlänge in den Bereich um 930 nm geschoben. Zur besseren spektralen Trennbarkeit der beiden QP-Schichten emittiert die zuerst gewachsene Schicht rot verschoben zur oberen. Abschließend wird die zweite QP-Schicht noch mit einer GaAs-Deckschicht überwachsen um die  $\lambda$ -dicke Kavität zu komplettieren (siehe Anhang A.8 für die gesamte Schichtstruktur). Um die Adressierbarkeit der einzelnen QPe zu erhöhen wird abschließend mittels Elektronenstrahlolithographie ein Titangitter, das an dem Lochmuster der Nanolöcher ausgerichtet ist, auf die Probenoberfläche aufgebracht. Mittels zusätzlich aufgebrachter Buchstaben und Zahlen (siehe Abbildung 7.1(a)), lässt sich somit jeder einzelne positionierte QP gezielt untersuchen.

Die erfolgreiche Positionierung der QPe zeigt sich auch anhand der in Abbildung 7.1(c) gezeigten orts aufgelösten  $\mu$ PL. Dazu wurde die Probe mit einem grünen Laser angeregt und Spektren während der Abrasterung der Oberfläche mit einem 100x Mikroskopobjektiv aufgezeichnet. Das Signal wurde dann in dem interessanten Spektralbereich von 910 – 950 nm integriert und in Abhängigkeit der Position auf der Probe dargestellt. Man erkennt sehr deutlich einzelne helle Positionen, die zudem auf definierten Gitterplätzen mit 2  $\mu$ m Periode liegen, wobei jedoch nicht aus allen Gitterplätzen Emission zu sehen ist. Dies lässt sich auf verstärkte nicht radiative Zerfallsprozesse, verursacht durch die geätzten Grenzflächen der Nanolöcher zurückführen. Die in den QPen eingefangenen Exzitonen zerfallen dabei nicht unter Aussendung eines Photons, sondern einzelne im QP eingefangene Ladungsträger können diesen durch Tunnelprozesse in die Defektzustände an den Grenzflächen verlassen. Dies senkt die Quanteneffizienz der strahlenden Rekombination, sodass einige QPe in den gezeigten  $\mu$ PL-Aufnahmen dunkel erscheinen [Alb10]. Alle im weiteren Verlauf des Kapitels durchgeführten Messungen wurden an dem in Abbildung 7.1(c) mit einem roten Pfeil markierten positionierten QP durchgeführt.

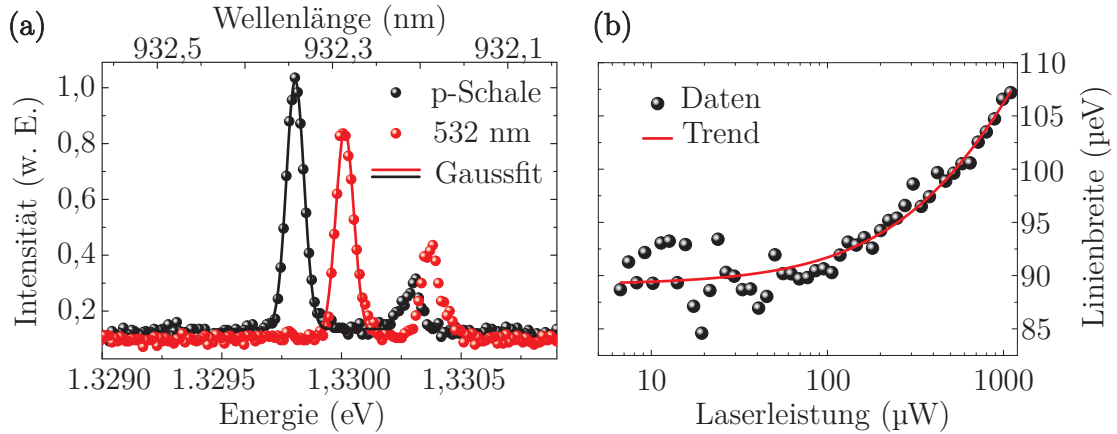


**Abbildung 7.1:** (a) Schematischer Aufbau der Probe mit positionierten QPens. Die QPens sind in zwei übereinander angeordneten Schichten gewachsen. Um die Extraktionseffizienz breitbandig zu erhöhen befinden sich die QPens in einer  $\lambda$ -dicken Kavität und auf einem unteren DBR Spiegel bestehend aus 30 AlAs/GaAs Spiegelpaaren. Zur Orientierung auf der Probe und zur besseren Adressierbarkeit der einzelnen QPens wurde ein Titangitter auf die Oberfläche aufgebracht. (b) Eine REM Aufnahme zeigt die mit  $2 \mu\text{m}$  Periode angeordneten QPens. (c) Ortsaufgelöste  $\mu\text{PL}$  Messung im Bereich von  $910 - 950 \text{ nm}$ . Die Emission erfolgt aus klar definierten Gitterpunkten was der Nachweis der erfolgreichen Positionierung der QPens ist.

## 7.2 Grundlegende Emissionseigenschaften und Einzelphotonenemission

Abbildung 7.2(a) zeigt das PL-Signal des in Abbildung 7.1(c) markierten QPes, welches sowohl unter nicht- als auch quasi-resonanter Anregung aufgenommen wurde. Beide Emissionslinien wurden durch eine Gauß-Funktion angepasst. Die aus der Anpassung resultierenden Linienbreiten sind für beide Anregungsarten vergleichbar mit  $\Delta w_{532\text{ nm}} = (88 \pm 2) \mu\text{eV}$  und  $\Delta w_{\text{p-Schale}} = (87 \pm 1) \mu\text{eV}$ . Dies lässt auf eine inhomogene Linienverbreiterung schließen, die durch geladene Störstellen an den geätzten Nanolöchern verursacht werden kann. Die Linienbreite wurde für p-Schalenanregung zudem in Abhängigkeit der Pumpleistung analysiert. Die aus den leistungsabhängigen Spektren extrahierten Linienbreiten sind in Abbildung 7.2(b) dargestellt. Es zeigt sich ein leichter Anstieg der Linienbreite mit zunehmender Pumpleistung. Der Trend im Linienbreitenzuwachs wird gut durch einen logarithmischen Anstieg beschrieben. Eine solche zunehmende Linienbreite wurde bereits an selbstorganisiert gewachsenen QPen durch den Einfluss einer geladenen Störstelle in der näheren Umgebung des QPes dokumentiert [Ber06]. Der Anstieg lässt sich durch das zunehmende Laden und Entladen und das daraus folgende zeitlich veränderliche elektrostatische Potential welches der QP erfährt erklären. Die Linienbreite von knapp unter  $100 \mu\text{eV}$  ist deutlich über den typischerweise für selbstorganisiert gewachsene QPe erreichten Werten von  $10 \mu\text{eV}$  oder weniger [Ate09b, Ric10, Bay02a] und ebenfalls über dem für positionierte QPe dokumentiertem Bestwert von  $7 \mu\text{eV}$  [J13].

Als nächster Schritt soll sichergestellt werden, dass der QP auch als Emmitter einzelner Photonen eingesetzt werden kann. Dazu wird der QP mit einem um  $64 \text{ meV}$  blau verstimmtten Laser angeregt, was wahrscheinlich der Anregung in die Benetzungsschicht entspricht. Das daraus resultierende Spektrum für gepulste Anregung ist in Abbildung 7.3(a) dargestellt. Die Linienbreite ist im Vergleich zur cw-Anregung in Abbildung 7.4 leicht auf  $\Delta w_{\text{gepulst}} = (116 \pm 2) \mu\text{eV}$  gestiegen. Dies lässt sich auf die gepulste Anregung mit sehr kurzen Pulslängen von ca.  $1,4 \text{ ps}$  zurückführen.

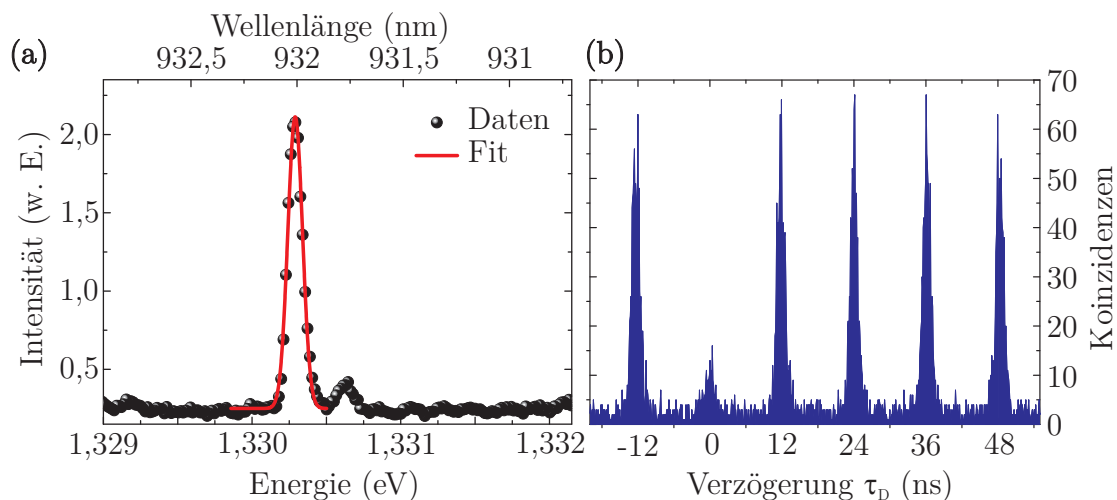


**Abbildung 7.2:** (a) Spektrum des positionierten QPes für nichtresonante und p-Schalenanregung. Die Linienbreiten sind für beide Anregungsschemata mit  $\approx 90 \mu\text{eV}$  identisch. (b) Linienbreite in Abhängigkeit der eingestrahlten Laserleistung für p-Schalenanregung in logarithmisch-linearer Auftragung.

Da die mit dem Leistungsmessgerät bestimmte Laserleistung das zeitliche Mittel darstellt, sind die maximalen Feldstärken bei gepulster Anregung um einen Faktor  $12,2 \text{ ns}/1,2 \text{ ps} \approx 10000$  höher als bei cw-Anregung. Dies führt zu einem weiteren Anstieg der Linienbreite ähnlich wie in Abbildung 7.2(b). Die Emissionslinie wird mittels des Monochromators spektral gefiltert und in einen faserbasierten HBT-Aufbau (siehe Abschnitt 3.2) eingekoppelt. Das gemessene Koinzidenzhistogramm ist in Abbildung 7.3(b) dargestellt. Die starke Unterdrückung des zentralen Peaks um  $\tau = 0$  ist der Nachweis der nicht-klassischen Lichtemission des positionierten QPes. Die Auswertung der Messung erfolgte analog zu Abschnitt 4.4. Für die in Abbildung 7.3(b) gezeigte Messung erhält man somit  $g^{(2)}(0) = 0,39 \pm 0,02$ .

### 7.3 Strikt-resonante Dauerstrichanregung

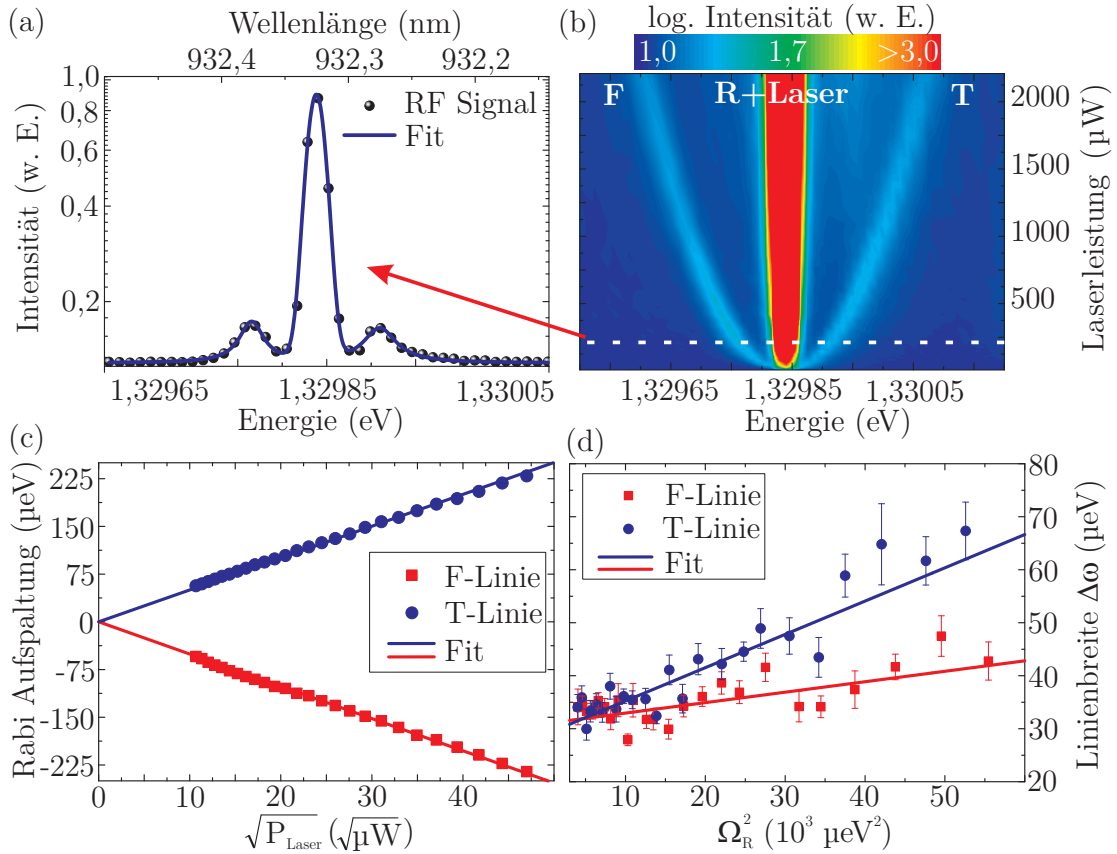
Für die strikt resonante Anregung von positionierten QPen wurde ein Aufbau verwendet, ähnlich dem der in Abbildung 3.1(b) in Kapitel 3.1 dargestellt ist. Die Unterdrückung des von der Probe zurückgestreuten Lichts mittels eines Kreuzpolarisationsaufbaus wurde hier jedoch über polarisierende Strahlteiler statt zweier



**Abbildung 7.3:** (a) Spektrum des QPes bei gepulster Anregung mit einem um 64 meV blau verstimmen Laser. (b) Gemessenes Koinzidenzhistogramm des QPes. Es ergibt sich ein  $g^{(2)}(0)$ -Wert von  $g^{(2)}(0) = 0,39 \pm 0,02$ .

Linearpolarisatoren erreicht. Zur Anregung wurde ein abstimmbarer cw-Diodenlaser mit externer Kavität benutzt, der eine sehr schmale Linienbreite von unter 1 MHz ( $\hat{=} 4$  neV) besitzt. Um die Auflösung des Versuchsaufbaus zu erhöhen (auf Kosten der Detektionseffizienz) wurde für die spektrale Analyse ein Doppelmonochromator mit zwei hintereinander geschalteten Gittern mit jeweils  $1200 \frac{\text{Linien}}{\text{mm}}$  verwendet. Dadurch erhöht sich das Auflösungsvermögen auf etwa  $\Delta E_{\text{Auf.}} \approx 20 \mu\text{eV}$  im Wellenlängenbereich um 930 nm.

Abbildung 7.4(a) zeigt das Spektrum des positionierten QPes, welches unter resonanter cw-Anregung mit einer Laserleistung von  $P_{\text{Laser}} = 183 \mu\text{W}$  und bei einer Temperatur von  $T = 5$  K aufgenommen wurde. Es zeigt sich das typische Emissionsspektrum eines Zwei-Niveau-Systems, welches an ein starkes resonantes Laserfeld koppelt. Dadurch kommt es zu einer Aufspaltung von Grundzustand und angeregtem Zustand des QPes jeweils um die halbe Rabi-Frequenz  $\Omega$  und man erhält effektiv ein gekoppeltes System mit vier Energieniveaus und vier unterschiedlichen Zerfallskanälen. Da zwei dieser Zerfälle energetisch entartet sind enthält das Spektrum drei Emissionslinien: Die niederenergetische Fluoreszenz-Linie (F),



**Abbildung 7.4:** (a) Spektrum des positionierten QPes aufgenommen bei resonanter cw-Anregung mit einer Laserleistung von  $P_{\text{Laser}} = 183 \mu\text{W}$  und einer Temperatur von  $T = 5 \text{ K}$ . Es tritt das charakteristische Mollow-Triplett zu Tage. (b) Die Rabi-Aufspaltung der drei Spektrallinien nimmt mit steigender eingestrahelter Leistung des Lasers nicht-linear zu. (c) Eine Auswertung der Rabi-Aufspaltung ergibt einen klaren linearen Zusammenhang zur Feldstärke des eingestrahlichten Lasers. (d) Die Linienbreite der Seitenpeaks nimmt wie erwartet linear mit dem Quadrat der Rabi-Aufspaltung zu. Die nicht durch Phononenwechselwirkung verursachte Dephasierung beträgt für beide Spektrallinien  $\gamma_0 \approx 30 \mu\text{eV}$ .



die blau verschobene Drei-Photonen-Linie ( $T^3$ ) und die energetisch unveränderte zentrale Rayleigh-Linie (R) (vgl. Abschnitt 2.3.1 bzw. Abbildung 2.8). Dieses Spektrum mit seinen drei charakteristischen Spektrallinien wird auch Mollow-Triplett genannt, da es von Benjamin R. Mollow theoretisch vorhergesagt wurde [Mol69]. Der erste experimentelle Nachweis gelang an Natriumatomen [Wu75]. Idealerweise haben die Intensitäten der drei Linien ein Verhältnis von 1 : 2 : 1. Das gezeigte Spektrum weicht von diesem Ideal mit einem Verhältnis von 1 : 12 : 1 durch eine unvollständige Unterdrückung des Lasers und der daraus resultierenden Überhöhung der zentralen R-Linie ab. Der Grund hierfür liegt vermutlich in Oberflächenrauigkeiten der Probe und einer damit einhergehenden elliptischen Verzerrung der Polarisation des rückgestreuten Lasers. Die drei Spektrallinien besitzen eigentlich ein Lorentz-förmiges Profil. Da der zentrale Peak jedoch durch den auflösungsbegrenzten Laser überlagert ist, muss dieser mit einer Gauß-Kurve angepasst werden. Aus der Anpassung ergeben sich Linienbreiten der beiden aufgespaltenen Peaks von  $\Delta\omega_F = (31 \pm 7) \mu\text{eV}$  bzw.  $\Delta\omega_T = (43 \pm 9) \mu\text{eV}$ . Damit liegt die Linienbreite für strikt resonante Anregung – wie erwartet – durch die Verringerung an spektraler Diffusion deutlich unter den Linienbreiten, welche für quasi- und nicht resonante Anregung gemessen wurden. Diese Werte sind jedoch immer noch etwas höher als die Werte bis hinab zu 1–3  $\mu\text{eV}$ , die typischerweise für selbstorganisiert gewachsene QPe berichtet werden [Hög04, Hou12, Xu07, Vam09, Ngu12]. Dies lässt sich auf die Linienverbreiterung durch die Defektzustände an den geätzten Grenzflächen der Nanolöcher zurückführen. Die Rabi-Aufspaltung liegt für die in Abbildung 7.4(a) gezeigte Anregungsleistung bei  $\Omega_r = 72 \mu\text{eV}$ . Man erwartet eine lineare Zunahme der Rabi-Aufspaltung mit steigender Feldstärke bzw. eine wurzelförmige Zunahme mit steigender Laserleistung [Vam09]. Abbildung 7.4(b) zeigt die Spektren des QPes unter strikt resonanter Anregung für eine zunehmende Leistung des Lasers als Konturplot. Abbildung 7.4(a) stellt dabei den Querschnitt dieses Plots entlang der weiß gestrichelten Linie dar. Mit zunehmender Leistung des resonanten Lasers erkennt man wie vorhergesagt die Zunahme der Rabi-Aufspaltung. Für eine detaillierte Analyse dieser Aufspaltung wurde jedes einzelne Spektrum analog zu dem in Abbildung 7.4(a) gezeigten als die Summe aus zwei Lorentz- und

---

<sup>3</sup>von engl. Three-Photon-Line

einer Gauß-Funktion angepasst. Die daraus extrahierte Rabi-Aufspaltung ist in Abbildung 7.4(c) über der Wurzel der eingestrahlten Laserleistung dargestellt. Es ergibt sich ein klarer linearer Zusammenhang und man erhält einen gemittelten Proportionalitätsfaktor  $\kappa = \frac{\delta\Omega_r}{\delta\sqrt{P_L}} = \mu R$  (siehe Gleichung 2.11) für beide Spektrallinien von  $\kappa = \pm(5,04 \pm 0,01) \frac{\mu\text{eV}}{\sqrt{\mu\text{W}}}$ . Dies ist leicht geringer als der von Wei *et al.* berichtete Wert von  $\kappa = 7,6 \mu\text{eV}$  für selbstorganisiert gewachsene QPe [Wei14a] und lässt sich entweder auf einen etwas niedrigeren Renormalisierungsfaktor  $R$  oder ein geringeres Dipolmoment zurückführen (siehe Gleichung 2.11).

Um die Kopplungsstärke an LA Phononen genauer zu untersuchen wurden die Linienbreiten der Mollow-Seitenpeaks genauer analysiert. Durch die Wechselwirkung mit dem Phononenbad kommt es bei hohen Feldstärken des anregenden Lasers zu der sog. „anregungsinduzierten Dephasierung“<sup>4</sup>, was zu einer Zunahme der Linienbreiten  $\Delta w$  führt [Ram10b]. Ausgehend von Gleichung 2.17 ergibt sich unter Verwendung von Gleichung 2.16 für die Leistungsabhängigkeit der Linienbreite

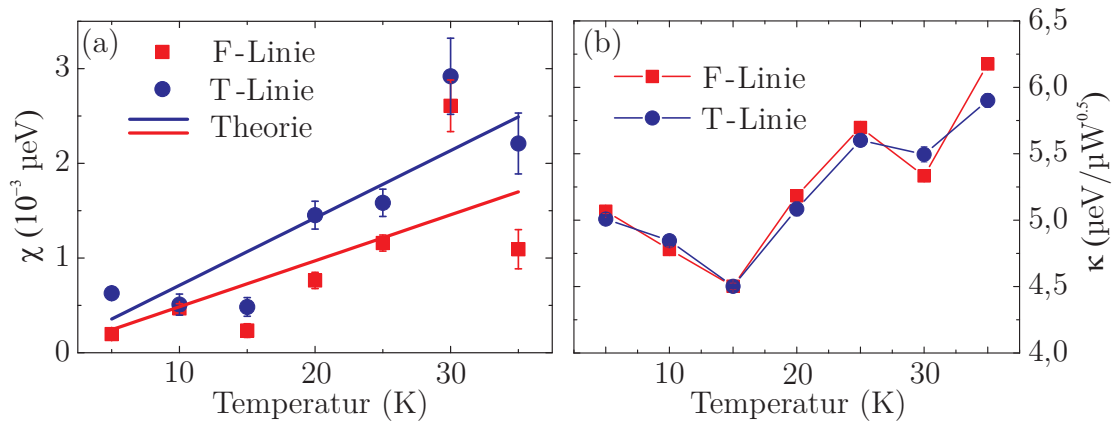
$$\chi = \frac{\delta}{\delta P_L} \Delta w \stackrel{P_L \propto \Omega_r^2}{=} \frac{\delta}{\delta \Omega_r^2} \Delta w = \frac{\delta}{\delta \Omega_r^2} \left( \frac{3}{2} \Gamma_1 + \pi \alpha k_B T \Omega_r^2 + \gamma_0 \right) = \pi \alpha k_B T, \quad (7.1)$$

mit der Exziton-Phonon Kopplungsstärke  $\alpha$ , der Boltzmann-Konstante  $k_B$  und der Temperatur  $T$ . Trägt man die Linienbreite über dem Quadrat der Rabi-Aufspaltung auf, erwartet man einen linearen Zusammenhang. In Abbildung 7.4(d) sind die aus der Datenanpassung der leistungsabhängigen Spektren extrahierten Linienbreiten der F- und T-Linie über der quadrierten Aufspaltung der Seitenpeaks dargestellt. Die Daten folgen klar dem linearen Trend, wobei die höher energetische T-Linie stärker dephasiert als die F-Linie. Aus der Anpassung der Daten mit Gleichung 2.17 ergibt sich  $\chi_F = (2,0 \pm 0,6) \cdot 10^{-4} \mu\text{eV}^{-1}$  bzw.  $\chi_T = (6,3 \pm 0,7) \cdot 10^{-4} \mu\text{eV}^{-1}$ . Wie sich noch zeigen wird, tritt die stärkere Dephasierung der T-Linie systematisch für alle Messreihen in diesem Abschnitt auf. Nach der in Kapitel 2.3 vorgestellten Theorie sollten sich für beide Spektrallinien symmetrische Linienbreiten ergeben. Die in diesem Experiment zu Tage tretende Abweichung hiervon liegt wahrscheinlich an einer leichten Verstimmung zwischen dem anregenden Laser und dem QP-Exziton. Durch eine zusätzlich auftretende Energieverschiebung durch die hohe An-

<sup>4</sup>im Englischen *excitation induced dephasing*

regungsleistung (bis zu  $\approx 2,5$  mW) in diesem Experiment kann diese Verstimmung während der Messreihe noch erhöht werden. Für Systeme mit hoher Dephasierung wurde von Ulhaq *et al.* eine solche Asymmetrie vorhergesagt, welche sich auf die Exziton-Phonon-Wechselwirkung zurückführen lässt und über das einfache Modell der Dephasierung hinausgeht [Ulh13]. Die stärkere Verbreiterung der T-Linie lässt den Rückschluss zu, dass der Laser während des Experiments leicht blau verschoben zum QP-Übergang ist. Eine genauere experimentelle Untersuchung dieses Phänomens steht jedoch noch aus. Der Achsenschnittpunkt ergibt für die beiden Seitenpeaks eine Phononen unabhängige Dephasierung von  $\gamma_0 \approx 30 \mu\text{eV}$ .

