

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

**Optimierung von positionierten
In(Ga)As-Quantenpunkten zur
Integration in
Halbleiter-Mikroresonatoren**

vorgelegt von Alexander Huggenberger

aus Lauingen



Würzburg 2012

Eingereicht am: 15.05.2012

bei der Fakultät für Physik und Astronomie

1. Gutachter: Prof. Dr. Alfred Forchel

2. Gutachter: Prof. Dr. Jean Geurts

der Dissertation

1. Prüfer: Prof. Dr. Alfred Forchel

2. Prüfer: Prof. Dr. Jean Geurts

3. Prüfer: Prof. Dr. Wolfgang Kinzel

im Promotionskolloquium

Tag des Promotionskolloquiums: 10.05.2013

Doktorurkunde ausgehändigt am:

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	1
Summary	3
1 Einführung	5
2 Grundlagen und Theorie	9
2.1 Eigenschaften von In(Ga)As-Halbleiterquantenpunkten	9
2.1.1 GaAs-Materialsystem	9
2.1.2 Optische Eigenschaften von In(Ga)As-Halbleiterquantenpunkten	10
2.2 Molekularstrahlepitaxie	14
2.2.1 Aufbau der verwendeten Anlage	15
2.2.2 Strategien zur Erhöhung der Kristallqualität	16
2.3 Optische Halbleiter-Mikroresonatoren	17
2.3.1 Mikrosäulenresonatoren	18
2.3.2 Photonische Kristallresonatoren	19
3 Lithographische Methoden für die Positionierung von Quantenpunkten in Halbleiter-Mikroresonatoren	21
3.1 Strukturierung von GaAs-Substraten für das positionierte Wachstum von Quantenpunkten	21
3.1.1 Strukturierung der Probe mit optischer Lithographie	22
3.1.2 Definition von Nukleationszentren durch Elektronenstrahlolithographie und Ätzverfahren	23
3.2 Integration in Halbleiter-Mikroresonatoren	25
3.2.1 Prozess zur Herstellung von Mikrosäulenresonatoren	25
3.2.2 Prozess zur Herstellung von photonischen Kristallresonatoren	26
3.3 Elektrische Kontaktierung der Mikrosäulenresonatoren	27
4 Wachstum positionierter Quantenpunkte auf vorstrukturiertem Substrat	29
4.1 Wachstum von In(Ga)As-Quantenpunkten	29
4.1.1 Selbstorganisiertes Wachstum	30
4.1.2 Wachstum auf vorstrukturierten Substraten	32
4.1.3 Verspannungsgekoppeltes Wachstum der positionierten Quantenpunkte	34

4.2	Positionierte Quantenpunkte auf großen Gitterperioden	38
4.2.1	Wachstumseigenschaften	39
4.2.2	Visualisierungsmethoden	40
4.3	Positionierte Quantenpunkte auf kleinen Gitterperioden	42
4.3.1	Besonderheiten des Wachstums	42
4.3.2	Probencharakterisierung und Präparation für spektroskopische Untersuchungen	44
5	Optische Eigenschaften von positionierten Quantenpunkten	47
5.1	Versuchsaufbau zur Messung der Photo- und Elektrolumineszenz von Quantenpunkten	47
5.2	Kontrolle der optischen Eigenschaften des Quantenpunktensembles . .	48
5.2.1	In-Situ thermisches Ausheilen der Quantenpunkte	50
5.2.2	Zusammenhang zwischen Quantenpunktperiode und Photolumineszenzeigenschaften	51
5.3	Optische Eigenschaften einzelner positionierter Quantenpunkte	54
5.3.1	Analyse des Linienspektrums einzelner positionierter Quantenpunkte	56
5.3.2	Leistungsverhalten der Emissionslinien	57
5.3.3	Linienbreite und spektrale Diffusion	58
6	Strategien zur Reduzierung der Linienbreite einzelner positionierter Quantenpunkte	61
6.1	Ursachen der spektralen Diffusion	62
6.2	Erhöhung des Abstandes Grenzfläche - Quantenpunkt.	63
6.2.1	Stapelung der Quantenpunkte	64
6.2.2	Zusammenhang zwischen Linienbreite und Mesagröße	65
6.3	Erhöhung der Kristallqualität	67
6.3.1	Vergleich unterschiedlicher Herstellungsmethoden für Nukleationszentren	67
6.3.2	Verbesserung der Prozess- und Wachstumsreinheit	67
6.4	Reduzierung der Linienbreite durch spektroskopische Verfahren	69
6.4.1	Variation der Anregungsleistung	69
6.4.2	Quasi-resonante Anregung	71
6.4.3	Zusammenhang zwischen Emissionsenergie und Linienbreite . .	72
7	Reduzierung der Feinstrukturaufspaltung von In(Ga)As-Quantenpunkten	75
7.1	Feinstrukturaufspaltung der Emission von Quantenpunkten auf (100)-orientiertem GaAs	75
7.2	Quantenpunktemission von invertierten Pyramiden auf (111)B-orientiertem GaAs	77
7.3	Emission von Quantenpunkten auf (111)B-GaAs und (211)-GaAs . .	80

7.4	Reduzierung der Feinstrukturaufspaltung von positionierten InAs-Quantenpunkten durch ein laterales elektrisches Feld	84
7.5	Nachweis der zeitlichen Korrelation der Emission der Biexziton-Exziton-Kaskade	88
8	Skalierbare Integration positionierter Quantenpunkte in Bauteile	91
8.1	Photonische Kristalle mit positionierten Quantenpunkten	91
8.2	Mikrosäulenresonatoren mit positionierten Quantenpunkten	94
8.2.1	Elektrolumineszenz aus positionierten Quantenpunkten	95
8.2.2	Elektrisch betriebene Einzelphotonenquellen mit positionierten Quantenpunkten	97
	Nomenklatur	99
	Literaturverzeichnis	103
	Veröffentlichungen des Autors	135
	Zeitschriftenartikel als Erstautor	135
	Zeitschriftenartikel als Koautor	135
	Konferenzbeiträge	136
	Danksagung	139
	Lebenslauf	141
	Versicherung an Eides statt	143

Zusammenfassung

Diese Arbeit beschäftigt sich mit der Herstellung von positionierten In(Ga)As-Quantenpunkten zur Integration in Halbleiter-Mikroresonatoren. Dazu wurden systematisch die optischen Eigenschaften - insbesondere die Linienbreite und die Feinstrukturaufspaltung (FSS, vom engl. *fine structure splitting*) der Emission einzelner Quantenpunkte - optimiert. Diese Optimierung erfolgt im Hinblick auf die Verwendung der Quantenpunkte in Lichtquellen zur Realisierung einer Datenübertragung, die durch Quantenkryptographie abhörsicher verschlüsselt wird [Eke91, BB84]. Ein gekoppeltes Halbleitersystem aus einem Mikroresonator und einem Quantenpunkt kann zur Herstellung von Einzelphotonenquellen oder Quellen verschränkter Photonen verwendet werden. In dieser Arbeit konnten positionierte Quantenpunkte skalierbar in Halbleiter-Mikroresonatoren integriert werden.

In(Ga)As-Quantenpunkte auf GaAs sind ein häufig untersuchtes System [Mic03, Mic09] und können heutzutage mit hoher Kristallqualität durch Molekularstrahlepitaxie hergestellt werden. Die Emission der Quantenpunkte ist linienartig und ähnelt somit dem diskreten Spektrum von einzelnen Atomen. Um die Emission der Quantenpunkte gerichtet erfolgen zu lassen und die Auskoppelleffizienz der Bauteile zu erhöhen, wurden Mikrosäulenresonatoren oder photonische Kristallresonatoren eingesetzt. Die Integration in diese Resonatoren erfolgt durch Ausrichtung an Referenzstrukturen, wodurch dieses Verfahren skalierbar wird [SSS⁺08a] und die parallele Herstellung vieler räumlich gekoppelter Quantenpunkt-Resonator-Systeme erlaubt. Die Strukturierung der Substrate für die Herstellung von positionierten Quantenpunkten wurde durch optische Lithographie und Elektronenstrahlolithographie in Kombination mit unterschiedlichen Ätztechniken erreicht. Für den praktischen Einsatz solcher Strukturen wurde ein Kontaktierungsschema für den elektrischen Betrieb entwickelt [KHS⁺08, KMR⁺10]. Zur Verbesserung der optischen Eigenschaften der positionierten Quantenpunkte wurde ein Wachstumsschema verwendet, das aus einer optisch nicht aktiven In(Ga)As-Schicht und einer optisch aktiven Quantenpunktschicht besteht [SHS⁺09].

Für die Integration einzelner Quantenpunkte in Halbleiter-Mikroresonatoren wurden positionierte Quantenpunkte auf einem quadratischen Gitter mit einer Periode von bis zu 10 μm realisiert. Weiterhin konnten auch Gitter positionierter Quantenpunkte mit kleinen Perioden bis zu 200 nm hergestellt werden. Eine solche Quantenpunktanordnung kann künftig als Grundlage für die systematische Untersuchung von Effekten wie beispielsweise der Superradianz von Quantenpunkten dienen, bei denen mehrere Emittter zur Emission beitragen müssen [SSW⁺07, MDM⁺09].

Die Emissionseigenschaften der Quantenpunkte werden durch Photolumineszenzmessungen untersucht. Eine wichtige Kenngröße der Emission einzelner Quantenpunkte ist deren Linienbreite. Bei positionierten Quantenpunkten ist diese häufig aufgrund spektraler Diffusion größer als bei selbstorganisierten Quantenpunkten [UMT⁺01, ODA⁺99, BFC⁺06, TRS⁺00, SHP09, EB97]. Im Verlauf dieser Arbeit wurden unterschiedliche Ansätze und Strategien zur Überwindung dieses Effekts verfolgt. Dabei konnte ein minimaler Wert von 25 μeV für die Linienbreite eines positionierten Quantenpunktes auf einem quadratischen Gitter mit einer Periode von 2 μm erzielt werden. Die statistische Auswertung vieler Quantenpunktlinien ergab eine mittlere Linienbreite von 133 μeV . Die beiden Ergebnisse zeugen davon, dass diese Quantenpunkte eine hohe optische Qualität besitzen.

Die FSS der Emission eines Quantenpunktes sollte für die direkte Erzeugung polarisationsverschränkter Photonen möglichst klein sein [YSS⁺05, YSA⁺06]. Deswegen wurden unterschiedliche Ansätze diskutiert, um die FSS einer möglichst großen Zahl von Quantenpunkten systematisch zu reduzieren. Die FSS der Emission von positionierten In(Ga)As-Quantenpunkten auf (100)-orientiertem Galliumarsenid konnte auf einen minimalen Wert von 9.8 μeV optimiert werden. Ein anderes Konzept zur Herstellung positionierter Quantenpunkte stellt das Wachstum von InAs in geätzten, invertierten Pyramiden in (111)-GaAs dar [KTH87, BWPK04, KPW⁺04, MFG⁺10, PDR⁺11]. In (111)- und (211)-In(Ga)As sollte aufgrund der speziellen Symmetrie des Kristalls [SWL⁺09] bzw. der piezoelektrischen Felder [DCK⁺08] die FSS verschwinden. Mit Hilfe von Quantenpunkten auf solchen Hochindex-Substraten konnten FSS von weniger als 5 μeV gemessen werden. Bis zu einem gewissen Grad kann die Emission einzelner Quantenpunkte durch laterale elektrische Felder beeinflusst werden [BKL⁺11]. Besonders die beobachtete Reduzierung der FSS positionierter In(Ga)As-Quantenpunkte auf (100)-orientiertem GaAs von ca. 25 μeV auf 15 μeV durch ein laterales, elektrisches Feld ist viel versprechend für den künftigen Einsatz solcher Quantenpunkte in Quellen für verschränkte Photonen. Durch die Messung der Korrelationsfunktion wurde die zeitliche Korrelation der Emission von Exziton und Biexziton nachgewiesen und das Grundprinzip zum Nachweis eines polarisationsverschränkten Zustandes gezeigt [AJK05].

In Zusammenarbeit mit der Gruppe von Prof. Arakawa an der Universität Tokyo wurde ein Konzept entwickelt, mit dem in Zukunft Einzelquantenpunktlaser skalierbar durch Kopplung positionierter Quantenpunkte und zwei- oder dreidimensionaler photonischer Kristallkavitäten hergestellt werden können [NKI⁺10, TIG⁺11]. Weiterhin konnte mit Hilfe eines elektrisch kontaktierten Mikrosäulenresonators bei spektraler Resonanz von Quantenpunktmission und Kavitätsmode eine Steigerung der spontanen Emission nachgewiesen werden. Dieses System ließ sich bei geeigneten Anregungsbedingungen auch als Einzelphotonenquelle betreiben, was durch den experimentell bestimmten Wert der Autokorrelationsfunktion für verschwindende Zeitdifferenzen $g^{(2)}(\tau = 0) < 0.5$ nachgewiesen wurde [Mic03].

Summary

The present thesis is about the fabrication of site-controlled In(Ga)As quantum dots for the scalable integration into devices. The optical properties of these quantum dot were systematically optimized with special care regarding the optical linewidth and the fine structure splitting of single quantum dots. This optimization was accomplished in order to use the quantum dots in light sources for quantum key distribution [Eke91, BB84]. By coupling semiconductor microcavities and quantum dots one is able to realize single photon sources or sources of entangled photons. This work demonstrates the scalable integration of site-controlled quantum dots into semiconductor microresonators.

The growth of In(Ga)As quantum dots on GaAs substrates is a field of vivid research nowadays [Mic03, Mic09] and can be fabricated with high quality by molecular beam epitaxy. The emission from single quantum dots exhibits lines that resemble the discrete emission spectra of atoms. This thesis uses micropillar cavities and photonic crystal cavities to direct the emission of quantum dots and to increase the extraction efficiency. The integration into these resonator systems was done by adjusting the quantum dots' positions to reference structures on the samples. This allows for a scalable fabrication of many spatially coupled quantum dot resonator systems [SSS⁺08b]. The substrates were patterned using a combination of optical and electron beam lithography followed by wet or dry etching. Electrical carrier injection was realized by developing a contact scheme [KHS⁺08, KMR⁺10]. The quantum dots were fabricated using a stacked growth scheme that consists of a seeding layer and an optical active quantum dot layer [SHS⁺09].

Quantum dots on square lattices with a period of up to 10 μm were fabricated to enable the integration of single quantum dots into semiconductor microresonators. On the other hand, it was possible to realize periods of only 200 nm which is promising for the investigation of superradiance effects in the ensemble emission of quantum dots [SSW⁺07, MDM⁺09].

The optical properties of site-controlled quantum dots were investigated by studying the photoluminescence. The emission linewidth of single quantum dots is an important benchmark for the optical quality. Site-controlled quantum dots are known to exhibit large linewidths due to the effect of spectral diffusion [UMT⁺01, ODA⁺99, BFC⁺06, TRS⁺00, SWB⁺00, EB97]. Different strategies to overcome this obstacle were investigated during this work. A linewidth as low as 25 μeV was observed for a single site-controlled quantum dot (on a square lattice of 2 μm period). The statistical evaluation yields a mean value of 133 μeV for this kind

of quantum dots. Both results prove the high optical quality of the site-controlled quantum dots fabricated in this work.

The fine structure splitting of the quantum dot emission should be close to zero for the direct observation of polarization entangled photons [YSS⁺05, YSA⁺06]. Different concepts were investigated during this work to reduce the fine structure splitting of the quantum dot ensemble. The lowest splitting obtained for site-controlled In(Ga)As quantum dots on (100) GaAs was 9.8 μeV . By growing quantum dots into inverted pyramids etched into (111) GaAs [KTH87, BWPK04, KPW⁺04, MFG⁺10, PDR⁺11] one should be able to further reduce the splitting due to the threefold symmetry of (111) GaAs [SWL⁺09]. Furthermore, the piezoelectric field in (211) GaAs should compensate the fine structure splitting [DCK⁺08]. Using quantum dots on these high index materials the fine structure splitting was reduced to values below 5 μeV during this work. Another concept to reduce the fine structure splitting is the application of a lateral electric field [BKL⁺11] which was shown to reduce the splitting from 25 μeV to 15 μeV . For the future measurement of the degree of entanglement of photons, an experimental setup was established and its functionality was proven by measuring the temporal characteristics of an biexciton-exciton-cascade [AJK05].

In cooperation with the group of Prof. Arakawa from Tokyo University a concept was developed to realize single quantum dot lasers by combining site-controlled quantum dots and two- or three-dimensional photonic crystal cavities [NKI⁺10, TIG⁺11] in the near future. Furthermore, with the help of an electrically driven micropillar resonator the enhancement of the spontaneous emission for spectral resonance of the cavity mode with the emission of a site-controlled quantum dot was shown. This system could be used as a single photon source which is proven by the measurement of the autocorrelation function for zero time delay $g^{(2)}(\tau = 0) < 0.5$ [Mic03].

1 Einführung

Die heutige Gesellschaft ist geprägt vom permanenten weltweiten Datenaustausch über das Internet. Dabei werden teils sensible Daten wie Kreditkarteninformationen oder vertrauliche Dokumente ausgetauscht. Gelangen diese in die falschen Hände, kann dadurch ein großer Schaden entstehen. Die Anzahl der vom Bundeskriminalamt Deutschland im Jahr 2010 erfassten Straftaten in der Rubrik “Ausspähen und Abfangen von Daten” betrug 15190 Fälle, was einen Anstieg von 32 % zum Vorjahr darstellt [Deu10]. Weniger als ein Viertel der Fälle konnte 2010 aufgeklärt werden. Somit liegt die Aufklärungsquote für Datenspionage deutlich unter der durchschnittlichen Aufklärungsrate von 56 % für alle registrierten Straftaten im Jahr 2010 [Deu10]. Diese Zahlen machen deutlich, dass der Sicherheit sensibler Daten enorme Aufmerksamkeit gewidmet werden muss.

Das Rückgrat der Internet-Datenübertragung bildet ein Glasfasernetz, das die wichtigsten Knotenpunkte im Kommunikationsnetz verbindet. Die sogenannte “letzte Meile” bis zum Endverbraucher (also dem Privatkunden oder dem Firmennetz) ist in der Regel eine Kupferleitung. Im schnellen Glasfasernetz werden sehr hohe Übertragungsgeschwindigkeiten erzielt. So stammt der aktuelle Weltrekord aus dem Jahr 2011, welcher bei über 100 Terabit pro Sekunde für eine einzelne Glasfaser [NEC11] liegt. Zum Vergleich: Gängige Übertragungsraten, die kommerziell angeboten werden, liegen typischerweise im Bereich von 1 bis 100 Megabit pro Sekunde. In Zukunft sollen viele Teilstücke des Kupfernetzes durch Glasfaserkabel ersetzt werden, um so höhere Geschwindigkeiten zu erzielen. Die Signalerzeugung und -detektion beruht dabei auf optoelektronischen Bauelementen, die elektronische Signale in Licht umwandeln bzw. umgekehrt. Das zu übertragende Lichtsignal wird dabei mit Halbleiterlasern erzeugt, deren Emissionswellenlänge auf das Absorptionsminimum bzw. Dispersionsminimum der eingesetzten Glasfasern angepasst wird.

Der Schutz der zu übermittelnden Informationen vor unberechtigten Zugriffen durch Dritte erfolgt üblicherweise durch Verschlüsselung der Daten. Heutzutage verwendete Verschlüsselungsverfahren beruhen auf der Erzeugung eines Schlüssels aus dem Produkt zweier möglichst großer Primzahlen [RSA78]. Dieses Produkt wird mittels spezieller Einwegfunktionen dazu benutzt, um einen öffentlichen und einen privaten Schlüssel zu generieren. Mit dem öffentlichen Schlüssel wird der Klartext der Nachricht verschlüsselt. Die Entschlüsselung der Nachricht ist nur möglich, wenn man im Besitz des privaten Schlüssels ist oder das im öffentlichen Schlüssel enthaltene Produkt der Primzahlen in seine Faktoren zerlegen kann. Sind die Faktoren unbekannt, beansprucht die Zerlegung des Produktes mit den heutigen Rechenmethoden

sehr viel Zeit. Trotzdem ist es theoretisch möglich, mit sehr schnellen Rechnern oder neuartigen Rechenmethoden eine auf diese Weise verschlüsselte Nachricht zu dechiffrieren. Dies wurde beispielsweise 2009 für eine Schlüssellänge von 768 Bit experimentell gezeigt [KAF⁺10]. Die Sicherheit dieses Verfahrens beruht also auf der Verschlüsselung einer Nachricht mit einer Schlüssellänge, die mit aktuell verfügbarer Rechenleistung höchstwahrscheinlich nicht zu entziffern ist.

Eine inhärent sichere Methode der Datenübertragung stellt die sogenannte Quantenkryptographie dar [BEZ00]. Hierbei werden grundlegende Prinzipien der Quantenmechanik genutzt, um einen potentiellen Angreifer zu entdecken. Die Realisierung der Schlüsselübertragung kann durch unterschiedliche Protokolle erfolgen, die auf der Übertragung einzelner Photonen [BB84] bzw. verschränkter Photonenpaare [Eke91] beruhen. Die Schlüsselinformation wird dabei auf die Polarisation des Photons geprägt. Nach der Übertragung werden Teile des Schlüssels verglichen. Aus dem Grad der Korrelation kann die Wahrscheinlichkeit bestimmt werden, dass der Schlüssel nicht abgehört wurde. Anschließend wird die Nachricht mit dem verbleibenden Teil des Schlüssels codiert und übertragen. Wichtig sind dabei folgende Grundprinzipien: Der Schlüssel muss rein zufällig sein, er darf nur einmal verwendet werden und die Schlüssellänge muss gleich der Nachrichtenlänge sein [Sha49].

Für die Erzeugung einzelner Photonen bzw. verschränkter Photonenpaare in der Quantenkryptographie werden spezielle Quellen benötigt. Typischerweise kommen heutzutage zur Erzeugung einzelner Photonen abgeschwächte Laser zum Einsatz. Diese emittieren allerdings mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit mehrere Photonen zur gleichen Zeit und bieten so einem potentiellen Angreifer die Möglichkeit, Photonen unentdeckt abzufangen. Eine echte Einzelphotonenquelle lässt sich mit Hilfe eines Halbleiterquantenpunktes herstellen [Shi07, Mic09], da dieser zu einem Zeitpunkt nur ein Photon mit bestimmter Energie emittiert. Aufgrund der speziellen elektronischen Konfiguration eines solchen Quantenpunktes ist es auch möglich, mit ihm polarisationsverschränkte Photonenpaare zu erzeugen [BSPY00]. Die Herstellung von Halbleiterquantenpunkten erfolgt typischerweise mit Hilfe eines selbstorganisierten Verfahrens [SvK38], wobei die Position des Quantenpunktes auf dem Träger zufällig ist und die Oberflächendichte von häufig untersuchten In(Ga)As-Quantenpunkten im Bereich von 10^8 - 10^{11} cm⁻² liegt [Zre00]. Um die vom Quantenpunkt emittierten Photonen zur Signalverarbeitung nutzen zu können, sollte die Emission durch einen optischen Resonator erhöht und in eine Richtung gelenkt werden. Solche Halbleiter-Resonatoren haben Abmessungen im Bereich einiger Mikrometer. Aufgrund der zufälligen Verteilung und der hohen Oberflächendichte ist die Integration eines einzelnen Quantenpunktes in einen Halbleiter-Mikroresonator technologisch sehr anspruchsvoll.