Das Verhalten des QPes für resonante Anregung soll weiterhin für verschiedene Probertemperaturen untersucht werden. Damit wird die Renormalisierung der Rabi-Aufspaltung als auch die Wechselwirkung mit dem Phononenbad genauer untersucht. Hierzu wurde die in Abbildung 7.4 vorgestellte Messung bei  $T = 5$  K für schrittweise erhöhte Temperaturen bis 35 K wiederholt und analog ausgewertet. Für das Maß der Seitenpeakverbreiterung  $\chi$  erwartet man entsprechend Gleichung 7.1 eine lineare Zunahme mit steigender Temperatur unter der Voraussetzung, dass die Exziton-Phonon-Kopplungsstärke  $\alpha$  konstant ist. Die aus der Verbreiterung der F- und T-Linie mit zunehmender Rabi-Aufspaltung extrahierten Dephasierungskonstanten  $\chi$  sind in Abbildung 7.5(a) in Abhängigkeit der Temperatur aufgetragen. Für beide Linien ist der lineare Trend sichtbar. Weiterhin zeigt sich, dass die Dephasierung mit Ausnahme der Messreihe für 10 K für die F-Linie immer stärker ausgeprägt ist als für die T-Linie. Das unterstützt die oben getroffene Annahme, dass es durch die hohen Feldstärken zu einer Rotverschiebung des QP-Überganges kommt und die Verstimmung des Lasers somit blauverschoben ist. Aus der linearen Anpassung mit Gleichung 7.1 ergeben sich Exziton-Phonon-Wechselwirkungsstärken der beiden Emissionslinien von  $\alpha_F = (0,077 \pm 0,015) \text{ ps}^2$  respektive  $\alpha_T = (0,113 \pm 0,012) \text{ ps}^2$ . Dies ist vergleichbar zu bisher veröffentlichten Werten in der Literatur für selbstorganisiert gewachsene QPe von  $\alpha = 0,165 - 0,182 \text{ ps}^2$  [Ram10a],  $\alpha = 0,168 \text{ ps}^2$  [Ram10b] und  $\alpha = 0,254 \text{ ps}^2$  [Wei14a]. Die hier für positionierte QPe gemessenen Werte liegen sogar leicht unter denjenigen für selbstorganisierte QPe.



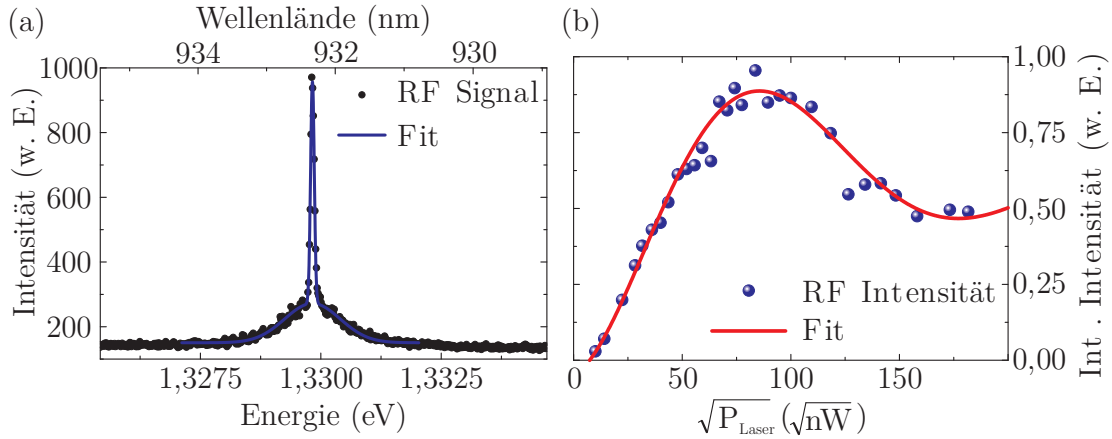
**Abbildung 7.5:** (a) Dephasierungskonstante  $\chi$  der beiden Mollow-Seitenpeaks mit zunehmender Temperatur. Die Daten folgen dem erwarteten linearen Verlauf. Aus der Anpassung ergeben sich Exziton-Phonon-Wechselwirkungsstärken von  $\alpha_F = (0,077 \pm 0,015) \text{ ps}^2$  und  $\alpha_T = (0,113 \pm 0,012) \text{ ps}^2$ . (b) Renormalisiertes Dipolmoment  $\kappa$  in Abhängigkeit der Temperatur. Nach dem erwarteten Abfall durch die verringerte Renormalisierungskonstante  $R$  steigt das Dipolmoment wieder an. Dies lässt sich auf einen zusätzlichen Einschluss der Exziton-Wellenfunktion bei niedrigen Temperaturen zurückführen, welcher für ansteigende Proben temperaturen thermisch aktiviert wird.

Aus den temperaturabhängigen Messungen lässt sich aus der Rabi-Aufspaltung mit steigender Feldstärke das renormalisierte Dipolmoment  $\kappa = \mu R$  bestimmen. Dazu wurde analog zu der in Abbildung 7.4(c) gezeigten Messung der Proportionalitätsfaktor  $\kappa$  aus der Rabi-Aufspaltung der F- und T-Linie mit zunehmender Feldstärke bestimmt. Die daraus erhaltenen Ergebnisse sind für beide Seitenpeaks in Abbildung 7.5(b) dargestellt. Es sind zwei kompetitive Trends in der Kurve sichtbar. Zum einen sinkt das renormalisierte Dipolmoment zunächst wie erwartet mit steigender Temperatur. Ab  $T = 15 \text{ K}$  kehrt sich der Trend jedoch um und das Dipolmoment steigt relativ kontinuierlich mit der Temperatur an. Die Ursache für dieses Verhalten ist höchstwahrscheinlich eine nicht konstante Indiumkonzentration im QP (siehe Abschnitt 2.1.3). Durch den PCA-Schritt beim Wachstum diffundieren Gallium Atome in den QP und Indium aus dem QP. Durch die unterschiedlichen Diffusionslängen kann es zu einem Indiumgradienten im QP kommen (vgl. Abschnitt 2.1.3). Dies verursacht ein energetisches Potentialgefäl-

le innerhalb des QPes und die Wellenfunktion ist in höherem Maß im Zentrum des QPes eingeschlossen als ohne dieses Gefälle. Abgesehen vom Grenzfall eines sehr starken Ladungsträgereinschlusses hat eine räumlich stärker eingeschlossene Wellenfunktion ebenso ein geringeres Dipolmoment [Thr02, And99]. Nachdem eine gewisse thermische Aktivierungsenergie überwunden wird, wird die zusätzliche Lokalisation innerhalb des QPes aufgehoben und die Wellenfunktion erstreckt sich über ein größeres Volumen. Dadurch steigt auch das Dipolmoment des QP-Exzitons und somit die Wechselwirkung mit dem resonanten Laserfeld. Eine weitere Möglichkeit um ein solches zusätzliches Einschlusspotential im QP zu generieren ergibt sich durch mögliche Höhenschwankungen des QPes. Ist die Ausdehnung in Wachstumsrichtung nicht gleichmäßig groß, könnte dies ebenso zu einem zusätzlichen Einschluss der Wellenfunktion führen. Ähnliche Beobachtungen wurden von Musiał *et al.* durch magnetooptische Untersuchungen an selbstorganisierten QPen gemacht [Mus14]. In dieser Arbeit wurde der diamagnetische Koeffizient in magnetfeldabhängigen Messungen bestimmt und es zeigte sich, dass dieser für manche QPe mit steigender Temperatur zunimmt. Da der diamagnetische Koeffizient ebenfalls von der räumlichen Ausdehnung der Wellenfunktionen von Elektron und Loch abhängt, wurde ebenfalls ein verstärkter räumlicher Einschluss der QP-Wellenfunktion für tiefe Temperaturen vermutet.

## 7.4 Deterministische Kontrolle des angeregten Quantenpunktzustandes

Im nächsten Schritt wurde zusätzlich zur bereits vorgestellten resonanten Dauerstrichanregung ebenso die gepulste, strikt resonante Anregung eines positionierten QPes realisiert. Dazu wurde ein durchstimmbarer Ti:Saphir Laser und der in Abschnitt 3.1 vorgestellte experimentelle Aufbau verwendet. Wie sich gezeigt hat ist vor allem für den gepulsten Betrieb die Unterdrückung des rückgestreuten Lasers sehr stark von der absoluten Orientierung der Laserpolarisation abhängig. Da die zuvor verwendeten polarisierenden Strahlteiler keine Verstellung der Polarisationsachse durch Rotation zulassen, wurde daher der Aufbau mit zwei



**Abbildung 7.6:** (a) Spektrum des positionierten QPes aufgenommen mit gepulster resonanter Anregung. Der breite Hintergrund unter der schmalen QP-Linie ( $\Delta w = (90 \pm 1) \mu\text{eV}$ ) stammt von nicht vollständig unterdrücktem Laserstreulicht. (b) Integrierte Intensität des QPes in Abhängigkeit der Feldstärke des anregenden Lasers. Die erste gedämpfte Rabi-Oszillation ist der Nachweis der kohärenten Kontrolle des angeregten QP-Zustandes.

Linearpolarisatoren aus Abschnitt 3.1 verwendet. Abbildung 7.6(a) zeigt das Spektrum des bereits zuvor untersuchten QPes unter gepulster resonanter Anregung mit dem Ti:Saphir Laser ( $f_{\text{Rep.}} = 82 \text{ MHz}$ ;  $\Delta t \approx 1,2 \text{ ps}$ ). Es ist deutlich die spektral schmale QP-Linie sichtbar, die von einem breitbandigen Hintergrund durch einen nicht vollständig unterdrückten Laser überlagert wird. Durch die zeitlich sehr kurzen Pulse kommt es im Rahmen der Energie-Zeit-Unschärfe zu einer spektralen Verbreiterung des Laserpulses wodurch Laser und QP gut unterscheidbar sind im Spektrum. Der Fit stellt die Summe aus zwei Gaußfunktionen dar. Für den QP ergibt sich eine Linienbreite von  $\Delta w = (90 \pm 1) \mu\text{eV}$ . Dieser Wert ist wiederum vergleichbar zu der Linienbreite für die nicht resonante Dauerstrichanregung und bedeutet, dass der QP trotz resonanter Anregung wieder stärkeren Dephasierungsprozessen unterliegt. Die Ursache hierfür liegt in den hohen Feldstärken des gepulsten Lasers von etwa  $E_{\text{Laser}} \approx 1 * 10^8 \frac{\text{V}}{\text{m}}$  bei Anregung des Systems mit einem  $\pi$ -Puls und unter der Annahme, dass der Laser auf einen Durchmesser von  $4 \mu\text{m}$  fokussiert ist. Diese Feldstärke ist für die Dauer des Pulses sehr viel höher als bei Dauerstrichanregung, wodurch es zu verstärkter anregungsinduzierter Dephasierung kommt.

Um die deterministische Kontrolle der Exziton-Besetzungsdichte und somit die Inversion des Zwei-Niveau-Systems zu überprüfen, wurde im nächsten Schritt die integrierte Intensität des QP-Exzitons in Abhängigkeit der Anregungsleistung des gepulsten Lasers bestimmt. Die aus der Anpassung der einzelnen Spektren resultierenden Datenpunkte sind in Abbildung 7.6(b) aufgetragen. Man erkennt die erste Rabi-Oszillation des gepulst betriebenen Systems, was ein Nachweis der kohärenten Kontrolle des QP-Exzitons ist. Eine ideale Rabi-Oszillation würde bei einer Anregung mit einem  $2\pi$  Puls eine komplette Rotation um die Bloch-Kugel vollziehen und somit wieder in seinen Ausgangszustand mit der maximalen Besetzung des Grundzustandes zurückgehen. Die detektierte Emission wäre somit null. Da sich die QP-Emission in Abbildung 7.6(b) eher asymptotisch der halben maximalen Intensität nähert, lässt sich daraus schließen, dass das resonant angeregte Zwei-Niveau-System einer starken Dephasierung und somit einer starken Dämpfung unterliegt. Dies ist in Übereinstimmung mit der Linienbreite aus Abbildung 7.6(a), welche bereits ein Hinweis auf eine hohe Dephasierung war. Die Modellierung der Daten erfolgte – wie bereits im vorangegangenen Kapitel – mit Gleichung 2.22. Die Dephasierung des Systems lässt sich einerseits auf die anregungsinduzierte Dephasierung durch die Kopplung an LA Phononen zurückführen, andererseits auf die vergleichsweise hohe konstante, laserunabhängige Linienverbreiterung  $\gamma_0$ , welche in Abschnitt 7.3 zu  $\gamma_0 = 30 \mu\text{eV}$  bestimmt wurde.

## Zusammenfassung des Kapitels

In diesem Kapitel wurde systematisch das Verhalten eines positionierten QPes unter strikt resonanter Anregung untersucht. Als Nachweis der kohärenten Kopplung zwischen dem cw-Lichtfeld und dem QP-Exziton wurde das charakteristische Mollow-Triplett beobachtet. Die Aufspaltung und Dephasierung der Seitenpeaks wurde zudem für verschiedene Temperaturen untersucht. Die Dephasierung der Mollow-Seitenpeaks konnte durch die Kopplung an ein Phononenbad sehr gut modelliert werden und es wurde eine Exziton-Phonon-Kopplungsstärke von etwa  $\alpha \approx 0,1 \text{ ps}^2$  extrahiert. Ein mit steigender Temperatur zunehmendes Dipolmoment deutet auf eine zusätzliche Lokalisierung der QP-Wellenfunktion bei tiefen Temperaturen hin. Abschließend konnte auch die gepulste resonante Anregung des QP-Exzitons und somit die deterministische Kontrolle der Besetzungsdichte des angeregten Zustandes über den experimentellen Nachweis der Rabi-Oszillation gezeigt werden.

Die Resultate dieses Kapitels wurden in „S. Unsleber *et al.*, *Optica* **2**, 1072-1077 (2015)“ publiziert.



# 8 Eine deterministische und effiziente Quelle einzelner kohärenter Photonen

Im Hinblick auf die Erzeugung einzelner und kohärenter Photonen konnte in Kapitel 6 demonstriert werden, dass eine strikt resonante Anregung eines QPes ein probates Mittel darstellt, um einerseits zeitliche Unsicherheiten des Emissionsprozesses und andererseits eine Dephasierung des QP-Exzitons zu unterdrücken. Ununterscheidbare Photonen auf „Knopfdruck“ aus InGaAs-QPen konnten erstmals in den Arbeiten von He *et al.* (2013) [He13b] und Wei *et al.* (2014) [Wei14b] mit nahezu 100 % Visibilität durch die gepulste resonante Anregung nachgewiesen werden. Durch die Verwendung planarer Resonatorstrukturen war kein lateraler Modeneinschluss gewährleistet, wodurch sowohl in diesen Arbeiten als auch in Kapitel 6 die Extraktionseffizienz stark limitiert war. Für eine spätere Anwendung in der Quanteninformationstechnik sind jedoch hocheffiziente Quellen essentiell. Durch die Einbettung von QPen in Mikrokavitäten [Hei10a, Gaz13, Gér98, Mai14] oder photonischen Wellenleitern [Cla10, Hei10b, Rei12, Arc14] lässt sich diese Effizienz auf Werte um 80 % steigern. Bisher ist es jedoch noch nicht gelungen beide Notwendigkeiten – Effizienz und Kohärenz – einer „optimalen“ Quelle ununterscheidbarer Photonen zu kombinieren. Um diese Kriterien erfüllen zu können, stellen sich an die Probe einige Anforderungen. Um die Effizienz zu maximieren muss der Emitter sowohl spektral als auch örtlichen bestmöglich mit der optischen Mode überlappen. Um zusätzliche Dephasierungsprozesse durch Phononen zu vermeiden muss die spektrale Resonanz bei sehr tiefen Temperaturen gegeben

sein. Da Mikrotürmchenproben – wie beispielsweise die in Kapitel 5 untersuchten – üblicherweise in einem festen Layout gefertigt werden ist die örtliche Platzierung der QPe ein statistischer Prozess. Da der QP zusätzlich auch spektral resonant mit der optischen Mode sein muss, ist die Wahrscheinlichkeit ein geeignetes QP-Mikrokavität-System zu finden – basierend auf der experimentellen Erfahrung – bei ungefähr 1:1000. Weiterhin ist es bisher nicht gelungen ein solches System mit resonanten Laserpulsen zu betreiben um damit die Kohärenz der emittierten Photonen zu maximieren. Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher zunächst im Rahmen einer Kollaboration mit der Gruppe um Prof. Dr. Chao-Yang Lu und Prof. Dr. Jian-Wei Pan von der USTC Hefei (China) <sup>1</sup> die strikt resonante Anregung eines Purcell-verstärkten QPes realisiert [Uns15] und die Erzeugung kohärenter Photonen aus einem solchen QP-Mikrotürmchen realisiert [Din16]. Der enorme zeitliche Aufwand und die äußerst geringe Ausbeute an geeigneten QP-Mikrokavität-Systemen wurden zum Anlass genommen im Rahmen dieser Kollaboration eine deterministische Platzierung der QPe in den Kavitätsstrukturen zu realisieren. Diese als kryogene *in-situ*-Lithographie bezeichnete Technik erlaubt es bei tiefen Temperaturen einen QP zu selektieren und anschließend mittels eines zweiten Lasers das Mikrotürmchen lithographisch zu definieren. Mit Hilfe dieser Technik ist es gelungen ein deterministisch gekoppeltes QP-Mikrotürmchen herzustellen, welches als effiziente Quelle einzelner kohärenter Photonen verwendet werden kann. Diese Ergebnisse gehen deutlich über bisher berichtete deterministische QP-Strukturen hinaus, bei denen entweder die Effizienz der Struktur limitiert war [Gsc15], keine Aussagen über die Kohärenz der emittierten Photonen getroffen wurde [Sap15] oder eine Zwei-Laser-Anregung zu einem potentiellen zeitlichen Jitter und Wiederbefüllungseffekten beim Emissionsprozess führen kann [Gaz13].

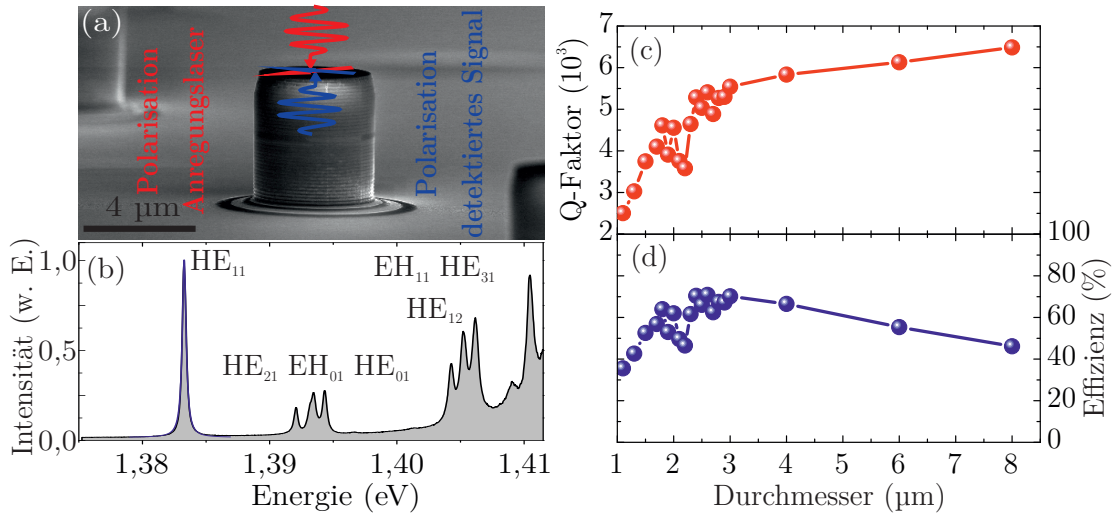
---

<sup>1</sup>Adresse: Hefei National Laboratory for Physical Sciences at the Microscale and Department of Modern Physics, & CAS Center for Excellence and Synergetic Innovation Center in Quantum Information and Quantum Physics, University of Science and Technology of China, Hefei, Anhui 230026, China

## 8.1 Herstellung und Gütefaktor der Mikrotürmchenprobe

Die hier verwendete Probe wird in ähnlicher Weise wie bereits die in Abschnitt 5.1 diskutierten Strukturen mittels MBE Wachstum hergestellt. Die planare Struktur besteht aus 25,5 GaAs/AlAs DBR Spiegelpaaren die den unteren Reflektor bilden und 15 Paaren für den oberen Spiegel (siehe Anhang A.9 für die genaue Schichtstruktur). Diese stark asymmetrische Anzahl an Schichtpaaren wird benötigt um einen sehr effizienten Verlustkanal in vertikaler Richtung zu gewährleisten. Damit wird eine hinreichend hohe Licht-Materie-Wechselwirkung bei gleichzeitig effizienter Auskopplung der Grundmode über die obere Facette des Türmchens realisiert. Simulationen zeigen, dass für dieses Layout der Anteil der optischen Mode die in Vorwärtsrichtung emittiert wird bei über 90 % liegt [Gre13]. Als aktive Schicht dient eine Schicht PCA -InAs QPe, eingebettet in eine  $\lambda$ -dicke Kavität zwischen den Spiegeln. Nach dem Wachstum erfolgt die lithographische Definition der Struktur mittels Elektronenstrahlolithographie oder kryogener *in-situ* Lithographie. Für den Ätzprozess wird hier eine BaCl/F Maske aufgetragen, da sich diese im Gegensatz zur Ni-Ätzmaske vollständig entfernen lässt. Nach dem Ätzen der Mikrotürmchen wird die Probe mit Benzocyclobuten (BCB) planarisiert, was die Seitenwände der Mikrotürmchen gegen Oxidation schützt. Anschließend wird die Ätzmaske durch Abspülen mit Wasser entfernt. Dieser Prozess hat gegenüber der Ni-Maske den Vorteil, dass Laserlicht weniger reflektiert wird, da keine metallischen Reste auf der Facette des oberen Spiegels zurückbleiben. Abbildung 8.1(a) zeigt eine SEM Aufnahme einer solchen Mikrokavität mit einem Durchmesser von 4  $\mu\text{m}$  vor der Planarisierung mit BCB.