Eine Möglichkeit, diese Integration zu bewerkstelligen, liegt im positionierten Wachstum von Quantenpunkten (siehe hierzu z. B. [Sch07]). Dabei wird ein Substrat mit Bereichen vorstrukturiert, in denen bevorzugt Quantenpunkte entstehen. Die Position der Quantenpunkte wird relativ zu bestimmten Referenzstrukturen festgelegt, so dass die Quantenpunkte wieder auffindbar sind und skalierbar in Bauteile inte-

griert werden können. Dieses Verfahren erlaubt es, eine große Anzahl von Bauteilen mit einzelnen Quantenpunkten gleichzeitig herzustellen.

Ziel dieser Arbeit ist es, die Eigenschaften von solchen positionierten In(Ga)As-Quantenpunkten zu optimieren. Dabei sollen besonders die optische Qualität der Quantenpunkte maximiert werden und die Feinstrukturaufspaltung minimiert werden. Dies geschieht im Hinblick auf die Verwendung der Quantenpunkte in Lichtquellen für die Quantenkryptographie. Außerdem können Quantenpunkte auch als aktives Medium in einem Halbleiterlaser [AS82, AMS86] dienen. In dieser Arbeit wird ein Konzept entwickelt, mit dem künftig Laser mit einem einzigen Quantenpunkt als aktives Medium skalierbar hergestellt werden können [SJ11]. Damit sollen künftig sehr kleine Laser ermöglicht werden, die aufgrund ihrer geringen Abmessungen leicht in photonische Schaltkreise integriert werden können.

2 Grundlagen und Theorie

Das Thema dieser Arbeit ist die Realisierung von speziellen Lichtquellen für die Datenübertragung oder -verarbeitung. Alle diese Quellen beinhalten Halbleiterquantenpunkte aus In(Ga)As als aktives Medium. Die Grundzüge des Materialsystems und die optischen Eigenschaften dieser Quantenpunkte (QP) werden in Abschnitt 2.1 erläutert. Dabei wird besonders auf die elektronische Struktur der Verbindungshalbleiter (Al,Ga,In)As eingegangen, die maßgeblich die optischen Eigenschaften der Quantenpunkte beeinflusst. Die Herstellung der Quantenpunkte erfolgt mit Molekularstrahlepitaxie, einem Abscheideverfahren im Ultrahochvakuum, bei dem höchste Reinheiten und Kristallqualitäten erzielt werden können (siehe Abschnitt 2.2). Aufgrund der räumlichen Emissionscharakteristik eines Quantenpunkts in einem umgebenden Halbleitermaterial kann nur ein kleiner Teil des emittierten Lichtes zur Signalübertragung verwendet werden [BBG⁺02]. Mit Hilfe von angepassten Resonatorsystemen kann die Emission in gewisse Raumrichtungen erhöht werden. Im Falle spektraler Resonanz kann auch eine Verstärkung der spontanen Emission erzielt werden, so dass die Auskoppelleffizienz für Licht gesteigert werden kann. Zwei unterschiedliche Ansätze für Resonatorsysteme werden in Abschnitt 2.3 behandelt.

2.1 Eigenschaften von In(Ga)As-Halbleiterquantenpunkten

Der Begriff “Quantenpunkt” wird häufig in leicht unterschiedlicher Weise verstanden. In dieser Arbeit werden ausschließlich Quantenpunkte aus dem Halbleiter In(Ga)As verwendet. Charakteristisch für diese Halbleiterquantenpunkte sind räumliche Abmessungen im Nanometerbereich. Ladungsträger, die sich im Quantenpunkt befinden, können sich nicht frei bewegen, da die De-Broglie-Wellenlänge eines Elektrons [dB29] in der gleichen Größenordnung liegt wie die Ausdehnung des Quantenpunkts. Damit sind die Ladungsträger räumlich lokalisiert, was einen direkten Einfluss auf die optischen Eigenschaften der Halbleiterquantenpunkte hat.

2.1.1 GaAs-Materialsystem

In dieser Arbeit werden Halbleiterstrukturen aus GaAs, AlAs und InAs sowie deren ternäre Verbindungen AlGaAs und InGaAs verwendet. GaAs und InAs kön-

nen mit sehr hoher Kristallqualität hergestellt werden und sind direkte Halbleiter. Deswegen werden sie häufig als aktives Material für optoelektronische Bauelemente, wie beispielsweise Laserdioden [HFK⁺62] oder Solarzellen [AAK⁺70], eingesetzt. $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ist bis zu einem Aluminiumgehalt von $x = 0.43$ ein direkter Halbleiter und wird bei größeren Aluminiumanteilen indirekt [Sax80]. Diese Verbindung wird vorwiegend aufgrund des Brechungsindexunterschiedes zu GaAs (siehe unten) zum Lichteinschluss und zur Lichtführung im Bauteil verwendet.

GaAs, AlAs und InAs kristallisieren in der Zinkblendestruktur [IL02]. GaAs und AlAs haben mit 5.6533 \AA bzw. 5.6611 \AA annähernd identische Gitterkonstanten und können so nahezu verspannungsfrei aufeinander aufgewachsen werden (siehe Abschnitt 2.2). InAs hat mit 6.0583 \AA eine deutlich größere Gitterkonstante, so dass InAs nicht im Schichtmodus aufwächst, sondern auf einem GaAs-Substrat kohärent verspannte Materialansammlungen bildet, die Quantenpunkte genannt werden (siehe Unterabschnitt 4.1.1). Wichtige Materialparameter finden sich zum Beispiel für AlGaAs in [Ada85] und für InAs in [WCA⁺83].

Die optischen Eigenschaften des Volumenmaterials und der niederdimensionalen Halbleiterstrukturen werden maßgeblich von der Bandlücke der beteiligten Halbleiter bestimmt. GaAs und InAs besitzen eine Bandlücke, die einer Rekombinationsenergie im infraroten Wellenlängenbereich entspricht. Die exakte Größe der Bandlücke hängt u. a. von der Materialzusammensetzung, der Kristalltemperatur und der Verspannung ab. Das genaue Zusammenwirken dieser Faktoren auf die Bandlücken von Halbleitern im Allgemeinen kann in Standardwerken der Halbleiterphysik nachgeschlagen werden, z. B. in [IL02] und [Thu05].

Weiterhin besitzt $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ einen Brechungsindex n , der von der Kristalltemperatur, dem Aluminiumgehalt x und der Wellenlänge des Lichtes abhängt [GRG⁺00]. GaAs und AlAs besitzen im Vergleich zu anderen Materialsystemen wie z. B. (Al,Ga,In)P einen relativ hohen Brechungsindexunterschied. Dadurch können Spiegel aus alternierenden AlAs/GaAs-Schichten hergestellt werden, deren Reflektivität mit dem Verhältnis der Brechungsindizes wächst [Sal95]. Somit benötigt im GaAs/AlAs-Materialsystem ein Resonator mit vorgegebener Spiegelreflektivität weniger Schichten als in anderen Materialsystemen (siehe Unterabschnitt 2.3.1).

2.1.2 Optische Eigenschaften von In(Ga)As-Halbleiterquantenpunkten

In diesem Abschnitt sollen kurz die wichtigsten optischen Eigenschaften von Halbleiterquantenpunkten aus In(Ga)As dargestellt werden. Dazu wird die elektronische Struktur eines idealisierten In(Ga)As-Quantenpunktes (siehe Abbildung 2.1a) in eindimensionaler Darstellung betrachtet. InAs besitzt eine kleinere Bandlückenenergie $E_{\text{Gap,InAs}}$ als das den Quantenpunkt umgebende GaAs. Der Heteroübergang GaAs-InAs ist vom Typ 1 mit den Energieunterschieden ΔE_{VB} im Valenzband (VB) und ΔE_{LB} im Leitungsband (LB). Somit besitzen sowohl Elektronen als auch Löcher

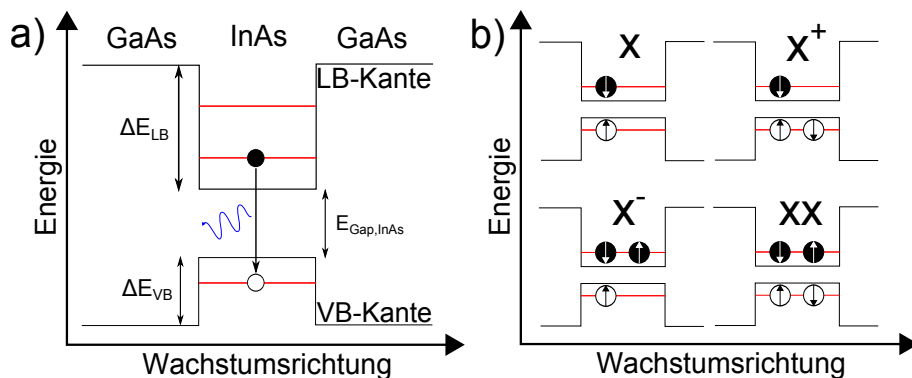


Abbildung 2.1: a) Idealisiert dargestellter, eindimensionaler Bandverlauf und Energieniveaus eines In(Ga)As Quantenpunktes in einer GaAs-Matrix. Elektronen sind als schwarz ausgefüllte Kreise dargestellt, Löcher als weiße Kreise mit schwarzem Rand. b) Vier mögliche Ladungsträgerkonfigurationen innerhalb eines Quantenpunktes. Aufgeführt sind ein Exziton (X), ein positiv geladenes Exziton (X⁺), ein negativ geladenes Exziton (X⁻) und ein Biexziton (XX). Die Pfeile geben die unterschiedlichen Spinausrichtungen der Ladungsträger an.

innerhalb des Quantenpunktes eine niedrigere Energie als in der GaAs-Matrix und halten sich deswegen bevorzugt im Quantenpunkt auf. Dort kann auch die Rekombination der Ladungsträger stattfinden und so zur Emission von Licht führen. Die Energie des emittierten Lichtes hängt von der Energiedifferenz der beteiligten Ladungsträger ab. Diese können sich auf den erlaubten Niveaus innerhalb des endlichen Potentialtopfes aufhalten, der durch den Quantenpunkt gebildet wird. Die Lage der Energieniveaus hängt von ΔE_{VB} und ΔE_{LB} ab, also der Indiumkonzentration im Quantenpunkt und der Ausdehnung des Quantenpunktes.

Wechselt man nun ins realistischere, dreidimensionale Bild eines Quantenpunktes, so beeinflussen die Abmessungen und die Form des Quantenpunktes die Lage der Energieniveaus [MB94]. Die in dieser Arbeit behandelten Quantenpunkte haben typischerweise eine Ausdehnung von einigen 10 nm in der Ebene und wenigen Nanometern in der Höhe. Die energetische Lage des Grundzustandes und damit des zugehörigen optischen Übergangs wird maßgeblich durch die kleinste Ausdehnung bestimmt [GMH⁺98]. Weiterhin haben reale Quantenpunkte durch Diffusionsprozesse während der Herstellung (v. a. bei hoher Wachstumstemperatur, siehe Abschnitt 4.2) keine homogene Indiumkonzentration, sondern einen variierenden Indiumgehalt innerhalb des Quantenpunktes [GMH⁺98, WFM99, WRS06]. Bei einer Berechnung der Energiezustände müssen auch eine Verspannung des Kristallgitters und auftretende piezoelektrische Felder sowie die Umgebung des Quantenpunktes berücksichtigt werden [Dav98]. Letzteres ist besonders dann wichtig, wenn eine Benetzungsschicht aus InAs zwischen den Quantenpunkten vorhanden ist [MSS⁺05], wie es typischerweise für Quantenpunkte der Fall ist, die im Stranski-Krastanov-Wachstumsmodus hergestellt wurden.

Eine vereinfachte Abschätzung für die Lage der Energieniveaus für Elektronen E_e und Löcher E_h im Quantenpunkt ist durch folgende Formel gegeben [Har09]:

$$E_{e/h} = \frac{\hbar^2 \pi^2}{2m_{e/h}^*} \left(\frac{n_x^2}{L_x^2} + \frac{n_y^2}{L_y^2} + \frac{n_z^2}{L_z^2} \right) \quad (2.1)$$

Hierbei ist $h = 6.63 \cdot 10^{-34}$ Js das Plancksche Wirkungsquantum, $m_{e/h}^*$ die effektive Masse von Elektronen oder Löchern im Quantenpunkt, $L_{x,y,z}$ die Ausdehnung des Quantenpunktes in x-, y-, z-Richtung und $n_{x,y,z} \in \mathbb{N}$ die Quantenzahl in der zugehörigen Raumrichtung. Diese Formel stellt nur eine Abschätzung dar und berücksichtigt nicht die tatsächliche Form des Quantenpunktes, die Verspannung, die Materialverteilung und so weiter.

Neben den oben erwähnten möglichen Energieniveaus für Ladungsträger werden die optischen Übergänge eines Quantenpunktes vor allem durch die Coulomb-Wechselwirkung der Ladungsträger im Quantenpunkt bestimmt. Aufgrund der räumlichen Nähe innerhalb des Quantenpunktes bilden Elektron und Loch einen gebundenen Ladungsträgerkomplex [Wan37], der Exziton (X) genannt wird. Das Exziton kann näherungsweise mit dem Modell für ein Wasserstoffatom beschrieben werden [SS66], da es sich hierbei ebenfalls um einen gebundenen Zustand aus einer positiven und einer negativen Ladung handelt.

Weiterhin sind in Abbildung 2.1b Ladungsträgerkomplexe aus mehr als zwei Teilchen dargestellt. Ein zusätzliches Loch führt zu einem positiv geladenen Exziton (X^+), ein Elektron zu einem negativ geladenen Exziton (X^-). Zwei Exzitonen können ebenfalls einen gebundenen Biexzitonenzustand bilden (XX). Die Bindungsenergien dieser Zustände hängen vom genauen Bandkantenverlauf des Quantenpunktes und den Wechselwirkungen zwischen den Ladungsträgern ab [BSH⁺00]. Zur realistischen Beschreibung von Quantenpunkten benötigt man also die vollständigen Informationen über Form, Zusammensetzung und Verspannung des Quantenpunktes. So kann beispielsweise die Bindungsenergie des Biexzitons kleiner oder größer sein als die des Exzitons [RHS⁺03].

Die in Kapitel 7 dargestellten Untersuchungen erfordern eine noch genauere Betrachtung der elektronischen Zustände innerhalb eines Quantenpunktes. Dabei muss berücksichtigt werden, dass das Elektron und das Loch einen Spin besitzen und die Austauschwechselwirkung einen Beitrag zur Energie der Teilchen liefert. In In(Ga)As-Quantenpunkten finden bevorzugt Übergänge zwischen Elektronen und Schwerlöchern statt [BOS⁺02]. Dies hat zur Folge, dass für Quantenpunkte zwei mögliche leuchtende Exzitonenzustände existieren [Mic09], deren energetische Entartung durch Asymmetrien des Quantenpunktes aufgehoben werden kann [SSR⁺05]. Diese Asymmetrie kann beispielsweise durch die Form des Quantenpunktes, der Verspannung oder durch piezoelektrische Felder entstehen [KBW⁺99, RSS⁺07, SRS⁺06, BNZ03]. Der Energieunterschied E_{FSS} dieser beiden Niveaus wird als Feinstrukturaufspaltung (FSS, vom engl. *fine structure splitting*)

bezeichnet. Geladene Zustände und Biexzitonen besitzen keine Feinstrukturaufspaltung, da sie Spin-Singulett-Zustände sind [BOS⁺02].

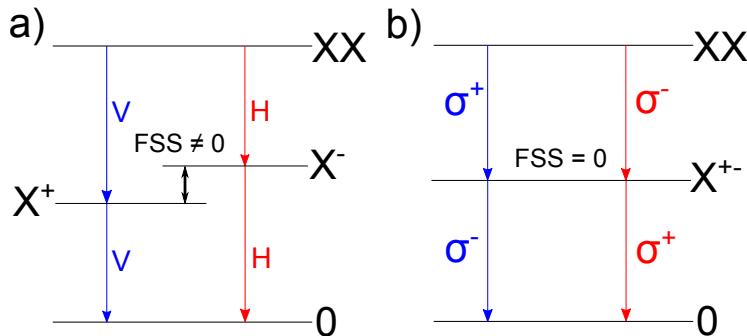


Abbildung 2.2: a) Energieschema der Biexziton-Exziton-Zerfallskaskade für einen Quantenpunkt mit endlicher Feinstrukturaufspaltung (FSS). Die Polarisation des emittierten Lichtes ist linear vertikal (V) bzw. horizontal (H). b) Energieschema für verschwindende FSS und somit entartete Exzitonenzustände. Die Polarisation der hierbei emittierten Photonen ist rechts oder links zirkular.

Die vier Ladungsträger eines Biexzitons in einem Quantenpunkt können also über zwei energetisch unterschiedliche, exzitonische Zwischenzustände (X^+ und X^-) in den Grundzustand rekombinieren (siehe Abbildung 2.2a). Die dabei emittierten Photonen besitzen im Allgemeinen unterschiedliche Energien. In diesem Fall ist die Polarisation der beiden Photonen entweder horizontal (H) oder vertikal (V) [GSS⁺96a, STS⁺02]. Für eine verschwindende Feinstrukturaufspaltung zerfällt der Biexzitonenzustand unter Emission eines Photons mit links oder rechts zirkularer Polarisation (siehe Abbildung 2.2b). Die Polarisation des Photons aus dem anschließenden Zerfall des Exzitons ist aufgrund der Drehimpulserhaltung vorgegeben und entgegengesetzt zirkular polarisiert. Es wurde experimentell nachgewiesen, dass die emittierten Photonen polarisationsverschränkt sind, wenn die Information über den Zerfallspfad durch spektrales Filtern entfernt wird [ALP⁺06, SHP09] und somit keine Unterscheidung der Zerfallspfade möglich ist. Die Verschränkung bleibt auch bei Wahl einer anderen Polarisationsbasis bestehen [Shi07], worauf der experimentelle Nachweis der Verschränkung mittels Quantentomographie beruht [AJK05, Leo95].

Eine weitere wichtige Eigenschaft der Emission eines einzelnen Quantenpunktes ist, dass in einem bestimmten Zeit- und Energieintervall nur ein einzelnes Photon emittiert werden kann [SPS⁺01, MKB⁺00]. Die Emission findet durch Rekombination von Exzitonen statt. Sollen zwei Photonen zur gleichen Zeit emittiert werden, müssten sich mindestens zwei Exzitonen im Quantenpunkt aufhalten. Die Rekombination des ersten Exzitons erfolgt aber durch die Coulomb-Wechselwirkung mit den Ladungsträgern des zweiten Exzitons im Allgemeinen mit anderer Emissionsenergie.

Bei der Rekombination eines einzelnen Exzitons wird ein Photon mit der Energie E_X emittiert. Erst nach der Rekombination dieses Exzitons kann sich wieder ein

Exziton bilden (z. B. durch Relaxationsprozesse von Ladungsträgern aus höheren Energieniveaus). Dieses Verhalten kann mit der Autokorrelationsfunktion [BKM⁺01]

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} \quad (2.2)$$

beschrieben werden. Diese Funktion gibt die Wahrscheinlichkeit an, ein Photon zur Zeit $t + \tau$ zu detektieren, wenn ein Photon zur Zeit t detektiert wurde [WM08]. $I(t)$ steht für die Intensität des detektierten Signals zum Zeitpunkt t . Für verschwindende Zeitdifferenzen $\tau = 0$ zwischen den Detektionsereignissen verschwindet für einen perfekten Quantenpunkt auch der Wert der Autokorrelationsfunktion: $g^{(2)}(\tau = 0) = 0$. Laserlicht besitzt aufgrund des kohärenten Charakters der Emission einen Wert von $g^{(2)}(\tau = 0) = 1$ [Lou00, MW95, SZ97]. Für thermisch erzeugtes Licht ist der Wert $g^{(2)}(\tau = 0) = 2$, da die Emission aufgrund des Entstehungsprozesses in einem thermischen Emitter zur Häufung neigt [Lou00, MW95, SZ97]. In der Literatur wird der Grenzwert für den Übergang zu einer Einzelphotonenquelle mit $g^{(2)}(\tau = 0) < 0.5$ angegeben, da dies bedeutet, dass im Mittel weniger als zwei Emitter zum analysierten Signal beitragen [Mic03].

Mit der gleichen Funktion kann auch die zeitliche Korrelation der Emission aus unterschiedlichen Zuständen beschrieben werden. So kann beispielsweise untersucht werden, wie die Emission des Exzitons und des Biexzitons nacheinander erfolgt (siehe Abschnitt 7.5) oder es können polarisationsaufgelöste Studien der Emission eines Quantenpunktes erstellt werden, aus denen der Verschränkungsgrad der Emission berechnet werden kann [ALP⁺06].

2.2 Molekularstrahlepitaxie

Die Molekularstrahlepitaxie (MBE vom englischen *molecular beam epitaxy*) ist ein Verfahren zur Herstellung von epitaktischen Kristallschichten auf einem kristallinen Substrat durch Verdampfung oder Sublimation hochreiner Elemente im Ultrahochvakuum. Für optoelektronische Bauelemente muss die Anzahl der Verunreinigungen und Kristalldefekte möglichst gering sein, da einerseits die Beweglichkeit der Ladungsträger durch solche Störstellen gehemmt wird. Andererseits können solche Störstellen die optischen Eigenschaften durch spektrale Diffusion (siehe Abschnitt 6.1) oder nicht-strahlende Rekombination negativ beeinflussen. Weiterhin benötigen optische Resonatoren, die durch solche Schichtstrukturen hergestellt werden, eine möglichst perfekte Grenzfläche zwischen den einzelnen Schichten, um Streuung an der Grenzfläche zu verringern. Die Qualität der mittels MBE hergestellten Strukturen beeinflusst also direkt die optische Güte eines Resonators (siehe Abschnitt 2.3). Aufgrund dieser Tatsachen wurde im Rahmen dieser Arbeit großen Wert auf eine hohe Reinheit und eine möglichst perfekte Kristallstruktur der hergestellten Proben gelegt, wie nachfolgend erläutert wird.

2.2.1 Aufbau der verwendeten Anlage

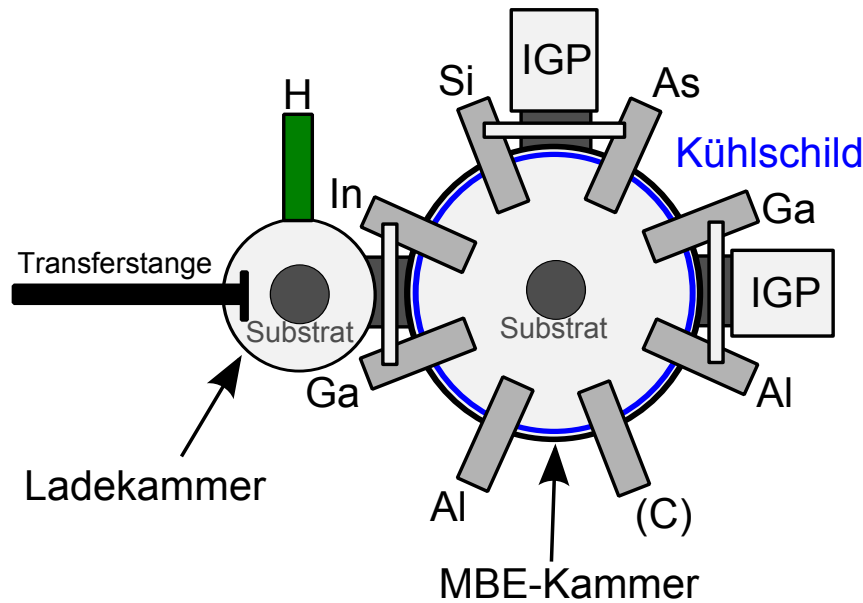


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung der verwendeten Anlage zur Molekularstrahlepitaxie. In der Ladekammer (links) findet die Probenreinigung statt. Das Wachstum findet in der MBE-Kammer (rechts) statt. Weitere Erläuterungen finden sich im Fließtext.