Zunächst wurden für die Grundcharakterisierung der Struktur Mikrotürmchen mit Durchmessern zwischen 1 – 8  $\mu\text{m}$  geätzt und der Gütefaktor in Abhängigkeit des Durchmessers bestimmt. Dazu wurden Spektren unter nichtresonanter Anregung aufgezeichnet. Ein solches beispielhaftes Spektrum eines Mikrotürmchens mit 2  $\mu\text{m}$  Durchmesser ist in Abbildung 8.1(b) dargestellt. Bei der Bestimmung



**Abbildung 8.1:** (a) SEM Aufnahme eines Mikrotürmchens mit  $4\ \mu\text{m}$  Durchmesser. (b) Beispielhaftes Spektrum eines Mikrotürmchens mit  $2\ \mu\text{m}$  Durchmesser. (c) Gütefaktoren der Fundamentalmode in Abhängigkeit des Türrchendurchmessers auf der untersuchten Probe. Aus dem Sättigungsverhalten wird der Q-Faktor der planaren Struktur zu  $Q_{2D} = 6670$  bestimmt. (d) Aus den Q-Faktoren lässt sich die maximale Auskoppel-effizienz abschätzen. Diese liegen über  $60\%$  für  $2\ \mu\text{m} < d < 4\ \mu\text{m}$ .

der Q-Faktoren für nichtresonante Anregung muss darauf geachtet werden, dass die Spektren unter hinreichend großer Anregungsleistung aufgezeichnet werden, sodass alle QP Übergänge gesättigt werden. Die breitbandige Absorption des QP-Ensembles würde ansonsten einen Verlustkanal für die Fundamentalmode darstellen (vgl. Gleichung 2.7) und die gemessenen Q-Faktoren würden somit unter den tatsächlichen Güten liegen [Gay08]. Die energetisch niedrigste Mode ist die doppelt entartete Grundmode  $\text{HE}_{11}$  des Mikrotürmchens. Die Benennung der Grundmoden erfolgt anhand der Quantenzahlen der Lösungen des radialsymmetrischen Potentialtopfes [Gut99, Rei10]. Der Q-Faktor lässt sich aus der Anpassung der Grundmode mit einer Lorentz-Funktion über Gleichung 2.6 extrahieren, woraus sich  $Q = 3770$  für das in Abbildung 8.1(b) gezeigte Spektrum ergibt. Für die auf der Probe vorhandenen Durchmesser von  $1 - 8\ \mu\text{m}$  ergibt sich der in Abbildung 8.1(c) dargestellte durchmesserabhängige Verlauf des Gütefaktors. Für kleine Durchmesser unter  $2\ \mu\text{m}$  erkennt man in Abbildung 8.1(c) deutlich einen Abfall der Q-Faktoren durch die Zunahme an Verlusten der Fundamentalmode. Der Hauptanteil dieser Abnahme

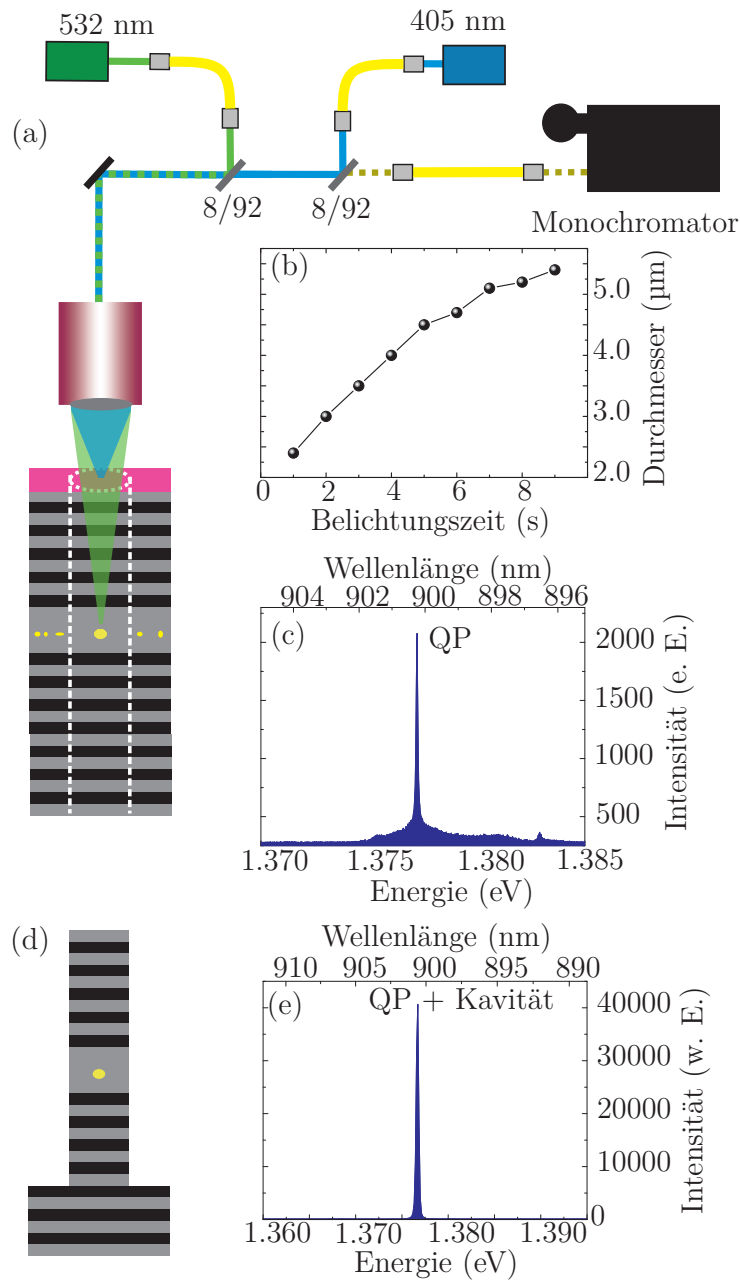
wird durch die Seitenwandstreuung der optischen Mode verursacht, welche für kleine Radien der Mikrokavität immer deutlicher zu Tage tritt. Für Durchmesser über  $4\ \mu\text{m}$  lässt sich weiterhin ein einsetzendes Sättigungsverhalten der Q-Faktoren erkennen und die gemessenen Güten nähern sich dem Wert der planaren Struktur an. Die maximale Auskoppelleffizienz unter der Annahme, dass sich der Emitter an der Stelle der maximalen Feldstärke der Fundamentalmode befindet lässt sich über Gleichung 2.31 abschätzen. Für die Berechnung des maximalen Purcell-Faktors wurde Gleichung 2.29 benutzt. Für die Abschätzung des Modenvolumens wurde der in [Böc08] berichtete Wert von  $V_M = 0,83\ \mu\text{m}^3$  für ein Mikrotürmchen mit  $2,5\ \mu\text{m}$  Durchmesser benutzt und mit dem Volumen des Mikrotürmchens skaliert. Da sich die Höhe des Mikrotürmchens nicht ändert, lässt sich somit das Modenvolumen über  $V_M(d) = \left(\frac{d}{2,5\ \mu\text{m}}\right)^2 * 0,83\ \mu\text{m}^3$  abschätzen. Die Güte der planaren Struktur wurde aus Abbildung 8.1(b) durch Extrapolation zu  $Q_{2D} = 6670$  bestimmt. Weiterhin lässt sich für Mikrotürmchen die Emission in Verlustmoden  $\gamma$  (siehe Gleichung 2.30) näherungsweise durch  $\gamma \approx 1$  beschreiben, da keine Unterdrückung der Volumenemissionsrate der QPe stattfindet [Bar02] sondern durch die Kopplung an ein optisches Feld nur zusätzliche Emissionskanäle entstehen. Die unter diesen Annahmen mit Gleichung 2.31 abgeschätzten maximalen Auskoppelleffizienzen sind in Abbildung 8.1(d) dargestellt. Für Durchmesser zwischen  $2$  und  $4\ \mu\text{m}$  lassen sich somit Gesamteffizienzen von über  $70\ \%$  erwarten.

## 8.2 In-situ-Lithographie

Um eine deterministische Kopplung eines bestimmten QPes an die Fundamentalmode eines Mikrotürmchens zu erreichen wurde innerhalb einer Zusammenarbeit von Dr. Yu-Ming He<sup>2</sup> die Technik der *in-situ*-Lithographie etabliert, welche auf einem ähnlichen Ansatz beruht wie der von Dousse *et al* berichtete [Dou08]. Das Grundprinzip basiert darauf, die Belichtung der planaren Struktur während der Untersuchung der QPe bei kryogenen Temperaturen durchzuführen statt mittels

---

<sup>2</sup>UTSC China und Technische Physik Universität Würzburg



**Abbildung 8.2:** (a) Experimenteller Aufbau zur *in-situ*-Lithographie der QP-Mikrotürmchen. (b) Über die Belichtungsdauer des Lasers lässt sich der Durchmesser der Mikrokapazität und somit die Energie der Fundamentalmode einstellen. (c) Es wird ein spektral alleinstehender QP ausgewählt, dessen Linienbreite auflösungsbegrenzt ist. (d) Nach dem Prozessieren des belichteten Bereichs entstehen Mikrotürmchen. (e) Durch die spektrale Abstimmung über den Türmchendurchmesser ist der zuvor ausgewählte QP bei Tieftemperatur in Resonanz mit der Fundamentalmode.

Elektronenstrahlolithographie bei Raumtemperatur wie bei den Proben aus Kapitel 5. Dazu wird der Lack *micro resist ma-P1215* verwendet, der eine spektrale Sensitivität zwischen 330 und 450 nm aufweist. Bei einer Beleuchtung in diesem Spektralbereich wird der Lack in seiner chemischen Zusammensetzung verändert, wodurch er beim späteren Entwickeln an den belichteten Stellen entfernt werden kann. Setzt man den Photolack hingegen grünem Licht aus, bleibt die chemische Struktur des Lacks unangetastet. Diese Zwei-Farben-Beleuchtung wird in einen  $\mu$ PL-Aufbau integriert wie es in Abbildung 8.2(a) gezeigt wird. Zur Anregung der QPe wird der grüne, cw betriebene Laser ( $\lambda = 532$  nm) verwendet, der zudem in eine SM Faser gekoppelt wird um einen gaußförmigen, symmetrischen Strahlquerschnitt zu gewährleisten. Nachdem der Laser die SM Faser kollimiert verlässt, wird er über einen 8/92-Pellicle-Strahlteiler in die optische Achse des  $\mu$ PL Aufbaus eingekoppelt. Ein weiterer blauer, cw betriebener Laser ( $\lambda = 405$  nm) wird analog über eine SM Faser und einen Pellicle-Strahlteiler auf denselben Strahlengang einjustiert. Ein 50-fach Mikroskopobjektiv ( $NA = 0,42$ ) fokussiert beide Laser und sammelt gleichzeitig das von der Probe emittierte Licht ein. Um die Ortsauflösung zu erhöhen werden die emittierten Photonen in eine SM Faser eingekoppelt, sodass der Versuchsaufbau einem Konfokalmikroskop entspricht. Das QP Signal wird daraufhin mit einem Monochromator mit  $1500 \frac{\text{Linien}}{\text{mm}}$  spektral analysiert. Die Belichtungszeit des Photolacks durch den blauen Laser lässt sich über eine elektrisch gesteuerte Verschlussblende präzise steuern. Über den Durchmesser des Mikrotürmchens lässt sich die Energieverschiebung der Fundamentalmode beeinflussen, da ein kleinerer Radius durch das zunehmende Einschlusspotential zu einer Blauverschiebung der Fundamentalmode führt [Rei10]. Als erster Schritt wurde daher der Zusammenhang zwischen Türmchendurchmesser und Beleuchtungszeit des Photolacks experimentell bestimmt. Dazu wurden an einer planaren Struktur, auf die mittels *Spin-coating* der Photolack aufgebracht wurde, kreisförmige Strukturen mit variierender Belichtungszeit bei konstanter Leistung des blauen Lasers von  $P_{405 \text{ nm}} = 5$  nW geschrieben. Anschließend wurde eine BaF/Cl Ätzmaske auf die Probe aufgebracht und die Mikrotürmchen mittels reaktivem Ionenätzen prozessiert. Abschließend werden die Mikrotürmchen mittels BCB zum Schutz vor Oxidation wieder planarisiert und die Ätzmaske in einem Ultraschallbad

entfernt. Abbildung 8.2(b) zeigt die anschließend ausgemessenen Durchmesser der Mikrokavitäten in Abhängigkeit der Belichtungszeit. Für die gewählte Intensität des blauen Lasers ergeben sich somit Belichtungszeiten zwischen 1 und 9 s um Türmchen mit Durchmessern im Bereich von ca. 2 bis 6  $\mu\text{m}$  zu erhalten.

Auf diesen Erkenntnissen aufbauend wurde daraufhin der in Abbildung 8.2(c) gezeigte QP als Emitter eines deterministisch gekoppelten Systems ausgewählt. Dieser QP ist zum einen spektral schmal, mit einer Linienbreite die unterhalb der Auflösungsgrenze des Monochromators ( $\approx 30 \mu\text{eV}$ ) liegt. Zum anderen ist im dargestellten Bereich kein zweiter QP sichtbar, sodass man erwarten kann, dass kein zweiter QP die Emission der Fundamentalmode beeinflusst und sich für den hier gezeigten QP eine sehr gute Einzelphotonenemission vermuten lässt. Mittels der im Kryostat integrierten Piezoaktuatoren (attocube systems AG ANPx101) wird das Signal anschließend maximiert um sicherzustellen, dass sich der QP genau im Zentrum des fokussierten Lasers befindet. Anschließend wurde mittels des blauen Lasers ein Mikrotürmchen definiert, sodass die Fundamentalmode der Mikrokavität zur Emissionswellenlänge des QPes passt. Nach dem Ätzen des Mikrotürmchens, was in Abbildung 8.2(d) schematisch dargestellt ist, erhält man das in Abbildung 8.2(e) gezeigte deterministisch gekoppelte System. Dieses zeichnet sich durch spektrale Resonanz zwischen QP und Fundamentalmode bei tiefen Temperaturen und durch eine sehr helle Emission in Folge der schwachen Licht-Materie-Wechselwirkung aus.

### **8.3 Grundcharakterisierung des in-situ definierten Mikrotürmchens**

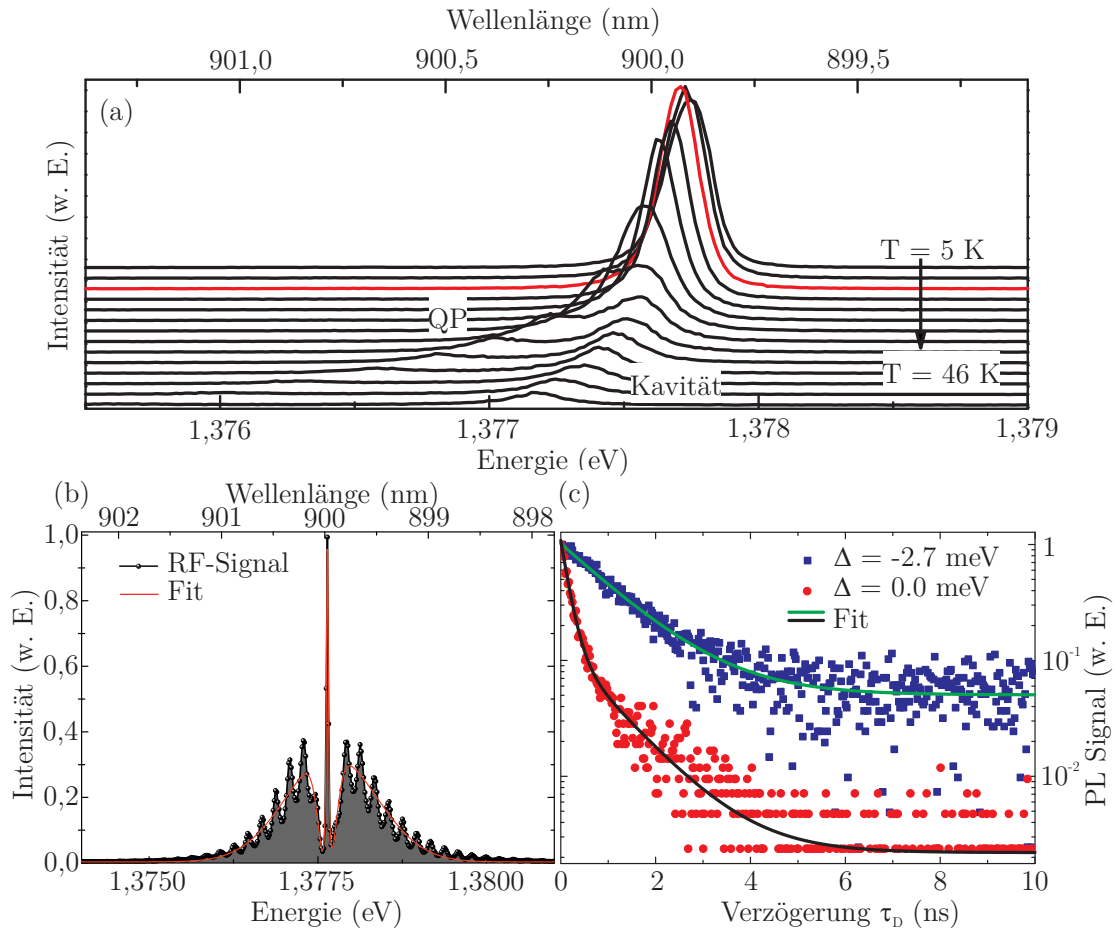
Das im vorangegangenen Abschnitt mittels *in-situ*-Lithographie deterministisch gekoppelte QP-Mikrokavität-System (siehe Abbildung 8.2(e)) bildet den Ausgangspunkt für die im weiteren Verlauf des Kapitels vorgestellten Messungen. Abbildung 8.3(a) zeigt zunächst die temperaturabhängigen Spektren des Mikrotürmchens, welche unter nichtresonanter Anregung mit einem grünen cw betriebenen Laser



aufgenommen wurden. Es zeigt sich eine deutliche Erhöhung der emittierten QP-Intensität durch den Purcell-Effekt zu tiefen Temperaturen hin, welche bei spektraler Resonanz zwischen QP und Fundamentalmode bei  $T = 17,5$  K ihr Maximum erreicht. Der Q-Faktor der Fundamentalmode wurde mittels starker nicht resonanter Anregung zu  $Q = 5930$  bestimmt ( $\gamma_C = 232 \mu\text{eV}$ ).

Abbildung 8.3(b) zeigt das Spektrum des QPes, welches unter gepulster, strikt resonanter Anregung mit einer Leistung von  $P_{\text{Laser}} = 63$  nW und für spektrale Resonanz zwischen QP und Fundamentalmode aufgezeichnet wurde. Der breitbandige Untergrund entstammt dem zurückgestreuten Laserlicht. Der experimentelle Aufbau aus zwei Linearpolarisatoren mit zueinander orthogonal eingestellten Achsen unterdrückt den Laser an der Stelle der QP-Emission sehr effizient, sodass man eine nahezu untergrundfreie QP Emission erhält. Die Anpassung der Daten erfolgte – analog zu Abschnitt 6.1 – durch die Summe aus zwei Gauß-Profilen und einer Lorentz-Funktion. Eine Gauß-Funktion modelliert dabei das Lasersignal, die zweite die Unterdrückung des Lasers und die Lorentz-Funktion das QP-Signal. Aus der Anpassung erhält man eine spektrale Breite der Laserunterdrückung von  $\Delta w_{\text{Unterdr.}} = (278 \pm 11) \mu\text{eV}$ . Dies entspricht in erster Näherung der Linienbreite der Fundamentalmode und lässt sich darauf zurückführen, dass die Fundamentalmode als eine Art spektraler Filter für das Laserlicht wirkt. Im Bereich der Fundamentalmode kann der Laser teilweise durch das Mikrotürmchen propagieren, sodass der Laser durch die Struktur transmittiert wird. Durch die erhöhte Reflektivität um den Bereich der Fundamentalmode herum wird auch mehr Licht vom Mikroresonator zurückgestreut, sodass man effektiv eine inverse optische Mode im spektralen Profil des Lasers erhält. Da die spektrale Filterung durch den Ausgangsspalt des Monochromators kleiner ist als dieses Spektralfenster wird der Laser vollständig aus dem in die Faser eingekoppelten Signal herausgefiltert. Die Oszillationen des reflektierten Laserhintergrundes lassen sich vermutlich auf die Wellenlängenabhängigkeit der Laserunterdrückung des verwendeten Messaufbaus zurückführen.

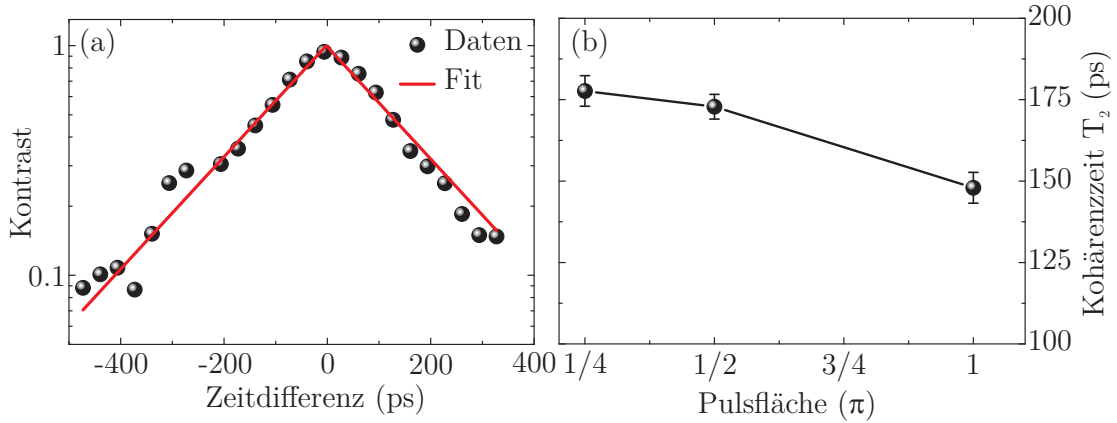
Um die Kopplungsstärke zwischen QP und Fundamentalmode quantifizieren zu können wurden die in Abbildung 8.3(b) gezeigten zeitaufgelösten Messungen des



**Abbildung 8.3:** (a) Temperaturabhängige Spektren des QP-Mikrokavität-Systems im Bereich von 5 bis 46 K, welche bei nichtresonanter Anregung aufgenommen wurden. QP und Fundamentalmode sind bei ca.  $T = 17,5$  K in Resonanz. (b) Spektrum des QPes welches sich bei gepulster, strikt resonanter Anregung ergibt. Deutlich sichtbar ist die Unterdrückung des Lasers in einem ungefähr  $280 \mu\text{eV}$  breiten Bereich und die schmalbandige Emission eines einzelnen QPes. (c) Aus der zeitaufgelösten  $\mu\text{PL}$ -Messung bei  $\Delta = 0 \text{ meV}$  und  $\Delta = -2,7 \text{ meV}$  ergibt sich ein Purcell-Faktor von  $F_P = 5,8 \pm 0,2$ .

QP Signals für spektrale Resonanz zwischen QP und Fundamentalmode, sowie für eine Verstimmung von  $\Delta = -2,7 \text{ meV} \approx 12 \cdot \gamma_C$  durchgeführt. Man erkennt den deutlich schnelleren Abfall im QP Signal für  $\Delta = 0 \text{ meV}$  durch den Purcell-Effekt. Für die Auswertung der Zerfallskurven wurde die Messung für  $\Delta = 0 \text{ meV}$  mit einem biexponentiellen Zerfall angepasst, für  $\Delta = -2,7 \text{ meV}$  hingegen mit einem monoexponentiellen Abfall. Aus den Anpassungskurven ergeben sich Lebensdauern des Exzitons von  $T_1(\Delta = 0 \text{ meV}) = (168 \pm 5) \text{ ps}$  sowie  $T_1(\Delta = -2,7 \text{ meV}) = (1140 \pm 19) \text{ ps}$ . Damit ergibt sich nach Gleichung 5.1 ein Purcell-Faktor von  $F_P = 5,8 \pm 0,2$ . Der biexponentielle Zerfall für spektrale Resonanz entstammt wahrscheinlich einem zweiten Ladungszustand des QPes. Dieser Zustand emittiert möglicherweise mit einer anderen Wellenlänge und wäre somit spektral verstimmt zur Fundamentalmode [Hen07]. Unter dieser Annahme setzt sich die Emission der Fundamentalmode somit aus Beiträgen von zwei Emittlern zusammen, wodurch man einerseits den schnellen Zerfall der hier untersuchten Spektrallinie misst, als auch einen Anteil des verstimmten und dadurch langsamer zerfallenden Ladungszustandes. Für die Messung mit  $\Delta = -2,7 \text{ meV}$  wird innerhalb des selektierten Spektralfensters kaum mehr Emission der Fundamentalmode eingesammelt. Damit wird auch nur noch das zeitaufgelöste  $\mu\text{PL}$ -Signal dieser einen Emissionslinie detektiert, woraus sich der monoexponentielle Zerfall ergibt. Aus dem gemessenen Purcell-Faktor lässt sich über Gleichung 2.30 und Gleichung 2.31 die Effizienz des Mikrotürmchens abschätzen. Mit  $F_P = 5,8 \pm 0,2$  ergibt sich unter Verwendung des Q-Faktors der planaren Struktur von  $Q_{2D} = 6670$  aus Abschnitt 8.2 eine Effizienz von  $\eta = (76 \pm 4) \%$ .

Im nächsten Schritt soll die Autokorrelation erster Ordnung der emittierten Photonen bei resonanter Anregung des QPes bestimmt werden. Dazu wird das in Abschnitt 3.4 vorgestellte Freistrah-MZI verwendet, wobei jedoch beide Arme des MZI die gleiche Länge haben. Mittels eines Piezokristalls an dem Retroreflektor des MZI wird dann der Gangunterschied der beiden Arme auf der Größenordnung der Wellenlänge verändert, sodass es abwechselnd zu konstruktiver bzw. destruktiver Interferenz am Ausgang des MZI mit der daran angeschlossenen APD kommt. Abbildung 8.4(a) zeigt den (logarithmierten) Interferenzkontrast der QP Emission in Abhängigkeit des Gangunterschiedes zwischen den beiden

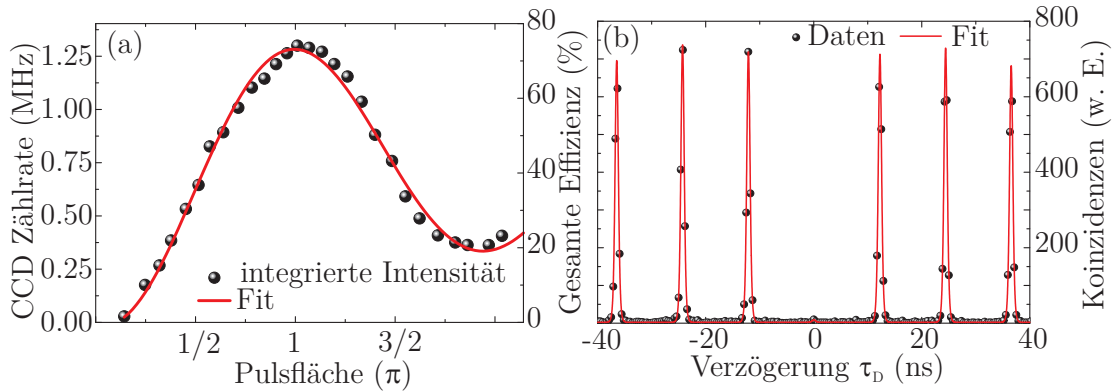


**Abbildung 8.4:** (a) Autokorrelationsfunktion erster Ordnung für  $\pi$ -Puls Anregung: Aus der Anpassung mit einem exponentiellen Zerfall ergibt sich eine Kohärenzzeit des QPes von  $T_2 = 148 \pm 5$  ps. (b) Mit sinkender Anregungsleistung nimmt die Kohärenzzeit leicht zu auf  $T_2 = (178 \pm 5)$  ps für eine Pulsfläche von  $\pi/4$ .

Armen des MZI für eine Anregung des QPes mit einem  $\pi$ -Puls, also für maximale Helligkeit der Emission. Aus der Anpassung der Daten mit einem exponentiellen Zerfall der Form  $f(\tau) \propto e^{-\frac{|\tau|}{T_2}}$  erhält man die Kohärenzzeit der QP-Emission von  $T_2 = (148 \pm 5)$  ps. Dies ist deutlich unter der für Fourier-limitierte Photonen zu erwartenden Kohärenzzeit von  $T_{2, \text{Max}} = 2 * T_1 = 336$  ps. Der Grund hierfür ist aller Wahrscheinlichkeit nach die spektrale Diffusion des QPes, möglicherweise durch eine geladene Störstelle in der Halbleitermatrix. Um die Abhängigkeit der Kohärenzzeit von der Anregungsleistung zu bestimmen wurde die Messung für eine Anregung des QPes mit einem  $\pi/2$ - sowie  $\pi/4$ -Puls wiederholt und die Ergebnisse in Abbildung 8.4(b) dargestellt. Es zeigt sich, dass die Kohärenz der QP-Photonen mit abnehmender Pumpleistung leicht bis auf  $T_2(\pi/4) = (178 \pm 5)$  ps zunimmt. Diese anregungsinduzierte Dephasierung lässt sich auf die Kopplung des QP Exzitons an LA Phononen zurückführen. Mit steigender Pumpleistung nimmt die Kopplung an das Phononenbad zu und somit auch die Dephasierung durch diese Wechselwirkung [Ram10b].

## 8.4 Effiziente und kohärente Emission einzelner Photonen

Im vorangegangenen Kapitel wurde die zu erwartende Effizienz der SPS bereits aus der Messung des Purcell-Faktors zu  $\eta = (76 \pm 4) \%$  abgeschätzt. Um die tatsächliche Effizienz zu bestimmen, muss jedoch die maximale Zählrate der SPS gemessen werden und aus der Bestimmung der Setupeffizienz  $\eta_{Setup}$  auf die emittierte Photonenrate zurückgerechnet werden. Dazu wurden zunächst Spektren für spektrale Resonanz zwischen QP und Fundamentalmode in Abhängigkeit der Pumpleistung des Lasers aufgezeichnet und aus diesen Spektren die integrierte Photonenzählrate auf der CCD des Monochromators bestimmt. Das Resultat ist in Abbildung 8.5(a) dargestellt. Man erkennt deutlich den sinusförmigen Verlauf der ersten Rabi-Oszillation durch die Kopplung des QPes an das resonante Laserfeld mit einem Maximum von etwa  $1,3 \cdot 10^6 \frac{\text{Detektionen}}{\text{s}}$ . Die Anpassung der Daten erfolgte durch Gleichung 2.22 und berücksichtigt eine Dämpfung durch die Kopplung an LA Phononen. Die Kalibration des Versuchsaufbaus erfolgte mit einem cw-Diodenlaser, der auf die Wellenlänge der QP Emission eingestellt wurde um Wellenlängenabhängigkeiten des Aufbaus zu berücksichtigen. Es ergibt sich eine Effizienz der Anordnung bis hin zur CCD des Monochromators für die Linearpolarisation des detektierten QP Lichts von  $\eta_{Lin} = (2,1 \pm 0,1) \%$ . Da die QP-Emission aus zwei – typischerweise gleichstarken – zueinander orthogonalen Polarisationskomponenten besteht, muss die gemessene Photonenrate verdoppelt werden. Unter Berücksichtigung der Setupeffizienz ergibt sich somit aus Abbildung 8.5(a) eine gesamte Effizienz der SPS von  $\eta_{EPQ} = (74 \pm 4) \%$ . Diese Effizienz muss grundsätzlich noch um eine eventuelle Multiphotonenemission des QPes über den Zusammenhang  $\eta_{\text{kor.}} = \eta \sqrt{1 - g^{(2)}(0)}$  bereinigt werden [Hei10a, Pel02]. Da das System – wie sich im weiteren Verlauf zeigt – eine nahezu perfekte Einzelphotonenemission aufweist, ändert diese Korrektur die gemessene Effizienz der SPS nicht. Die Gesamteffizienz des Systems ist zudem in sehr guter Übereinstimmung mit der aus der Messung des Purcell-Faktors erwarteten Effizienz von  $\eta = (76 \pm 4) \%$  (siehe Abschnitt 8.3). Ebenso ist die Effizienz des deterministisch gekoppelten QP-Mikrokavität-System vergleichbar zu den Bestwerten in der Literatur von ca. 80 % [Gaz13, Cla10].



**Abbildung 8.5:** (a) Gemessene integrierte Photonenrate des QPes auf der CCD des Monochromators bei gepulster resonanter Anregung. Aus der Kalibration des Versuchsaufbaus ergibt sich eine Effizienz der SPS von  $\eta_{EPQ} = (74 \pm 4) \%$ . (b) Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung für  $\pi$ -Puls Anregung und spektrale Resonanz zwischen QP und Fundamentalmode.

Die Reinheit der Einzelphotonenemission wird abermals mit dem fasergekoppelten HBT-Aufbau (siehe Abschnitt 3.2) getestet. Dazu wird das QP-Mikrokavitat-System mit einem  $\pi$ -Puls angeregt. Das mittels des Monochromators spektral selektierte QP Signal wird anschlieend in eine Faser mit dem daran angeschlossenen HBT-Versuchsaufbau eingekoppelt. Das gemessene Koinzidenzhistogramm ist in Abbildung 8.5(b) dargestellt. Die unterdruckte Peak um  $\tau \approx 0$  ist ein klarer Beweis fur die nahezu perfekte Einzelphotonenemission des Systems. Die Messung wurde mit einer Summe aus insgesamt sieben Funktionen aus Gleichung 6.1 angepasst, wobei die zuvor experimentell bestimmte Zerfallszeit beim Fit verwendet wurde. Der gemessene  $g^{(2)}(0)$ -Wert ergibt sich aus der Flache der Fitfunktionen, indem die Flache unter dem zentralen Peak durch die durchschnittliche Flache der insgesamt sechs umgebenen Peaks geteilt wird zu  $g^{(2)}(0) = 0,0092 \pm 0,0004$ . Die Emission ist somit sehr nahe an einer idealen und effizienten SPS.

## Zwei-Photonen-Interferenz

Wie die Messung der Kohärenzzeit mittels der experimentellen Bestimmung der Autokorrelationsfunktion erster Ordnung in Abschnitt 8.3 bereits gezeigt hat, unterliegt der QP Dephasierungsprozessen oder spektraler Diffusion, welche die Kohärenz der emittierten Photonen einschränken. Vor allem die schnellen Dephasierungsprozesse, die sich auf einer Zeitskala von wenigen Nanosekunden abspielen, kann man versuchen durch eine zeitlich schnellere Generation der Photonen zu umgehen (vgl. [Tho16] und Kapitel 6). Abbildung 8.6(a) zeigt das aus der Korrelation zwischen den beiden Ausgängen des MZI aufgezeichnete Koinzidenzhistogramm für die Anregung des QPes mit einem  $\pi/4$ -Puls und  $\Delta = 0$  meV. Die deutliche Unterdrückung des zentralen Peaks um  $\tau \approx 0$  ist der Nachweis der Quanteninterferenz der beiden Photonen. Die Kurvenanpassung erfolgt mit Gleichung 6.1, wobei insgesamt fünf dieser Peaks an das aufgezeichnete Histogramm angepasst werden. Als Zerfallskonstante wird für jeden Peak die gemessene Lebensdauer des QPes (siehe Abschnitt 8.3) verwendet. Für die Referenzmessung wird die Polarisation der Lichtteilchen in einem Arm des MZI um  $90^\circ$  gedreht und die Photonen somit unterscheidbar gemacht. Diese Messung ist in Abbildung 8.6(b) dargestellt. Im Vergleich mit der Messung mit parallel eingestellter Polarisation erkennt man, dass der zentrale Peak nun nicht mehr unterdrückt ist, sondern in etwa so hoch wie die beiden benachbarten Peaks bei  $\tau = \pm 2$  ns. Die Visibilität der ZPI ergibt sich aus den Peakflächen die man aus der Datenanpassung erhält über Gleichung 6.2. Für die beiden Messungen aus 8.6(a) und 8.6(b) erhält man  $\nu = (84 \pm 3) \%$ . Diese unkorrigierte Visibilität ist jedoch noch von leichten Imperfektionen des MZI beeinflusst. So führt eine Abweichung des zweiten 50/50-Strahlteilers von  $R = T = 0,5$  zu einer negativen Beeinflussung des Ergebnisses, ebenso wie eine leichte Dejustage der Strahlengänge der beiden Arme des MZI. Dies führt zu einem unvollständigen räumlichen Überlapp der Wellenpakete am ST und senkt somit die Interferenzvisibilität der Photonen. Mittels eines äußerst schmalbandigen Diodenlasers wird der Interferenzkontrast des MZI zu  $(1 - \epsilon) = 0,98$  bestimmt. Der Strahlteiler weicht von der Spezifikation ebenfalls leicht ab und es ergibt sich eine Reflektivität von  $R = 0,485$  und eine Transmission von  $T = 0,515$ . Nach [San02] wird der zentrale

Peak des Koinzidenzhistogramms für parallele bzw. orthogonale Polarisationen ( $A_{\parallel}$  bzw.  $A_{\perp}$ ) durch diese Imperfektionen folgendermaßen beeinflusst:

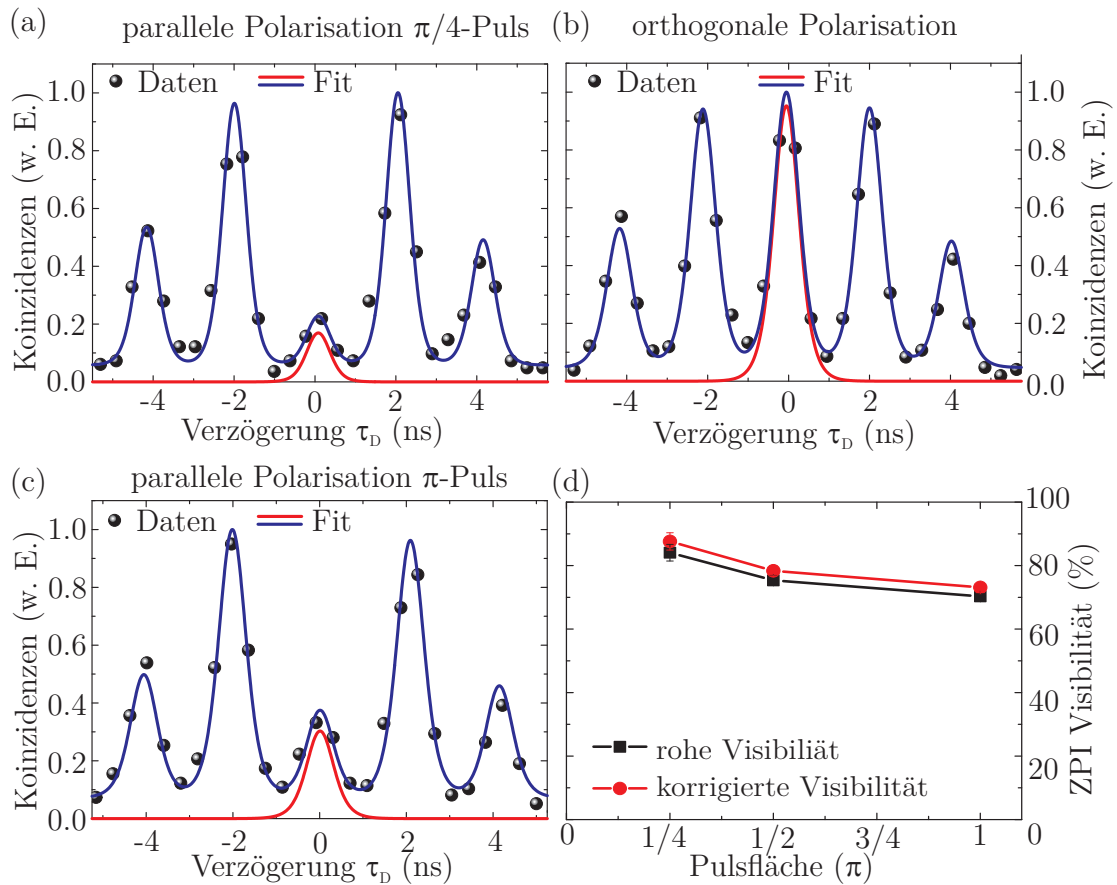
$$A_{\parallel} \propto (R^3T + RT^3) \cdot (1 + 2g^*) - 2(1 - \epsilon)^2 R^2 T^2 \nu \quad (8.1a)$$

$$A_{\perp} \propto (R^3T + RT^3) \cdot (1 + 2g^*) \quad (8.1b)$$

$R$  und  $T$  ist dabei die Reflektivität bzw. Transmission des Strahlteilers,  $(1 - \epsilon)$  ist der Interferenzkontrast des MZI,  $g^*$  ist der  $g^{(2)}(0)$ -Wert aus der Autokorrelationsmessung zweiter Ordnung der sich ergibt, wenn man zur Berechnung nur den jeweils nächsten Peak um  $\tau = 0$  ns heranzieht und  $\nu$  ist die Visibilität der ZPI ohne Beeinflussung des Messaufbaus. Die beiden Gleichungen unterscheiden sich dahingehend, dass man Gleichung 8.1b aus Gleichung 8.1a erhält wenn man  $\nu = 0$  setzt. Unter Berücksichtigung dieser Korrektur ergibt sich eine korrigierte ZPI Visibilität von  $\nu_{\text{kor.}} = (88 \pm 3) \%$ .

Abbildung 8.6(c) zeigt das Koinzidenzhistogramm für eine komplette Inversion der Exzitonbesetzung mit einem  $\pi$ -Puls. Für eine maximale Helligkeit der SPS lässt sich eine leichte Abnahme der ZPI auf korrigierte  $\nu_{\pi} = (73 \pm 1) \%$  beobachten. Dies liegt höchstwahrscheinlich an der Kopplung des QPs an LA Phononen und der damit einhergehenden anregungsinduzierten Dephasierung. Diesen Effekt könnte man durch eine Reduzierung der Phononenbesetzung minimieren. Dazu müssen QP und Fundamentalmode bei tieferen Temperaturen als bei dem hier vorgestellten System von  $T = 17,5$  K in Resonanz sein. Da es jedoch häufig zu beobachten ist, dass die QP Emission bei mehreren Einkühl- und Aufwärm-Zyklen energetisch leicht variiert, kann es durch die *in-situ*-Lithographie nicht zu 100 % sichergestellt werden, dass QP und Fundamentalmode bei 4,2 K in Resonanz sind. Eine Möglichkeit dies zu umgehen wäre die Anbringung von elektrischen Kontakten an der Ober- und Unterseite des Mikrotürmchens. Damit kann die QP Energie mittels angelegter elektrischer Felder und dem sog. *quantum-confined Stark effect* verändert werden und somit spektrale Resonanz ohne Erhöhung der Proben temperatur erreicht werden [Emp97, Kis08, Lau09, Ben10a, Ben10b]. Ein weiterer vielversprechender Ansatz ist die Änderung der Emissionswellenlänge über Verspannungen mittels





**Abbildung 8.6:** (a) ZPI welche bei einer Anregung mit  $\pi/4$ -Puls und für  $\Delta = 0$  meV gemessen wurde. (b) Referenzmessung mit orthogonalen Polarisationen der beiden Photonen. Aus (a) und (b) ergibt sich eine korrigierte Visibilität der ZPI von  $\nu = (88 \pm 3)$  %. (c) ZPI welche für  $\pi$ -Puls Anregung des QPes gemessen wurde. Die Visibilität sinkt leicht auf  $\nu = (73 \pm 1)$  %. (d) Zusammenfassung der ZPI Visibilität in Abhängigkeit der Pulsfläche.

eines unter der Probe angebrachten Piezokristalls [Din10, Tro12, Kre14, Zha15, Tro16, Che16]. Abbildung 8.6(d) fasst die Ergebnisse der ZPI Messungen noch einmal zusammen. Der Graph zeigt qualitativ den gleichen Verlauf wie die direkte Messung der Kohärenzzeit in Abbildung 8.4(b). Wie bereits erläutert, lässt sich durch die Kopplung an LA Phononen in Verbindung mit einer Proben temperatur von  $T = 17,5$  K eine kontinuierlich abnehmende ZPI Visibilität mit steigender Anregungsleistung beobachten.

## Zusammenfassung des Kapitels

Aufbauend auf den Ergebnissen aus Kapitel 5 und Kapitel 6 wurde in diesem Teil der Arbeit die strikt resonante Anregung eines QPes in einem Mikrosäulenresonator realisiert. Im Hinblick auf die Realisierung skalierbarer und effizienter QP-Bauelemente wurde eine Mikrotürmchenprobe verwendet, bei der die Belichtung der Strukturen mittels der kryogenen *in-situ*-Lithographie stattfand. Diese Technik erlaubt es, eine definierte QP-Emissionslinie lateral und spektral auf den Mikroresonator abzustimmen und den Emittor somit deterministisch an die Grundmode eines Mikrotürmchens zu koppeln. Daraufhin wurde im Hinblick auf die Erzeugung kohärenter einzelner Photonen die gepulste resonante Anregung dieses Systems etabliert. Die dabei erreichte Extraktionseffizienz ist mit  $\eta = (74 \pm 4) \%$  im Einklang mit den Bestwerten, die in der Literatur berichtet werden. Durch die strikt resonante Anregung konnte dabei unter Anregung des Systems mit einem  $\pi$ -Puls eine nahezu ideale Einzelphotonenemission erzielt werden, was durch  $g^{(2)}(0) = 0,0092 \pm 0,0004$  charakterisiert wird. Gleichzeitig konnte gezeigt werden, dass die Emission aus diesem deterministisch gekoppelten QP-Mikrokavitat-System zu einem sehr hohen Grad koharent ist. Dies wurde durch Interferenzmessungen von konsekutiv emittierten Photonen nachgewiesen, wobei eine maximale ZPI Visibilitat von  $\nu = (88 \pm 3) \%$  nachgewiesen wurde. Diese Ergebnisse stellen zusammen mit einer ahnlichen Arbeit von Somaschi *et al.* – welche zeitgleich zu dieser Arbeit realisiert wurde – den momentanen Stand der Technik hinsichtlich effizienter und koharenter Einzelphotonenquellen dar [Som16]. Im Vergleich zu den hier erzielten Ergebnissen ist die von Somaschi *et al.* berichtete ZPI Visibilitat von einem deterministisch gekoppelten QP-Mikrokavitat-System um etwa 10 % hoher. Die Gesamteffizienz der Quelle ist jedoch mit  $\eta \approx 32 \%$  unter den hier berichteten Werten. Da die hier durchgefuhrten ZPI Experimente immer auf der Interferenz linear polarisierter Photonen beruhen, ist fur eine zukunftige Anwendung vor allem die Extraktionseffizienz von linear polarisierten Photonen von Interesse. Einen moglichen nachsten Entwicklungsschritt, stellt die lithographische Definition von elliptischen statt runden Mikroturmchen dar. Durch die Elliptizitat spaltet die Grundmode des Mikroturmchens energetisch in zwei linear polarisierte Komponenten auf [Dar06].

Koppelt man nun den QP gezielt an eine dieser Moden emittiert das System immer linear polarisierte Photonen, wodurch sich die nutzbare Photonenrate der Struktur im Idealfall verdoppelt. Weiteres Verbesserungspotential liegt in der Unterdrückung der Emission des QPes in die Leckmoden des Mikrotürmchens. Unterdrückt man diese Moden – beispielsweise über radiale DBR Spiegel um das Mikrotürmchen herum – ließe sich die gesamte Extraktionseffizienz unpolarisierter Photonen weiter steigern [Bay01, Jak14].

Die Resultate dieses Kapitels wurden in „S. Unsleber *et al.*, Optics Express **23**, 32977-32985 (2015)“ und „S. Unsleber *et al.*, Optics Express **24**, 8539-8546 (2016)“ publiziert.



# Liste der verwendeten Abkürzungen

<b>μPL</b>	Mikro-Photolumineszenz
<b>APD</b>	Lawinenphotodiode, vom englischen <i>avalanche photo diode</i>
<b>BCB</b>	Benzocyclobuten
<b>CCD</b>	Ladungsgekoppeltes Bauelement, vom englischen <i>charge-coupled device</i>
<b>cw</b>	Dauerstrich , vom englischen <i>continuous wave</i>
<b>DBR</b>	Bragg-Spiegel , vom englischen <i>distributed Bragg reflector</i>
<b>DOP</b>	Polarisationsgrad , vom englischen <i>degree of polarization</i>
<b>FSA</b>	Feinstrukturaufspaltung
<b>FWHM</b>	Halbwertsbreite , vom englischen <i>full width at half maximum</i>
<b>HBT</b>	Hanbury-Brown und Twiss
<b>HOM</b>	Hong-Ou-Mandel
<b>LA</b>	longitudinal akustisch
<b>LO</b>	longitudinal optisch
<b>MBE</b>	Molekularstrahlepitaxie , vom englischen <i>molecular beam epitaxy</i>
<b>MI</b>	Michelson-Interferometer
<b>MZI</b>	Mach-Zehnder-Interferometer
<b>PCA</b>	teilweise bedecken und ausheilen , vom englischen <i>partial capping and annealing</i>

<b>PMMA</b>	Polymethylmethacrylat
<b>QKD</b>	Quantenschlüsselverteilung , vom englischen <i>quantum key distribution</i>
<b>QP</b>	Quantenpunkt
<b>Qubit</b>	Quanten-Bit
<b>REM</b>	Rasterelektronenmikroskopie
<b>RF</b>	Resonanzfluoreszenz
<b>SM</b>	monomodig , vom englischen <i>single mode</i>
<b>SPS</b>	Einzelphotonenquelle, im englischen <i>single photon source</i>
<b>STEM</b>	Raster-Transmissionselektronenmikroskopie , vom englischen <i>scanning tunneling electron microscopy</i>
<b>TAC</b>	Zeit-zu-Amplituden-Konverter , vom englischen <i>time to amplitude converter</i>
<b>UHV</b>	Ultrahochvakuum
<b>XSTM</b>	Querschnitt-Rastertunnelmikroskopie , vom englischen <i>cross-sectional scanning tunneling-microscopy</i>
<b>ZPI</b>	Zwei-Photonen Interferenz

# Literaturverzeichnis

- [Aar11] S. Aaronson und A. Arkhipov, *The computational complexity of linear optics*, in *Proceedings of the Forty-third Annual ACM Symposium on Theory of Computing*, STOC '11, S. 333–342, ACM, New York, NY, USA (2011).
- [Ako06] N. Akopian, N. H. Lindner, E. Poem, Y. Berlatzky, J. Avron, D. Gershoni, B. D. Gerardot und P. M. Petroff, *Entangled photon pairs from semiconductor quantum dots*, *Phys. Rev. Lett.* **96**(13), S. 130501 (2006).
- [Alb10] F. Albert, S. Stobbe, C. Schneider, T. Heindel, S. Reitzenstein, S. Höfling, P. Lodahl, L. Worschech und A. Forchel, *Quantum efficiency and oscillator strength of site-controlled InAs quantum dots*, *Appl. Phys. Lett.* **96**(15), S. 151102 (2010).
- [All07] B. Alloing, C. Zinoni, L. Li, A. Fiore und G. Patriarche, *Structural and optical properties of low-density and In-rich InAs/GaAs quantum dots*, *J. Appl. Phys.* **101**(2), S. 24918 (2007).
- [And99] L. C. Andreani, G. Panzarini und J.-M. Gérard, *Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities: Theory*, *Phys. Rev. B* **60**(19), S. 13276 (1999).
- [Arc14] M. Arcari, I. Söllner, A. Javadi, S. Lindskov Hansen, S. Mahmoodian, J. Liu, H. Thyrrestrup, E. H. Lee, J. D. Song, S. Stobbe und P. Lodahl, *Near-unity coupling efficiency of a quantum emitter to a photonic crystal waveguide*, *Phys. Rev. Lett.* **113**, S. 093603 (2014).