Zum Wachstum der in dieser Arbeit untersuchten Proben wurde eine MBE der Firma *Eiko Cooperation* verwendet (siehe Abbildung 2.3). Die Anlage umfasst eine Kammer, in der das Wachstum stattfindet und eine Ladekammer, in der Proben vor dem Wachstum gereinigt werden. Die Ladekammer wird nach dem Einbringen neuer Proben mit einer Drehschieber-Vorpumpe und einer Turbomolekularpumpe evakuiert. Der minimal erreichbare Druck wird von Pumpdauer und Kontaminationsgrad der Probe bestimmt und beträgt etwa $5 \cdot 10^{-9}$ Torr. Dazu sind allerdings zusätzliche zeitintensive Maßnahmen nötig, so dass im Normalbetrieb ein Druck von $1 \cdot 10^{-8}$ Torr bis $5 \cdot 10^{-8}$ Torr erlangt wird. Die Probe kann in der Ladekammer mit einer Heizung auf $400 \text{ }^\circ\text{C}$ erhitzt werden, um die Desorptionsgeschwindigkeit von Kontaminationen auf der Probenoberfläche zu erhöhen. Für das Wachstum auf vorstrukturierten Substraten ist eine spezielle Oxidentfernung mit atomarem Wasserstoff notwendig, für die eine Wasserstoffquelle in der Ladekammer vorhanden ist.

Die MBE-Kammer wird durch zwei Ionengetterpumpen (IGP) mit einer nominellen Pumpgeschwindigkeit von je 500 l/s evakuiert und so auf einen Druck von wenigen 10^{-8} Torr gebracht. Während der Probenherstellung werden im Vergleich zur Anzahl der Restgasmoleküle große Materialmengen frei, die einen zusätzlichen, sehr effizienten Pumpmechanismus erfordern. Dazu ist auf der Innenseite der Kammerwand ein mit flüssigem Stickstoff durchflossener Kühltisch angebracht, der eine vielfach höhere Pumpleistung besitzt. Das Substrat befindet sich in der Kammermitte auf

einer schwenkbaren Einheit und wird rückseitig beheizt. Die kranzförmig angebrachten Effusionszellen zielen auf das Substrat. Es stehen zwei Zellen mit Gallium, zwei Zellen mit Aluminium und eine Zelle mit Indium als Gruppe-III-Elemente zur Verfügung. Arsen wird durch eine sog. Crackerzelle bereitgestellt, bei der das verdampfte Arsen eine Zone höherer Temperatur durchläuft und so von As_4 zu As_2 thermisch aufgebrochen werden kann. Zur n-Dotierung steht Silizium zur Verfügung, das sich bei moderaten Dotierkonzentrationen in GaAs auf einem Gallium-Gitterplatz einbaut und so als Donator wirkt. Bei sehr hohen Dotierkonzentrationen wird Silizium in GaAs auch auf As-Plätzen eingebaut und es tritt so eine Kompensation der Dotierung ein. Zeitweise stand zur p-Dotierung auch eine Kohlenstoffquelle zur Verfügung.

Die Temperatur der Probe kann durch eine Messung der thermischen Strahlung der Oberfläche mit einem Pyrometer bestimmt werden. Die Verdampfungsraten der Effusionszellen können durch eine Druckmessröhre gemessen werden, die an den Ort des Substrates gedreht werden kann. Zu beachten ist, dass diese Messmethode nur für diese MBE-Anlage spezifische Werte liefert und nicht zum Vergleich mit den Parametern anderer Forschergruppen geeignet ist. Dies liegt an der geometrischen Ausrichtung der Messröhre und somit an der Abschattung der Molekularstrahlen. Außerdem besitzt jede Druckmessröhre eine unterschiedliche Sensitivität für verschiedene Elemente, die sich je nach Zustand und Bedampfungsgrad der Filamente zeitlich ändern kann. Aus diesem Grund wird in dieser Arbeit auf die Angabe von Absolutwerten der Flüsse und von III/V-Verhältnissen verzichtet.

2.2.2 Strategien zur Erhöhung der Kristallqualität

Ein wesentlicher Bestandteil dieser Arbeit war die Optimierung der Kristallqualität. Damit können die Effekte der spektralen Diffusion (siehe Abschnitt 6.1) verringert werden und es können Grenzflächen mit hoher Qualität hergestellt werden [AGLC91]. Letzteres ist eine Voraussetzung, um Resonatoren mit hoher Güte zu realisieren (siehe Kapitel 8). Vor allem die Herstellung von Proben mit einer AlGaAs-Opferschicht für photonische Kristallresonatoren erfordert eine genaue Kontrolle der Wachstumsparameter und eine sorgfältige Minimierung von Verunreinigungen im Restgas der Kammer [GSK90]. In diesem Abschnitt sollen kurz einige grundlegende Überlegungen zur Erhöhung der Kristallqualität von mittels MBE hergestellten Strukturen vorgestellt werden. Eine Übersicht über typische Kristallfehler findet sich z. B. in [Far95]. Im Fokus dieses Abschnittes sollen Verunreinigungen durch Fremdatome im Restgas der Anlage und deren Vermeidung stehen.

Typische Verunreinigungen im Restgas einer MBE-Anlage sind beispielsweise Sauerstoff [NKMN03], Kohlenstoff [WWW⁺81], Wasser [YNK⁺87] und Edelgase [Far95]. Jedes Mal, wenn im Rahmen von Wartungsarbeiten die Anlage Atmosphärenbedingungen ausgesetzt ist, bildet sich eine Schicht solcher Verunreinigungen auf allen Oberflächen, die der Umgebungsluft ausgesetzt sind [Cha89]. Dabei sind Moleküle schwach (physikalisch) oder stark (chemisch) an die Oberfläche gebunden. Die

schwach gebundenen Moleküle können durch Evakuieren der Kammer entfernt werden. Die chemisch gebundenen werden je nach Stärke der Bindung sehr langsam an das Restgas der Kammer abgegeben. Durch Zuführen thermischer Energie (“Ausheizen”) können die Bindungen aufgebrochen und die Desorptionsrate erhöht werden. Gebundenes Wasser desorbiert in einem Temperaturbereich zwischen 120 °C und 180 °C [Far95]. Schwierig ist es, alle im Vakuum befindlichen Oberflächen einer MBE-Anlage auf diese Temperatur zu erhitzen, da manche Oberflächen wie das innen liegende Kühlschild nicht direkt geheizt werden können.

Auch in den Quellenmaterialien ist eine geringe Menge an Verunreinigungen vorhanden. Um deren Einfluss zu verringern, wurde das reinste kommerziell erhältliche Aluminium mit einer Reinheit von 6N5 (= 99.99995% Al) verwendet. In der Literatur wurde berichtet, dass beim Wachstum von aluminiumhaltigen Schichten die Reinheit des Quellenmaterials entscheidend für die Kristallqualität ist [CC90b]. Da die Realisierung von photonischen Kristallkavitäten aus GaAs auf dem selektiven Ätzen einer AlGaAs-Opferschicht beruht, ist die Reinheit somit essentiell für Kavitäten hoher Güte.

Die größte Quelle für Verunreinigungen ist das eingeschleuste Substrat. Trotz einer Reinigungsprozedur (siehe Kapitel 4) und Erhitzen der Substrate können noch Fremdatome (z. B. Oberflächenoxide oder Rückstände aus vorangegangenen Lithographieschritten) auf der Oberfläche vorhanden sein. Diese Rückstände auf der Oberfläche können zum Beispiel zu ovalen Defekten [CC90a] oder Stufenversetzungen [SS76] führen. Deswegen ist es wichtig, beim Reinigungsprozess größte Sorgfalt walten zu lassen. Jede Probe wird durch thermische oder chemische Verfahren oder durch eine Reinigung mit aktiviertem Wasserstoff vom Oxid befreit.

Weiterhin sind die in UHV-Anlagen verwendeten Kupferdichtungen nicht vollkommen dicht gegenüber der Diffusion von Wasserstoff. Dieser Wasserstoff kann an offenen Bindungen im Kristall eingebaut werden und führt zu Störstellen, an denen eine strahlende und nicht-strahlende Rekombination stattfinden kann [PCS92]. An kritischen Stellen werden Kupferdichtringe mit Silberbeschichtung verwendet, die eine höhere Langzeitstabilität aufweisen.

2.3 Optische Halbleiter-Mikroresonatoren

Optische Resonatoren erfüllen mehrere wesentliche Aspekte, die für eine Realisierung von optoelektronischen Bauelementen mit einzelnen Quantenpunkten nötig sind. Die Emissionscharakteristik eines Quantenpunkts in einer Halbleitermatrix ist näherungsweise isotrop in alle Raumrichtungen. Aufgrund der internen Totalreflexion kann nur ein kleiner Teil (ca. 3 %) des Lichtes aus dem Halbleitermaterial austreten und so detektiert werden [BBG⁺02]. Mit Mikroresonatoren lassen sich größere Auskoppelleffizienzen erreichen, wenn die photonische Zustandsdichte im Resonator auf die Emission des Quantenpunkts angepasst wird. Ein vom Quantenpunkt emittiertes Photon wird an den Spiegeln reflektiert und kann den Resonator mehrmals

durchlaufen. Während dieser Umläufe besteht eine gewisse Chance, dass das Photon wieder mit dem Quantenpunkt in Interaktion tritt. Damit können prinzipielle Untersuchungen zur Licht-Materie-Wechselwirkung durchgeführt werden. Außerdem kann die modifizierte optische Zustandsdichte innerhalb eines Resonators zu einer Unterdrückung oder Erhöhung der spontanen Emission eines Emitters innerhalb des Resonators führen [Yab87, Joh87, PTP46].

Wichtige Kenngrößen von Mikroresonatoren sind die Güte $Q = \lambda/\Delta\lambda$ und das Modenvolumen V_{Mode} . Dabei gibt λ die Resonanzwellenlänge und $\Delta\lambda$ die Linienbreite der Resonanz an. Für aktive, optische Halbleiterresonatoren wurden Rekordgüten in Mikrosäulenresonatoren mit bis zu 165000 erreicht [RHG⁺07]. Die kleinsten Modenvolumina können durch lineare photonische Kristallkavitäten (“Nanobeam-Cavities”) [DMF⁺09, CECP09, ZMBL09] oder H0-Kavitäten erreicht werden [NIIA11]. Das Modenvolumen wird in Abhängigkeit der Wellenlänge λ und des materialspezifischen Brechungsindex n angegeben. Die Rekordwerte für GaAs liegen nahe am Beugungslimit und betragen $0.28 (\lambda/n)^3$ für Nanobeam-Cavities [ZKH⁺10] und $0.23 (\lambda/n)^3$ für H0-Kavitäten [NTIA11]. Mit Hilfe von Metallstrukturen kann das Lichtfeld noch weiter eingeschlossen werden und so ein effektives Modenvolumen von $0.0017 (\lambda/n)^3$ erreicht werden [YLW10].

2.3.1 Mikrosäulenresonatoren

Eine Möglichkeit zur Realisierung von optischen Resonatoren stellen Mikrosäulenresonatoren dar. Dabei werden zwei Spiegel durch eine Schichtstruktur aus Halbleitern mit unterschiedlichen Brechungsindizes hergestellt. Die Schichtdicke d folgt der Bedingung

$$d = \frac{\lambda}{4n} \quad (2.3)$$

mit dem Brechungsindex in der Halbleiterschicht n und der Wellenlänge λ . In dieser Arbeit wird die Kombination GaAs/AlAs verwendet, da diese nahezu verspannungsfrei aufeinander aufwachsen und unterschiedliche Brechungsindizes besitzen. Zwischen die Spiegel wird eine Kavität eingebracht, deren Dicke ebenfalls der Wellenlänge angepasst ist. Nach Herstellung dieser Schichtstruktur kann durch Ätzverfahren (siehe Abschnitt 3.2) eine säulenähnliche Struktur erzeugt werden, deren lateraler Lichteinschluss durch Totalreflexion am Halbleiter-Luft-Übergang gewährleistet wird. Durch geeignetes Design der Mikrosäulenresonatoren hinsichtlich Spiegelanzahl und Durchmesser kann der maximal erreichbare Anteil der mit einem Objektiv einsammelbaren Photonen optimiert werden. Die theoretisch mögliche Einsammelfizienz β kann durch

$$\eta = \beta \cdot \frac{Q}{Q_{planar}} \quad (2.4)$$

abgeschätzt werden [BBG⁺02]. Dabei ist Q die Güte der Kavitätsmode im Mikrosäulenresonator, Q_{planar} ist die Güte der Mode im planaren Resonator und β ist der Anteil der spontanen Emission, der in die Kavitätsmode koppelt. Barnes et al. schätzen so eine mögliche Effizienz von $\eta = 0.7$ ab [BBG⁺02].

Zur Theorie und den experimentellen Eigenschaften dieser Mikrosäulenresonatoren existieren umfangreiche Lehrbücher [YTC00, KBML07] und Publikationen [BUA⁺05, SPY01, MRG⁺01, RSL⁺04, BES⁺07, GSG⁺98]. Deswegen wird hier auf eine ausführliche Darstellung verzichtet.

2.3.2 Photonische Kristallresonatoren

Ein komplementärer Ansatz zur Realisierung von Resonatoren ist die Verwendung von photonischen Kristallen, um ein Lichtfeld auf einen kleinen Raum zu beschränken. Ein photonischer Kristall ist eine periodische Variation des Brechungsindex (z. B. kreisförmige Löcher in GaAs), durch die eine photonische Bandlücke entsteht. Licht einer bestimmten Wellenlänge und Polarisation kann sich nicht in einem solchen photonischen Kristall ausbreiten [JVF97]. Durch diese Lochstrukturen kann Licht in zwei [Yab87, Joh87] oder drei [YG89] Dimensionen eingeschlossen werden. Im zweidimensionalen Fall kann ein zusätzlicher Einschluss in der dritten Dimension durch Reflexion am Halbleiter-Luft-Übergang einer freistehenden Membran erfolgen (siehe Abbildung 8.1). Auch für diesen Resonatortyp existieren umfangreiche Lehrbücher [DLP⁺11, PSS⁺09].

3 Lithographische Methoden für die Positionierung von Quantenpunkten in Halbleiter-Mikroresonatoren

Die Herstellung und Untersuchung von positionierten Quantenpunkten erfordert einen aufwändigen Prozess zur Probenstrukturierung. Zunächst müssen Referenzstrukturen durch optische Lithographie geschaffen werden, an denen die nachfolgenden Schritte ausgerichtet werden. Zur Definition eines Nukleationszentrums für einen Quantenpunkt wird ein kombiniertes Verfahren aus Elektronenstrahlolithographie und Ätztechniken verwendet (siehe Abschnitt 3.1). Die lithographische Herstellung von Halbleiter-Mikroresonatoren wird in Abschnitt 3.2 beschrieben. Die Injektion von elektrischem Strom in ein solches mikrometergroßes Bauteil erfordert spezielle Ringkontakte aus Gold. Durch seitliche Kontakte kann ein elektrisches Feld im Bauteil erzeugt werden und somit der elektronische Bandverlauf im Bauteil beeinflusst werden.

3.1 Strukturierung von GaAs-Substraten für das positionierte Wachstum von Quantenpunkten

In der Literatur werden verschiedene Möglichkeiten beschrieben, um ein positioniertes Wachstum von Quantenpunkten zu erreichen. Ein Überblick zu diesem Thema wird in Buchform beispielsweise in [Sch07] gewährt. Die ersten Ergebnisse zur Positionskontrolle von Quantenpunkten wurden in anderen Materialsystemen [SCP⁺96, KW97, SJPL⁺00] oder mit anderen Herstellungsmethoden [JMH⁺96, HLRK97, KMC98, KNNA02, SUH⁺05] veröffentlicht. Um die Jahrtausendwende wurden positionierte Quantenpunkte im InAs/GaAs-Materialsystem in einigen Veröffentlichungen [LJSP00, LSB02, IKA98, INKA00] genauer untersucht. Die Definition von Nanolöchern in (100)-orientiertem GaAs-Substrat mittels Elektronenstrahlolithographie und Ätztechniken sowie anschließendem Überwachsen mit InAs durch Molekularstrahlepitaxie wurde von der Gruppe um Prof. Schmidt weiterentwickelt (z. B. [SKN⁺02, HDMS03]). Bei eigenen Arbeiten im Vorfeld der hier geschilderten Ergebnisse konnten grundlegende kritische Prozessschritte optimiert

werden [SHS⁺09]. Diese bildeten die Grundlage für die hier beschriebene erfolgreiche Realisierung von Rekordwerten der Linienbreite einzelner positionierter InAs-Quantenpunkte auf (100)-orientiertem GaAs-Substrat [HHS⁺11] bei Anregung über der GaAs-Bandkante.

3.1.1 Strukturierung der Probe mit optischer Lithographie

Die Grundlage für die erfolgreiche Integration einzelner positionierter Quantenpunkte in Bauelemente ist, dass deren Position auf der Probe bestimmt werden kann. In dieser Arbeit wurden dazu durch optische Lithographie und nasschemisches Ätzen Markerstrukturen hergestellt (siehe unten), an denen alle folgenden Prozessschritte ausgerichtet werden. Abbildung 3.1 zeigt ein typisches Muster einer solchen Strukturierung. Die globalen und lokalen Marken (blau bzw. rot) sowie die grünen Kreuze werden durch die optische Lithographie hergestellt. Die grauen Mesen sind Flächen, auf denen sich später positionierte Quantenpunkte befinden. Sämtliche folgenden Prozessschritte werden an den Markern ausgerichtet, so dass beispielsweise die relative Position eines Quantenpunkts auf der Mesa “A1” zum links danebenliegenden grünen Kreuz bekannt ist. Somit kann der Quantenpunkt wieder aufgefunden werden und mehrere Prozessschritte können zu ihm ausgerichtet werden, was beispielsweise für die Realisierung elektrisch betriebener Einzelphotonenquellen mit positionierten Quantenpunkten nötig ist (siehe Abschnitt 3.3). Die Genauigkeit der relativen Positionierung ist dabei durch die Ungenauigkeit in der Detektion der Markerstrukturen mit der Elektronenstrahlolithographieanlage begrenzt. Da die Probe nach der hier beschriebenen Strukturierung nochmals überwachsen wird, kann sich die Form der Marker noch verändern, was die Positioniergenauigkeit reduzieren kann.

Im einfachsten Fall wird die in Abbildung 3.1 gezeigte Struktur in eine GaAs-Schicht übertragen. Dazu wird die Probe mit einem Negativlack beschichtet, der auf ultraviolette (UV) Licht empfindlich ist. In diesen Lack wird mit einer Kontaktmaske und UV-Licht die gewünschte Struktur übertragen. Graue Bereiche werden belichtet und später nicht geätzt. Die Quantenpunkte befinden sich später auf diesen quadratischen Mesen¹, die eine Kantenlänge von 420 μm besitzen. Die Buchstaben und Zahlen dienen der Orientierung auf der Probenoberfläche während den Messungen. Die Ausrichtung der folgenden Elektronenstrahlolithographieschritte kann an den vier außen gelegenen Linealen (sog. “globale Marken”) erfolgen, die vor allem zur Korrektur von Drehungen dienen. Außerdem kann die Position durch Detektion eines oder mehrerer Kreuze bestimmt werden. Neben jeder Mesa sind kleine Kreuze (sog. “lokale Marken”), an denen die Elektronenstrahlolithographie oder andere Verfahren in räumlicher Nähe zu jeder Mesa feinjustiert werden können. Eine Anwendungsmöglichkeit ist die Entfernungsbestimmung bei räumlich aufgelösten Photolumineszenzmessungen .

¹Mesa (Mehrzahl: Mesen, vom spanischen “mesa” für “Tafelberg”) wird als Bezeichnung für eine Erhebung auf der Probe benutzt, deren Seitenwände steil sind und deren Oberfläche glatt ist.

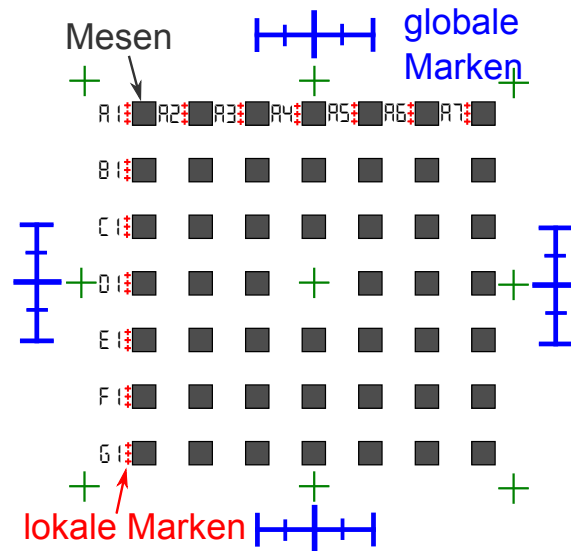


Abbildung 3.1: Schemazeichnung eines Teilbereiches einer optischen Maske für Referenzstrukturen (Kreuze) und Mesen (Quadrate). Die Kantenlänge des gesamten gezeigten Musters ist etwa 12 mm. Eine einzelne Mesa hat eine Kantenlänge von 420 μm . Zur besseren Übersichtlichkeit sind nicht alle Markierungen eingezeichnet.

Nach der Belichtung wird der Lack entwickelt und alle nicht belichteten Bereiche werden abgelöst. Die verbleibende Lackschicht stimmt mit dem Muster in Abbildung 3.1 überein und schützt die darunterliegende Probenoberfläche beim anschließenden nasschemischen Ätzschritt. Die Ätztiefe muss ebenfalls dem Probendesign angepasst werden und beträgt typischerweise 0.5 μm bis 1.5 μm . Nach dem Ätzen wird der Lack von der Oberfläche entfernt und die Probe chemisch gereinigt.

3.1.2 Definition von Nukleationszentren durch Elektronenstrahlolithographie und Ätzverfahren

Wie im vorigen Abschnitt beschrieben, können an Referenzstrukturen alle folgenden Prozessierungsschritte ausgerichtet werden. Für die Definition von Nukleationszentren für das positionierte Wachstum von Quantenpunkten wird ein Prozess aus Elektronenstrahlolithographie und Ätzen verwendet. Dafür wird die Probe mit einem auf Elektronen sensitiven Lack (Polymethylmethacrylat, PMMA) überzogen. In der Elektronenstrahlolithographie-Anlage (E-Beam-Anlage) kann die Position des Elektronenstrahls auf der Probenoberfläche anhand der Kreuze ausgerichtet werden. An jeder Stelle, an der sich ein Nukleationszentrum befinden soll, wird der Lack dem Elektronenstrahl ausgesetzt. Die Form und Größe des dabei belichteten Bereiches hängt vom Durchmesser und der Form des Elektronenstrahls auf der Probenoberfläche ab. Außerdem werden die Elektronen an anderen Elektronen oder Atomkernen

in der Probe gestreut und können somit auch Bereiche außerhalb des Fokuspunktes belichten. Dieser Effekt (der sog. *Proximity-Effekt* [Cha75]) kommt auch zum Tragen, wenn Nukleationszentren sehr nahe beieinander belichtet werden. In diesem Fall muss die Belichtungszeit angepasst werden.