- [Ard14] P.-L. Ardel, L. Hanschke, K. A. Fischer, K. Müller, A. Kleinkauf, M. Koller, A. Bechtold, T. Simmet, J. Wierzbowski, H. Riedl et al., *Dissipative preparation of the exciton and biexciton in self-assembled quantum dots on picosecond time scales*, Phys. Rev. B **90**(24), S. 241404 (2014).
- [Arm03] D. Armani, T. Kippenberg, S. Spillane und K. Vahala, *Ultra-high- $q$  toroid microcavity on a chip*, Nature **421**(6926), S. 925 (2003).
- [Ate09a] S. Ates, S. Ulrich, A. Ulhaq, S. Reitzenstein, A. Löffler, S. Höfling, A. Forchel und P. Michler, *Non-resonant dot-cavity coupling and its potential for resonant single-quantum-dot spectroscopy*, Nat. Photonics **3**(12), S. 724 (2009).
- [Ate09b] S. Ates, S. M. Ulrich, S. Reitzenstein, A. Löffler, A. Forchel und P. Michler, *Post-selected indistinguishable photons from the resonance fluorescence of a single quantum dot in a microcavity*, Phys. Rev. Lett. **103**(16), S. 167402 (2009).
- [Bai04a] M. H. Baier, E. Pelucchi, E. Kapon, S. Varoutsis, M. Gallart, I. Robert-Philip und I. Abram, *Single photon emission from site-controlled pyramidal quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **84**(5), S. 648 (2004).
- [Bai04b] M. H. Baier, S. Watanabe, E. Pelucchi und E. Kapon, *High uniformity of site-controlled pyramidal quantum dots grown on prepatterned substrates*, Appl. Phys. Lett. **84**(11), S. 1943 (2004).
- [Bar02] W. Barnes, G. Björk, J. Gérard, P. Jonsson, J. Wasey, P. Worthing und V. Zwiller, *Solid-state single photon sources: light collection strategies*, Eur. Phys. J. D **18**(2), S. 197 (2002).
- [Bas92] T. Basché, W. E. Moerner, M. Orrit und H. Talon, *Photon antibunching in the fluorescence of a single dye molecule trapped in a solid*, Phys. Rev. Lett. **69**, S. 1516 (1992).
- [Bay99] M. Bayer, A. Kuther, A. Forchel, A. Gorbunov, V. B. Timofeev, F. Schäfer, J. P. Reithmaier, T. L. Reinecke und S. N. Walck, *Electron and*



- hole g factors and exchange interaction from studies of the exciton fine structure in  $\text{In}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}\text{As}$  quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **82**, S. 1748 (1999).
- [Bay01] M. Bayer, T. Reinecke, F. Weidner, A. Larionov, A. McDonald und A. Forchel, *Inhibition and enhancement of the spontaneous emission of quantum dots in structured microresonators*, Phys. Rev. Lett. **86**(14), S. 3168 (2001).
- [Bay02a] M. Bayer und A. Forchel, *Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in  $\text{In}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}\text{As}/\text{GaAs}$  self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B **65**, S. 041308 (2002).
- [Bay02b] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. A. Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. L. Reinecke, S. N. Walck, J. P. Reithmaier, F. Klopff und F. Schäfer, *Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled  $\text{In}(\text{Ga})\text{As}/(\text{Al})\text{GaAs}$  quantum dots, theory*, Phys. Rev. B **65**, S. 195315 (2002).
- [Bec01] C. Becher, A. Kiraz, P. Michler, A. Imamoğlu, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang und E. Hu, *Nonclassical radiation from a single self-assembled  $\text{InAs}$  quantum dot*, Phys. Rev. B **63**(12), S. 121312 (2001).
- [Bee13] J. Beetz, T. Braun, C. Schneider, S. Höfling und M. Kamp, *Anisotropic strain-tuning of quantum dots inside a photonic crystal cavity*, Semicond. Sci. Technol. **28**(12), S. 122002 (2013).
- [Ben84] C. H. Bennett und G. Brassard, *Quantum cryptography: Public key distribution and coin tossing*, IEEE International Conference on Computers, Systems, and Signal Processing (1984).
- [Ben93] C. H. Bennett, G. Brassard, C. Crépeau, R. Jozsa, A. Peres und W. K. Wootters, *Teleporting an unknown quantum state via dual classical and einstein-podolsky-rosen channels*, Phys. Rev. Lett. **70**, S. 1895 (1993).
- [Ben10a] A. J. Bennett, R. B. Patel, J. Skiba-Szymanska, C. A. Nicoll, I. Farrer, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Giant stark effect in the emission of*

- single semiconductor quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **97**(3), 031104 (2010).
- [Ben10b] A. J. Bennett, M. A. Pooley, R. M. Stevenson, M. B. Ward, R. B. Patel, A. B. de la Giroday, N. Skold, I. Farrer, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Electric-field-induced coherent coupling of the exciton states in a single quantum dot*, Nat. Phys. **6**(12), S. 947 (2010).
- [Ben10c] O. Benson, *Entangled photons from a light-emitting diode*, ChemPhysChem **11**(16), S. 3395 (2010).
- [Ber06] A. Berthelot, I. Favero, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, P. Roussignol, R. Ferreira und J.-M. Gérard, *Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantum dot*, Nat. Phys. **2**(11), S. 759 (2006).
- [Bim71] D. Bimberg, M. Sondergeld und E. Grobe, *Thermal dissociation of excitons bounds to neutral acceptors in high-purity GaAs*, Phys. Rev. B **4**, S. 3451 (1971).
- [Bir06] S. Birner, S. Hackenbuchner, M. Sabathil, G. Zandler, J. Majewski, T. Andlauer, T. Zibold, R. Morschl, A. Trellakis und P. Vogl, *Modeling of semiconductor nanostructures with nextnano<sup>3</sup>*, Acta Physica Polonica Series A **110**(2), S. 111 (2006).
- [Bir07] S. Birner, T. Zibold, T. Andlauer, T. Kubis, M. Sabathil, A. Trellakis und P. Vogl, *Nextnano: general purpose 3-d simulations*, IEEE Transactions on Electron Devices **54**(9), S. 2137 (2007).
- [Böc08] C. Böckler, S. Reitzenstein, C. Kistner, R. Debusmann, A. Löffler, T. Kida, S. Höfling, A. Forchel, L. Grenouillet, J. Claudon und J. M. Gérard, *Electrically driven high-q quantum dot-micropillar cavities*, Appl. Phys. Lett. **92**(9), 091107 (2008).
- [Bor02] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. Sellin, D. Ouyang und D. Bimberg, *Rabi oscillations in the excitonic ground-state transition of InGaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **66**(8), S. 081306 (2002).

- [Bou15] S. Bounouar, M. Müller, A. M. Barth, M. Glässl, V. M. Axt und P. Michler, *Phonon-assisted robust and deterministic two-photon biexciton preparation in a quantum dot*, Phys. Rev. B **91**, S. 161302 (2015).
- [Bra05] A. S. Bracker, E. A. Stinaff, D. Gammon, M. E. Ware, J. G. Tischler, A. Shabaev, A. L. Efros, D. Park, D. Gershoni, V. L. Korenev und I. A. Merkulov, *Optical pumping of the electronic and nuclear spin of single charge-tunable quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **94**, S. 047402 (2005).
- [Bra13] T. Braun, S. Unsleber, V. Baumann, M. Gschrey, S. Rodt, S. Reitzenstein, C. Schneider, S. Höfling und M. Kamp, *Cascaded emission of linearly polarized single photons from positioned InP/GaInP quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **103**(19), S. 191113 (2013).
- [Bra16] T. Braun, S. Betzold, N. Lundt, M. Kamp, S. Höfling und C. Schneider, *Impact of ex situ rapid thermal annealing on magneto-optical properties and oscillator strength of In(Ga)As quantum dots*, Phys. Rev. B **93**, S. 155307 (2016).
- [Bre02] H.-P. Breuer und F. Petruccione, *The theory of open quantum systems*, Oxford University Press on Demand (2002).
- [Bri98] H.-J. Briegel, W. Dür, J. I. Cirac und P. Zoller, *Quantum repeaters: The role of imperfect local operations in quantum communication*, Phys. Rev. Lett. **81**(26), S. 5932 (1998).
- [Bro00] R. Brouri, A. Beveratos, J.-P. Poizat und P. Grangier, *Photon antibunching in the fluorescence of individual color centers in diamond*, Opt. Lett. **25**(17), S. 1294 (2000).
- [Byl03] J. Bylander, I. Robert-Philip und I. Abram, *Interference and correlation of two independent photons*, Eur. Phys. J. D **22**(2), S. 295 (2003).
- [Car98] H. J. Carmichael, *Statistical Methods in Quantum Optics 1: Master Equations and Fokker-Planck Equations*, Springer (1998).

- [Cas14] S. Castelletto, B. C. Johnson, V. Ivády, N. Stavrias, T. Umeda, A. Gali und T. Ohshima, *A silicon carbide room-temperature single-photon source*, Nat. Mater. **13**(2), S. 151 (2014).
- [Cha15] C. Chakraborty, L. Kinnischtzke, K. M. Goodfellow, R. Beams und A. N. Vamivakas, *Voltage-controlled quantum light from an atomically thin semiconductor*, Nat. Nanotechnol. **10**(6), S. 507 (2015).
- [Che04] P. Chen, C. Piermarocchi, L. Sham, D. Gammon und D. Steel, *Theory of quantum optical control of a single spin in a quantum dot*, Phys. Rev. B **69**(7), S. 075320 (2004).
- [Che16] Y. Chen, J. Zhang, M. Zopf, K. Jung, R. Keil, F. Ding und O. Schmidt, *Wavelength-tunable entangled photons from silicon-integrated III-V quantum dots*, Nat. Commun. **7** (2016).
- [Cla10] J. Claudon, J. Bleuse, N. S. Malik, M. Bazin, P. Jaffrennou, N. Gregersen, C. Sauvan, P. Lalanne und J.-M. Gérard, *A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire*, Nat. Photonics **4**(3), S. 174 (2010).
- [Dar06] A. Daraei, A. Tahraoui, D. Sanvitto, J. A. Timpson, P. W. Fry, M. Hopkinson, P. S. S. Guimãres, H. Vinck, D. M. Whittaker, M. S. Skolnick und A. M. Fox, *Control of polarized single quantum dot emission in high-quality-factor microcavity pillars*, Applied Physics Letters **88**(5), 051113 (2006).
- [Deu92] D. Deutsch und R. Jozsa, *Rapid solution of problems by quantum computation*, Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences **439**(1907), S. 553 (1992).
- [DG11] K. De Greve, P. L. McMahon, D. Press, T. D. Ladd, D. Bisping, C. Schneider, M. Kamp, L. Worschech, S. Hofling, A. Forchel und Y. Yamamoto, *Ultrafast coherent control and suppressed nuclear feedback of a single quantum dot hole qubit*, Nat. Phys. **7**(11), S. 872 (2011).

- [DG12] K. De Greve, L. Yu, P. L. McMahon, J. S. Pelc, C. M. Natarajan, N. Y. Kim, E. Abe, S. Maier, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, R. H. Hadfield, A. Forchel, M. M. Fejer und Y. Yamamoto, *Quantum-dot spin-photon entanglement via frequency downconversion to telecom wavelength*, Nature **491**(7424), S. 421 (2012).
- [Die87] F. Diedrich und H. Walther, *Nonclassical radiation of a single stored ion*, Phys. Rev. Lett. **58**, S. 203 (1987).
- [Die16] C. P. Dietrich, A. Fiore, M. Thompson, M. Kamp und S. Höfling, *GaAs integrated quantum photonics: Towards dense and fully-functional quantum photonic integrated circuits*, arXiv preprint arXiv:1601.06956 (2016).
- [Din10] F. Ding, R. Singh, J. D. Plumhof, T. Zander, V. Křápek, Y. H. Chen, M. Benyoucef, V. Zwiller, K. Dörr, G. Bester, A. Rastelli und O. G. Schmidt, *Tuning the exciton binding energies in single self-assembled InGaAs/GaAs quantum dots by piezoelectric-induced biaxial stress*, Phys. Rev. Lett. **104**, S. 067405 (2010).
- [Din16] X. Ding, Y. He, Z.-C. Duan, N. Gregersen, M.-C. Chen, S. Unsleber, S. Maier, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, C.-Y. Lu und J.-W. Pan, *On-demand single photons with high extraction efficiency and near-unity indistinguishability from a resonantly driven quantum dot in a micropillar*, Phys. Rev. Lett. **116**(2), S. 020401 (2016).
- [Dou08] A. Dousse, L. Lanco, J. Suffczyński, E. Semenova, A. Miard, A. Lemaître, I. Sagnes, C. Roblin, J. Bloch und P. Senellart, *Controlled light-matter coupling for a single quantum dot embedded in a pillar microcavity using far-field optical lithography*, Phys. Rev. Lett. **101**(26), S. 267404 (2008).
- [Dou10] A. Dousse, J. Suffczynski, A. Beveratos, O. Krebs, A. Lemaitre, I. Sagnes, J. Bloch, P. Voisin und P. Senellart, *Ultrabright source of entangled photon pairs*, Nature **466**, S. 217 (2010).

- [Dua01] L. Duan, M. Lukin, J. Cirac und P. Zoller, *Long-distance quantum communication with atomic ensembles and linear optics*, Nature **414**(6862), S. 413 (2001).
- [Eke91] A. K. Ekert, *Quantum cryptography based on Bell's theorem*, Phys. Rev. Lett. **67**, S. 661 (1991).
- [Ell08] D. J. P. Ellis, A. J. Bennett, S. J. Dewhurst, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Cavity-enhanced radiative emission rate in a single-photon-emitting diode operating at 0.5 GHz*, New J. Phys. **10**(4), S. 043035 (2008).
- [Emp97] S. A. Empedocles und M. G. Bawendi, *Quantum-confined stark effect in CdSe nanocrystallite quantum dots*, Science (1997).
- [Eng05] D. Englund, D. Fattal, E. Waks, G. Solomon, B. Zhang, T. Nakaoka, Y. Arakawa, Y. Yamamoto und J. Vučković, *Controlling the spontaneous emission rate of single quantum dots in a two-dimensional photonic crystal*, Phys. Rev. Lett. **95**(1), S. 013904 (2005).
- [Eng06] D. Englund und J. Vučković, *A direct analysis of photonic nanostructures*, Opt. Express **14**(8), S. 3472 (2006).
- [Fin01] J. J. Finley, P. W. Fry, A. D. Ashmore, A. Lemaître, A. I. Tartakovskii, R. Oulton, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, P. D. Buckle und P. A. Maksym, *Observation of multicharged excitons and biexcitons in a single InGaAs quantum dot*, Phys. Rev. B **63**(16), S. 161305 (2001).
- [Fox06] M. Fox, *Quantum Optics: An Introduction*, OUP Oxford (2006).
- [Gao12] W. Gao, P. Fallahi, E. Togan, J. Miguel-Sánchez und A. Imamoglu, *Observation of entanglement between a quantum dot spin and a single photon*, Nature **491**(7424), S. 426 (2012).
- [Gao13] W. Gao, P. Fallahi, E. Togan, A. Delteil, Y. Chin, J. Miguel-Sanchez und A. Imamoglu, *Quantum teleportation from a propagating photon to a solid-state spin qubit*, Nat. Commun. **4** (2013).

- [Gar97] J. Garcia, G. Medeiros-Ribeiro, K. Schmidt, T. Ngo, J. Feng, A. Lorke, J. Kotthaus und P. M. Petroff, *Intermixing and shape changes during the formation of inas self-assembled quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **71**(14), S. 2014 (1997).
- [Gar15] B. T. Gard, K. R. Motes, J. P. Olson, P. P. Rohde und J. P. Dowling, *An introduction to boson-sampling*, In: „From Atomic to Mesoscale: The Role of Quantum Coherence in Systems of Various Complexities“, Ausgabe **1**, S. 167 (2015).
- [Gay03] B. Gayral und J.-M. Gérard, *Comment on “single-mode spontaneous emission from a single quantum dot in a three-dimensional microcavity”*, Phys. Rev. Lett. **90**, S. 229701 (2003).
- [Gay08] B. Gayral und J. M. Gérard, *Photoluminescence experiment on quantum dots embedded in a large Purcell-factor microcavity*, Phys. Rev. B **78**, S. 235306 (2008).
- [Gaz13] O. Gazzano, S. Michaelis de Vasconcellos, C. Arnold, A. Nowak, E. Galopin, I. Sagnes, L. Lanco, A. Lemâtre und P. Senellart, *Bright solid-state sources of indistinguishable single photons*, Nat. Commun. **4**, S. 1425 (2013).
- [Gér96] J. M. Gérard, D. Barrier, J. Y. Marzin, R. Kuszelewicz, L. Manin, E. Costard, V. Thierry-Mieg und T. Rivera, *Quantum boxes as active probes for photonic microstructures: The pillar microcavity case*, Appl. Phys. Lett. **69**(4), S. 449 (1996).
- [Gér98] J. M. Gérard, B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard und V. Thierry-Mieg, *Enhanced spontaneous emission by quantum boxes in a monolithic optical microcavity*, Phys. Rev. Lett. **81**, S. 1110 (1998).
- [Gér99] J.-M. Gérard und B. Gayral, *Strong purcell effect for inas quantum boxes in three-dimensional solid-state microcavities*, J. Lightwave Technol. **17**(11), S. 2089 (1999).

- [Gid11] A. Giddings, J. Keizer, M. Hara, G. Hamhuis, H. Yuasa, H. Fukuzawa und P. Koenraad, *Composition profiling of InAs quantum dots and wetting layers by atom probe tomography and cross-sectional scanning tunneling microscopy*, Phys. Rev. B **83**(20), S. 205308 (2011).
- [Gis02] N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel und H. Zbinden, *Quantum cryptography*, Rev. Mod. Phys. **74**(1), S. 145 (2002).
- [Gis07] N. Gisin und R. Thew, *Quantum communication*, Nat. Photonics **1**(3), S. 165 (2007).
- [Gla63] R. J. Glauber, *The quantum theory of optical coherence*, Phys. Rev. **130**, S. 2529 (1963).
- [Gol14] P. Gold, A. Thoma, S. Maier, S. Reitzenstein, C. Schneider, S. Höfling und M. Kamp, *Two-photon interference from remote quantum dots with inhomogeneously broadened linewidths*, Phys. Rev. B **89**, S. 035313 (2014).
- [Gra07] T. Grange, R. Ferreira und G. Bastard, *Polaron relaxation in self-assembled quantum dots: Breakdown of the semiclassical model*, Phys. Rev. B **76**, S. 241304 (2007).
- [Gre13] N. Gregersen, P. Kaer und J. Mork, *Modeling and design of high-efficiency single-photon sources*, IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. **19**(5), S. 1 (2013).
- [Gro96] L. K. Grover, *A fast quantum mechanical algorithm for database search*, in *Proceedings of the twenty-eighth annual ACM symposium on Theory of computing*, S. 212–219, ACM (1996).
- [Gsc15] M. Gschrey, A. Thoma, P. Schnauber, M. Seifried, R. Schmidt, B. Wohlfeil, L. Kruger, J. H. Schulze, T. Heindel, S. Burger, F. Schmidt, A. Strittmatter, S. Rodt und S. Reitzenstein, *Highly indistinguishable photons from deterministic quantum-dot microlenses utilizing three-dimensional in situ electron-beam lithography*, Nat. Commun. **6**, S. (2015).



- [Gut99] T. Gutbrod, M. Bayer, A. Forchel, P. Knipp, T. Reinecke, A. Tartakovskii, V. Kulakovskii, N. Gippius und S. Tikhodeev, *Angle dependence of the spontaneous emission from confined optical modes in photonic dots*, Phys. Rev. B **59**(3), S. 2223 (1999).
- [Haf07] R. Hafenbrak, S. Ulrich, P. Michler, L. Wang, A. Rastelli und O. Schmidt, *Triggered polarization-entangled photon pairs from a single quantum dot up to 30 k*, New Journal of Physics **9**(9), S. 315 (2007).
- [Har98] A. Hartmann, Y. Ducommun, L. Loubies, K. Leifer und E. Kapon, *Structure and photoluminescence of single AlGaAs/GaAs quantum dots grown in inverted tetrahedral pyramids*, Appl. Phys. Lett. **73**(16), S. 2322 (1998).
- [He04] L. He, G. Bester und A. Zunger, *Strain-induced interfacial hole localization in self-assembled quantum dots: Compressive InAs/GaAs versus tensile InAs/InSb*, Phys. Rev. B **70**(23), S. 235316 (2004).
- [He13a] Y. He, Y.-M. He, Y.-J. Wei, X. Jiang, M.-C. Chen, F.-L. Xiong, Y. Zhao, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, C.-Y. Lu und J.-W. Pan, *Indistinguishable tunable single photons emitted by spin-flip raman transitions in InGaAs quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **111**, S. 237403 (2013).
- [He13b] Y.-M. He, Y. He, Y.-J. Wei, D. Wu, M. Atatüre, C. Schneider, S. Höfling, M. Kamp, C.-Y. Lu und J.-W. Pan, *On-demand semiconductor single-photon source with near-unity indistinguishability*, Nat. Nanotechnol. **8**(3), S. 213 (2013).
- [He15] Y.-M. He, G. Clark, J. R. Schaibley, Y. He, C. Ming-Cheng, Y.-J. Wei, X. Ding, Q. Zhang, W. Yao, X. Xu, C.-Y. Lu und J.-W. Pan, *Single quantum emitters in monolayer semiconductors*, Nat. Nanotechnol. **10**(6), S. 497 (2015).
- [Hei10a] T. Heindel, C. Schneider, M. Lerner, S. H. Kwon, T. Braun, S. Reitzenstein, S. Höfling, M. Kamp und A. Forchel, *Electrically driven quantum*

- dot-micropillar single photon source with 34% overall efficiency*, Appl. Phys. Lett. **96**(1), 011107 (2010).
- [Hei10b] J. Heinrich, A. Huggenberger, T. Heindel, S. Reitzenstein, S. Höfling, L. Worschech und A. Forchel, *Single photon emission from positioned GaAs/AlGaAs photonic nanowires*, Appl. Phys. Lett. **96**(21), 211117 (2010).
- [Hen07] K. Hennessy, A. Badolato, M. Winger, D. Gerace, M. Atatüre, S. Gulde, S. Fält, E. L. Hu und A. Imamoglu, *Quantum nature of a strongly coupled single quantum dot-cavity system*, Nature **445**(7130), S. 896 (2007).
- [Hoa12] T. B. Hoang, J. Beetz, M. Lerner, L. Midolo, M. Kamp, S. Höfling und A. Fiore, *Widely tunable, efficient on-chip single photon sources at telecommunication wavelengths*, Opt. Express **20**(19), S. 21758 (2012).
- [Hög04] A. Högele, S. Seidl, M. Kroner, K. Karrai, R. J. Warburton, B. D. Gerardot und P. M. Petroff, *Voltage-controlled optics of a quantum dot*, Phys. Rev. Lett. **93**, S. 217401 (2004).
- [Hon87] C. Hong, Z. Ou und L. Mandel, *Measurement of subpicosecond time intervals between two photons by interference*, Phys. Rev. Lett. **59**(18), S. 2044 (1987).
- [Hou05] J. Hours, P. Senellart, E. Peter, A. Cavanna und J. Bloch, *Exciton radiative lifetime controlled by the lateral confinement energy in a single quantum dot*, Phys. Rev. B **71**, S. 161306 (2005).
- [Hou12] J. Houel, A. V. Kuhlmann, L. Greuter, F. Xue, M. Poggio, B. D. Gerardot, P. A. Dalgarno, A. Badolato, P. M. Petroff, A. Ludwig, D. Reuter, A. D. Wieck und R. J. Warburton, *Probing single-charge fluctuations at a GaAs/AlAs interface using laser spectroscopy on a nearby InGaAs quantum dot*, Phys. Rev. Lett. **108**, S. 107401 (2012).
- [Hsu87] D. Hsu und J. Skinner, *General quantum mechanical theory of pure dephasing*, J. Lumin. **37**(6), S. 331 (1987).

- [Hug11a] A. Huggenberger, S. Heckelmann, C. Schneider, S. Höfling, S. Reitzenstein, L. Worschech, M. Kamp und A. Forchel, *Narrow spectral linewidth from single site-controlled In(Ga)As quantum dots with high uniformity*, Appl. Phys. Lett. **98**(13), S. 131104 (2011).
- [Hug11b] A. Huggenberger, C. Schneider, C. Drescher, S. Heckelmann, T. Heindel, S. Reitzenstein, M. Kamp, S. Höfling, L. Worschech und A. Forchel, *Site-controlled In(Ga)As/GaAs quantum dots for integration into optically and electrically operated devices*, J. Cryst. Growth **323**(1), S. 194 (2011).
- [Hut95] B. Huttner, N. Imoto, N. Gisin und T. Mor, *Quantum cryptography with coherent states*, Phys. Rev. A **51**(3), S. 1863 (1995).
- [Iga03] K. Iga und H. E. Li, *Vertical-cavity surface-emitting laser devices*, Springer (2003).
- [Ike07] M. Ikezawa, Y. Sakuma und Y. Masumoto, *Single photon emission from individual nitrogen pairs in gap*, Jpn. J. Appl. Phys. **46**(10L), S. L871 (2007).
- [Ish00] T. Ishikawa, T. Nishimura, S. Kohmoto und K. Asakawa, *Site-controlled InAs single quantum-dot structures on GaAs surfaces patterned by in situ electron-beam lithography*, Appl. Phys. Lett. **76**(2), S. 167 (2000).
- [Ji13] K. D. Jöns, P. Atkinson, M. Müller, M. Heldmaier, S. M. Ulrich, O. G. Schmidt und P. Michler, *Triggered indistinguishable single photons with narrow line widths from site-controlled quantum dots*, Nano Lett. **13**(1), S. 126 (2013).
- [Jak14] T. Jakubczyk, H. Franke, T. Smoleński, M. Ściesiek, W. Pacuski, A. Golnik, R. Schmidt-Grund, M. Grundmann, C. Kruse, D. Hommel und P. Kossacki, *Inhibition and enhancement of the spontaneous emission of quantum dots in micropillar cavities with radial-distributed bragg reflectors*, ACS Nano **8**(10), S. 9970 (2014).
- [Jas06] W. Jaskólski, M. Zieliński, G. W. Bryant und J. Aizpurua, *Strain effects on the electronic structure of strongly coupled self-assembled InAs/GaAs*

- quantum dots: Tight-binding approach*, Phys. Rev. B **74**(19), S. 195339 (2006).
- [Jay63] E. T. Jaynes und F. W. Cummings, *Comparison of quantum and semiclassical radiation theories with application to the beam maser*, Proc. IEEE **51**(1), S. 89 (1963).
- [Jus13] G. Juska, V. Dimastrodonato, L. O. Mereni, A. Gocalinska und E. Pelucchi, *Towards quantum-dot arrays of entangled photon emitters*, Nat. Photonics **7**(7), S. 527 (2013).
- [Kae13a] P. Kaer, N. Gregersen und J. Mørk, *The role of phonon scattering in the indistinguishability of photons emitted from semiconductor cavity qed systems*, New J. Phys. **15**(3), S. 035027 (2013).
- [Kae13b] P. Kaer, P. Lodahl, A.-P. Jauho und J. Mørk, *Microscopic theory of indistinguishable single-photon emission from a quantum dot coupled to a cavity: The role of non-markovian phonon-induced decoherence*, Phys. Rev. B **87**(8), S. 081308 (2013).
- [Kav07] A. Kavokin, J. J. Baumberg, G. Malpuech und F. P. Laussy, *Microcavities*, OUP Oxford (2007).
- [Kim08] H. J. Kimble, *The quantum internet*, Nature **453**(7198), S. 1023 (2008).
- [Kir02] A. Kiraz, S. Fälth, C. Becher, B. Gayral, W. Schoenfeld, P. Petroff, L. Zhang, E. Hu und A. Imamoglu, *Photon correlation spectroscopy of a single quantum dot*, Phys. Rev. B **65**(16), S. 161303 (2002).
- [Kir04] A. Kiraz, M. Atatüre und A. Imamoglu, *Quantum-dot single-photon sources: Prospects for applications in linear optics quantum-information processing*, Phys. Rev. A **69**(3), S. 032305 (2004).
- [Kis08] C. Kistner, T. Heindel, C. Schneider, A. Rahimi-Iman, S. Reitzenstein, S. Höfling und A. Forchel, *Demonstration of strong coupling via electro-optical tuning in high-quality QD-micropillar systems*, Opt. Express **16**(19), S. 15006 (2008).