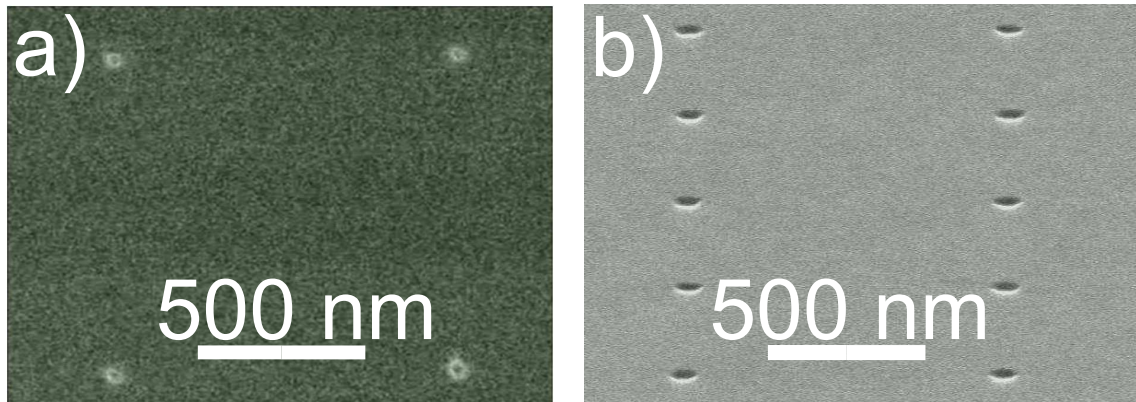


Abbildung 3.2: a) REM-Aufnahme von belichteten Nanolöchern zur Herstellung von positionierten Quantenpunkten. Die GaAs-Oberfläche wurde mit PMMA beschichtet und durch einen Elektronenstrahl belichtet. Bei der Entwicklung des Lacks entstehen kreisförmige Löcher im PMMA mit einem typischen Durchmesser von 40 nm bis 80 nm (je nach Dauer der Belichtung), die später als Ätzmaske dienen. b) Rasterelektronenmikroskopaufnahme von geätzten Nanolöchern nach der Entfernung der Ätzmaske. Der typische Durchmesser der Löcher beträgt ca. 85 nm bis 90 nm.

Die Quellen für Fehler während der Belichtung sind z. B. mögliche Schwankungen des Elektronenstroms oder der Umgebungsbedingungen der E-Beam-Anlage. Außerdem kann der Elektronenstrahl nur innerhalb eines Schreibfeldes von 200 μm auf 200 μm abgelenkt werden. Für die hier verwendeten größeren Muster muss die Probe verfahren werden, was eine Ungenauigkeit im Nanometerbereich verursachen kann und mehr Zeit benötigt als die Belichtung innerhalb eines Schreibfeldes.

Nach der Belichtung wird der Lack entwickelt und so die belichteten Bereiche des PMMA entfernt. Abbildung 3.2a zeigt eine Rasterelektronenmikroskopaufnahme (REM-Aufnahme) von einer so behandelten Probenoberfläche. Die Löcher in der Lackschicht sind annähernd kreisförmig mit einem typischen Durchmesser von 40 nm bis 80 nm.

Die Übertragung des belichteten Musters in das GaAs-Substrat erfolgt durch nasschemisches Ätzen (WCE, engl. *wet chemical etching*) oder reaktivem Ionen-Ätzen (RIE, engl. *reactive ion etching*) [AWB⁺06, LLBX04]. Für diese Arbeit wurde nasschemisches Ätzen verwendet, da die optische Qualität für so hergestellte Proben höher ist [SHS⁺09]. In Abbildung 3.2b sind nasschemisch geätzte Löcher zu sehen, wobei der restliche Lack bereits entfernt wurde. Der Durchmesser der geätzten Löcher ist mit ca. 85 nm bis 90 nm größer als der Durchmesser der Lacklöcher, was auf ein

Unterätzen der Lackschicht zurückzuführen ist. Die Aufnahme ist um 70° verkippt zur Normalen auf der Probenoberfläche aufgenommen worden, um den Bildkontrast zu erhöhen. Dadurch ist die vertikale Bildachse um einen Faktor $\cos(70^\circ) \approx 0.342$ verkürzt im Vergleich zur maßstabsgetreuen horizontalen Bildachse.

Bevor auf diese Weise behandelte Proben in eine MBE-Anlage eingebracht werden, wird eine sorgfältige Reinigung durchgeführt. Alle Lackreste und Prozessrückstände müssen vollständig entfernt werden, da sonst eine große Anzahl von Fremdatomen in das Ultra-Hochvakuum der MBE gelangt. Ebenso muss durch eine chemische Oxidentfernung das native Oberflächenoxid von der Probe entfernt werden, da dieses amorph ist und so kein epitaktisches Wachstum darauf stattfinden kann. Nach der chemischen Reinigung erfolgt eine weitere Reinigung der Probe in der Ladekammer der MBE-Anlage bevor anschließend das Wachstum der Quantenpunkte durchgeführt werden kann (siehe Unterabschnitt 4.1.2).

3.2 Integration in Halbleiter-Mikroresonatoren

Durch die in Unterabschnitt 3.1.1 beschriebene optische Lithographie der Referenzstrukturen bleiben die positionierten Quantenpunkte auch nach dem Überwachsen mit einer Deckschicht, z. B. dem oberen Spiegel eines Mikroresonators, wieder auffindbar. Dadurch können weitere Prozessschritte an der Position der Quantenpunkte ausgerichtet werden. Dieser Prozess wird im Folgenden für zwei Resonatortypen erläutert, die im Rahmen dieser Arbeit verwendet wurden.

In der Literatur werden alternative Ansätze geschildert, um einzelne Quantenpunkte gezielt in Bauelemente zu integrieren. Möglich sind unter anderem Stapel von spektral verstimmt, selbstorganisierten Quantenpunkten [BHA⁺05, HBPH04], bei denen die Emission des obersten Quantenpunkts gegenüber den unteren Quantenpunkten zu kürzeren Wellenlängen verschoben ist. Die Nutzung eines Rasterkraftmikroskops ermöglicht es, überwachsene Quantenpunkte wiederzufinden und so in Resonatoren zu integrieren [HBW⁺07]. Weitere mögliche Verfahren sind In-situ-Lithographie [DSB⁺09] oder optische Detektion [TRK⁺09].

3.2.1 Prozess zur Herstellung von Mikrosäulenresonatoren

Die Herstellung von Mikrosäulenresonatoren mit einzelnen Quantenpunkten in der Kavität erfordert ein genaues Ausrichten der Bauteile an den Referenzstrukturen. In Abbildung 3.3 ist die Probenoberfläche zwischen den einzelnen Prozessschritten gezeigt und der Prozessablauf erläutert. Die optisch vorstrukturierte Probe wird zunächst mit dem auf Elektronen sensitiven Lack PMMA beschichtet. Anschließend werden durch Elektronenstrahlolithographie Kreise im PMMA belichtet, deren Position mit darunter liegenden Quantenpunkten übereinstimmen muss. Die Kreuze werden dabei als Marker verwendet. Nach der Entwicklung wird das belichtete PMMA

entfernt und eine Ätzmaske auf die Probe aufgebracht. Damit die Maske später rückstandslos entfernt werden kann, wird eine 450 nm dicke Schicht aus wasserlöslichem Chrom-Bariumdifluorid verwendet. Anschließend wird der unbelichtete Teil des PMMA zusammen mit dem sich darauf befindlichen Teil der Ätzmaske abgelöst. Die verbleibenden Kreise dienen im folgenden Trockenätzschritt als Maske, so dass Mikrosäulenresonatoren an dieser Stelle entstehen. Für diesen Ätzschritt wird ein anisotropes Ätzverfahren verwendet, damit die Flanken der Resonatoren senkrecht geätzt werden. Weitere Informationen zur Herstellung von Mikrosäulenresonatoren finden sich in der Literatur [RHG⁺07, RSL⁺04].

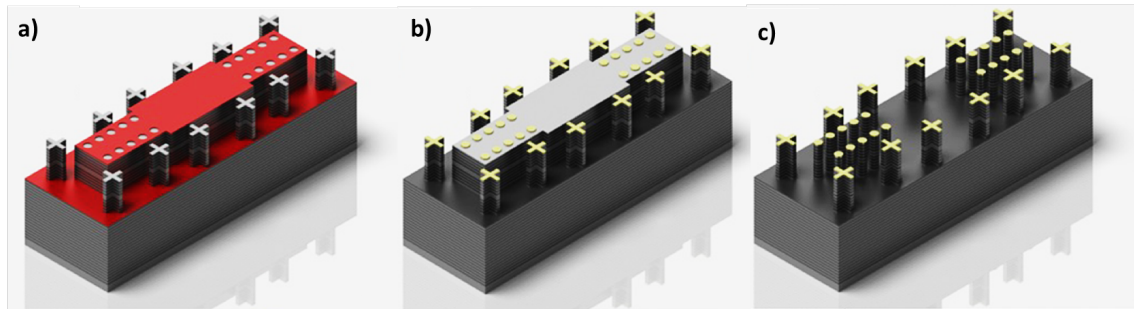


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung des Prozessablaufes zur Herstellung von Mikrosäulenresonatoren. a) Optisch vorstrukturiertes Substrat mit großer Mesa in der Mitte und 12 Kreuzen zur Ausrichtung des Prozesses. GaAs/AlAs sind in Graustufen dargestellt. Die Oberfläche ist mit PMMA belackt (rot). Durch Belichtung mit Elektronenstrahlolithographie wurden Kreise definiert. b) Probe mit aufgedampfter Ätzmaske. c) Ein Trockenätzschritt überträgt die Maske in das Substrat, so dass Mikrosäulenresonatoren entstehen.

3.2.2 Prozess zur Herstellung von photonischen Kristallresonatoren

Die in dieser Arbeit verwendeten photonischen Kristallresonatoren werden durch eine Kombination von trocken- und nasschemischen Ätzverfahren hergestellt. Wie bei der Prozessierung von Mikrosäulenresonatoren (siehe Unterabschnitt 3.2.1) wird die Probe zunächst optisch vorstrukturiert und die positionierten Quantenpunkte werden daran ausgerichtet. Eine Besonderheit stellt die vertikale Schichtstruktur der Probe dar. Auf dem Substrat befindet sich eine ca. 1 μm dicke Schicht aus $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ mit einem Aluminiumgehalt von $x \geq 70\%$. Darauf befindet sich eine GaAs-Schicht, deren Dicke (typischerweise 110 nm bis 180 nm) einen Einfluss auf die spätere Lage der spektralen Resonanz der Kavität hat [JJWm08]. In der Mitte dieser Schicht befinden sich die positionierten Quantenpunkte.

Als Ätzmaske dient eine Schicht aus 100 nm SiO_2 . Auf die Ätzmaske wird PMMA aufgeschleudert. Im PMMA werden durch Elektronenstrahlolithographie Kreise defi-

niert, die später die Löcher des photonischen Kristalls definieren. Nach der Entwicklung des PMMA werden durch RIE die Löcher durch die Ätzmaske und die GaAs-Membran bis in die AlGaAs-Schicht geätzt und das PMMA entfernt. Anschließend wird die Probe in Flusssäure (HF) geschwenkt, deren Ätzrate in $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ exponentiell vom Aluminiumgehalt x abhängt [WCM85]. Das AlGaAs unterhalb der GaAs-Schicht wird somit selektiv entfernt und es entsteht im Bereich der Löcher eine freitragende GaAs-Membran. Details zum Prozess sind in der Literatur zu finden [SSS⁺08b, HSH⁺06].

Der Durchmesser und die Anordnung der Löcher bestimmt die Eigenschaften der optischen Bandlücke des photonischen Kristalls [PSS⁺09, Sak04]. Durch das Weglassen einzelner oder mehrerer Löcher entsteht eine Kavität, in der Licht eingeschlossen werden kann. Die Resonanz der Kavität wird durch die Form der Kavität, den umgebenden photonischen Kristall und die Dicke der GaAs-Membran bestimmt [NCI00]. Eine Möglichkeit sind L3-Kavitäten, bei denen drei Löcher einer Reihe des photonischen Kristalls fehlen [AASN03b]. Die Lage und der Durchmesser der angrenzenden Löcher in dieser Reihe werden modifiziert, wodurch eine höhere Resonatorgüte erzielt werden kann [AASN03a]. Jeder Kavitätstyp besitzt einen charakteristischen Feldverlauf im Inneren, dessen Maximum typischerweise in der Mitte der Kavität liegt. Für eine maximale Kopplungsstärke des Quantenpunkts an das elektrische Feld in der Kavität sollte er in diesem Maximum positioniert werden.

3.3 Elektrische Kontaktierung der Mikrosäulenresonatoren

Zum Betrieb von Lichtquellen ist Energie nötig, die in dieser Arbeit optisch (durch einen Laser) oder elektrisch (durch Strominjektion) zur Verfügung gestellt werden kann. Für einen potentiellen kommerziellen Einsatz der in dieser Arbeit realisierten Einzelphotonenquellen mit positionierten Quantenpunkten ist ein elektrischer Betrieb wünschenswert, da die Abmessungen des Gesamtsystems so minimiert werden können. Im diesem Abschnitt wird deswegen ein Prozessschema zur Strominjektion in Mikrosäulenresonatoren beschrieben.

Die elektrische Kontaktierung einzelner Mikrosäulenresonatoren erfordert ein Design, bei dem ein Stromfluss durch den Resonator gewährleistet wird, aber gleichzeitig eine Lichtauskopplung in vertikaler Richtung erfolgen kann. Außerdem muss ein Übergang von den makroskopischen Zuleitungen einer Stromquelle zu den mikrometergroßen Resonatoren geschaffen werden. Dazu wird ein bewährtes Schema mit Ringkontakten aus Gold [KMR⁺10, BRK⁺08] verwendet, das zur Integration positionierter Quantenpunkte modifiziert wurde [SHH⁺12]. In Abbildung 3.4 wird die Probenoberfläche zwischen den dazu nötigen Prozessschritten schematisch dargestellt. Zunächst wird die bereits mit Kreuzen und Mikrosäulenresonatoren strukturierte Oberfläche mit einem Polymer (Benzocyclobuten, BCB) planarisiert, so dass

das obere Ende der Resonatoren mit dem Polymer fast bündig abschließt und eine glatte Oberfläche entsteht. Darauf wird PMMA aufgebracht. Mit Elektronenstrahlithographie werden Ringe um die Resonatoren belichtet. Weiterhin werden Zuleitungen belichtet, die mit einer großen Fläche verbunden sind, die zur späteren Anbringung von Golddrähten dient. Anschließend wird eine Goldschicht aufgedampft und ein Abhebeschritt durchgeführt, bei dem das unbelichtete PMMA zusammen mit dem aufliegenden Gold entfernt wird. Übrig bleiben Goldringkontakte, die mit einer großen Kontaktierungsfläche leitend verbunden sind. Auf die Rückseite der Probe wird ebenfalls ein flächiger Goldkontakt aufgebracht.

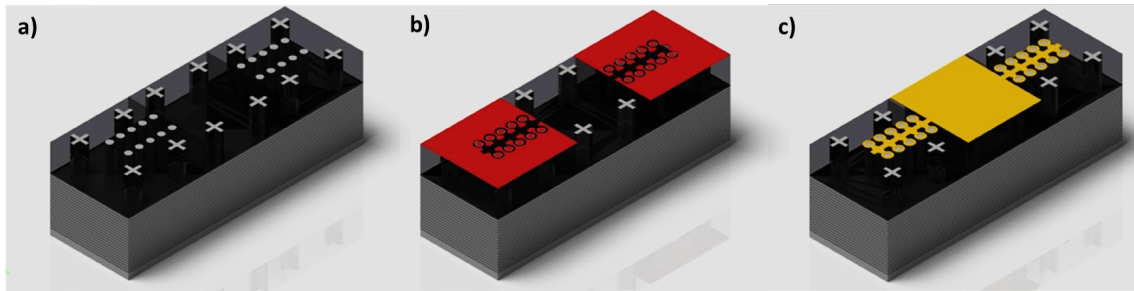


Abbildung 3.4: Prozessschema zur elektrischen Kontaktierung von Mikrosäulenresonatoren. a) Mit BCB planarisierte Probe. b) Die Probenoberfläche nach Beschichtung mit PMMA. Durch Elektronenstrahlithographie wurden Ringkontakte und Zuleitungen definiert. c) Nach Aufdampfen von Gold und einem Abhebeschritt bleiben noch Ringkontakte, Zuleitungen und eine große Fläche zur Anbringung von Golddrähten.

4 Wachstum positionierter Quantenpunkte auf vorstrukturiertem Substrat

In diesem Kapitel soll das Wachstum positionierter In(Ga)As-Quantenpunkte auf in GaAs geätzte Nanolöcher diskutiert werden. Dazu wird zunächst der Wachstumsmechanismus für selbstorganisierte Quantenpunkte in Unterabschnitt 4.1.1 dargestellt. Danach wird das positionierte Wachstum von Quantenpunkten auf Substraten mit Nanolöchern (Unterabschnitt 4.1.2) behandelt. Anschließend wird auf eine verspannungsgekoppelte Stapelung der Quantenpunkte eingegangen (Unterabschnitt 4.1.3). In Abschnitt 4.2 werden die Wachstumsergebnisse für große Quantenpunktperioden gezeigt. Diese Ergebnisse ermöglichen die skalierbare Integration einzelner Quantenpunkte in Halbleiter-Mikroresonatoren. In Abschnitt 4.3 werden die Ergebnisse für sehr kleine Quantenpunktperioden veranschaulicht, die sich für die Integration mehrerer positionierter Quantenpunkte in einen Mikroresonator eignen. Damit könnte der Übergang von spontaner zu stimulierter Emission eines gekoppelten Quantenpunkt-Mikroresonatorsystems in Abhängigkeit der Anzahl der beitragenden Emitter untersucht werden. Weiterhin besitzen diese Quantenpunkte eine geringe inhomogene Verbreiterung, was die Chance der spektralen Resonanz mit einer Resonatormode erhöht. Mit solchen positionierten Quantenpunkten hoher Dichte wären auch Quantenpunktkristalle aus gestapelten Schichten positionierter Quantenpunktlagen denkbar, die zueinander jeweils leicht in ihrer Absorption verstimmt sind und sich für die Realisierung von Quantenpunkt-Solarzellen eignen könnten [Noz02, AR04, BFRH11].

4.1 Wachstum von In(Ga)As-Quantenpunkten

Die Grundlagen des Materialsystems In(Ga)As auf GaAs wurden in Unterabschnitt 2.1.1 erläutert. Hier soll nun der genaue Wachstumsmechanismus von Quantenpunkten in diesem Materialsystem dargestellt werden.

4.1.1 Selbstorganisiertes Wachstum

Aufgrund der unterschiedlichen Gitterkonstanten von $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$ und GaAs wächst $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$ zunächst als verspannte Schicht auf einem glatten GaAs -Substrat auf. Wird die Verspannungsenergie größer als die Oberflächenenergie, relaxiert das aufgewachsene $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$ und es bilden sich Quantenpunkte [GLH⁺95]. In der Literatur wird eine kritische Schichtdicke von ca. 1.5-1.6 Monolagen für InAs beschrieben [PD94, PAF⁺06, APS⁺06], die mit steigendem Galliumgehalt x im $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}$ anwächst [SPR⁺06].

Betrachtet man die Prozesse, die zum Einbau eines einzelnen auf der Oberfläche adsorbierten Indium-Atoms ins Kristallgitter führen, so kommt man zu dem Schluss, dass vor allem drei energetische Beiträge zur Oberflächenenergie E_{OF} eine Rolle spielen [KKSS07]:

$$E_{OF} = E_{\text{Bindung}} + E_{\text{Stufe}} + E_{\text{Verspannung}} \quad (4.1)$$

Die Bindungsenergie E_{Bindung} hängt nur von der Materialsorte ab und ist für Indium auf einer GaAs -Oberfläche mit bestimmter Kristallorientierung konstant. Der Beitrag von E_{Stufe} spiegelt den bevorzugten Einbau von Atomen an Materialstufen wider. Der dritte Term berücksichtigt den Beitrag der Verspannungsenergie $E_{\text{Verspannung}}$. Aus dieser Formel wird klar, dass der Einbau von Indiumatomen bevorzugt an Kristallstufen oder verspannten Kristallbereichen geschieht.

Im Folgenden soll nun ein Indiumatom betrachtet werden, das auf einer atomar glatten GaAs -Oberfläche adsorbiert wurde. Die Diffusionslänge λ_D für ein solches Atom ist gegeben durch [GM93]:

$$\lambda_D = \sqrt{\tau_D D} \quad (4.2)$$

τ_D ist die mittlere Zeit, während der sich das Adatom auf der Oberfläche bewegen kann und D der Diffusionskoeffizient auf der Oberfläche. Vernachlässigt man Desorptionsprozesse und eine Wechselwirkung des Indiumatoms mit anderen Indiumatomen auf der Oberfläche, kann diese Zeit durch die Abscheidezeit für eine Monolage genähert werden. Im Diffusionskoeffizient D werden alle möglichen Diffusionsprozesse zusammengefasst. Im Weiteren wird die Annahme gemacht, dass die Diffusion nur auf der Oberfläche stattfindet und durch Sprünge vom gegenwärtigen Ort des Atoms zu einem benachbarten Ort vonstatten geht. Dann kann D wie folgt ausgedrückt werden [Our03]:

$$D = R_S \frac{a^2}{m} \quad (4.3)$$

R_S ist die mittlere Sprungrate, a die Gitterkonstante und m ein Faktor, der das Kristallgitter berücksichtigt, auf dem die Diffusion stattfindet. Für die Diffusion auf

einem quadratischen Gitter gilt $m = 4$. Die mittlere Sprungrate kann durch das Arrhenius-Gesetz beschrieben werden [KKSS07]:

$$R_s = \frac{2k_B T}{h} \exp\left(-\frac{E_{\text{Bindung}}}{k_B T}\right) \quad (4.4)$$

Der Term $2k_B T/h$ hängt dabei nur von der Temperatur T ab.

Die Diffusionslänge kann mit Gleichung 4.2, Gleichung 4.3 und Gleichung 4.4 ausgedrückt werden zu:

$$\lambda_D = \sqrt{\tau_D \cdot \frac{a^2}{4} \frac{2k_B T}{h} \cdot \exp\left(-\frac{E_{\text{Bindung}}}{k_B T}\right)} \quad (4.5)$$

Durch eine geringere Wachstumsgeschwindigkeit oder Wachstumspausen kann τ_D vergrößert und somit eine höhere Diffusionslänge erzielt werden. Ebenso steigt die Diffusionslänge mit der Temperatur T , was der Substrattemperatur während des Wachstums entspricht. Eine Abschätzung mit für diese Arbeit typischen Werten $\tau_D = 40\text{s}$, $a = 5.6533\text{\AA}$, $T = 530^\circ\text{C}$ und einer Bindungsenergie von $E_{\text{Bindung}} = 0.7\text{eV}$ [ESLJ89] ergibt eine mittlere Diffusionslänge von $\lambda_D \approx 66\text{\mu m}$. Dieser Wert stimmt mit der Größenordnung der in dieser Arbeit erzielten Diffusionslängen (siehe Abschnitt 4.2) und Ergebnissen in der Literatur [INKA00, ASBR08] überein. Eine genauere Betrachtung der Prozesse auf der Oberfläche findet sich z. B. in [AB98].