- [Kok07] P. Kok, W. J. Munro, K. Nemoto, T. C. Ralph, J. P. Dowling und G. J. Milburn, *Linear optical quantum computing with photonic qubits*, Rev. Mod. Phys. **79**(1), S. 135 (2007).
- [Kop15] M. Koperski, K. Nogajewski, A. Arora, V. Cherkez, P. Mallet, J.-Y. Veuillen, J. Marcus, P. Kossacki und M. Potemski, *Single photon emitters in exfoliated WSe<sub>2</sub> structures*, Nat. Nanotechnol. **10**(6), S. 503 (2015).
- [Kow05] K. Kowalik, O. Krebs, A. Lemaitre, S. Laurent, P. Senellart, P. Voisin und J. Gaj, *Influence of an in-plane electric field on exciton fine structure in InAs-GaAs self-assembled quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **86**(4), S. 1907 (2005).
- [Kre14] P. Kremer, A. C. Dada, P. Kumar, Y. Ma, S. Kumar, E. Clarke und B. D. Gerardot, *Strain-tunable quantum dot embedded in a nanowire antenna*, Phys. Rev. B **90**(20), S. 201408 (2014).
- [Kuh13] A. V. Kuhlmann, J. Houel, A. Ludwig, L. Greuter, D. Reuter, A. D. Wieck, M. Poggio und R. J. Warburton, *Charge noise and spin noise in a semiconductor quantum device*, Nat. Phys. **9**(9), S. 570 (2013).
- [Kur00] C. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda und H. Weinfurter, *Stable solid-state source of single photons*, Phys. Rev. Lett. **85**, S. 290 (2000).
- [Lal03] P. Lalanne und J. Hugonin, *Bloch-wave engineering for high-Q, small-V microcavities*, IEEE J. Quantum Electron **39**(11), S. 1430 (2003).
- [Lal04] P. Lalanne, J. P. Hugonin und J. M. Gérard, *Electromagnetic study of the quality factor of pillar microcavities in the small diameter limit*, Appl. Phys. Lett. **84**(23), S. 4726 (2004).
- [Lau09] A. Laucht, F. Hofbauer, N. Hauke, J. Angele, S. Stobbe, M. Kaniber, G. Böhm, P. Lodahl, M.-C. Amann und J. J. Finley, *Electrical control of spontaneous emission and strong coupling for a single quantum dot*, New J. Phys. **11**(2), S. 023034 (11pp) (2009).
- [Lec07] G. Lecamp, J. P. Hugonin, P. Lalanne, R. Braive, S. Varoutsis, S. Laurent, A. Lemâtre, I. Sagnes, G. Patriarche, I. Robert-Philip und I. Abram,

- Submicron-diameter semiconductor pillar microcavities with very high quality factors*, Appl. Phys. Lett. **90**(9) (2007).
- [Len02] A. Lenz, R. Timm, H. Eisele, C. Hennig, S. Becker, R. Sellin, U. Pohl, D. Bimberg und M. Dähne, *Reversed truncated cone composition distribution of  $In_{0.8}Ga_{0.2}As$  quantum dots overgrown by an  $In_{0.1}Ga_{0.9}As$  layer in a GaAs matrix*, Appl. Phys. Lett. **81**(27), S. 5150 (2002).
- [Ler12] M. Lermer, N. Gregersen, F. Dunzer, S. Reitzenstein, S. Höfling, J. Mørk, L. Worschech, M. Kamp und A. Forchel, *Bloch-wave engineering of quantum dot micropillars for cavity quantum electrodynamics experiments*, Phys. Rev. Lett. **108**, S. 057402 (2012).
- [Lou00] R. Loudon, *The quantum theory of light*, OUP Oxford (2000).
- [Mai14] S. Maier, P. Gold, A. Forchel, N. Gregersen, J. Mørk, S. Höfling, C. Schneider und M. Kamp, *Bright single photon source based on self-aligned quantum dot-cavity systems*, Opt. Express **22**(7), S. 8136 (2014).
- [McC10] D. P. McCutcheon und A. Nazir, *Quantum dot rabi rotations beyond the weak exciton-phonon coupling regime*, New J. Phys. **12**(11), S. 113042 (2010).
- [McC13] D. P. McCutcheon und A. Nazir, *Model of the optical emission of a driven semiconductor quantum dot: phonon-enhanced coherent scattering and off-resonant sideband narrowing*, Phys. Rev. Lett. **110**(21), S. 217401 (2013).
- [McK04] J. McKeever, A. Boca, A. D. Boozer, R. Miller, J. R. Buck, A. Kuzmich und H. J. Kimble, *Deterministic generation of single photons from one atom trapped in a cavity*, Science **303**(5666), S. 1992 (2004).
- [Mel08] R. Melet, V. Voliotis, A. Enderlin, D. Roditchev, X. L. Wang, T. Guillet und R. Grousson, *Resonant excitonic emission of a single quantum dot in the rabi regime*, Phys. Rev. B **78**, S. 073301 (2008).

- [Mic00] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu und A. Imamoglu, *A quantum dot single-photon turnstile device*, Science **290**(5500), S. 2282 (2000).
- [Mic02] P. Michler, A. Imamoglu, A. Kiraz, C. Becher, M. Mason, P. Carson, G. Strouse, S. Buratto, W. Schoenfeld und P. Petroff, *Nonclassical radiation from a single quantum dot*, Physica Status Solidi B **229**(1), S. 399 (2002).
- [Mol69] B. Mollow, *Power spectrum of light scattered by two-level systems*, Phys. Rev. **188**(5) (1969).
- [Moo65] G. E. Moore, *Cramming more components onto integrated circuits*, Electron. Mag. **38**, S. 114 (1965).
- [Moo75] G. E. Moore et al., *Progress in digital integrated electronics*, in *Electron Devices Meeting*, Band 21, S. 11–13 (1975).
- [Mor01] E. Moreau, I. Robert, J. Gérard, I. Abram, L. Manin und V. Thierry-Mieg, *Single-mode solid-state single photon source based on isolated quantum dots in pillar microcavities*, Appl. Phys. Lett. **79**(18), S. 2865 (2001).
- [Mun09] M. Munsch, A. Mosset, A. Auffèves, S. Seidelin, J. P. Poizat, J.-M. Gérard, A. Lemaître, I. Sagnes und P. Senellart, *Continuous-wave versus time-resolved measurements of purcell factors for quantum dots in semiconductor microcavities*, Phys. Rev. B **80**(11), 115312 (2009).
- [Mus14] A. Musiał, P. Gold, J. Andrzejewski, A. Löffler, J. Misiewicz, S. Höfling, A. Forchel, M. Kamp, G. Sęk und S. Reitzenstein, *Toward weak confinement regime in epitaxial nanostructures: Interdependence of spatial character of quantum confinement and wave function extension in large and elongated quantum dots*, Phys. Rev. B **90**(4), S. 045430 (2014).
- [Nar00] G. A. Narvaez und P. Hawrylak, *Effects of electron-electron interactions on excitonic absorption in charged self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B **61**(20), S. 13753 (2000).

- [Ngu12] H. S. Nguyen, G. Sallen, C. Voisin, P. Roussignol, C. Diederichs und G. Cassabois, *Optically gated resonant emission of single quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **108**, S. 057401 (2012).
- [Nir95] M. Nirmal, D. J. Norris, M. Kuno, M. G. Bawendi, A. L. Efros und M. Rosen, *Observation of the “dark exciton“ in CdSe quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **75**(20), S. 3728 (1995).
- [Noz10] K. Nozaki, T. Tanabe, A. Shinya, S. Matsuo, T. Sato, H. Taniyama und M. Notomi, *Sub-femtojoule all-optical switching using a photonic-crystal nanocavity*, Nat. Photon. **4**(7), S. 477 (2010).
- [Off05] P. Offermans, P. M. Koenraad, J. H. Wolter, K. Pierz, M. Roy und P. A. Maksym, *Atomic-scale structure and photoluminescence of InAs quantum dots in GaAs and AlAs*, Phys. Rev. B **72**, S. 165332 (2005).
- [Pea83] T. Pearsall, R. Carles und J. Portal, *Single longitudinal-mode optical phonon scattering in  $ga0.47in0.53as$* , Applied Physics Letters **42**(5), S. 436 (1983).
- [Pee09] M. Peev, C. Pacher, R. Alleaume, C. Barreiro, J. Bouda, W. Boxleitner, T. Debuisschert, E. Diamanti, M. Dianati, J. F. Dynes, S. Fasel, S. Fossier, M. Furst, J.-D. Gautier, O. Gay, N. Gisin, P. Grangier, A. Happe, Y. Hasani, M. Hentschel, H. Hubel, G. Humer, T. Langer, M. Legre, R. Lieger, J. Lodewyck, T. Loruser, N. Lutkenhaus, A. Marhold, T. Matyus, O. Maurhart, L. Monat, S. Nauerth, J.-B. Page, A. Poppe, E. Querasser, G. Ribordy, S. Robyr, L. Salvail, A. W. Sharpe, A. J. Shields, D. Stucki, M. Suda, C. Tamas, T. Themel, R. T. Thew, Y. Thoma, A. Treiber, P. Trinkler, R. Tualle-Brouri, F. Vannel, N. Walenta, H. Weier, H. Weinfurter, I. Wimberger, Z. L. Yuan, H. Zbinden und A. Zeilinger, *The SECOQC quantum key distribution network in Vienna*, New J. Phys. **11**(7), S. 075001 (37pp) (2009).
- [Pel02] M. Pelton, C. Santori, J. Vuc̆ković, B. Zhang, G. S. Solomon, J. Plant und Y. Yamamoto, *Efficient source of single photons: A single quantum*



- dot in a micropost microcavity*, Phys. Rev. Lett. **89**(23), S. 233602 (2002).
- [Pen07] C.-Z. Peng, J. Zhang, D. Yang, W.-B. Gao, H.-X. Ma, H. Yin, H.-P. Zeng, T. Yang, X.-B. Wang und J.-W. Pan, *Experimental long-distance decoy-state quantum key distribution based on polarization encoding*, Phys. Rev. Lett. **98**(1), S. 010505 (2007).
- [Pet05] E. Peter, P. Senellart, D. Martrou, A. Lemaître, J. Hours, J. Gérard und J. Bloch, *Exciton-photon strong-coupling regime for a single quantum dot embedded in a microcavity*, Phys. Rev. Lett. **95**(6), S. 067401 (2005).
- [Pre08] D. Press, T. D. Ladd, B. Zhang und Y. Yamamoto, *Complete quantum control of a single quantum dot spin using ultrafast optical pulses*, Nature **456**(7219), S. 218 (2008).
- [Pre16] J. H. Prechtel, A. V. Kuhlmann, J. Houel, A. Ludwig, S. R. Valentin, A. D. Wieck und R. J. Warburton, *Decoupling a hole spin qubit from the nuclear spins*, Nat. Mater. (2016).
- [Pur46] E. M. Purcell, *Spontaneous emission probabilities at radio frequencies*, Phys. Rev. **69**, S. 681 (1946).
- [Ram10a] A. J. Ramsay, T. M. Godden, S. J. Boyle, E. M. Gauger, A. Nazir, B. W. Lovett, A. M. Fox und M. S. Skolnick, *Phonon-induced Rabi-frequency renormalization of optically driven single InGaAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **105**, S. 177402 (2010).
- [Ram10b] A. J. Ramsay, A. V. Gopal, E. M. Gauger, A. Nazir, B. W. Lovett, A. M. Fox und M. S. Skolnick, *Damping of exciton Rabi rotations by acoustic phonons in optically excited InGaAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **104**, S. 017402 (2010).
- [Rei04] J. P. Reithmaier, G. Sek, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke und A. Forchel, *Strong coupling in a single quantum dot-semiconductor microcavity system*, Nature **432**(7014), S. 197 (2004).

- [Rei07] S. Reitzenstein, C. Hofmann, A. Gorbunov, M. Strauß, S. H. Kwon, C. Schneider, A. Löffler, S. Höfling, M. Kamp und A. Forchel, *AlAs/GaAs micropillar cavities with quality factors exceeding 150.000*, Appl. Phys. Lett. **90**(25), 251109 (2007).
- [Rei09] S. Reitzenstein, S. Münch, P. Franek, A. Rahimi-Iman, A. Löffler, S. Höfling, L. Worschech und A. Forchel, *Control of the strong light-matter interaction between an elongated in 0.3 ga 0.7 as quantum dot and a micropillar cavity using external magnetic fields*, Phys. Rev. Lett. **103**(12), S. 127401 (2009).
- [Rei10] S. Reitzenstein und A. Forchel, *Quantum dot micropillars*, J. Phys. D: Appl. Phys. **43**(3), S. 033001 (25pp) (2010).
- [Rei12] M. E. Reimer, G. Bulgarini, N. Akopian, M. Hocevar, M. B. Bavinck, M. A. Verheijen, E. P. Bakkers, L. P. Kouwenhoven und V. Zwiller, *Bright single-photon sources in bottom-up tailored nanowires*, Nat. Commun. **3**, S. 737 (2012).
- [Rei14] D. Reiter, T. Kuhn, M. Glässl und V. Axt, *The role of phonons for exciton and biexciton generation in an optically driven quantum dot*, J. Phys.: Condens. Matter **26**(42), S. 423203 (2014).
- [Ric10] D. Richter, R. Hafenbrak, K. D. Jöns, W.-M. Schulz, M. Eichfelder, M. Heldmaier, R. Roßbach, M. Jetter und P. Michler, *Low density MOVPE grown InGaAs QDs exhibiting ultra-narrow single exciton linewidths*, Nanotechnology **21**(12), S. 125606 (2010).
- [Riv99] T. Rivera, J.-P. Debray, J. Gérard, B. Legrand, L. Manin-Ferlazzo und J. Oudar, *Optical losses in plasma-etched AlGaAs microresonators using reflection spectroscopy*, Appl. Phys. Lett. **74**(7), S. 911 (1999).
- [Rod02] S. Rodt, A. Schliwa, R. Heitz, V. Türck, O. Stier, R. Sellin, M. Strassburg, U. Pohl und D. Bimberg, *Few-particle effects in self-organized quantum dots*, Phys. Status Solidi B **234**(1), S. 354 (2002).

- [Rod05] S. Rodt, A. Schliwa, K. Pötschke, F. Guffarth und D. Bimberg, *Correlation of structural and few-particle properties of self-organized InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **71**(15), S. 155325 (2005).
- [Ros07] D. Rosenberg, J. W. Harrington, P. R. Rice, P. A. Hiskett, C. G. Peterson, R. J. Hughes, A. E. Lita, S. W. Nam und J. E. Nordholt, *Long-distance decoy-state quantum key distribution in optical fiber*, Phys. Rev. Lett. **98**(1), S. 010503 (2007).
- [Rou97] P. Roura, M. López-de Miguel, A. Cornet und J. Morante, *Determination of the direct band-gap energy of InAlAs matched to InP by photoluminescence excitation spectroscopy*, J. Appl. Phys. **81**(10), S. 6916 (1997).
- [Roy01] P. Royo, R. Stanley und M. Ilegems, *Planar dielectric microcavity light-emitting diodes: Analytical analysis of the extraction efficiency*, J. Appl. Phys. **90**(1), S. 283 (2001).
- [Sal08] B. E. Saleh und M. C. Teich, *Grundlagen der Photonik*, John Wiley & Sons (2008).
- [San02] C. Santori, D. Fattal, J. Vuckovic, G. S. Solomon und Y. Yamamoto, *Indistinguishable photons from a single-photon device*, Nature **419**(6907), S. 594 (2002).
- [Sap15] L. Sapienza, M. Davanço, A. Badolato und K. Srinivasan, *Nanoscale optical positioning of single quantum dots for bright and pure single-photon emission*, Nat. Commun. **6** (2015).
- [Sch07] O. G. Schmidt, *Lateral alignment of epitaxial quantum dots*, Springer Science & Business Media (2007).
- [Sch08] C. Schneider, M. Strauß, T. Süner, A. Huggenberger, D. Wiener, S. Reitzenstein, M. Kamp, S. Höfling und A. Forchel, *Lithographic alignment to site-controlled quantum dots for device integration*, Appl. Phys. Lett. **92**(18), 183101 (2008).

- [Sch09a] A. Schliwa, M. Winkelkemper, A. Lochmann, E. Stock und D. Bimberg, *In(Ga)As/GaAs quantum dots grown on a (111) surface as ideal sources of entangled photon pairs*, Phys. Rev. B **80**, S. 161307 (2009).
- [Sch09b] C. Schneider, T. Heindel, A. Huggenberger, P. Weinmann, C. Kistner, M. Kamp, S. Reitzenstein, S. Höfling und A. Forchel, *Single photon emission from a site-controlled quantum dot-micropillar cavity system*, Appl. Phys. Lett. **94**(11), 111111 (2009).
- [Sch09c] C. Schneider, A. Huggenberger, T. Sunner, T. Heindel, M. Strauss, S. Gopfert, P. Weinmann, S. Reitzenstein, L. Worschech, M. Kamp, S. Höfling und A. Forchel, *Single site-controlled In(Ga)As/GaAs quantum dots: growth, properties and device integration*, Nanotechnology **20**(43), S. 434012 (9pp) (2009).
- [Sch12] C. Schneider, T. Heindel, A. Huggenberger, T. A. Niederstrasser, S. Reitzenstein, A. Forchel, S. Höfling und M. Kamp, *Microcavity enhanced single photon emission from an electrically driven site-controlled quantum dot*, Appl. Phys. Lett. **100**(9), 091108 (2012).
- [Seg05] R. Seguin, A. Schliwa, S. Rodt, K. Pötschke, U. Pohl und D. Bimberg, *Size-dependent fine-structure splitting in self-organized InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **95**(25), S. 257402 (2005).
- [Seg06] R. Seguin, A. Schliwa, T. D. Germann, S. Rodt, K. Pötschke, A. Strittmatter, U. W. Pohl, D. Bimberg, M. Winkelkemper, T. Hammerschmidt und P. Kratzer, *Control of fine-structure splitting and excitonic binding energies in selected individual InAs/GaAs quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **89**(26), 263109 (2006).
- [Sei05] S. Seidl, M. Kroner, P. A. Dalgarno, A. Högele, J. M. Smith, M. Ediger, B. D. Gerardot, J. M. Garcia, P. M. Petroff, K. Karrai und R. J. Warburton, *Absorption and photoluminescence spectroscopy on a single self-assembled charge-tunable quantum dot*, Phys. Rev. B **72**, S. 195339 (2005).

- [Sei08] S. Seidl, B. Gerardot, P. Dalgarno, K. Kowalik, A. Holleitner, P. Petroff, K. Karrai und R. Warburton, *Statistics of quantum dot exciton fine structure splittings and their polarization orientations*, Physica E **40**(6), S. 2153 (2008).
- [Sęk06] G. Sęk, P. Poloczek, K. Ryczko, J. Misiewicz, A. Löffler, J. Reithmaier und A. Forchel, *Photoreflectance determination of the wetting layer thickness in the  $In_xGa_{1-x}As/GaAs$  quantum dot system for a broad indium content range of 0.3–1*, J. Appl. Phys. **100**(10), S. 103529 (2006).
- [Sho93] B. W. Shore und P. L. Knight, *The Jaynes-Cummings model*, J. Mod. Opt. **40**(7), S. 1195 (1993).
- [Sho94] P. W. Shor, *Algorithms for quantum computation: Discrete logarithms and factoring*, in *Foundations of Computer Science, 1994 Proceedings., 35th Annual Symposium on*, S. 124–134, IEEE (1994).
- [Sin09] R. Singh und G. Bester, *Nanowire quantum dots as an ideal source of entangled photon pairs*, Phys. Rev. Lett. **103**(6), S. 063601 (2009).
- [SM07] T. Schmitt-Manderbach, H. Weier, M. Fürst, R. Ursin, F. Tiefenbacher, T. Scheidl, J. Perdigues, Z. Sodnik, C. Kurtsiefer, J. G. Rarity et al., *Experimental demonstration of free-space decoy-state quantum key distribution over 144 km*, Phys. Rev. Lett. **98**(1), S. 010504 (2007).
- [Som16] N. Somaschi, V. Giesz, L. De Santis, J. C. Loredó, M. P. Almeida, G. Hornecker, S. L. Portalupi, T. Grange, C. Antón, J. Demory, C. Gómez, I. Sagnes, N. D. Lanzillotti-Kimura, A. Lemaître, A. Auffèves, A. G. White, L. Lanco und P. Senellart, *Near-optimal single-photon sources in the solid state*, Nat. Photon. **10**(5), S. 340 (2016).
- [Son05] B.-S. Song, S. Noda, T. Asano und Y. Akahane, *Ultra-high-Q photonic double-heterostructure nanocavity*, Nat. Mater. **4**(3), S. 207 (2005).
- [Spr13] J. B. Spring, B. J. Metcalf, P. C. Humphreys, W. S. Kolthammer, X.-M. Jin, M. Barbieri, A. Datta, N. Thomas-Peter, N. K. Langford,

- D. Kundys, J. C. Gates, B. J. Smith, P. G. R. Smith und I. A. Walmsley, *Boson sampling on a photonic chip*, Science **339**(6121), S. 798 (2013).
- [Sri06] K. Srinivasan, M. Borselli, O. Painter, A. Stintz und S. Krishna, *Cavity  $q$ , mode volume, and lasing threshold in small diameter algaas microdisks with embedded quantum dots*, Opt. Express **14**(3), S. 1094 (2006).
- [Sri07] K. Srinivasan und O. Painter, *Linear and nonlinear optical spectroscopy of a strongly coupled microdisk-quantum dot system*, Nature **450**(7171), S. 862 (2007).
- [Sri15] A. Srivastava, M. Sidler, A. V. Allain, D. S. Lembke, A. Kis und A. Imamoglu, *Optically active quantum dots in monolayer  $WSe_2$* , Nat. Nanotechnol. **10**(6), S. 491 (2015).
- [Sti99] O. Stier, M. Grundmann und D. Bimberg, *Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band  $k \cdot p$  theory*, Phys. Rev. B **59**(8), S. 5688 (1999).
- [Sto10] E. Stock, T. Warming, I. Ostapenko, S. Rodt, A. Schliwa, J. A. Töfflinger, A. Lochmann, A. I. Toropov, S. A. Moshchenko, D. V. Dmitriev, V. A. Haisler und D. Bimberg, *Single-photon emission from  $InGaAs$  quantum dots grown on (111)  $GaAs$* , Appl. Phys. Lett. **96**(9), 093112 (2010).
- [Sug99] M. Sugisaki, H.-W. Ren, S. V. Nair, K. Nishi, S. Sugou, T. Okuno und Y. Masumoto, *Optical anisotropy in self-assembled  $inp$  quantum dots*, Phys. Rev. B **59**, S. R5300 (1999).
- [Tho04] J. Thorn, M. Neel, V. Donato, G. Bergreen, R. Davies und M. Beck, *Observing the quantum behavior of light in an undergraduate laboratory*, Am. J. Phys **72**(9), S. 1210 (2004).
- [Tho16] A. Thoma, P. Schnauber, M. Gschrey, M. Seifried, J. Wolters, J.-H. Schulze, A. Strittmatter, S. Rodt, A. Carmele, A. Knorr et al., *Exploring dephasing of a solid-state quantum emitter via time-and temperature-dependent Hong-Ou-Mandel experiments*, Phys. Rev. Lett. **116**(3), S. 033601 (2016).