Der Einfluss der angebotenen Gruppe-V-Materialmenge wurde oben nicht berücksichtigt. Zum Wachstum von InAs muss in ausreichender Menge Arsen zur Verfügung stehen. Je höher das Verhältnis von Gruppe-V- zu Gruppe-III-Materialien ist, desto schneller geht der Einbau vonstatten, wodurch die Migrationslänge sinkt. Eine genauere Betrachtung hierzu findet sich z. B. in [RHM⁺02, OO01].

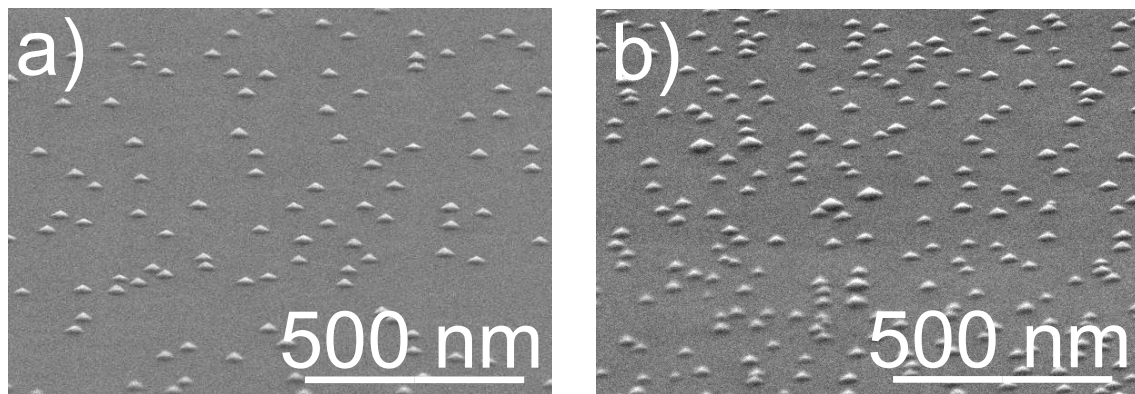
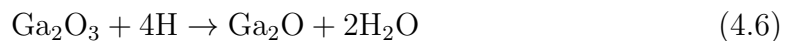


Abbildung 4.1: REM-Aufnahmen von selbstorganisiert gewachsenen InAs-Quantenpunkten auf unstrukturierter GaAs-Oberfläche mit 1.17 nm abgeschiedenem InAs (a) und 1.34 nm abgeschiedenem InAs (b).

Das Wachstum auf unstrukturierten Substraten wurde im Rahmen dieser Arbeit hauptsächlich zur Kalibrierung des Quantenpunktwachstums verwendet. Abbildung 4.1 zeigt zwei REM-Aufnahmen von Quantenpunkten, die bei einer Substrattemperatur von 520 °C gewachsen wurden. Dabei wurde die nominelle Menge des abgeschiedenen InAs von 1.17 nm zu 1.34 nm variiert. Ein Teil des abgeschiedenen InAs trägt nicht zum Quantenpunktwachstum bei, sondern desorbiert aufgrund der hohen Substrattemperatur oder formt eine Benetzungsschicht. Für die geringere InAs-Menge ergibt sich eine Quantenpunkt-Flächendichte von $5.8 \cdot 10^9 \text{cm}^{-2}$ (Abbildung 4.1a). Die Größe der Quantenpunkte ist im Vergleich zu Abbildung 4.1b homogener. Die größere InAs-Menge führt zu einer größeren Quantenpunkt-Flächendichte von $1.2 \cdot 10^{10} \text{cm}^{-2}$ [Mic09]. An einigen Stellen haben sich größere Quantenpunkte gebildet, die die Homogenität des Quantenpunktensembles verringern. Die Form der Quantenpunkte hängt von den Wachstumsbedingungen ab [CRM⁺04]. Aus einer solchen Wachstumsserie kann eine für das Quantenpunktwachstum bei hoher Substrattemperatur notwendige kritische Schichtdicke bestimmt werden.

4.1.2 Wachstum auf vorstrukturierten Substraten

Für die Herstellung von vorstrukturierten Substraten wurde ein Prozess verwendet, der in Abschnitt 3.1 beschrieben wird. Bevor die Substrate bewachsen werden, ist es nötig, das amorphe Oberflächenoxid zu entfernen, um so das darunterliegende GaAs-Kristallgitter freizulegen. Eine thermische Oxid-desorption kommt für vorstrukturierte Proben nicht in Frage, da Ga_2O_3 erst bei Temperaturen ab 580 °C desorbiert [SIE⁺87] und die vorstrukturierten Nanolöcher bei solch hohen Substrattemperaturen starken Degradationen unterliegen [KHS04]. Deswegen wird für vorstrukturierte Proben zuerst eine chemische Oxidentfernung unmittelbar vor Einbau in die Ladekammer der MBE-Anlage verwendet. Die Proben werden nach dieser Behandlung weniger als 15 Minuten der Atmosphäre ausgesetzt, so dass nur wenige Monolagen Oxidschicht auf der Oberfläche entstehen. Nach Abpumpen der Ladekammer wird die Probe mindestens eine Stunde auf 400 °C erhitzt, so dass ein Teil der Verunreinigungen (z. B. Wasser oder Kohlenwasserstoffe), Galliumoxid der Form Ga_2O [YIK93] und Arsenoxide [BWA⁺91] von der Oberfläche desorbieren. Anschließend wird die Temperatur auf 360 °C gesenkt und atomarer Wasserstoff auf die Probenoberfläche geleitet. Dieser Wasserstoff reagiert wie folgt [YIK93]:



Die Reaktionsprodukte werden bei 360 °C desorbiert, wodurch eine glatte und oxidfreie Oberfläche entsteht [KHS07, LSC⁺91]. Nach Ende der Oxid-desorption wird die Probe weiterhin auf 360 °C erhitzt bis ein Druck von $1.0 \cdot 10^{-7}$ Torr unterschritten wird.

Das Wachstum auf vorstrukturierten Substraten beginnt mit einer GaAs-Pufferschicht mit einer Dicke von 8 nm bis 9 nm. Diese Schicht dient dazu Rauheiten und Kristallfehler an der Oberfläche auszugleichen, die durch den vorangegangenen Prozess entstanden sind [SSS⁺08a]. Eine glatte Oberfläche zwischen den Löchern ist wichtig, da der Einbau von InAs bevorzugt an Kristallstufen stattfindet. Rauheiten zwischen den Löchern wirken als ungewollte Nukleationszentren.

Während des Überwachsens der Löcher entstehen Kristallfacetten, auf denen GaAs unterschiedliche Wachstumsgeschwindigkeiten besitzt [TFY⁺97, HIWK90]. Dadurch verändert sich die Form der Löcher mit steigender GaAs-Dicke von kreisförmig zu schlitzförmig [HMS04, KHS07]. Bei der in dieser Arbeit verwendeten Pufferdicke von 8 nm ist die Lochform noch annähernd kreisförmig. Mit 55 nm tief geätzten Löchern wird in der Literatur gezeigt, dass es möglich ist, die Lochform auch für 55 nm dicke Pufferschichten zu erhalten [PGR⁺09]. Dabei nehmen allerdings die Positioniergenauigkeit und die optische Qualität im Vergleich zu den hier gezeigten Ergebnissen drastisch ab [PGR⁺10].

Auf die GaAs-Pufferschicht wird nun InAs abgeschieden, das bevorzugt in den Löchern nukleiert, da dort viele Kristallstufen zum Einbau zur Verfügung stehen [ANG⁺89]. Damit das adsorbierte Indium die Löcher erreichen kann, muss die mittlere Diffusionslänge mindestens in der Größenordnung des Abstands der Löcher sein. Wie in Unterabschnitt 4.1.1 gezeigt wurde, begünstigt eine hohe Oberflächentemperatur eine große Diffusionslänge. In dieser Arbeit wurden daher Substrattemperaturen im Bereich von 500 °C bis 545 °C verwendet. In diesem Temperaturbereich findet eine merkliche Indium-Desorption statt [RRSW91] und ab etwa 540 °C desorbiert ein erheblicher Teil des adsorbierten Indiums schon vor dem Einbau ins Kristallgitter [MNSP01].

In Abbildung 4.2 ist eine Rasterkraftmikroskop-Aufnahme (AFM-Aufnahme, engl. *atomic force microscope*) einer Schicht positionierter Quantenpunkte zu sehen. Die Löcher wurden mit einer quadratischen Periode von 1 μm nasschemisch geätzt und darauf eine Pufferschicht aus 8 nm gewachsen. Es wurden bei einer Substrattemperatur von 530 °C etwa 2.3 ML InAs abgeschieden. Die Wachstumsgeschwindigkeit betrug etwa 0.005 nm/s . In der Aufnahme sind noch deutliche Vertiefungen zu sehen, die auf die Löcher zurückzuführen sind. In den Vertiefungen lagert sich InAs an und formt Quantenpunkte. Die Quantenpunktnukleation in diesem Bild ist nicht homogen, da das Wachstum in dieser Arbeit vor allem auf ein gestapeltes Wachstumsschema optimiert wurde. Wie im nächsten Abschnitt gezeigt wird, kann für optimierte Wachstumsparameter eine nahezu perfekte Quantenpunktordnung erreicht werden.

Wie sich bei der Untersuchung der optischen Eigenschaften in Kapitel 5 von so gewachsenen Quantenpunkten herausgestellt hat, ist die optische Qualität durch die Nähe der Quantenpunkte zu einer chemisch behandelten Oberfläche verringert. Das zeigt sich vor allem in der durch spektrale Diffusion erhöhten Linienbreite der Emission einzelner Quantenpunkte [SHS⁺09]. Deswegen wurde ein Schema entwickelt,

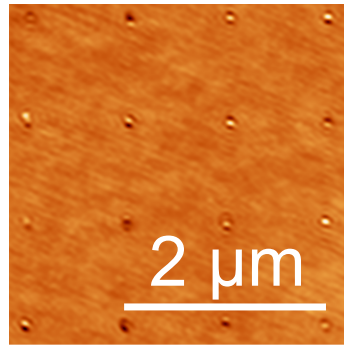


Abbildung 4.2: Rasterkraftmikroskop-Aufnahme einer Einzellege von positionierten Quantenpunkten auf vorstrukturiertem Substrat mit einer Periode von $1\ \mu\text{m}$. Die Löcher wurden nasschemisch geätzt und darauf eine Pufferschicht von $8\ \text{nm}$ gewachsen.

bei dem positionierte Quantenpunkte einen erhöhten Abstand zu der behandelten Oberfläche besitzen, was im nächsten Abschnitt erläutert wird.

4.1.3 Verspannungsgekoppeltes Wachstum der positionierten Quantenpunkte

Die optische Qualität von positionierten Quantenpunkten, die mit einer dünnen Pufferschicht auf Nanolöchern gewachsen werden, ist aufgrund einer hohen Linienbreite der Einzelquantenpunktmission nicht ausreichend um Quanteneffekte wie die starke Licht-Materie-Wechselwirkung in einem Mikroresonator zu beobachten [SHS⁺09]. In einer Veröffentlichung wird zwar von der Emission solcher positionierter Quantenpunkte mit einer Linienbreite von minimal $80\ \mu\text{eV}$ berichtet [SSJF⁺11], aber die dort gezeigten Messungen stellen keine repräsentative Statistik dar, sondern die Emission aus ausgewählten Quantenpunkten. In der vorliegenden Arbeit wird ein gestapeltes Wachstumsschema verwendet, das die Linienbreite aller Quantenpunkte deutlich verringern soll. Dieses Schema lässt aufgrund des erhöhten Abstandes des optisch aktiven Quantenpunktes zur geätzten Grenzfläche eine geringere spektrale Diffusion erwarten, wie in Kapitel 6 ausführlich diskutiert wird.

Nach der Probenpräparation, der Reinigung und dem Wachstum der Pufferschicht gemäß Unterabschnitt 4.1.2 wird eine geringe Menge InAs abgeschieden. Die genaue Menge wurde mit Kalibrationsproben bestimmt und beträgt etwa $80\ \%$ der InAs-Menge für positionierte Quantenpunkte. Dieses abgeschiedene InAs lagert sich bevorzugt in den Löchern an, bildet dort aber keine ausgeprägten Quantenpunkte aus. Das InAs füllt die Löcher teilweise auf oder bildet kleinere Materialansammlungen an den Enden des schlitzförmig in der $[0\bar{1}\bar{1}]$ -Kristallrichtung aufgeweiteten Loches [KHS04, KNI⁺02]. Untersuchungen haben ergeben, dass diese Schicht nicht optisch aktiv ist und kein Photolumineszenzsignal aus dieser Schicht zu er-

warten ist [HSD⁺11]. Deswegen wird diese Schicht in dieser Arbeit auch nicht als Quantenpunktschicht bezeichnet, sondern als “InAs-Schicht”.

Die InAs-Schicht wird mit einem in-situ-Ausheilschritt behandelt [WRS06], der als “partial capping and annealing”-Schritt (PCA-Schritt) bezeichnet wird. Dabei wird nach dem InAs-Wachstum eine ca. 1.8 nm dicke Schicht GaAs abgeschieden, die die InAs-Materialansammlungen komplett und Quantenpunkte nur teilweise bedeckt [GMRS⁺97]. Danach wird das Wachstum gestoppt und die Substrattemperatur innerhalb von 30 Sekunden auf 575 °C erhöht. Bei dieser Temperatur desorbiert freiliegendes InAs und es findet eine Diffusion des Indiums in der Materialmatrix statt [XCM94, KOS⁺11].

Nach dem PCA-Schritt wird die Temperatur wieder auf die für das Quantenpunkt-wachstum optimierte Temperatur verringert und eine Zwischenschicht gewachsen. Deren Dicke beträgt typischerweise 10 nm. Diese Zwischenschicht kann aus reinem GaAs bestehen oder zusätzlich eine 3 nm dicke Schicht aus $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$ beinhalten, die ein Tunneln von Ladungsträgern von der Quantenpunktschicht in die InAs-Schicht verhindern soll [ASS⁺10]. Das GaAs, das sich über den InAs-Materialansammlungen in den Nanolöchern befindet, ist dabei zugverspannt [XCM94]. Diese Verspannung setzt sich durch die Zwischenschicht fort, wie weiter unten in Abbildung 4.4c gezeigt wird.

Auf die Zwischenschicht wird nun InAs abgeschieden. Die für Quantenpunktnukleation nötige InAs-Menge wird durch Kalibrationsproben bestimmt, da bei hohen Wachstumstemperaturen ein Teil der abgeschiedenen Materialmenge wieder desorbiert und so der messbare Materialfluss keinen verlässlichen Indikator darstellt [EHH⁺91]. Wie in Gleichung 4.1 ersichtlich, wird InAs bevorzugt ins Kristallgitter eingebaut, wenn eine günstige Verspannung vorliegt. Deswegen nukleieren die Quantenpunkte bevorzugt verspannungsgekoppelt vertikal über den Nanolöchern [XMCK95, STMH96], wodurch eine Positionierung auch mit ca. 20 nm Abstand zur geätzten Oberfläche möglich ist. Ein Schema des vertikalen Probenaufbaus wird in Abbildung 4.3 gezeigt.

Für Proben, bei denen die Oberflächenmorphologie untersucht werden soll, wird das Wachstum nach der Quantenpunktschicht beendet. Zur Untersuchung der Emissionseigenschaften wird eine GaAs-Deckschicht von 100 nm verwendet [SNS98]. Für kleinere Deckschichten beeinflussen Oberflächeneffekte die Quantenpunktemission z. B. durch eine veränderte lokale optische Zustandsdichte [ASS⁺10, SJK⁺09]. Zur Integration positionierter Quantenpunkte in Bauteile werden nach der Quantenpunktschicht die zur Fertigstellung des Bauteils nötigen Schichten gewachsen (z. B. der obere Bragg-Spiegel für einen Mikrosäulenresonator). Der PCA-Schritt wird auf optisch aktive Quantenpunkte angewendet, um deren Höhe und Materialzusammensetzung kontrolliert zu verändern, so dass die Quantenpunkte kurzwelliger emittieren und eine geringere inhomogene Verbreiterung der Ensembleemission besitzen [HHS⁺11]. Auswertungen für ähnlich gewachsene Quantenpunkte zeigen eine mitt-

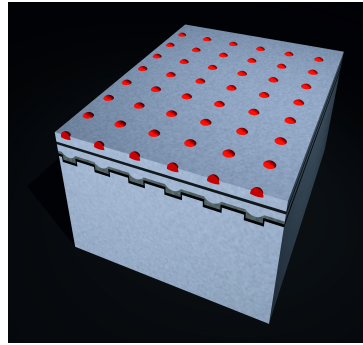


Abbildung 4.3: Schematische Darstellung einer Schicht positionierter InAs-Quantenpunkte (rot). Deren Position ist über ein Spannungsfeld mit den teilweise mit InAs gefüllten Nukleationszentren gekoppelt (grau).

lere Indiumkonzentration von etwa 50 % [BBH⁺11] und einen Gradienten von hohem Indiumgehalt in der Spitze bis zu niedrigerem in Basisnähe [AZL⁺07, LPG04].

Abbildung 4.4 zeigt Transmissionselektronenmikroskop-Aufnahmen (TEM-Aufnahmen) des Querschnitts durch eine Quantenpunkt- und eine InAs-Schicht. Aufgrund der aufwändigen Probenpräparation zur Durchführung von TEM-Aufnahmen konnte im Laufe der Arbeit nur ein positionierter Quantenpunkt mit diesem Verfahren abgebildet werden, so dass diese Aufnahme nicht repräsentativ ist. Trotzdem können einige Informationen über das Wachstum gewonnen werden. In Teilbild a ist eine Aufnahme im STEM-Modus¹ zu sehen, bei der unterschiedliche Materialien verschiedene hohe Kontraste erzeugen. Das ist eine direkte Folge der Streuung des Elektronenstrahls an den Hüllenelektronen der inneren Schalen von Indium, Gallium und Aluminium in der Probe. Dadurch erscheint InAs hellgrau, GaAs mittelgrau und AlGaAs dunkelgrau. Es ist deutlich zu sehen, dass sich in der unteren InAs-Schicht weniger InAs angelagert hat als in der oberen Schicht, da die Abscheidezeit in der unteren Schicht nur 130 Sekunden beträgt (160 Sekunden oben).

Anhand der GaAs-AlGaAs-Grenzflächen ist erkennbar, dass die Zwischenschicht die Höhenunterschiede ausgleicht und keine Wölbung durch das darunter liegende Nanoloch mit InAs besteht. Vor allem im unteren Bereich besteht eine starke Materialdurchmischung. Im nur sehr flach erkennbaren Nanoloch hat sich InAs angelagert, das nicht homogen über das Loch verteilt ist. Vermutlich liegt dies an der schlitzförmigen Aufweitung dieses speziellen Nanolochs, da in der Literatur für solche Lochformen ähnliche Materialverteilungen beobachtet wurden [HMS04]. Die gesamte laterale Ausdehnung der Materialansammlung kann im Bild mit ca. 83 nm

¹Die Abkürzung “STEM” kommt vom englischen *scanning transmission electron microscope* und bezeichnet einen Abbildungsmodus, bei dem ein fokussierter Elektronenstrahl über die Probe gerastert wird [WC09]. Für diese Aufnahme wurden die unter einem hohen Winkel gestreuten Elektronen mit einem ringförmigen HAADF-Detektor (vom engl. *high-angle annular dark field*) registriert [JP95].

abgeschätzt werden. Das stimmt in der Größenordnung mit den Abmessungen von Löchern mit Pufferschicht überein (siehe Unterabschnitt 4.1.2).

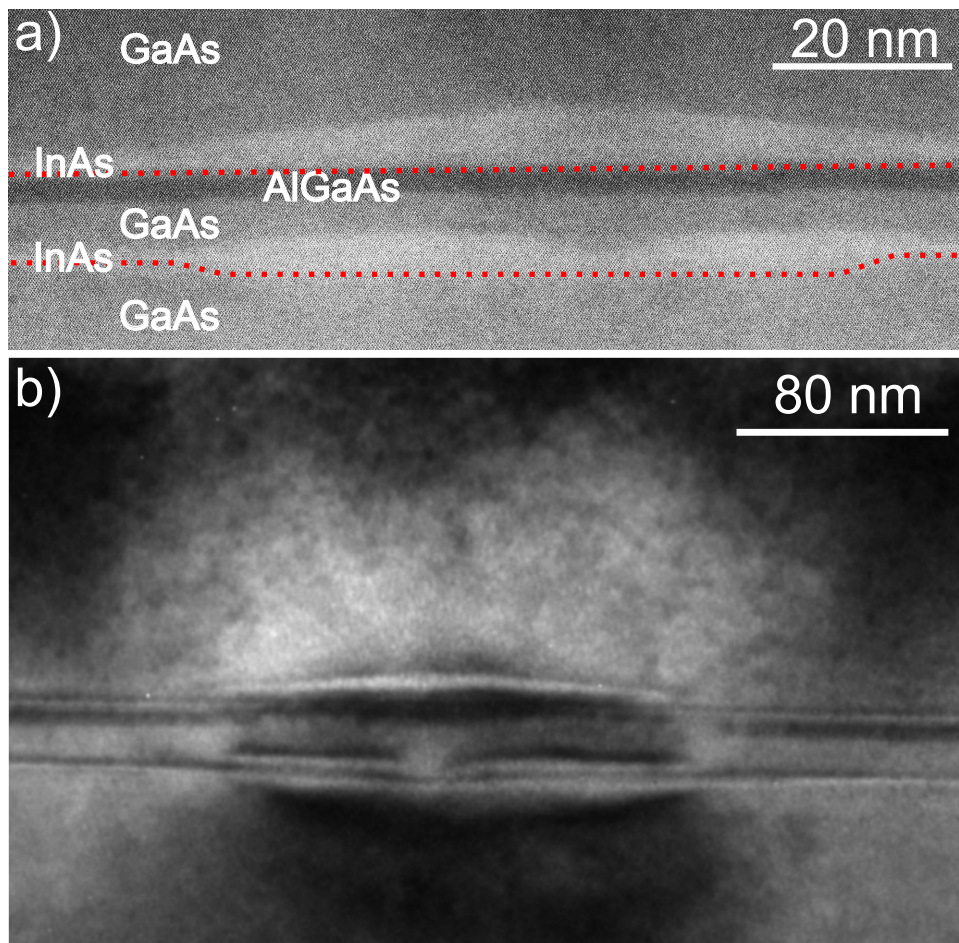


Abbildung 4.4: Transmissionselektronenmikroskop-Aufnahmen eines einzelnen positionierten Quantenpunktes, dessen Position durch Verspannungskopplung zu der darunterliegenden InAs-Ansammlung in einem Nanoloch bestimmt ist. a) Aufnahme im STEM-Modus und Detektion mit einem HAADF-Detektor. InAs ist hellgrau, GaAs mittelgrau und AlGaAs dunkelgrau. Die roten gestrichelten Linien zeigen die Grenzflächen, auf die jeweils InAs abgeschieden wurde. Zu beachten ist, dass der Materialübergang teils fließend ist. b) Dunkelfeldaufnahme des gleichen Quantenpunkts wie in Teilbild a. In dieser Darstellung werden vor allem Verspannungen im Kristall sichtbar.