- [Thr02] A. Thränhardt, C. Ell, G. Khitrova und H. M. Gibbs, *Relation between dipole moment and radiative lifetime in interface fluctuation quantum dots*, Phys. Rev. B **65**, S. 035327 (2002).
- [Ton15] P. Tonndorf, R. Schmidt, R. Schneider, J. Kern, M. Buscema, G. A. Steele, A. Castellanos-Gomez, H. S. J. van der Zant, S. M. de Vasconcelos und R. Bratschitsch, *Single-photon emission from localized excitons in an atomically thin semiconductor*, Optica **2**(4), S. 347 (2015).
- [Tre06] A. Trellakis, T. Zibold, T. Andlauer, S. Birner, R. K. Smith, R. Morschl und P. Vogl, *The 3D nanometer device project nextnano: Concepts, methods, results*, J. Comput. Electron. **5**(4), S. 285 (2006).
- [Tre12] J. Treu, C. Schneider, A. Huggenberger, T. Braun, S. Reitzenstein, S. Höfling und M. Kamp, *Substrate orientation dependent fine structure splitting of symmetric In(Ga)As/GaAs quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **101**(2), 022102 (2012).
- [Tro12] R. Trotta, E. Zallo, C. Ortix, P. Atkinson, J. Plumhof, J. Van den Brink, A. Rastelli und O. Schmidt, *Universal recovery of the energy-level degeneracy of bright excitons in InGaAs quantum dots without a structure symmetry*, Phys. Rev. Lett. **109**(14), S. 147401 (2012).
- [Tro16] R. Trotta, J. Martín-Sánchez, J. S. Wildmann, G. Piredda, M. Reindl, C. Schimpf, E. Zallo, S. Stroj, J. Edlinger und A. Rastelli, *Wavelength-tunable sources of entangled photons interfaced with atomic vapours*, Nat. Commun. **7** (2016).
- [Ulh13] A. Ulhaq, S. Weiler, C. Roy, S. M. Ulrich, M. Jetter, S. Hughes und P. Michler, *Detuning-dependent mollow triplet of a coherently-driven single quantum dot*, Opt. Express **21**(4), S. 4382 (2013).
- [Uns15] S. Unsleber, C. Schneider, S. Maier, Y.-M. He, S. Gerhardt, C.-Y. Lu, J.-W. Pan, M. Kamp und S. Höfling, *Deterministic generation of bright single resonance fluorescence photons from a purcell-enhanced quantum dot-micropillar system*, Opt. Express **23**(26), S. 32977 (2015).

- [Urs07] R. Ursin, F. Tiefenbacher, T. Schmitt-Manderbach, H. Weier, T. Scheidl, M. Lindenthal, B. Blauensteiner, T. Jennewein, J. Perdigues, P. Trojek et al., *Entanglement-based quantum communication over 144 km*, Nat. Phys. **3**(7), S. 481 (2007).
- [Usk01] A. V. Uskov, I. Magnusdottir, B. Tromborg, J. Mørk und R. Lang, *Line broadening caused by coulomb carrier-carrier correlations and dynamics of carrier capture and emission in quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **79**(11), S. 1679 (2001).
- [Vam09] A. N. Vamivakas, Y. Zhao, C.-Y. Lu und M. Atatüre, *Spin-resolved quantum-dot resonance fluorescence*, Nat. Phys. **5**(3), S. 198 (2009).
- [Var05] S. Varoutsis, S. Laurent, P. Kramper, A. Lemâitre, I. Sagnes, I. Robert-Philip und I. Abram, *Restoration of photon indistinguishability in the emission of a semiconductor quantum dot*, Phys. Rev. B **72**, S. 041303 (2005).
- [Vel07] P. Velha, J. P. Hugonin und P. Lalanne, *Compact and efficient injection of light into band-edge slow-modes*, Opt. Express **15**(10), S. 6102 (2007).
- [VK90] H. Van Kesteren, E. Cosman, W. Van der Poel und C. Foxon, *Fine structure of excitons in type-II GaAs/AlAs quantum wells*, Phys. Rev. B **41**(8), S. 5283 (1990).
- [Vur01] I. Vurgaftman, J. Meyer und L. Ram-Mohan, *Band parameters for III-V compound semiconductors and their alloys*, J. Appl. Phys. **89**(11), S. 5815 (2001).
- [Wak02] E. Waks, C. Santori und Y. Yamamoto, *Security aspects of quantum key distribution with sub-poisson light*, Phys. Rev. A **66**, S. 042315 (2002).
- [Wal16] M. M. Waldrop, *The chips are down for Moore's law*, Nat. News **530**(7589), S. 144 (2016).
- [Wan05] X.-B. Wang, *Beating the photon-number-splitting attack in practical quantum cryptography*, Phys. Rev. Lett. **94**(23), S. 230503 (2005).



- [War98] R. J. Warburton, B. T. Miller, C. S. Dürr, C. Bödefeld, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, P. M. Petroff und S. Huant, *Coulomb interactions in small charge-tunable quantum dots: A simple model*, Phys. Rev. B **58**, S. 16221 (1998).
- [Wat01] K. Watanabe und H. Yokoyama, *Photoluminescence properties of  $\delta$ -doped barrier layers in modulation-doped InAlAs/InGaAs field-effect transistor structures*, J. Appl. Phys. **89**(3), S. 1696 (2001).
- [Wei11] S. Weiler, A. Ulhaq, S. M. Ulrich, S. Reitzenstein, A. Löffler, A. Forchel und P. Michler, *Highly indistinguishable photons from a quantum dot in a microcavity*, Phys. Status Solidi B **248**(4), S. 867 (2011).
- [Wei14a] Y.-J. Wei, Y. He, Y.-M. He, C.-Y. Lu, J.-W. Pan, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, D. P. S. McCutcheon und A. Nazir, *Temperature-dependent mollow triplet spectra from a single quantum dot: Rabi frequency renormalization and sideband linewidth insensitivity*, Phys. Rev. Lett. **113**, S. 097401 (2014).
- [Wei14b] Y.-J. Wei, Y.-M. He, M.-C. Chen, Y.-N. Hu, Y. He, D. Wu, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, C.-Y. Lu und J.-W. Pan, *Deterministic and robust generation of single photons from a single quantum dot with 99.5% indistinguishability using adiabatic rapid passage*, Nano Lett. **14**(11), S. 6515 (2014).
- [Wij11] A. Wijnheijmer, J. Garleff, K. Teichmann, M. Wenderoth, S. Loth und P. Koenraad, *Single Si dopants in GaAs studied by scanning tunneling microscopy and spectroscopy*, Phys. Rev. B **84**(12), S. 125310 (2011).
- [Woo82] W. K. Wootters und W. H. Zurek, *A single quantum cannot be cloned*, Nature **299**(5886), S. 802 (1982).
- [Wu75] F. Wu, R. Grove und S. Ezekiel, *Investigation of the spectrum of resonance fluorescence induced by a monochromatic field*, Phys. Rev. Lett. **35**(21), S. 1426 (1975).

- [Wu99] Q. Wu, G. D. Feke, R. D. Grober und L. P. Ghislain, *Realization of numerical aperture 2.0 using a gallium phosphide solid immersion lens*, Appl. Phys. Lett. **75**(26), S. 4064 (1999).
- [Xu07] X. Xu, B. Sun, P. R. Berman, D. G. Steel, A. S. Bracker, D. Gammon und L. J. Sham, *Coherent optical spectroscopy of a strongly driven quantum dot*, Science **317**(5840), S. 929 (2007).
- [Yao05] W. Yao, R.-B. Liu und L. Sham, *Theory of control of the spin-photon interface for quantum networks*, Phys. Rev. Lett. **95**(3), S. 030504 (2005).
- [Yao10] P. Yao, V. S. C. M. Rao und S. Hughes, *On-chip single photon sources using planar photonic crystals and single quantum dots*, Laser Photonics Rev. **4**, S. 499 (2010).
- [Yer14] C. D. Yerino, P. J. Simmonds, B. Liang, D. Jung, C. Schneider, S. Unsleber, M. Vo, D. L. Huffaker, S. Höfling, M. Kamp und M. L. Lee, *Strain-driven growth of GaAs (111) quantum dots with low fine structure splitting*, Appl. Phys. Lett. **105**(25), S. 251901 (2014).
- [Yil10] S. Yilmaz, P. Fallahi und A. Imamoğlu, *Quantum-dot-spin single-photon interface*, Phys. Rev. Lett. **105**(3), S. 033601 (2010).
- [Yos04] T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H. M. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O. B. Shchekin und D. G. Deppe, *Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity*, Nature **432**(7014), S. 200 (2004).
- [Yua02] Z. Yuan, B. E. Kardynal, R. M. Stevenson, A. J. Shields, C. J. Lobo, K. Cooper, N. S. Beattie, D. A. Ritchie und M. Pepper, *Electrically driven single-photon source*, Science **295**(5552), S. 102 (2002).
- [Ż93] M. Żukowski, A. Zeilinger, M. A. Horne und A. K. Ekert, *“event-ready-detectors” bell experiment via entanglement swapping*, Phys. Rev. Lett. **71**, S. 4287 (1993).
- [Zha15] J. Zhang, J. S. Wildmann, F. Ding, R. Trotta, Y. Huo, E. Zallo, D. Huber, A. Rastelli und O. G. Schmidt, *High yield and ultrafast sources*

- of electrically triggered entangled-photon pairs based on strain-tunable quantum dots*, Nat. Commun. **6** (2015).
- [Zre02] A. Zrenner, E. Beham, S. Stuffer, F. Findeis, M. Bichler und G. Abstreiter, *Coherent properties of a two-level system based on a quantum-dot photodiode*, Nature **418**(6898), S. 612 (2002).
- [Zwi01] V. Zwiller, H. Blom, P. Jonsson, N. Panev, S. Jeppesen, T. Tsegaye, E. Goobar, M.-E. Pistol, L. Samuelson und G. Björk, *Single quantum dots emit single photons at a time: Antibunching experiments*, Appl. Phys. Lett. **78**(17), S. 2476 (2001).
- [Zwi03] V. Zwiller, T. Aichele, W. Seifert, J. Persson und O. Benson, *Generating visible single photons on demand with single InP quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **82**(10), S. 1509 (2003).



# A Anhang

## A.1 Simulation von InAs-Quantenpunkten

Der folgende Programmtext wurde für die in Abschnitt 2.1.3 präsentierten Simulationen von InAs-QPEn verwendet.

```
$OnlyStructure = 0      # auf 1 gesetzt wird nur die Struktur berechnet
$Temp = 10             # Temperatur (Kelvin)
$XWIDTH = 26          # Ausdehnung des QPes (nm) in x-Richtung
$YWIDTH = $XWIDTH     # Ausdehnung des QPes (nm) in y-Richtung
$HEIGHT = 2           # Höhe des QPes (nm)
$WETTING = 1          # Dicke BS (nm)
$constrProfile = 0     # konstante Indiumkonzentration im QP
$linearProfile = 1    # linearer Gradient der Indiumkonzentrationen
                      # (von der QP Oberseite zur Unterseite)
$X_QD_Indium = 0.5    # Indiumanteil für konstantes Profil
$X_Wetting_Indium = 0.45 # Indiumanteil BS
$Xmin = 0.35          # Indiumanteil QP Oberseite (@ z = HEIGHT)
$Xmax = 0.45          # Indiumanteil QP Unterseite (@ z = WETTING)
$XGRID = 1            # Gitterabstände x-Richtung (nm)
$YGRID = $XGRID       # Gitterabstände y-Richtung (nm)
$ZGRID = 0.1          # Gitterabstände z-Richtung (nm)

$NUME = 3             # Anzahl an Elektronenzuständen
$NUMH = 3             # Anzahl an Elektronenzuständen
$KP6 = 1              # Benutze 6-band k.p Modell für Löcher (1)
                      # oder 1-band eff. Massen Modell (0)
$KP8 = 0              # Benutze 8-band k.p Modell für Elektronen und
                      # Löcher (1) oder 1-band eff. Massen Modell (0)
$ManyBody = 0        # berücksichtige Viel-Teilchen-Effekte
                      # in LSDA Näherung: yes (1) or no (0)
$Dispersion = 0      # berechne Dispersion - ja (1) oder nein (0)
$AVS = 0             # 2D Ausgabe in AVS (1) oder Origin (0) Format
$zPos = 2.5          # z-Position für 1D X-/Y- und 2D XY- Querschnitt
$coneshape = 0.75    # Konizität des Kegelstumpfs
```

```

# feste Parameter
$DISTxy = 20          # Dicke der umgebenden GaAs Region
                      # in x/y-Richtung (nm)
$DISTz = 10          # Dicke der umgebenden GaAs Region
                      # in z-Richtung (nm)
$BARRIER = 5        # Ausdehnung der Quantenregion in die Barriere (nm)

# abgeleitete Parameter
$ELEC1 = 1-$KP8
$HOLE1 = (1-$KP8)*(1-$KP6)
$ORIGIN = 1-$AVS
$CalcAll = 1-$OnlyStructure

global{
  simulate3D{
    temperature = $Temp
    substrate{name="GaAs" }
    crystal_zb{
      x_hkl = [1, 0, 0] y_hkl = [0, 1, 0] # definiert Orientierung der
      }                                     # Simulationsdomäne
    }<>                                     # (Wachstum: z = [001])

  output{
    directory = "output"
    #if $AVS format2D = AvsAscii
    #if $ORIGIN format2D = Origin
    format3D = AvsAscii
    section2D{ name = "sideXZ" y = 0 }      # 2D Schnitt xz-Ebene durch QP
    section2D{ name = "sideXY" z = $zPos } # 2D Schnitt xy-Ebene bei $zPos
    section1D{ name = "z" x = 0 y = 0 }     # 1D Schnitt z-Achse durch QP
    section1D{ name = "y" x = 0 z = $zPos } # 1D Schnitt y-Richtung bei $zPos
  }<>

  contacts{
    ohmic{
      name = "topContact"
      bias = 0.0
    }

    ohmic{
      name = "bottomContact"
      bias = 0.0
    }
  }<>

  grid{
    xgrid{
      line{ pos = -$XWIDTH/2-$DISTxy spacing = 2}
      line{ pos = -$XWIDTH/2          spacing = $XGRID}
      line{ pos = 0                    spacing = $XGRID}
    }
  }

```

```

    line{ pos = $XWIDTH/2          spacing = $XGRID}
    line{ pos = $XWIDTH/2+$DISTxy spacing = 2}
  }

  ygrid{
    line{ pos = -$YWIDTH/2-$DISTxy spacing = 2}
    line{ pos = -$YWIDTH/2          spacing = $YGRID}
    line{ pos = 0                    spacing = $YGRID}
    line{ pos = $YWIDTH/2           spacing = $YGRID}
    line{ pos = $YWIDTH/2+$DISTxy spacing = 2}
  }

  zgrid{
    line{ pos = -$DISTz             spacing = 0.5}
    line{ pos = -$DISTz+1           spacing = 2}
    line{ pos = 0                   spacing = $ZGRID}
    line{ pos = $WETTING             spacing = $ZGRID}
    line{ pos = $WETTING+$HEIGHT     spacing = $ZGRID}
    line{ pos = $HEIGHT+$DISTz       spacing = 2}
    line{ pos = $HEIGHT+$DISTz+1     spacing = 0.5}
  }
  periodic{ x = yes y = yes}
}<>

structure{
  output_material_index{}
  output_alloy_composition{}

  # unterer Kontakt
  region{
    cuboid{
      x = [-$DISTxy-$XWIDTH/2, $XWIDTH/2+$DISTxy]
      y = [-$DISTxy-$YWIDTH/2, $YWIDTH/2+$DISTxy]
      z = [-$DISTz, -$DISTz+1]
    }
    contact{ name = "bottomContact" }
  }

  # GaAs Substrat
  region{
    everywhere{}
    binary{ name="GaAs" }
  }

  # InGaAs-QP
  region{
    #if $constProfile ternary_constant{
      name="In(x)Ga(1-x)As" alloy_x=$X_QD_Indium
    }
    #if $linearProfile ternary_linear{
      name="In(x)Ga(1-x)As"
    }
  }
}

```

```

                                alloy_x = [$Xmax, $Xmin]
                                x= [0,0] y=[0,0] z=[$WETTING, $HEIGHT]
                                }

    cone{
        base_x = [-$XWIDTH/2, $XWIDTH/2]
        base_y = [-$YWIDTH/2, $YWIDTH/2]
        base_z = [$WETTING, $WETTING]
        top = [0, 0, $HEIGHT+$WETTING]
        diminution=$coneshape
    }

}

# InAs wetting layer
region{
    cuboid{
        x = [-$DISTxy-$XWIDTH/2, $XWIDTH/2+$DISTxy]
        y = [-$DISTxy-$XWIDTH/2, $XWIDTH/2+$DISTxy]
        z = [0,$WETTING]
    }
    ternary_constant{ name="In(x)Ga(1-x)As" alloy_x=$X_Wetting_Indium }
}

# top Contact
region{
    cuboid{
        x = [-$DISTxy-$XWIDTH/2, $XWIDTH/2+$DISTxy]
        y = [-$DISTxy-$XWIDTH/2, $XWIDTH/2+$DISTxy]
        z = [$WETTING+$HEIGHT+$DISTz,$WETTING+$HEIGHT+$DISTz+1]
    }
    contact{ name = "topContact" }
}
}<>

classical{
    Gamma{}
    LH{}
    HH{}
    SO{}

    #if $CalcAll output_bandedges{}
    }<>

quantum{

    #if $ManyBody exchange_correlation{
        type = lsda initial_spin_pol = 0
        output_exchange_correlation{}
    }
}

```



```
region{
  name = "dot"
  x = [-$BARRIER-$XWIDTH/2, $XWIDTH/2+$BARRIER]
  y = [-$BARRIER-$YWIDTH/2, $YWIDTH/2+$BARRIER]
  z = [-$BARRIER, $HEIGHT+$BARRIER]
  boundary{ x = dirichlet y = dirichlet z = dirichlet }

  #if $ELEC1 Gamma{ num_ev = $NUME }
  #if $HOLE1 HH{ num_ev = $NUMH }
  #if $HOLE1 LH{ num_ev = $NUMH }
  #if $KP6 kp_6band{ num_ev = $NUMH }
  #if $KP8 kp_8band{ num_electrons = $NUME num_holes = $NUMH }

  #if $Dispersion calculate_dispersion{
                                num_points = 10
                                relative_size = 1.0
                                }

  output_wavefunctions{
                                amplitudes = no
                                probabilities = yes
                                max_num = $NUME+$NUMH
                                }
  }
}<>

#if $CalcAll poisson{ output_electric_field{} }<>

strain{
  minimized_strain{}
  polarization_charges = yes
  growth_direction = [0,0,1]
  output_strain_tensor{}
  output_polarization_charges{}
}<>

run{
  #if $CalcAll solve_strain{}
  #if $CalcAll solve_poisson{}
  #if $CalcAll solve_quantum{}
}<>
```

## A.2 Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung für die Interferenz zweier bosonischer Teilchen

Für die Interferenz zweier Teilchen am Strahlteiler geht man zunächst von der allgemeinen Transfergleichung des Strahlteilers aus [Kir04]:

$$\begin{pmatrix} \hat{a}_1^\dagger(t) \\ \hat{a}_2^\dagger(t) \end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ -1 & 1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \hat{e}_1^\dagger(t - \tau_D) \\ \hat{e}_2^\dagger(t) \end{pmatrix} \quad (\text{A.1})$$

Dabei sind  $\hat{e}_{1,2}(t)$  die beiden einlaufenden Moden und  $\hat{a}_{1,2}(t)$  die auslaufenden.

Setzt man diesen Zusammenhang in die allgemeine Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung

$$G^{(2)}(t_1, t_2) = \langle \hat{a}^\dagger(t_1) \hat{a}^\dagger(t_2) \hat{a}(t_2) \hat{a}(t_1) \rangle \quad (\text{A.2})$$

ein erhält man folgende Gleichung für die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung:

$$\begin{aligned} G^{(2)}(t_1, t_2) = & \left\langle \frac{1}{\sqrt{2}} \left( e_1^\dagger(t_1 - \tau_D) + e_2^\dagger(t_1) \right) \frac{1}{\sqrt{2}} \left( e_1^\dagger(t_2 - \tau_D) + e_2^\dagger(t_2) \right) \right. \\ & \left. \frac{1}{\sqrt{2}} \left( e_1(t_2 - \tau_D) + e_2(t_1) \right) \frac{1}{\sqrt{2}} \left( e_1(t_1 - \tau_D) + e_2(t_1) \right) \right\rangle \quad (\text{A.3}) \end{aligned}$$

Das ausmultiplizieren ergibt:

$$\begin{aligned}
G^{(2)}(t_1, t_2) = & \left\langle \frac{1}{4} \left( e_1^\dagger(t_1 - \tau_D) e_1^\dagger(t_2 - \tau_D) e_1(t_2 - \tau_D) e_1(t_1 - \tau_D) \right. \right. \\
& \left. \left. - e_1^\dagger(t_1 - \tau_D) e_1^\dagger(t_2 - \tau_D) e_1(t_2 - \tau_D) e_2(t_1) \right) \right\rangle \\
& + \left\langle \frac{1}{4} \left( e_1^\dagger(t_1 - \tau_D) e_1^\dagger(t_2 - \tau_D) e_2(t_2) e_1(t_1 - \tau_D) \right. \right. \\
& \left. \left. - e_1^\dagger(t_1 - \tau_D) e_1^\dagger(t_2 - \tau_D) e_2(t_2) e_2(t_1) \right) \right\rangle \\
& + \left\langle \frac{1}{4} \left( -e_1^\dagger(t_1 - \tau_D) e_2^\dagger(t_2) e_1(t_2 - \tau_D) e_1(t_1 - \tau_D) \right. \right. \\
& \left. \left. e_1^\dagger(t_1 - \tau_D) e_2^\dagger(t_2) e_1(t_2 - \tau_D) e_2(t_1) \right) \right\rangle \\
& + \left\langle \frac{1}{4} \left( -e_1^\dagger(t_1 - \tau_D) e_2^\dagger(t_2) e_2(t_2) e_1(t_1 - \tau_D) \right. \right. \\
& \left. \left. e_1^\dagger(t_1 - \tau_D) e_2^\dagger(t_2) e_2(t_2) e_2(t_1) \right) \right\rangle \\
& + \left\langle \frac{1}{4} \left( e_2^\dagger(t_1) e_1^\dagger(t_2 - \tau_D) e_1(t_2 - \tau_D) e_1(t_1 - \tau_D) \right. \right. \\
& \left. \left. - e_2^\dagger(t_1) e_1^\dagger(t_2 - \tau_D) e_1(t_2 - \tau_D) e_2(t_1) \right) \right\rangle \\
& + \left\langle \frac{1}{4} \left( e_2^\dagger(t_1) e_1^\dagger(t_2 - \tau_D) e_2(t_2) e_1(t_1 - \tau_D) \right. \right. \\
& \left. \left. e_2^\dagger(t_1) e_1^\dagger(t_2 - \tau_D) e_2(t_2) e_2(t_1) \right) \right\rangle \\
& + \left\langle \frac{1}{4} \left( -e_2^\dagger(t_1) e_2^\dagger(t_2) e_1(t_2 - \tau_D) e_1(t_1 - \tau_D) \right. \right. \\
& \left. \left. e_2^\dagger(t_1) e_2^\dagger(t_2) e_1(t_2 - \tau_D) e_2(t_1) \right) \right\rangle \\
& + \left\langle \frac{1}{4} \left( -e_2^\dagger(t_1) e_2^\dagger(t_2) e_2(t_2) e_1(t_1 - \tau_D) \right. \right. \\
& \left. \left. e_2^\dagger(t_1) e_2^\dagger(t_2) e_2(t_2) e_2(t_1) \right) \right\rangle
\end{aligned} \tag{A.4}$$

Unter der Annahme, dass die beiden einlaufenden Moden identisch aber statistisch unabhängig voneinander sind, kann man den Zusammenhang  $\langle A_1 A_2 \rangle = \langle A_1 \rangle \langle A_2 \rangle$  benutzen. Dabei ist  $A_i$  jeweils ein Produkt aus Operatoren, welche die  $i$ -te Mode betreffen. Nun erhält man 8 Terme, welche jeweils linear von  $\langle a_1 \rangle$  oder  $\langle a_2 \rangle$  abhängen. Nimmt man einen Fock-Zustand  $\rho = |n\rangle \langle n|$  an, lässt sich schreiben  $\langle a \rangle = \text{Tr}[a\rho] = \langle n|a|n\rangle$ . Da  $a|n\rangle \propto |n-1\rangle$  gilt, ergibt sich somit  $\langle n|a|n\rangle = \langle n|n-1\rangle = 0$ , da die Zustände orthogonal zueinander sind. Die Terme zweiter Ordnung sind von der Form  $\langle a_i^\dagger(t_1)a_i^\dagger(t_2) \rangle$ . Diese sind ebenfalls gleich null, da angenommen wird, dass  $t_1$  und  $t_2$  hinreichend unterschiedlich sind damit beide Terme keinerlei Korrelation zueinander haben. Die übrigbleibenden Terme vierter Ordnung ergeben zusammengefasst:

$$\begin{aligned} G_{HOM}^{(2)}(t_1, t_2, \tau_D) &= G_{HBT}^{(2)}(t_1 - \tau_D, t_2 - \tau_D) + G_{HBT}^{(2)}(t_1, t_2) \\ &\quad + \frac{1}{4}(\mathcal{G}^{(2)}(t_1 - \tau_D, t_2) + \mathcal{G}^{(2)}(t_1, t_2 - \tau_D) \\ &\quad - 2\text{Re}[G^{(1)}(t_1 - \tau_D, t_2 - \tau_D)G^{(1)}(t_1, t_2)]) \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

Dabei wurden die unnormalisierte Autokorrelation erster Ordnung  $G^{(1)}(t_1, t_2) = \langle a^\dagger(t_1) \rangle \langle a^\dagger(t_2) \rangle$  sowie die Identitäten  $G_{HBT}^{(2)}(t_1, t_2)$  aus Gleichung 2.42 und  $\mathcal{G}^{(2)}(t_1, t_2)$  aus Gleichung 2.43 verwendet. Für die Normalisierung von Gleichung A.5 wird wiederum angenommen, dass  $t_1$  und  $t_2$  hinreichend unterschiedlich voneinander sind, sodass die Modenoperatoren zu diesen Zeitpunkten unkorreliert sind. Daraus folgt die unkorrelierte Autokorrelationsfunktion des 50/50-Strahlteilers:

$$\begin{aligned} G_{HOM, \text{unkorr.}}^{(2)}(t_1, t_2) &= \frac{1}{4}[\mathcal{G}^{(2)}(t_1, t_2) + \mathcal{G}^{(2)}(t_1 - \tau_D, t_2) \\ &\quad + \mathcal{G}^{(2)}(t_1, t_2 - \tau_D) + \mathcal{G}^{(2)}(t_1 - \tau_D, t_2 - \tau_D)] \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

Da für eine Normalisierung über alle  $t_1$  und  $t_2$  integriert wird, kann die Abhängigkeit von  $\tau_D$  vernachlässigt werden und es folgt:

$$\int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 G_{HOM, \text{unkorr.}}^{(2)}(t_1, t_2) = \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 \mathcal{G}^{(2)}(t_1, t_2) \quad (\text{A.7})$$

Eine identische Überlegung kann für die Normalisierung von  $G_{HBT}^{(2)}$  in Gleichung A.5 angestellt werden, sodass sich insgesamt für die normalisierte Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung der HOM-Messanordnung ergibt:

$$\begin{aligned}
 g_{HOM}^{(2)}(\tau_D) &= \frac{\int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 G_{HOM}^{(2)}(t_1, t_2, \tau_D)}{\int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 G_{HOM, unkor.}^{(2)}(t_1, t_2)} \\
 &= \frac{1}{2} g_{HBT}^{(2)}(0) + \frac{1}{2} (1 - C(\tau_D))
 \end{aligned} \tag{A.8}$$

Dabei wurde die Wahrscheinlichkeit

$$C(\tau_D) = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 \text{Re}[G^{(1)}(t_1 - \tau_D, t_2 - \tau_D) G^{(1)}(t_1, t_2)]}{\int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \int_{-\infty}^{\infty} dt_2 \mathcal{G}^{(2)}(t_1, t_2)} \tag{A.9}$$

definiert, welche angibt ob zwei Photonen den Strahlteiler gemeinsam verlassen und welche für  $\tau_D = 0$  zur Sichtbarkeit der ZPI  $\nu = C(0)$  wird .