In der oberen Schicht findet man einen deutlich größeren Quantenpunkt mit einer lateralen Ausdehnung von ca. 91 nm und einer Höhe von 7.3 nm (bzw. 5.1 nm Erhebung über die umliegende InAs-Benetzungsschicht). Eine Benetzungsschicht ist in beiden Schichten sichtbar (Dicke oben: 2.2 nm; Dicke unten 1.2 nm). Die große Dicke der Benetzungsschicht im Vergleich zur Literaturwerten der kritischen Schichtdicke

lässt auf eine Diffusion von Indium in die umgebende GaAs-Matrix während des PCA-Schritts schließen. Bei optischen Untersuchungen findet sich aber kein Signal, das eindeutig der Rekombination in den Benetzungsschichten zugeordnet werden kann (siehe Kapitel 5). Der obere Quantenpunkt zeigt eine größere Höhe als durch den PCA-Schritt (Dicke der GaAs-Deckschicht hier: 3 nm) zu erwarten wäre. Eine mögliche Erklärung ist, dass durch die inhomogene Materialverteilung in der InAs-Schicht ein aufgeweitetes Spannungsfeld entsteht und somit überdurchschnittlich viel InAs zu dem oben liegenden Quantenpunkt nukleiert [KHS07]. Dadurch bildet sich ein großer Quantenpunkt mit flachen Flanken aus, der von der GaAs-Schicht des PCA-Schritts vollständig bedeckt wird. So kann die Quantenpunktspitze nicht desorbieren und es bildet sich kein typisches Plateau aus, wie es noch in der unteren InAs-Schicht zu sehen ist. Ein Indiz dafür kann die in Abbildung 4.4c gezeigte Dunkelfeldaufnahme sein. Bei dieser Technik wird die Probe mit einem defokussierten Elektronenstrahl beleuchtet. Die eintreffenden Elektronen werden an den Netzebenen des Kristallgitters gebeugt. Durch eine Objektivblende werden nun der Primärreflex und alle weiteren Reflexe bis auf einen einzigen ausgeblendet. Die räumlich variierende Intensität des Reflexes liefert nun Informationen über die Abweichung der Atome vom idealen Kristallgitterplatz [WC09]. Somit kann die Verspannung innerhalb der Probe sichtbar gemacht werden. Man sieht ein Spannungsfeld, das sich mehrere zehn Nanometer in die Umgebung der InAs-Schicht fortsetzt und so mutmaßlich die überdurchschnittliche Größe des Quantenpunkts begünstigt. Unterhalb der InAs-Schicht lässt sich ein dunkler, zugverspannter Bereich feststellen, der auf die Abmessungen des Lochs zurückgeführt werden könnte. Zusammenfassend kann aus dieser TEM-Aufnahme der Schluss gezogen werden, dass die Positionierung der Quantenpunkte über ein vertikales Spannungsfeld erfolgt, das von einer InAs-Ansammlung im strukturierten Nanoloch ausgeht.

Prinzipiell lässt sich eine solche Stapelung weiter fortsetzen, so dass Stapel von mehr als zehn Lagen positionierter Quantenpunkte möglich sind [KSR⁺06]. Allerdings ist eine solche Probengeometrie nicht mehr für die Integration einzelner Quantenpunkte in Bauelemente geeignet, da die optischen Spektren zu viele Emissionslinien enthalten. Deswegen wurden in dieser Arbeit nur Proben mit einer Quantenpunktschicht hergestellt.

4.2 Positionierte Quantenpunkte auf großen Gitterperioden

Die Funktionalität mancher Bauteile, wie z. B. Einzelphotonenquellen oder Quellen verschränkter Photonen, beruht auf der Emission eines einzelnen Quantenpunkts innerhalb des Bauteils. Weitere Quantenpunkte im Bauteil würden die Eigenschaften negativ beeinflussen. So würde eine Schlüsselübertragung mit dem BB84-Protokoll [BB84] bei Verwendung einer Quelle mit zwei Quantenpunkten als Emittieren einem

potentiellen Angreifer die Möglichkeit geben, eines der beiden emittierten Photonen unentdeckt abzufangen und zu analysieren².

In diesem Abschnitt wurden die Eigenschaften positionierter Quantenpunkte hinsichtlich einer niedrigen Oberflächendichte optimiert. Es wurden positionierte Quantenpunkte auf einem quadratischen Lochgitter mit Perioden bis zu 10 μm hergestellt. Vergleicht man den daraus resultierenden Quantenpunkt-Abstand mit den typischen Abmessungen von Bauteilen (ca. 10 μm bei photonischen Kristallkavitäten), zeigt sich, dass nur ein einziger Quantenpunkt im Bauteil enthalten ist. Somit kann kein weiterer Quantenpunkt über eine nicht-resonante Quantenpunkt-Kavität-Kopplung zur Emission beitragen [KLN⁺08, AUU⁺09].

4.2.1 Wachstumseigenschaften

Die Herstellung des quadratischen Lochmusters mit einer Periode von 10 μm erfolgt wie in Abschnitt 3.1 beschrieben. Im Vergleich zu kleineren Perioden muss lediglich die Belichtungs-dosis angepasst werden. Für das Wachstum ist eine große Diffusionslänge des InAs auf der Oberfläche wichtig, damit zwischen den Nukleationszentren keine selbstorganisierten Quantenpunkte entstehen. Dazu wird eine hohe Substrattemperatur von typischerweise 520 °C bis 545 °C gewählt und das gestapelte Wachstumsschema aus Unterabschnitt 4.1.3 verwendet. Abbildung 4.5 zeigt eine REM-Aufnahme von vier Quantenpunkten. Der Blickwinkel wurde dabei senkrecht von oben gewählt, da sonst Teile des Bildes nicht mehr scharf aufgenommen werden können. Aufgrund des Blickwinkels und des ungünstigen Verhältnisses der Quantenpunkthöhe (ca. 10 nm) zu der lateralen Größe des Bildausschnittes (ca. 10 μm) kann nur ein geringer Bildkontrast erzielt werden. Alternative Visualisierungsmethoden werden in Unterabschnitt 4.2.2 vorgestellt.

In Abbildung 4.5a ist keine Nukleation zwischen den Zentren zu sehen, was repräsentativ für die gesamte Probe ist. Manche der Zentren sind mehrfach besetzt, was vor allem durch die Schwankung der Lochgröße durch den Herstellungsprozess bedingt ist. Im Verlaufe dieser Arbeit und in der Literatur [HHR⁺11, HHG⁺11, Sch11] wurde beobachtet, dass mit einer hohen Substrattemperatur das Verhältnis von doppelt zu einfach besetzten Nukleationszentren sinkt. In dieser Arbeit überwiegt die Besetzung der Nukleationszentren mit einem einzelnen Quantenpunkt, wie auch in Abbildung 4.5b und c gezeigt wird. Somit eignen sich die hier vorgestellten positionierten Quantenpunkte zur Integration in optoelektronische Bauelemente, deren Funktion auf einem einzelnen Quantenpunkt als Emitter beruht (siehe Kapitel 8).

²Diese Abhörmethode des “Photon Number Splittings” funktioniert nur, wenn die zur Schlüsselübertragung benutzte Eigenschaft der beiden emittierten Photonen, üblicherweise die Polarisation, korreliert ist. Da die Aufprägung der Polarisation in gängigen Versuchsaufbauten durch einen Polarisationsmodulator im Strahlengang nach der vermeintlichen Einzelphotonenquelle stattfindet, sind die beiden Photonen polarisationskorreliert.

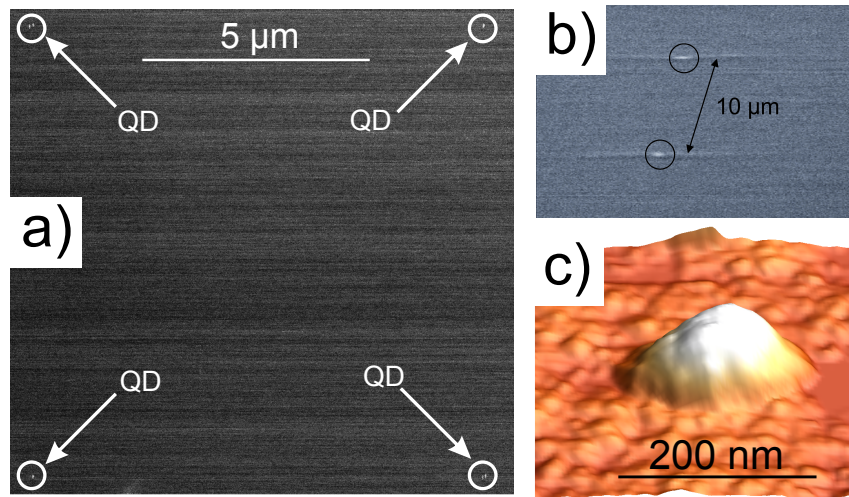


Abbildung 4.5: a) REM-Aufnahme (Blickwinkel von oben) von positionierten Quantenpunkten auf einem quadratischen Lochgitter mit 10 µm Periode. Die Löcher wurden nasschemisch geätzt und das gestapelte Wachstumsschema verwendet. b) Verkipppte REM-Aufnahme von zwei Quantenpunkten mit 10 µm Periode. c) AFM-Aufnahme eines einzelnen positionierten Quantenpunkts.

4.2.2 Visualisierungsmethoden

Wie in Abbildung 4.5a zu sehen ist, kann die Darstellung positionierter Quantenpunkte auf sehr großen Perioden mit einem Rasterelektronenmikroskop Schwierigkeiten bereiten, da die Schärfentiefe oder der Kontrast zu gering ausfällt. Im Rahmen dieser Arbeit konnte mit einem REM maximal ein Ausschnitt von 2x2 Quantenpunkten betrachtet werden. Um größere Probenbereiche anzuschauen, sind andere Visualisierungsmethoden hilfreich. Eine Möglichkeit besteht in der Verwendung eines Rasterkraftmikroskops. Die Probenpositionierung wird dort durch piezoelektrische Kristalle vorgenommen. Die Piezostellelemente gängiger Rasterkraftmikroskope können nur einen maximalen Bildbereich von ca. 50x50 µm erfassen. Sie weisen allerdings Nichtlinearitäten in diesem Bereich auf, so dass die Bildgebung stark verzerrt werden kann.

Im Rahmen dieser Arbeit konnte ein weiteres Verfahren zur Visualisierung von Mustern aus positionierten Quantenpunkten mit großen Perioden identifiziert werden. Wird auf der Oberfläche eine Schicht aus 100 nm Siliziumdioxid aufgebracht, so bildet sich über den Quantenpunkten eine kleine Erhebung im Siliziumdioxid. Im Lichtmikroskop wird nun ein Teil des einfallenden Lichtes an den verschiedenen Grenzflächen im Material reflektiert oder gestreut. Durch die Interferenz der Teilstrahlen werden die Quantenpunkte mit einem Helligkeitskontrast sichtbar. Dadurch kann ein optisches Mikroskop zur Darstellung des Quantenpunktmusters verwendet werden. Dieses Verfahren kann auch für Quantenpunkte benutzt werden, die mit ca. 60 nm GaAs überwachsen wurden, da sich die Erhebung des Quantenpunktes

durch die GaAs-Deckschicht fortpflanzt und diese Deckschicht für sichtbares Licht semi-transparent ist [HHS⁺11, AKB⁺08].

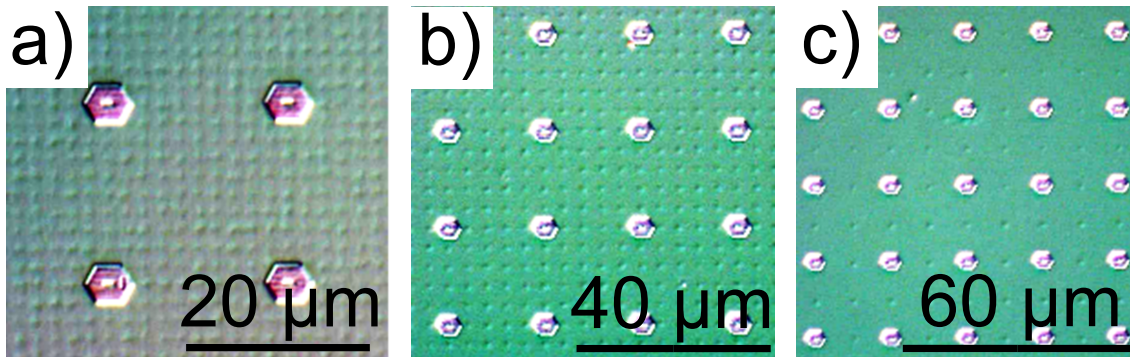


Abbildung 4.6: Optische Mikroskop-Aufnahmen von positionierten Quantenpunkten mit einer 60 nm GaAs-Deckschicht und 100 nm Siliziumdioxid. Die sechseckigen Strukturen sind photonische Kristallkavitäten mit einem Abstand von jeweils 20 μm . Die positionierten Quantenpunkte sind als Erhebungen zwischen den Kavitäten zu sehen. a) Ausschnitt von ca. 400 positionierten Quantenpunkten mit einer Periode von 2 μm . b) Ausschnitt von ca. 300 positionierten Quantenpunkten mit einer Periode von 4 μm . c) Ausschnitt von ca. 80 positionierten Quantenpunkten mit einer Periode von 10 μm .

In Abbildung 4.6 sind optische Mikroskop-Aufnahmen von solchen positionierten Quantenpunkten zu sehen. Die Periode des quadratischen Quantenpunktgitters beträgt 2 μm (4 μm , 10 μm) in Teilbild a) (b,c). Die sechseckigen Strukturen sind in Siliziumdioxid belichtete photonische Kristalle mit L3-Kavitäten in der Mitte, die zur Position der Quantenpunkte ausgerichtet wurden. Mit diesen Aufnahmen kann die Qualität des Quantenpunktgitters überprüft werden. Alle Nukleationszentren sind besetzt und nur wenige Erhebungen sind außerhalb zu sehen. Diese zusätzlichen Erhebungen können auf nicht positionierte Quantenpunkte, Kristallfehler oder Fremdpartikel im Siliziumdioxid zurückgeführt werden. Zusätzlich liefern diese Bilder eine grobe Kontrolle der Ausrichtung von Bauteilen an positionierten Quantenpunkten (siehe Kapitel 8).

Eine weitere Möglichkeit, die Positionierung von Quantenpunkten mit großen Abständen zu überprüfen, ist die Aufnahme einer Karte der Photolumineszenz, wie in Kapitel 5 gezeigt wird. Geringere Quantenpunktabstände können überwachen (siehe Abbildung 4.8) oder unüberwachen effizient mit einem Rasterkraftmikroskop untersucht werden [HHS⁺11].

4.3 Positionierte Quantenpunkte auf kleinen Gitterperioden

Am Anfang des Kapitels wurden bereits zahlreiche Anwendungsmöglichkeiten von positionierten Quantenpunkten auf kleinen Gitterperioden beschrieben. Mit solchen Quantenpunkten sind darüber hinaus auch Untersuchungen zur grundlegenden Physik von strahlenden Zwei-Niveau-Systemen denkbar. Ein Ensemble energetisch ähnlich emittierender Zwei-Niveau-Systeme (z. B. Atome oder Quantenpunkte) mit hoher Anzahldichte in einem bestimmten Volumen kann über Distanzen von mehr als 100 nm über das Strahlungsfeld wechselwirken und so eine besondere zeitliche und räumliche Emissionscharakteristik besitzen. Dieser Effekt der “Superradianz” wurde erstmals 1954 von Dicke beschrieben [Dic54] und seitdem für Atome [GHFB79] und selbstorganisierte Quantenpunkte [SSW⁺07, MDM⁺09, MDM⁺10] nachgewiesen.

Mit positionierten Quantenpunkten mit kleinen Perioden könnte die Abhängigkeit dieses Effektes vom Abstand der Emittier untersucht werden, da sich die Periode und die Position der Quantenpunkte genau kontrollieren und auf einer Probe variieren lassen. Deswegen wurden im Rahmen dieser Arbeit auch Quantenpunktgitter mit Perioden von 200 nm bis 350 nm realisiert.

4.3.1 Besonderheiten des Wachstums

Zur Untersuchung der Wachstumseigenschaften von positionierten Quantenpunkten auf kurzen Perioden wurde eine Probe mit 200 nm, 300 nm und 350 nm Lochperioden hergestellt. Die Löcher wurden wie in Abschnitt 3.1 gezeigt durch nasschemisches Ätzen definiert und das gestapelte Wachstumsschema verwendet. Da die Löcher sehr dicht beieinander liegen, wurden auf die Lochperiode angepasste Dosiswerte für die Elektronenstrahlolithographie verwendet, um einen optimalen Lochdurchmesser zu erzielen. Noch kleinere Lochperioden konnten im Verlauf der Arbeit nicht realisiert werden, da die einzelnen Löcher sonst verschmelzen und somit keine reproduzierbaren Wachstumsergebnisse für positionierte Quantenpunkte erzielt werden können. In der Literatur konnten auf trocken geätzten Löchern auch Abstände von 100 nm [KHS07] bzw. 80 nm [DGR⁺11] für positionierte Quantenpunkte erreicht werden. In dieser Arbeit wurden keine trocken geätzten Löcher eingesetzt, um die Auswirkungen der spektralen Diffusion zu vermindern [SHS⁺09].

Abbildung 4.7 zeigt REM-Aufnahmen von positionierten Quantenpunkten mit einer 200 nm (Teilbild a und d), 300 nm (Teilbild b und e) und 350 nm (Teilbild c und f) Periode. Die Schicht positionierter Quantenpunkte wurde bei einer Substrattemperatur von 540 °C gewachsen. Die Belichtungsdosis in den Teilbildern a bis c ist niedriger als in d bis f. Es zeigt sich eine sehr gute Qualität der Positionierung, die in Tabelle 4.1 quantitativ ausgewertet wird. Mehr als 99 % aller Nukleationszentren sind besetzt, wobei ein geringer variabler Prozentsatz mit mehr als einem Quantenpunkt belegt ist. Signifikante Nukleation zwischen den Gitterplätzen ist nur auf der

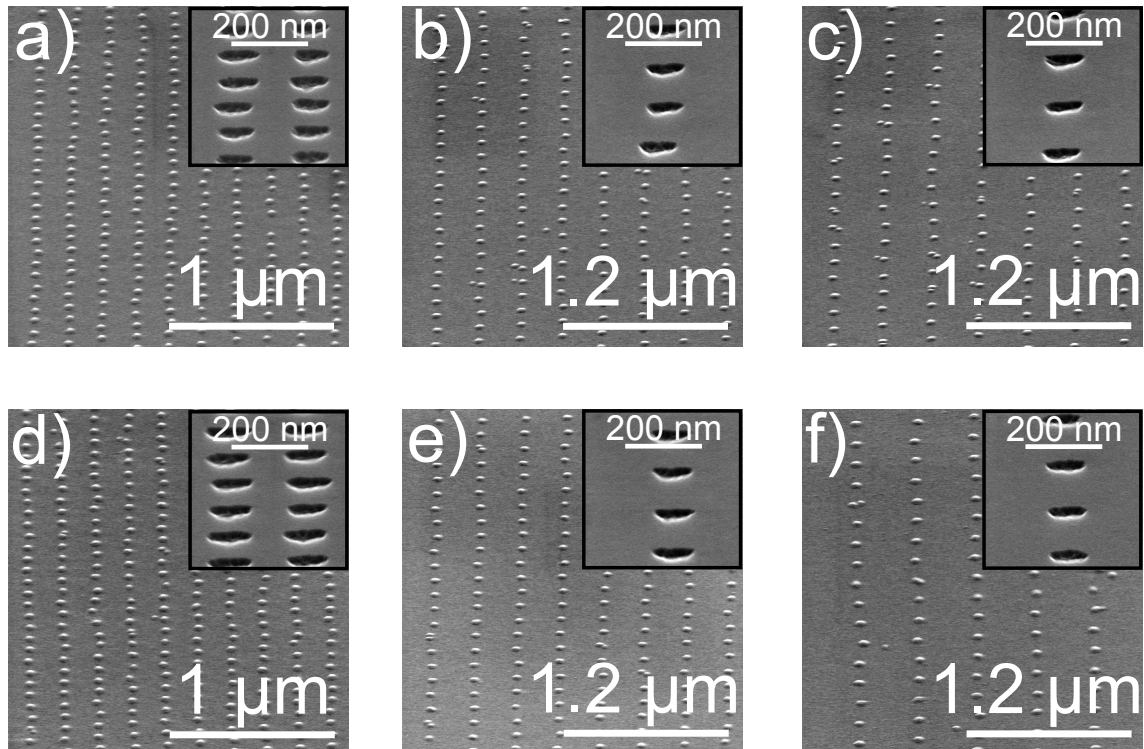


Abbildung 4.7: REM-Aufnahmen von positionierten Quantenpunkten mit unterschiedlichen Perioden und Dosiswerten während der Elektronenstrahlolithographie. Das Inset zeigt jeweils die unüberwachsenen Löcher. a) 200 nm Periode, 19250 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ Dosis b) 300 nm Periode, 19950 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ Dosis c) 350 nm Periode, 19950 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ Dosis d) 200 nm Periode, 19950 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ Dosis e) 300 nm Periode, 21000 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ Dosis f) 350 nm Periode, 21000 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$.

350 nm Periode zu sehen. Hier könnten zwei Erklärungen möglich sein: Die Menge des abgeschiedenen InAs ist über die Probe konstant. Da die Flächendichte der positionierten Quantenpunkte auf Bereichen mit einer 200 nm Periode größer ist als auf Bereichen mit einer 350 nm Periode, ist es möglich, dass abgeschiedenes InAs selbstorganisiert zwischen den Löchern nukleiert. Eine andere Erklärungsmöglichkeit sind lokale Temperaturfluktuationen während des Wachstums, was auch die unterschiedliche Anzahl von positionierten Quantenpunktmolekülen erklären könnte. Es wurde jedoch gezeigt, dass sich bei geeigneter Wahl der Wachstums- und Prozessparameter positionierte Quantenpunkte mit einer 200 nm Periode mit sehr hoher Ausbeute herstellen lassen.

Zur Bewertung der Homogenität des Quantenpunktwachstums wurde die laterale Ausdehnung der Quantenpunkte anhand der REM-Aufnahmen abgeschätzt. Dabei wurde eine Ellipse angenommen, deren große Achse als Maß für die Ausdehnung des Quantenpunktes festgesetzt wurde. Für jede Quantenpunktperiode und jeden Dosiswert wurde das arithmetische Mittel \bar{b} und die Standardabweichung berechnet (siehe letzte Spalte in Tabelle 4.1). Dabei ist festzustellen, dass die Homogenität

Teilbild	a [nm]	N_{pos} [%]	N_{mol} [%]	N_{fehl} [%]	$N_{\overline{pos}}$ [%]	\bar{b} [nm]
a)	200	99.4	0.3	0.3	0.0	50.35 ± 6.72
b)	300	93.4	6.8	0.0	0.5	58.55 ± 3.42
c)	350	88.6	11.4	0.0	1.4	59.33 ± 4.62
d)	200	96.9	3.1	0.0	0.0	51.88 ± 5.89
e)	300	96.8	3.2	0.0	0.5	59.09 ± 4.26
f)	350	96.5	3.5	0.0	5.9	61.08 ± 3.04

Tabelle 4.1: Verlässlichkeit der Positionierung von Quantenpunkten mit Perioden von 200 nm bis 350 nm. Die Daten wurden aus Abbildung 4.7 gewonnen, worauf sich auch die erste Spalte bezieht. Die weiteren Spalten geben - in dieser Reihenfolge - die Quantenpunktperiode a , den Anteil der positionierten einzelnen Quantenpunkte N_{pos} , den Anteil der positionierten Quantenpunktmoleküle N_{mol} , den Anteil der unbesetzten Nukleationszentren N_{fehl} und den Anteil der nicht positionierten Quantenpunkte $N_{\overline{pos}}$ an. Die letzte Spalte gibt den Mittelwert der Ausdehnung \bar{b} der Quantenpunkte mit Standardabweichung an.

der Quantenpunkte nicht signifikant vom Dosiswert bei gleicher Periode abhängt. Auch ist die Homogenität für eine Periode von 300 nm und 350 nm im Rahmen der statistischen Abweichung identisch. Lediglich die Homogenität für eine Periode von 200 nm ist niedriger im Vergleich zu anderen Perioden. Dies spiegelt sich auch in der Photolumineszenz des Quantenpunktensembles wider (siehe Abschnitt 5.2).

Ein deutlicher Trend zeigt sich für die Abhängigkeit der mittleren Ausdehnung von der Quantenpunktperiode. Hierbei nimmt die Ausdehnung mit der Periode ab. Dieses Verhalten kann durch die geringere InAs-Menge pro Nukleationszentrum erklärt werden, wenn die Diffusionslänge größer ist als der Abstand der Nukleationszentren. Aufgrund der geringeren Ausdehnung der Quantenpunkte mit einer Periode von 200 nm, sollte die Rekombination aus dem energetische Grundzustand eine im Mittel höhere Energie besitzen. Dieses Verhalten wird in Abschnitt 5.2 untersucht und bestätigt. Eine Auswertung der unüberwachsenen Quantenpunkthöhe durch Rasterkraftmikroskopie ergab eine mittlere Höhe von (10.35 ± 0.99) nm mit einer Gauß-förmigen Verteilung. Die Abweichung entspricht somit etwa 9.6 %, was mit Literaturwerten von 8 % für ähnliche Quantenpunkte übereinstimmt [KHS04]. Da für optische Untersuchungen ein PCA-Schritt verwendet wurde, ist die Quantenpunkthöhe allerdings kein repräsentatives Maß für die spektrale Homogenität der Quantenpunkte.

4.3.2 Probencharakterisierung und Präparation für spektroskopische Untersuchungen

Aufgrund der hohen Oberflächendichte können die spektralen Eigenschaften von einzelnen positionierten Quantenpunkten mit sehr kleinen periodischen Abständen

nicht ohne weiteres analysiert werden. Deswegen ist ein weiterer Prozessschritt notwendig, der einen Großteil der positionierten Quantenpunkte entfernt. Dazu werden, ähnlich wie in Unterabschnitt 3.2.1 beschrieben, durch einen Trockenätzprozess Mesen hergestellt. Die Mesen haben eine quadratische Grundfläche und eine Kantenlänge von 500 nm, 800 nm und 1000 nm. Sie sind in einem quadratischen Muster angeordnet, das zur Position der Quantenpunkte ausgerichtet wurde und besitzen eine Periode von 5 μm . Die Ätztiefe beträgt etwa 500 nm, so dass alle umliegenden Quantenpunkte durch den Ätzprozess entfernt werden. Abbildung 4.8a zeigt eine REM-Aufnahme solcher Mesen.

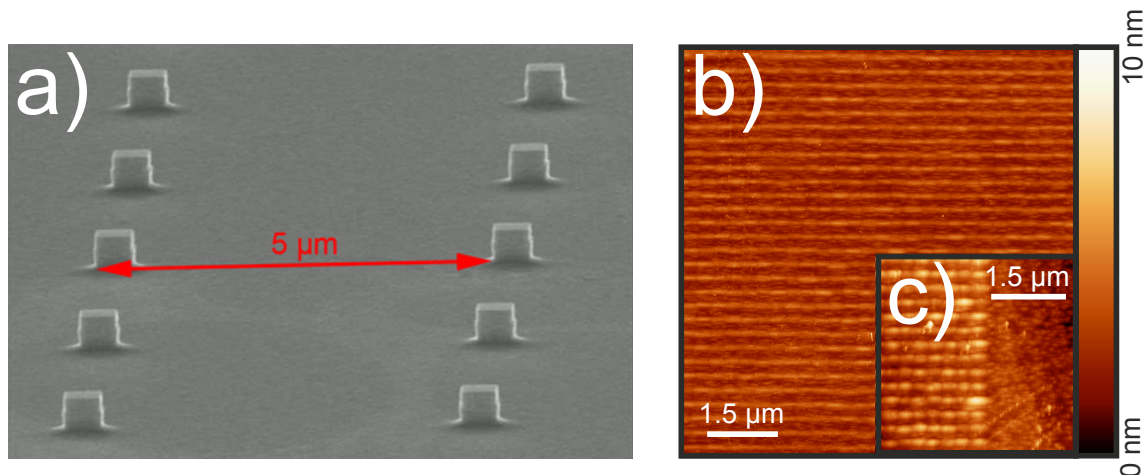


Abbildung 4.8: a) REM-Aufnahme von trockengeätzten Mesen zur Vereinzelung von positionierten Quantenpunkten mit einer Periode von 300 nm. b) Rasterkraftmikroskopaufnahme von mit 100 nm GaAs überwachsenen, positionierten Quantenpunkten (Periode: 300 nm). c) Rasterkraftmikroskopaufnahme des Grenzgebietes zwischen strukturiertem und unstrukturiertem Teil der Probe in Teilbild b). Die Höhenskala am rechten Bildrand von 0 nm (schwarz) bis 10 nm (weiß) gilt für beide Teilbilder b) und c).

Die Mesen mit der kleinsten Kantenlänge beinhalten nur einen einzelnen Quantenpunkt für Quantenpunktperioden von 300 nm und größer. Die restlichen Konfigurationen beinhalten mehr als einen Quantenpunkt, was aber aufgrund der spektralen Trennung unterschiedlicher Quantenpunkte kein Hindernis für die Untersuchung einzelner Quantenpunkte darstellt. Im Rahmen der Arbeit wurden keine kleineren Mesen verwendet, da diese aufgrund der geringen Distanz der trockengeätzten Oberfläche zu den positionierten Quantenpunkten die Emissionseigenschaften der Quantenpunkte stärker negativ beeinflussen würden (siehe Abschnitt 6.1 und [BF02]).

Eine weitere Besonderheit der Proben, die zur Untersuchung der Emissionseigenschaften bestimmt sind, ist die 100 nm dicke GaAs-Deckschicht über den Quantenpunkten. Somit sind die Quantenpunkte nicht mehr direkt der Beobachtung mit einem Mikroskop zugänglich und es ist schwierig, die Güte der Positionierung zu beurteilen. Allerdings ist in der Literatur bekannt, dass mit GaAs überwachsene

In(Ga)As-Quantenpunkte als kleine Erhebung mit einem Rasterkraftmikroskop auf der Probenoberfläche nachgewiesen werden können [AKB⁺08, HBW⁺07]. Die gleiche Beobachtung konnte im Rahmen dieser Arbeit an überwachsenen positionierten Quantenpunkten mit 300 nm Periode gemacht werden (siehe Abbildung 4.8b und [HHS⁺11]). Das Bild zeigt die Rasterkraftmikroskopaufnahme der Probenoberfläche einer solchen Probe. Die überwachsenen Quantenpunkte bilden ein Hügelmuster auf der Oberfläche mit einer Höhe von etwa 4 nm bis 5 nm. Aufgrund der Wachstumskinetik bilden die Hügel in $[0\bar{1}1]$ -Richtung eine fast verschmolzene Kette, während sie in $[011]$ -Richtung klar getrennt sind [GMRS⁺97]. Abbildung 4.8c zeigt den Rand des strukturierten Bereiches der gleichen Probe wie in Teilbild b. Das Hügelmuster endet mit der Strukturierung und ist somit tatsächlich auf positionierte Quantenpunkte zurückzuführen. Die Hügel in diesem Bereich sind bis zu 10 nm hoch, was auf größere Quantenpunkte und ein anderes Überwachsverhalten zurückgeführt werden kann. Im Grenzbereich diffundiert InAs während des Quantenpunktwachstums aus dem unstrukturierten Bereich in den Löcher, so dass sich dort größere Quantenpunkte bilden können, als in der Mitte des strukturierten Bereiches [INKA00]. Mit dieser Methode kann die Positionierung überwachsener Quantenpunkte für genügend dünne Deckschichten nachgewiesen werden, was eine gute Kontrollmöglichkeit für die zuverlässige Integration in Bauteile ist.

5 Optische Eigenschaften von positionierten Quantenpunkten

Der Einsatz von Quantenpunkten als Lichtemitter in optoelektronischen Bauelementen stellt hohe Anforderungen an deren optische Eigenschaften. So benötigt man beispielsweise für die Realisierung von Einzelphotonenquellen mit hohen Auskopfeffizienzen geeignete Quantenpunkte, die unter anderem eine hohe Emissionsrate und eine spektrale Resonanz zu der Mode einer Kavität aufweisen. Daraus folgt, dass innerhalb und in der Umgebung der Quantenpunkte möglichst wenige nicht-strahlende Rekombinationszentren zu finden sein sollten. Weiterhin sollte die inhomogene Emissionsverbreiterung des Quantenpunktensembles möglichst klein sein, um die Chance auf spektrale Resonanz bei einer großen Anzahl von Bauteilen zu erhöhen. Speziell für positionierte Quantenpunkte gilt es, die Emissionslinienbreiten einzelner Quantenpunkte zu reduzieren, da diese durch spektrale Diffusion verbreitert sind (siehe Abschnitt 6.1).

5.1 Versuchsaufbau zur Messung der Photo- und Elektrolumineszenz von Quantenpunkten

Für die grundlegende Untersuchung der Emissionseigenschaften einzelner oder vieler Quantenpunkte unter optischer oder elektrischer Anregung wurden ähnliche Versuchsanordnungen verwendet. Abbildung 5.1 zeigt ein auf die wesentlichen Komponenten reduziertes Schema einer solchen Anordnung. Die Probe kann während der Messung auf eine Temperatur von ca. 5-20 K gekühlt werden. Dies erfolgt durch Kühlung mit flüssigem Helium (LHe) in einem evakuierten Kryostaten. Räumlich aufgelöste Messungen können mit einem Piezosystem mit einer Genauigkeit von besser als 100 nm durchgeführt werden. Es besteht die Möglichkeit, an die Probe Spannung anzulegen und so z. B. eine elektrische Anregung zu realisieren. Die Möglichkeit zur optischen Anregung besteht über einen frequenzverdoppelten Nd:YAG-Laser (kurz für Neodym-dotierter Yttrium-Aluminium-Granat-Laser), dessen Emissionswellenlänge mit 532 nm oberhalb der Bandlückenenergie von GaAs liegt. Die Anregungsleistung kann über ein Messgerät bestimmt werden. Der Laserstrahl wird über einen Strahlteiler und eine Linse (Objektiv) zu einem Fokusbereich mit einem Durchmesser von etwa 100 μm (3 μm) auf die Probenoberfläche gelenkt. Wenn nicht anders angege-

ben, wurde für räumlich aufgelöste Untersuchungen ein Objektiv mit einer 50fachen Vergrößerung und einer numerischen Apertur von 0.42 verwendet.

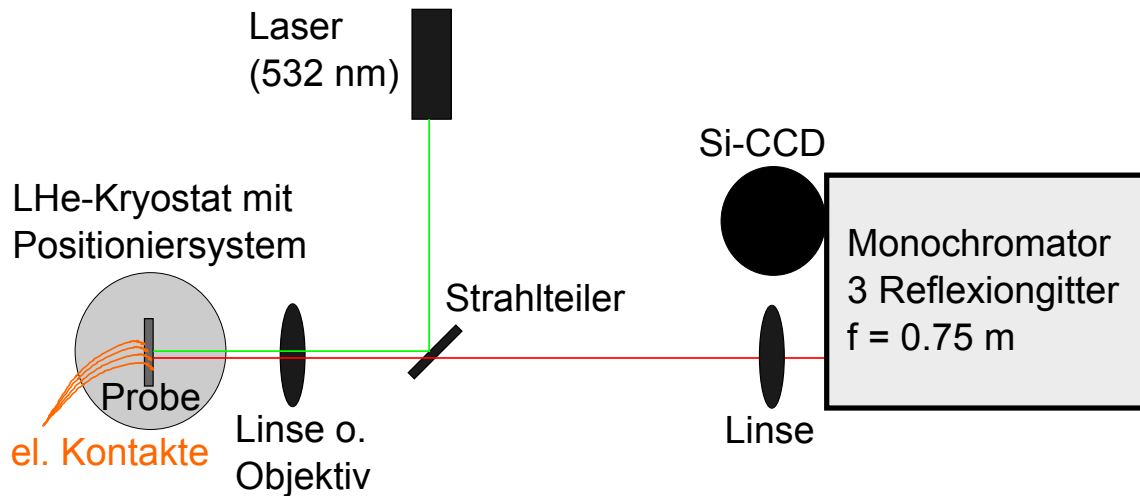


Abbildung 5.1: Vereinfachtes Schema der in dieser Arbeit verwendeten Versuchsaufbauten zur Untersuchung der optischen Eigenschaften von Quantenpunkten. Darin sind die Aufbauten für räumlich aufgelöste Messungen und Ensemble-Untersuchungen sowie optische und elektrische Anregung zusammengefasst. Nähere Erläuterungen befinden sich im Fließtext.

Das von der Probe emittierte Signal wird von der selben Linse aufgefangen und kollimiert. Durch den Strahlteiler wird das Signal in Richtung eines Monochromators mit einer Länge von $f = 0.75$ m gelenkt. Durch eine Linse wird das Signal auf den Eintrittsspalt fokussiert. Im Innern des Monochromators befinden sich drei wechselbare Reflexiongitter mit 300, 1200 und 1800 Strichen/mm, die das Signal spektral aufweiten. Die Detektion erfolgt mit einer gekühlten CCD-Kamera (engl. *charge coupled device*). Nicht in Abbildung 5.1 dargestellt ist das System zur Beobachtung der Probenoberfläche, das aus Weißlichtquelle und Kamera besteht. Ebenfalls sind alle Justagespiegel, Lochblenden und Abschwächer zur Vereinfachung nicht eingezeichnet. In den Strahlengang können noch zusätzlich Komponenten, wie z. B. Polarisationsfilter, eingebracht werden, um die optischen Eigenschaften der untersuchten Quantenpunkte umfangreicher zu erfassen.

5.2 Kontrolle der optischen Eigenschaften des Quantenpunktensembles

Der energetische Grundzustand eines Exzitons in einem Quantenpunkt wird unter anderem durch dessen Form und Zusammensetzung bestimmt [CABA99]. Da durch die selbstorganisierte Herstellung der Quantenpunkte immer Fluktuationen in Form

und Zusammensetzung auftreten, variiert bei einem Quantenpunktensemble auch die Lage des energetischen Grundzustandes [PMFF⁺00]. Die Emissionslinie, die bei der Rekombination von Ladungsträgern in einem einzelnen Quantenpunkt entsteht, ist aufgrund der Lebensdauer des Zustands gemäß einer Lorentz-Kurve verbreitert. Die geringste Linienbreite, die in der Literatur geschildert wird, beträgt etwa 2 μeV bei einer Temperatur von 2 K [BF02]. Durch unterschiedliche Prozesse wie z. B. Dephasierung, Phononenverbreiterung und spektrale Diffusion wird die Emission zusätzlich verbreitert. Die spektrale Position der Emissionslinien vieler Quantenpunkte ist statistisch verteilt. Die Emission eines Quantenpunktensembles ist somit die Summe vieler statistisch verteilter Lorentz-Kurven, was sich als Intensitätsverlauf in Form einer Gauß-Kurve zeigt [PL95].

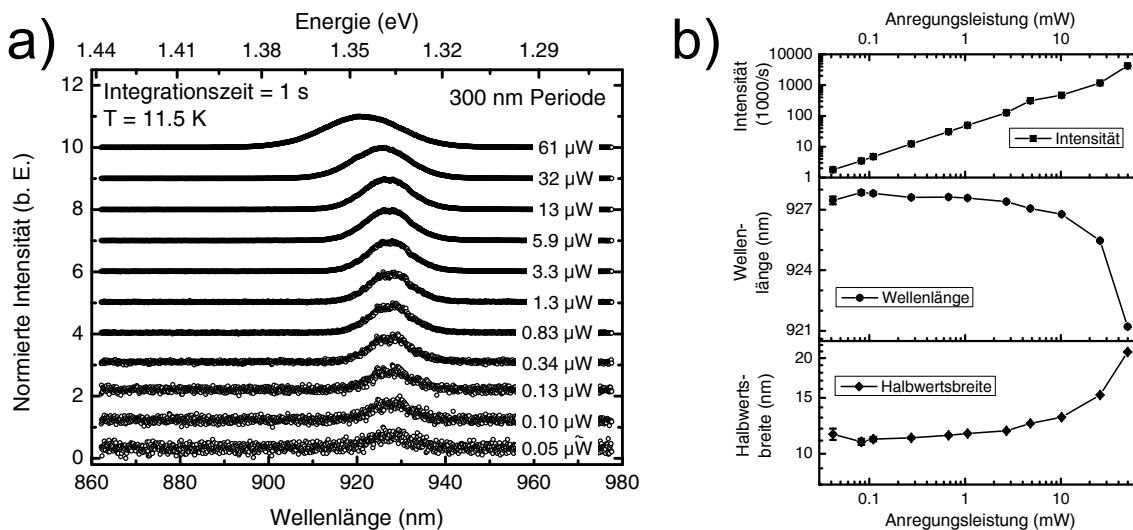


Abbildung 5.2: Leistungsabhängige Photolumineszenz eines Ensembles positionierter Quantenpunkte mit einer Periode von 300 nm. a) Normierte Spektren, die mit unterschiedlicher Anregungsleistung aufgenommen wurden. Die Spektren wurden vertikal versetzt aufgetragen. b) Doppeltlogarithmische Auftragung des Intensitätsverlaufes (Oben), der Änderung der Wellenlänge (Mitte) und der Zunahme der Halbwertsbreite (Unten).

Abbildung 5.2a zeigt die Emission eines Ensembles positionierter Quantenpunkte mit einer Periode von 300 nm, deren morphologische Eigenschaften in Abschnitt 4.3 beschrieben wurden. Für die einzelnen Spektren wurde die Anregungsleistung des Lasers von 0.05 μW schrittweise zu 613 μW erhöht. Jedes der Spektren lässt sich gut durch eine Gauß-Kurve anpassen, welche die statistische Fluktuation der Quantenpunktanmessungen widerspiegelt. Die Spektren wurden normiert und vertikal versetzt, damit eine übersichtliche Darstellung möglich ist.

In Abbildung 5.2b sind die Tendenzen der charakteristischen Größen der Emission abgebildet. Die integrierte Intensität I (oberstes Teilbild, doppeltlogarithmische Auftragung) steigt mit der Anregungsleistung P annähernd linear an ($I \propto P^{1.06}$).

Daraus kann geschlossen werden, dass die Quantenpunktemission hauptsächlich auf exzitonische Rekombination zurückzuführen ist, deren Intensitätsanstieg in der Literatur ebenfalls mit einem linearen Verlauf beschrieben wird [BAB⁺94]. Weiterhin scheint der Anteil der nicht-strahlenden Rekombination gering zu sein. Bei den hier untersuchten Anregungsleistungen tritt keine Sättigung der Emission ein. Höhere Anregungsleistungen konnten am vorhandenen Versuchsaufbau nicht erzielt werden, da der verwendete, für maximales Signal optimierte, Strahlteiler nur ca. 0.1 % des Laserlichtes auf die Probe leiten kann. Die zentrale Wellenlänge (mittleres Teilbild) sinkt mit steigender Leistung, da höherenergetische Übergänge (z. B. Rekombinationen von Exzitonen der sogenannten p-Schale) zu der Ensemble-Emission beitragen [GLS⁺96]. Die Halbwertsbreite nimmt aus diesem Grund von (15.71 ± 0.35) meV bis zu (30.57 ± 0.02) meV zu, wobei der Intensitätsverlauf im Spektrum für hohe Anregungsleistungen durch mehrere Gauß-Kurven angenähert werden könnte. Im Folgenden werden zwei Verfahren diskutiert, mit denen die Eigenschaften der Emission des Quantenpunktensembles beeinflusst werden können.

5.2.1 In-Situ thermisches Ausheilen der Quantenpunkte

Die energetische Lage der Quantenpunktemission wird maßgeblich durch die Höhe der Quantenpunkte bestimmt. In Unterabschnitt 4.1.3 wurde das PCA-Verfahren vorgestellt, mit dem die Höhe der Quantenpunkte und deren Materialzusammensetzung beeinflusst werden kann. Dabei spielen vor allem die Dicke der GaAs-Schicht vor dem Ausheilen und die Substrattemperaturen während dem Quantenpunkt-wachstum und dem Ausheilen eine Rolle. Hier sollen nun die optischen Eigenschaften von Quantenpunkten mit unterschiedlichen GaAs-Dicken untersucht werden. Die Photolumineszenz von Quantenpunkten mit einer Periode von 200 nm bei tiefen Temperaturen ist in Abbildung 5.3 gezeigt. Die Quantenpunkte wurden bei einer Substrattemperatur von 520 °C gewachsen und die PCA-Dicke wurde variiert (Teilbild a: 3 nm; Teilbild b: 3.5 nm). Für die Aufnahme der Spektren wurde das Signal bei einer Anregungsleistung von $P = 1.3 \mu\text{W}$ bzw. $P = 8.6 \mu\text{W}$ eine Sekunde integriert. Zur Anregung wurde ein Laser mit einer Wellenlänge von 532 nm und einem Fokusbereich auf der Probenoberfläche von ca. 4 μm verwendet. Die Anzahl der durch den Laser angeregten Quantenpunkte beträgt etwa 300. Somit wird auch näherungsweise die Emission der gleichen Anzahl von Quantenpunkten mit dem Objektiv eingesammelt, wodurch eine statistisch gemittelte Emission detektiert wird.