### A.3 Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung für ununterscheidbare Photonen aus einem Quantenpunkt-Mikrokavitat-System

Bisher wurden in den Berechnungen der Autokorrelationsfunktionen stets die Operatoren des Strahlungsfeldes  $\hat{a}$  eines Zwei-Niveau-Systems verwendet. Da in einem Experiment immer das Fernfeld der Quelle gemessen wird, werden diese Operatoren uber die Quelle-Feld Beziehung mit den Dipol Projektionsoperatoren  $\sigma = |G\rangle\langle E|$  substituiert  $a(t) \rightarrow \sigma(t)$  [Kir04]. Diese beschreiben die Ubergange zwischen dem Grundzustand  $|G\rangle$  und dem angeregten Zustand  $|E\rangle$  des gekoppelten QP-Mikrokavitat-Systems beschreibt. Die Photonenerzeugungs- und -vernichtungsoperatoren konnen somit direkt durch den Dipoloperator ersetzt werden. Praktisch gesprochen bedeutet dies, das ein Photon immer aus dem Ubergang des Zwei-Niveau-Systems erzeugt bzw. vernichtet wird. Um die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung  $G^{(2)}(t_1, t_2) = \frac{1}{4} \langle a^\dagger(t_1) a^\dagger(t_2) a(t_2) a(t_1) \rangle \rightarrow \frac{1}{4} \langle \sigma^\dagger(t_1) \sigma^\dagger(t_2) \sigma(t_2) \sigma(t_1) \rangle$  zu berechnen, kann man das Quanten-Regressions-Theorem [Car98] benutzen und den folgenden Zusammenhang formulieren:

$$\frac{\delta}{\delta\tau} G_{HBT}^{(2)}(t, t + \tau) = -\Gamma G_{HBT}^{(2)}(t, t + \tau), \quad (\text{A.10})$$

mit der Zerfallsrate des Zwei-Niveau Systems  $\Gamma$  (siehe Gleichung 2.33). Fur  $\tau = 0$  ergibt sich dabei  $G_{HBT}^{(2)}(t, t) = G_{HBT}^{(2)}(t, t + \tau) = 0$  da gilt  $\sigma^2 = (\sigma^\dagger)^2 = 0$  und somit  $g^{(2)}(0) = 0$ . Dies spiegelt die Tatsache wieder, dass sich zu einer gegebenen Zeit in den hier untersuchten QP-basierten Lichtquellen immer nur ein (oder kein) angeregter Zustand im System befindet. Damit fallt der erste Term in Gleichung A.8 weg. Zur Berechnung von  $C(\tau_D)$  betrachtet man zunachst die unkorrelierte Korrelationsfunktion  $\mathcal{G}^{(2)}(t_1, t_2) \rightarrow \langle \sigma^\dagger(t_1) \sigma^\dagger(t_2) \sigma(t_2) \sigma(t_1) \rangle$ . Der Erwartungswert der Dipoloperators  $\langle \sigma^\dagger(t) \sigma(t) \rangle = \text{Tr} [\rho(t) \sigma^\dagger \sigma]$  ist die Besetzung des angeregten Zustandes zur Zeit  $t$  und man erhalt aus Gleichung 2.32:

$$\langle \sigma^\dagger(t) \sigma(t) \rangle = \Theta(t) \frac{\alpha}{\Gamma - \alpha} (e^{-\alpha t} - e^{-\Gamma t}), \quad (\text{A.11})$$

bei der die Heaviside  $\Theta$  Funktion ( $\Theta = 0$  für  $t < 0$  und  $\Theta = 1$  für  $t > 0$ ) sicherstellt, dass es nur eine Emission stattfindet, wenn der angeregte Zustand besetzt war. Aus der Anwendung des Quanten-Regressions-Theorems auf die Korrelationsfunktion erster Ordnung mit der Anfangsbedingung  $G^{(1)}(t,t) = \langle \sigma^\dagger(t)\sigma(t) \rangle$  erhält man die Bewegungsgleichung des Systems:

$$\frac{\delta}{\delta\tau} G^{(1)}(t,t+\tau) = - \left( \gamma + \frac{1}{2}\Gamma + i\Delta \right) G^{(1)}(t,t+\tau) \quad (\text{A.12})$$

Daraus ergibt sich für die Korrelationsfunktion erster Ordnung des Systems:

$$G^{(1)}(t,t) = \langle \sigma^\dagger(t)\sigma(t) \rangle e^{-(\gamma + \frac{1}{2}\Gamma + i\Delta)|\tau|} \quad (\text{A.13})$$

Berücksichtigt man diese Zusammenhänge in Gleichung A.8 und führt die Integrale aus erhält man

$$g_{HOM}^{(2)}(\tau_D) = \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{\nu}{\Gamma - \alpha} [\Gamma e^{-|\tau_D|\alpha} - \alpha e^{-|\tau_D|\Gamma}] \right). \quad (\text{A.14})$$

## A.4 Exziton-Phonon Wechselwirkung

Die Master-Gleichung des QP-Mikrokavitat-Systems vor der adiabatischen Eliminierung der Kavitatsfreiheitsgrade unter Berucksichtigung von Phonon-Wechselwirkung lasst sich schreiben als [Kae13a]:

$$\begin{aligned} \frac{d\rho}{dt} = & -\frac{i}{\hbar}[H_{\text{JC}},\rho] + (L_{\kappa}(c) + L_{\Gamma}(|g\rangle\langle e|) \\ & + L_{2\gamma}(|e\rangle\langle e|) + L_{\alpha}(|e\rangle\langle p|))\rho + \mathcal{K}_{\text{ph}}(\rho), \end{aligned} \quad (\text{A.15})$$

mit dem Phononen-Storterm

$$\mathcal{K}_{\text{ph}}(\rho) = -\int_0^{\infty} ds \text{Tr}_{\text{ph}}[H_I, [\tilde{H}_I(-s), \rho(t) \otimes \rho_{\text{ph}}]] \quad (\text{A.16})$$

wobei  $\text{Tr}_{\text{ph}}$  die Spur uber alle Phonon Moden ist. Der Wechselwirkungs-Hamiltonoperator ist gegeben als

$$H_I = |e\rangle\langle e| \sum_k g_k (b_k^{\dagger} + b_k) \quad (\text{A.17})$$

mit dem Erzeugungsoperator  $b_k^{\dagger}$  einer Phonon-Mode mit Wellenvektor  $k$  und der Exziton Kopplungsstarke  $g_k$ . Der Hamilton-Operator in Dirac Darstellung ist definiert als  $\tilde{H}(-s) = e^{-iH_0s} H_I e^{iH_0s}$ , mit  $H_0 = H_{\text{JC}} + H_{\text{ph}}$  und dem Phononen Hamilton-Operator  $H_{\text{ph}} = \sum_k \omega_k b_k^{\dagger} b_k$  und der Frequenz  $\omega_k$  der Mode  $k$ .

Abschlieend wird ein thermischer Zustand fur den Phononen-Dichteoperator angenommen:  $\rho_{\text{ph}} = e^{-\beta H_{\text{ph}}} / \text{Tr}_{\text{ph}}(e^{-\beta H_{\text{ph}}})$ , mit  $\beta = \hbar/k_B T$  und der Proben temperatur  $T$ .

Die Starke der QP-Phonon-Wechselwirkung wird durch die spektrale Dichte  $J(\omega) = \sum_k g_k^2 \delta(\omega - \omega_k)$  definiert, welche durch die Funktion

$$J(\omega) = \eta \omega^3 \exp[-(\omega/\omega_c)^2], \quad (\text{A.18})$$



beschrieben werden kann. Dabei ist  $\eta$  die Stärke der Wechselwirkung und  $\omega_c$  ist die Abschneidefrequenz, welche invers proportional zur QP-Ausdehnung ist [Ram10b].

## A.5 Einfluss des Messaufbaus auf die Korrelationsmessung

Wie bereits beschrieben bietet die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung einen experimentellen Zugang um die zeitliche Emissionsstatistik einer Quelle zu charakterisieren. Dazu werden die Detektionsergebnisse von zwei Detektoren über einen Korrelator miteinander in Verbindung gesetzt und die Zeitdifferenz zwischen den Ereignissen gemessen. Trägt man viele dieser Ereignisse über dem Zeitintervall  $\tau$  zwischen den Detektion auf, erhält man ein Koinzidenzhistogramm welches der Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung entspricht. Dabei ist zu berücksichtigen, dass man nie die reine Korrelation des Lichtfeldes messen kann, sondern immer die Überlagerung mit der Übertragungsfunktion des Messaufbaus. Mathematisch entspricht dies der einer Faltung zwischen der Korrelationsfunktion der Quelle und der Zeitauflösung  $f_{Det.}(t)$  des Versuchsaufbaus, welche durch eine Gauß-Verteilung mit der zeitlichen Breite  $\sigma = t_{Res}/(2\sqrt{2\ln 2})$  ( $t_{Res}$ : Zeitauflösung des Aufbaus als FWHM) gegeben ist

$$g^{(2)}(\tau)_{real} = \left( g_{ideal}^{(2)} * f_{Det.} \right) (\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} g^{(2)}(t)_{ideal} \cdot f_{Det.}(\tau - t) dt. \quad (\text{A.19})$$

## A.6 Aufbau des Wafers M4056

Bereich	Anzahl	Dicke (nm)	Material	Dotierung
oberer DBR	25x	71,1	GaAs	intrinsisch
		87,9	AlAs	
adiabatische Modenanpassung	1x	69,2	GaAs	
		83,1	AlAs	
		65,3	GaAs	
		78,2	AlAs	
		61,4	GaAs	
		73,4	AlAs	
aktive Schicht	1x	29,7	GaAs	
		2 (Abdeckung)	PCA-InAs QPe	
		29,7	GaAs	
adiabatische Modenanpassung	1x	73,4	AlAs	
		61,4	GaAs	
		78,2	AlAs	
		65,3	GaAs	
		83,1	AlAs	
		69,2	GaAs	
oberer DBR	29,5x	87,9	AlAs	
		71,1	GaAs	
Substrat	1x		GaAs	

## A.7 Aufbau des Wafers M3569

Bereich	Anzahl	Dicke (nm)	Material	Dotierung
oberer DBR	5x	69	GaAs	intrinsisch
		75	$\text{Al}_{0,90}\text{Ga}_{0,10}\text{As}$	
Kavität	1x	147	GaAs	
aktive Schicht	1x	1,5 (Abdeckung)	PCA-InAs QPe	
Kavität	1x	10	GaAs	$\delta$ -Dotierung
	1x		Si	
	1x	137	GaAs	intrinsisch
unterer DBR	1x	75	$\text{Al}_{0,90}\text{Ga}_{0,10}\text{As}$	
	24x	69	GaAs	
		75	$\text{Al}_{0,90}\text{Ga}_{0,10}\text{As}$	
Pufferschicht	1x	400	$\text{Al}_{0,90}\text{Ga}_{0,10}\text{As}$	
Substrat	1x		GaAs	

## A.8 Aufbau des Wafers C4161

Bereich	Anzahl	Dicke (nm)	Material	Dotierung
Kavität	1x	131	GaAs	intrinsisch
aktive Schicht	1x	2 (Abdeckung)	PCA-InAs QPe	
	1x	35	GaAs	
	1x		InAs QPe	
Kavität	1x	89	GaAs	
unterer DBR	25x	66,4	GaAs	
		79,8	AlAs	
Pufferschicht	1x	240	GaAs	
Substrat	1x		GaAs	

## A.9 Aufbau des Wafers C4020

Bereich	Anzahl	Dicke (nm)	Material	Dotierung
oberer DBR	15x	67,2	GaAs	intrinsisch
		80,7	AlAs	
Kavität	1x	135	GaAs	
aktive Schicht	1x	1,5 (Abdeckung)	PCA-InAs QPe	
Kavität	1x	10	GaAs	$\delta$ -Dotierung
	1x		Si $\delta$ -Dotierung	
	1x	125	GaAs	intrinsisch
unterer DBR	1x	75	AlAs	
	25x	67,2	GaAs	
		80,7	AlAs	
Pufferschicht	1x	240	GaAs	
Substrat	1x		GaAs	

# Veröffentlichungen und Konferenzbeiträge

## Veröffentlichungen als Erstautor

- S. Unsleber, D. P. S. McCutcheon, M. Dambach, M. Lerner, N. Gregersen, S. Höfling, J. Mørk, C. Schneider und M. Kamp, *Two-photon interference from a quantum dot microcavity: Persistent pure dephasing and suppression of time jitter*, Phys. Rev. B **91**, 075413 (2015)
- S. Unsleber<sup>†</sup>, C. Schneider<sup>†</sup>, S. Maier, Y.-M. He, S. Gerhardt, C.-Y. Lu, J.-W. Pan, M. Kamp und S. Höfling, *Deterministic and efficient generation of single, indistinguishable resonance fluorescence photons from a Purcell-enhanced quantum dot-micropillar system*, Opt. Express **23**, 32977-32985 (2015)
- S. Unsleber<sup>†</sup>, S. Maier<sup>†</sup>, D. P. S. McCutcheon, Y.-M. He, M. Dambach, M. Gschrey, N. Gregersen, J. Mørk, S. Reitzenstein, S. Höfling, C. Schneider und M. Kamp, *Observation of resonance fluorescence and the Mollow-triplet from a coherently driven site-controlled quantum dot*, Optica **2**, 1072-1077 (2015)
- S. Unsleber<sup>†</sup>, Y.-M. He<sup>†</sup>, S. Maier, S. Gerhardt, C.-Y. Lu, J.-W. Pan, M. Kamp, C. Schneider und S. Höfling, *Highly indistinguishable on-demand resonance fluorescence photons from a deterministic quantum dot micropillar device with 74 % extraction efficiency*, Opt. Express **24**, 8539-8546 (2016)

---

<sup>†</sup>Diese Autoren haben in gleichem Maß beigetragen

- S. Unsleber, M. Deppisch, C. M. Krammel, M. Vo, C. D. Yerino, P. J. Simmonds, M. L. Lee, P. M. Koenraad, C. Schneider und S. Höfling, *Bulk AlInAs on InP(111) as a novel material system for pure single photon emission*, Opt. Express **24**, 23198-23206 (2016)

## Veröffentlichungen als Koautor

- M. Rau, T. Heindel, S. Unsleber, T. Braun, J. Fischer, S. Frick, S. Nauerth, C. Schneider, G. Vest, S. Reitzenstein, M. Kamp, A. Forchel, S. Höfling und H. Weinfurter, *Free space quantum key distribution over 500 meters using electrically driven quantum dot single-photon sources - a proof of principle experiment*, New J. Phys. **16**, 043003 (2014)
- T. Braun, S. Unsleber, V. Baumann, M. Gschrey, S. Rodt, S. Reitzenstein, C. Schneider, S. Höfling und M. Kamp, *Cascaded emission of linearly polarized single photons from positioned InP/GaInP quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **103**, 191113 (2013)
- T. Czerniuk, J. Tepper, A. V. Akimov, S. Unsleber, C. Schneider, M. Kamp, M. Kamp, S. Höfling, D. R. Yakovlev und M. Bayer, *Impact of nanomechanical resonances on lasing from electrically pumped quantum dot micropillars*, Appl. Phys. Lett. **106**, 041103 (2015)
- C. D. Yerino, P. J. Simmonds, B. Liang, D. Jung, C. Schneider, S. Unsleber, M. Vo, D. L. Huffaker, S. Höfling, M. Kamp and M. L. Lee, *Strain-driven growth of GaAs (111) quantum dots with low fine structure splitting*, Appl. Phys. Lett. **105**, 251901 (2014)
- X. Ding, Y. He, Z.-C. Duan, N. Gregersen, M.-C. Chen, S. Unsleber, S. Maier, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, C.-Y. Lu und J.-W. Pan, *On-Demand Single Photons with High Extraction Efficiency and Near-Unity Indistinguishability from a Resonantly Driven Quantum Dot in a Micropillar*, Phys. Rev. Lett. **116**, 020401 (2016)

- Y. He, Z.-E. Su, H.-L. Huang, X. Ding, J. Qin, C. Wang, S. Unsleber, C. Chen, H. Wang, Y.-M. He, X.-L. Wang, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, C.-Y. Lu und J.-W. Pan, *Scalable boson sampling with a single-photon device*, arXiv preprint arXiv:1603.04127 (2016)

## Konferenzbeiträge

- S. Unsleber, M. Kamp, C. Schneider und S. Höfling, *Quantum dot microcavities as quantum repeater building blocks*, Posterbeitrag, Q.Com Status-Seminar III, 19.-20. Mai 2016, Bad Honnef, Deutschland
- S. Unsleber, Y.-M. He, S. Maier, S. Gerhardt, C.-Y. Lu, J.-W. Pan, M. Kamp, C. Schneider und S. Höfling, *Coherent emission of single photons from a deterministically aligned quantum dot-micropillar device*, Posterbeitrag, French German Korean workshop, 14.-16. Dezember, Münsterschwarzach, Deutschland
- S. Unsleber, Y.-M. He, S. Maier, S. Gerhardt, C.-Y. Lu, J.-W. Pan, M. Kamp, C. Schneider und S. Höfling, *Quantum dots in microcavities: solid state platform for bright, indistinguishable photons*, eingeladener Vortrag, 3<sup>rd</sup> internal workshop for Masterstudents, PhDs and Postdocs, 26.-27. November, Dortmund, Deutschland
- S. Unsleber, M. Kamp, C. Schneider und S. Höfling, *Quantum Repeater Building Blocks based on QD - Microcavities*, Posterbeitrag, Q.Com Status-Seminar II, 21.-22. Mai 2015, Bad Honnef, Deutschland
- S. Unsleber, D. P. S. McCutcheon, M. Dambach, M. Lerner, N. Gregersen, S. Höfling, J. Mørk, C. Schneider und M. Kamp, *Highly indistinguishable photons from a quantum dot-microcavity with a large Purcell-factor*, Vortrag, CLEO: Laser Science to Photonic Applications, 10.-15. Mai 2015, San Jose, California, USA

- S. Unsleber, S. Maier, D. P. S. McCutcheon, Y.-M. He, M. Dambach, J. Mørk, C.-Y. Lu, J.-W. Pan, M. Kamp, C. Schneider und S. Höfling, *Light-matter interaction between a site controlled quantum dot and a resonant laser field*, Posterbeitrag, Quantum Materials, Quantum Physics and Nanophotonics, 15.-17. April 2015, Würzburg, Deutschland
- S. Unsleber, S. Maier, D. P. S. McCutcheon, M. Dambach, J. Mørk, S. Höfling, C. Schneider und M. Kamp, *Light matter coupling between a site controlled quantum dot and a resonant laser field*, Vortrag, DPG Frühjahrstagung, 15.-20. März 2015, Berlin, Deutschland
- S. Unsleber, D. P. S. McCutcheon, M. Dambach, M. Lermer, N. Gregersen, S. Höfling, J. Mørk, C. Schneider und M. Kamp, *Two-photon interference from a quantum dot-microcavity: Persistent pure-dephasing and suppression of time-jitter*, Posterbeitrag, 2nd international workshop on engineering of quantum emitter properties, 04.-05. Dezember 2014, Innsbruck, Österreich
- S. Unsleber, D. P. S. McCutcheon, M. Dambach, M. Lermer, N. Gregersen, S. Höfling, J. Mørk, C. Schneider und M. Kamp, *Indistinguishable single photons generated by quantum dots in adiabatic micropillar cavities*, Posterbeitrag, Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors, 22.-25. September 2014, Bremen, Deutschland
- S. Unsleber, M. Rau, T. Heindel, T. Braun, J. Fischer, S. Frick, S. Nauerth, C. Schneider, G. Vest, S. Reitzenstein, M. Kamp, A. Forchel, S. Höfling und H. Weinfurter, *Free space quantum key distribution over 500 meters using electrically driven quantum dot single-photon sources*, Posterbeitrag, Sino-Germany Solid-State Quantum Information Symposium, 16.-20. September 2013, Würzburg, Deutschland
- S. Unsleber, M. Rau, T. Heindel, T. Braun, J. Fischer, S. Frick, S. Nauerth, C. Schneider, G. Vest, S. Reitzenstein, M. Kamp, A. Forchel, S. Höfling und H. Weinfurter, *Free space quantum key distribution over 500 meters using electrically driven quantum dot single-photon sources*, Vortrag, DPG Frühjahrstagung, 10.-15. März 2013, Regensburg, Deutschland



# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen Personen meinen Dank aussprechen, die mich auf meinem fachlichen und persönlichen Weg unterstützt haben und ohne die diese Arbeit nicht zustande gekommen wäre.

Insbesondere richte ich meinen Dank an...

... meinen Doktorvater Dr. Christian Schneider für die exzellente Betreuung meiner Arbeit, die vielen Diskussionen und Erklärungen sowie für die Proben aus deiner MBE-Zeit. Kurz und knapp auf fränkisch: „Passt scho.“

... Prof. Dr. Jean Geurts für die Übernahme des Zweitgutachtens und Prof. Dr. Wolfgang Kinzel für die Teilnahme als Prüfer im Promotionskolloquium.

... Dr. Martin Kamp für die Aufnahme am Lehrstuhl für Technische Physik und die Hilfe bei Fragen.

... Prof. Dr. Sven Höfling der mittlerweile den Lehrstuhl übernommen hat, der einem bei Fragen immer mit einem offenen Ohr zur Verfügung stand und dem viel am Wohl seiner Mitarbeiter liegt.

... Dr. Dara McCutcheon, Prof. Dr. Niels Gregersen und Prof. Dr. Jesper Mørk von der DTU in Kopenhagen für die theoretischen Berechnungen in dieser Arbeit. Vor allem möchte ich mich bei Dara für den überaus hilfsbereiten Kontakt bedanken, der auch weit über die Zusammenarbeit bei den Veröffentlichungen hinaus ging.

... Dr. Yu-Ming He für seine Unterstützung und die Arbeit die er in die *in-situ*-Lithographie gesteckt hat.

... Christian M. Krammel und Prof. Dr. Paul M. Koenraad von der Universität Eindhoven für die XSTM Messungen und deren Auswertung.

... meine Masteranden Michael Dambach und Stefan Gerhardt sowie meinen Diplomanden Minh Vo für ihre ausgezeichnete Unterstützung im Labor.

... meine Bacheloranden David Kiermasch, Michael Deppisch und Christoph Rupprecht. Viel bessere Bacheloranden kann man sich nicht wünschen.

...die gesamte Arbeitsgruppe Spectroscopy III/V, insbesondere Peter Gold, Matthias Amthor, Julian Fischer, Simon Betzold und Tristan Braun für das freundschaftliche und hilfsbereite Arbeitsklima.

... die MBE-Arbeitsgruppe, insbesondere Sebastian Maier und Matthias Lermer für das Wachstum der erstklassigen Proben.

... Verena Wegmann für die organisatorische Hilfe bei Dienstreisen, Abrechnungen etc. und die erheiternden Kaffeepausen.

...Adriana Wolf, Silke Kuhn und Monika Emmerling für die Prozessierung der Proben.

... Gerhardt Heller bei der Lösung technischer Probleme.

... Cornelius Ziga und Roland Ebert für die stets schnelle und unkomplizierte Versorgung mit flüssigem Helium.

... alle Kollegen des Lehrstuhls für die angenehme Arbeitsumgebung und die sehr hilfreichen Gespräche über physikalische und messtechnische Fragestellungen.

... meine Familie und meinen Freundeskreis für die Unterstützung und die angenehme Ablenkung über die gesamte universitäre Zeit.

...meine Tochter Romy und meine Frau Katharina, für die Ablenkung und ihr Verständnis wenn ich wieder mal sehr spät nach Hause gekommen bin oder die ganze Nacht in der Uni verbracht habe, ihre Unterstützung über das gesamte Studium hinweg und für die Korrektur der zahllosen Rechtschreibfehler.