Die Messdaten lassen sich wie erwartet sehr gut durch eine Gauß-Kurve nähern. Diese Verteilung der Emission entspricht näherungsweise der statistischen Größenfluktuation der Quantenpunkte [BWPK04]. Die mittlere Emissionswellenlänge ist für die geringere PCA-Dicke von 3 nm mit 1.3432 eV erwartungsgemäß höher als der Mittelwert 1.3323 eV für die größere PCA-Dicke von 3.5 nm. Der geringe Temperaturunterschied zwischen den beiden Messungen führt in diesem Temperaturbereich zu keiner signifikanten Verschiebung der Emissionswellenlänge. Zusätzlich ist

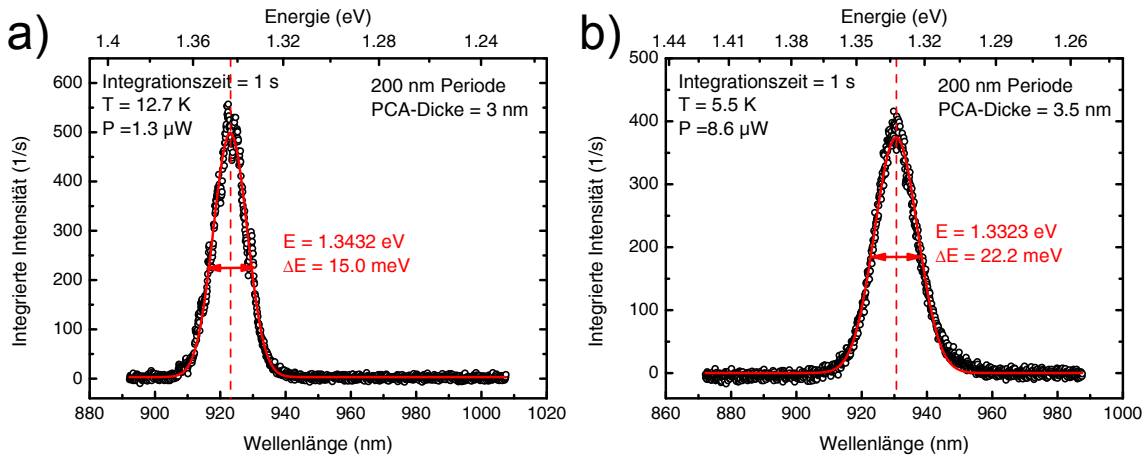


Abbildung 5.3: Photolumineszenz bei Tieftemperatur von positionierten Quantenpunkten, die mit unterschiedlichen Parametern für das PCA-Verfahren behandelt wurden. Die Messdaten sind schwarze Kreise, die mit einer Gauß-Kurve angenähert wurden. Die mittlere Emissionsenergie E und die Halbwertsbreite ΔE wurden anhand der Gauß-Kurve bestimmt. a) PCA-Dicke 3 nm b) PCA-Dicke 3.5 nm.

jeweils die Halbwertsbreite der Gauß-Kurve angegeben, die ein Maß für die spektrale Homogenität der Quantenpunkte darstellt. Die spektrale Verbreiterung der Quantenpunkte mit 3 nm PCA-Dicke beträgt 17.7 meV und ist vergleichbar mit den Bestwerten ähnlich hergestellter selbstorganisierter InAs-Quantenpunkte. Schmidt et al. berichten von 16 meV [SKN⁺02], Mi et al. von 10.6 meV [MB05] und Yang et al. von 11 meV nach schnellem thermischen Ausheilen [YTA⁺07]. Durch die Variation der Quantenpunktperiode kann die Halbwertsbreite weiter optimiert werden, was im nächsten Abschnitt diskutiert wird.

5.2.2 Zusammenhang zwischen Quantenpunktperiode und Photolumineszenzeigenschaften

Wie in Abschnitt 4.3 gezeigt wurde, hat die Periode von positionierten Quantenpunkten einen Einfluss auf deren morphologische Eigenschaften. Somit ist zu erwarten, dass die optischen Eigenschaften ebenfalls Variationen mit der Quantenpunktperiode zeigen. Abbildung 5.4 zeigt Emissionsspektren von sechs unterschiedlichen Quantenpunktanordnungen. Alle Quantenpunkte wurden mit dem gestapelten Schema bei einer Substrattemperatur von 520 °C und einer PCA-Dicke von 3 nm hergestellt. Die Periode der Quantenpunkte wurde variiert und beträgt 200 nm (a und b), 300 nm (c und d) und 350 nm (e und f). Die Dosis für die Herstellung der Nanolöcher wurde variiert von 19250 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ in Teilbild a, 19950 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ in den Teilbildern b bis d und 21000 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ in den Teilbildern e bis f. Alle Spektren wurden bei einer Proben temperatur von etwa 12 K und einer Anregungsleistung von etwa 2.6 μW

aufgenommen. Die Integrationszeit beträgt jeweils eine Sekunde. Der Durchmesser des Laserfokus auf der Probenoberfläche beträgt etwa 4 μm , so dass die Anzahl der angeregten Quantenpunkte mit größer werdender Periode sinkt. So werden für eine Quantenpunktperiode von 200 nm (300 nm, 350 nm) etwa 314 (134, 103) Quantenpunkte angeregt. Dies spiegelt sich in der Intensität des Quantenpunktsignals wider, die ebenfalls mit wachsender Periode sinkt. Der Trend wird allerdings nicht quantitativ abgebildet, da die Anregungsleistung nicht im Sättigungsbereich der Quantenpunkte liegt. Somit stehen nicht genügend Ladungsträger zur Verfügung, damit die Emission aus allen Quantenpunkten stattfindet.

Im Spektrum sind aufgrund der niedrigen Anzahl der angeregten Quantenpunkte deutlich die Signaturen einzelner intensiv leuchtender Quantenpunkte sichtbar, die sich als schmale Linien von den angenäherten Gauß-Kurven abheben. Die Auswertung der Gauß-Kurven ergibt eine mittlere Emissionsenergie des Ensembles, sowie deren Halbwertsbreite. In Abbildung 5.5 ist die Abhängigkeit dieser Werte von der Quantenpunktperiode und der Belichtungs-dosis gezeigt. Es zeigt sich, dass die Tendenzen der optischen Eigenschaften den morphologischen Trends aus Abschnitt 4.3 folgen. Die Höhe der Quantenpunkte wurde durch das PCA-Verfahren auf etwa 3 nm für alle Perioden und Dosiswerte definiert. Die aus dem PCA-Verfahren resultierende Streuung der Emissionswellenlänge sollte also für alle Quantenpunkte gleich sein. Vergleicht man nun die in Unterabschnitt 4.3.1 diskutierte laterale Ausdehnung der Quantenpunkte vor dem Überwachsen und deren Streuung (letzte Spalte in Tabelle 4.1), so findet man einen direkten Zusammenhang. Je kleiner die Quantenpunktperiode, desto niedriger ist die laterale Ausdehnung, was sich in einer höheren Emissionsenergie zeigt [BHA⁺97]. Die Standardabweichung der lateralen Ausdehnung sinkt von einer Periode von 200 nm zu größeren Perioden ab, was sich auch in der Halbwertsbreite der Emission niederschlägt. Somit konnte der erwartete Zusammenhang zwischen morphologischen und optischen Eigenschaften nachgewiesen werden.

Im Rahmen dieser Arbeit konnte ein Bestwert für die inhomogene Verbreiterung von positionierten In(Ga)As-Quantenpunkten auf strukturiertem (100)-GaAs-Substrat gezeigt werden. Dieser Wert beträgt 14.4 meV und wurde für positionierte Quantenpunkte mit einer Periode von 300 nm erreicht (siehe Abbildung 5.4c). Vergleicht man diesen Wert mit Ergebnissen in der Literatur so ist er deutlich niedriger, wobei die Herstellungsparameter je nach Arbeitsgruppe variieren. Atkinson et al. erreichen 40 meV inhomogene Verbreiterung mit einer 10 μm Quantenpunktperiode (ungestapelt) [ASBR08]. Verma et al. erreichen 24 meV für eine Quantenpunktperiode von 100 nm bei 77 K für ungestapeltes Wachstum mit MOCVD [VC08]. Kiravittaya et al. erreichen eine Linienbreite von 20.4 meV für 11-fach gestapelte Quantenpunkte mit einer Periode von 210 nm [KRS06]. Die Messdaten in dieser Veröffentlichung werden allerdings mit drei Gauß-Kurven angepasst, was einen Wert von 14.9 meV ergibt. Im Vergleich zur Literatur sind die hier gezeigten Quantenpunkte am besten für die Integration in Bauteile geeignet, da gleichzeitig die höchste spektrale Homogenität und eine exzellente Positioniergenauigkeit erzielt werden konnten. Außerdem

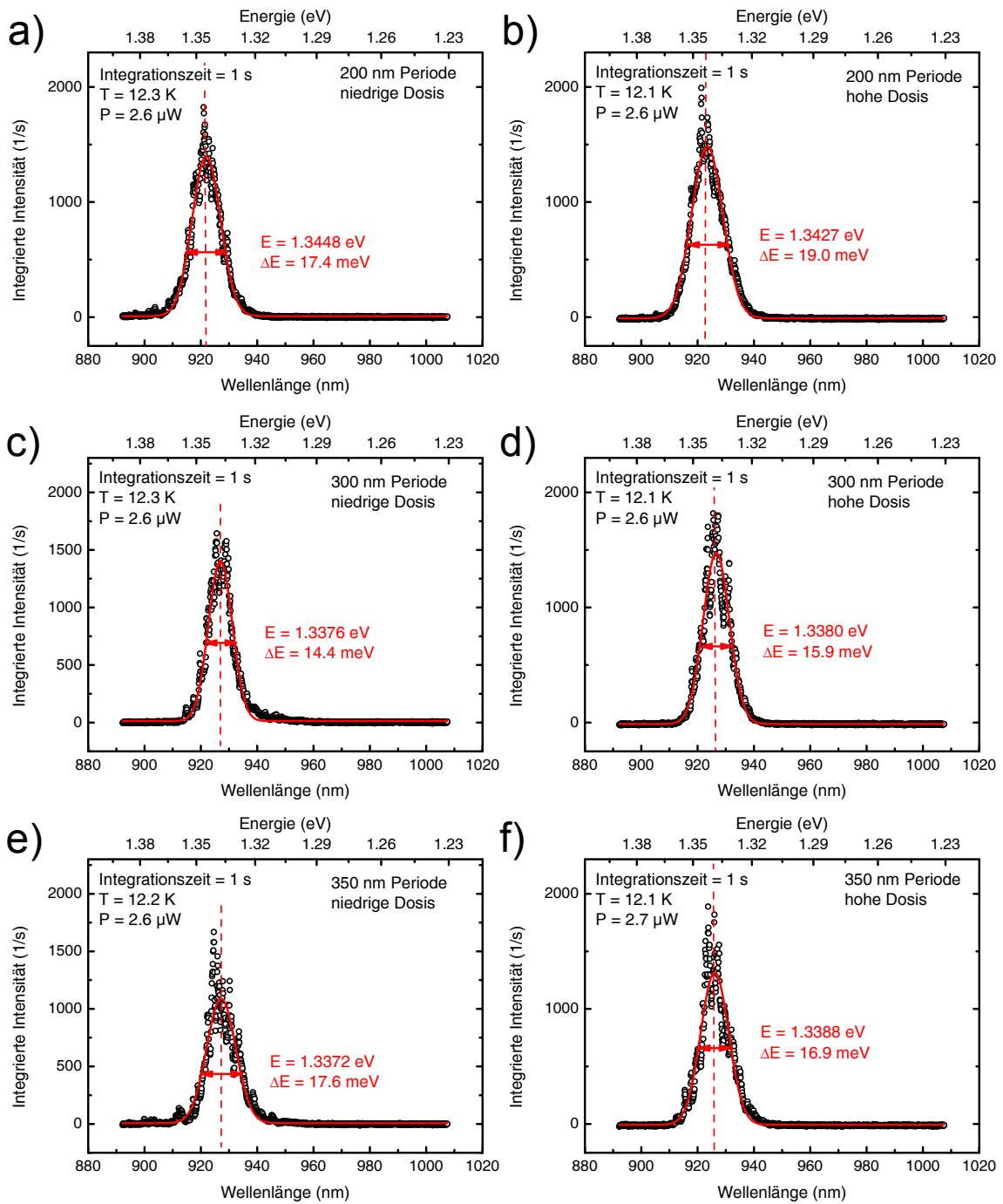


Abbildung 5.4: Emission von positionierten Quantenpunkten mit unterschiedlichen Perioden. Die Messpunkte sind schwarze Kreise, an die eine rot gezeichnete Gauß-Kurve angepasst wurde. Die Messparameter sind für jedes Bild im Graphen angegeben.

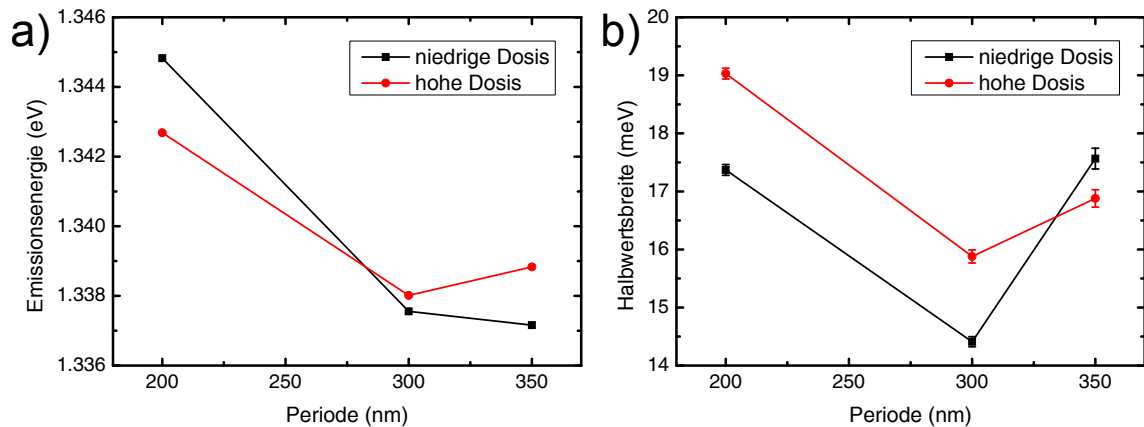


Abbildung 5.5: Mittlere Emissionsenergien (a) und Halbwertsbreiten (b) von Quantenpunkten in Abhängigkeit der Periode und der Belichtungs-dosis. Die Daten wurden durch Auswertung der Gauß-Kurven in Abbildung 5.4 gewonnen.

sind die Emissionsspektren im Vergleich zu mehrfach gestapelten Quantenpunktschichten leicht interpretierbar, da nur ein einzelner Quantenpunkt vertikal über dem Nukleationszentrum liegt. Im Rahmen künftiger Arbeiten kann die Quantenpunktperiode erhöht werden, so dass beispielsweise auch eine Integration einzelner Quantenpunkte in Mikroresonatoren möglich ist.

5.3 Optische Eigenschaften einzelner positionierter Quantenpunkte

Die Verwendung von einzelnen Quantenpunkten zur Herstellung von Bauteilen, wie Quellen verschränkter Photonen [ALP⁺06], stellt bestimmte Anforderungen an die optischen Eigenschaften der Quantenpunkte. Dazu zählen zunächst die Intensität des vom Quantenpunkt emittierten Lichtes und die spektrale Breite einzelner Emissionslinien. Für Einzelphotonenquellen ist es wünschenswert, dass die Emissionslinie des Exzitons isoliert von anderen Linien ist, damit Mehr-Photonen-Ereignisse zuverlässig spektral gefiltert werden können. Zur Realisierung einer Quelle für verschränkte Photonenpaare kann es - je nach verwendetem Resonatorsystem - wichtig sein, die energetische Aufspaltung zwischen Exziton und Biexziton zu minimieren. So können beide Emissionslinien über die spektral schmale Resonatormode ausgekoppelt werden und eine hohe Bauteileffizienz erreicht werden. Bei breitbandigen Quellen für einzelne Photonen [CBM⁺10] oder photonischen Molekülen in Form von zwei Resonatoren mit auf die Exziton- und Biexzitonenergien angepassten Resonanzen [DSB⁺10] ist dies nicht notwendig. In diesem Abschnitt soll nun die Emission einzelner positionierter Quantenpunkte untersucht werden und im Hinblick auf die Integration in Quellen für die Quantenkryptographie beurteilt werden.

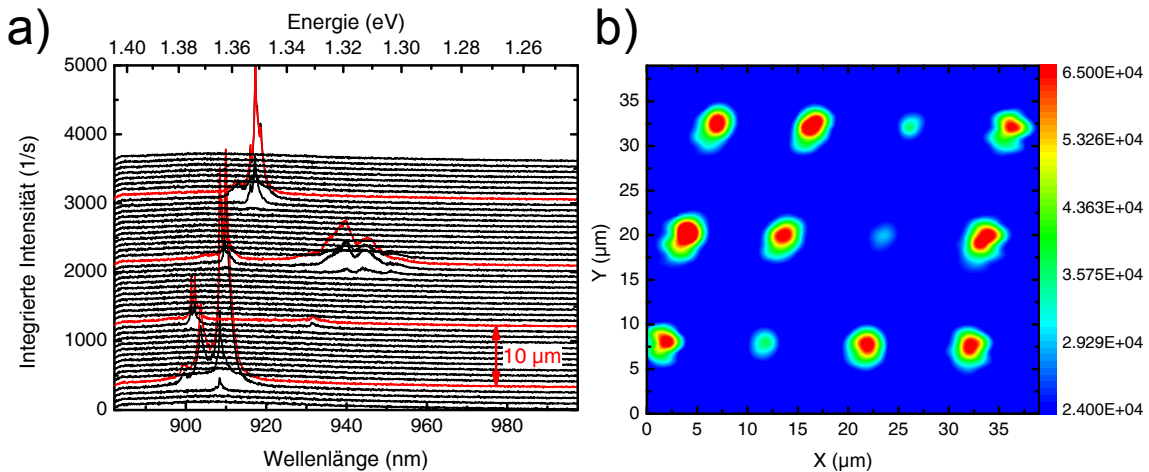


Abbildung 5.6: Räumlich aufgelöste Photolumineszenz von Quantenpunkten mit einer 10 µm Periode. a) Quantenpunktemission entlang einer Linie. Die Spektren wurden im Abstand von 1 µm aufgenommen. Das Intensitätsmaximum ist jeweils rot markiert. b) Zweidimensionale Kartierung der integrierten Intensität im Spektralbereich 883 nm bis 970 nm. Die Intensitätsskala ist logarithmisch dargestellt und am rechten Bildrand aufgeschlüsselt.

Bevor die Photolumineszenz einzelner Quantenpunkte untersucht wird, kann die Güte der Positionierung beurteilt werden, indem der räumliche Intensitätsverlauf auf der Probe gemessen wird. Abbildung 5.6 zeigt zwei gängige Verfahren zur Abbildung des räumlichen Emissionsverlaufes. In Abbildung 5.6a wurden Spektren mit 1 µm Abstand entlang einer Linie auf der Probe aufgenommen. Die Spektren sind zur übersichtlichen Darstellung vertikal versetzt aufgetragen. Die Messung fand bei etwa 12 K statt. Die Anregungsleistung wurde so angepasst, dass jeder Quantenpunkt mit mehreren Emissionslinien sichtbar ist. Es ist die Emission von vier Quantenpunkten zu sehen, deren Intensitätsmaxima jeweils 10 µm entfernt sind, was eindeutig mit der Lochperiode von 10 µm korreliert ist. Teilweise sind mehrere Linien mit einem Abstand von ca. 30 nm in einem Spektrum sichtbar. Dies könnte auf die Besetzung eines Loches mit zwei Quantenpunkten unterschiedlicher Größe zurückzuführen sein. In dieser Darstellung ist die vollständige spektrale Information enthalten.

Ein größerer Probenbereich kann mit Hilfe einer zweidimensionalen Karte untersucht werden. Abbildung 5.6b zeigt die Emission aus einem etwa 39 µm x 39 µm großen Bereich auf der Probe. Dazu wurden 1600 Spektren in einem 1 µm Raster aufgenommen. Die Intensität des aufgenommenen Spektralbereichs wurde von 883 nm bis 970 nm integriert und farblich codiert aufgetragen. In dieser Darstellung geht somit die spektrale Information verloren. Die Intensitätsskala wurde logarithmisch gewählt, um die Sichtbarkeit zu erhöhen. Es sind 12 Intensitätsmaxima zu sehen, die bei Betrachtung der einzelnen Spektren eindeutig auf die Emission aus Quantenpunkten zurückzuführen sind. Diese Quantenpunktemission ist annähernd periodisch auf einem quadratischen Gitter mit einer Periode von 10 µm angeordnet.

Durch die enorme Dauer der Messung ist ein leichter Versatz der Daten aufgrund von Instabilitäten in der Versuchsanordnung festzustellen. Trotzdem kann durch diese Messung zweifelsfrei bestätigt werden, dass die Quantenpunkte positioniert sind und zwischen den Quantenpunkten keine Emission im Bereich von 883 nm bis 970 nm stattfindet. Diese hier gezeigte Positionierung von optisch aktiven Quantenpunkten wird zur Integration in photonische Kristallresonatoren und elektrisch betriebene Einzelphotonenquellen ausgenutzt, wie in Kapitel 8 beschrieben wird.

5.3.1 Analyse des Linienspektrums einzelner positionierter Quantenpunkte

Das Emissionsspektrum eines einzelnen, idealisierten Quantenpunkts besteht aus diskreten Linien, wie in Abschnitt 2.1 erläutert wird. Zur Analyse der optischen Eigenschaften eines einzelnen Quantenpunktes wurden Messungen durchgeführt, die in Abbildung 5.7a dargestellt sind. Die Quantenpunkte wurden auf die im vorangegangenen Abschnitt beschriebene Weise hergestellt. Die Periode der Quantenpunkte beträgt 10 μm , so dass die Emissionssignale räumlich deutlich getrennt sind. Die Quantenpunkte wurden optisch mit einer Leistung von 28 μW angeregt. Es wurde ein Gitter mit 300 Strichen pro cm verwendet, das zwar keine hohe Auflösung bietet, aber einen großen Spektralbereich sichtbar macht. Bei dieser Anregungsleistung zeigt jeder Quantenpunkt mehrere Emissionslinien in einem Bereich von ca. 920 nm bis 945 nm. Die Intensität und die spektrale Breite (siehe Kapitel 6) dieser Linien ist unterschiedlich, wobei in jedem Spektrum eine Linie dominiert. Diese Linien stammen aus der Rekombination von (un-)geladenen Exzitonen und Biexzitonen [FAL⁺01, AHK03]. Zusätzlich besteht die Möglichkeit, dass mehr als ein Quantenpunkt pro Nukleationszentrum entsteht, so dass die Komplexität des Spektrums zusätzlich gesteigert wird. Die genaue Zuordnung dieser Linien kann experimentell aufwändig sein und erfolgt z. B. durch Beurteilung des Leistungsverhalten, der Polarisation der Emission oder durch Korrelationsmessungen [BMP⁺06, KTY⁺08].

In Abbildung 5.7b ist das polarisationsaufgelöste Emissionsspektrum eines einzelnen Quantenpunktes zu sehen. Dabei wurde das Signal mit einem Linearpolarisator in Winkeln von 0° (H) und 90° (V) gefiltert. Die Intensität wurde jeweils normiert, um die Vergleichbarkeit der Spektren zu erhöhen. Beide abgebildeten Spektren sind hochaufgelöst (Gitter: 1800 Striche/mm) und besitzen Emissionslinien X_1 bis X_6 , deren exakte energetische Position für manche Linien mit dem Drehwinkel variiert. Dies folgt aus der Feinstrukturaufspaltung bestimmter Linien [KBZG⁺08]. So zeigt die Rekombination des Biexzitons und des Exzitons eine energetisch gegenläufige Feinstrukturaufspaltung [KBW⁺99]. Im Spektrum könnte die Biexziton-Exziton-Kaskade also den Übergängen bei ca. 925.8 nm (X_1) und 928 nm (X_4) zugeordnet werden. Die restlichen Linien zeigen eine verschwindende Feinstrukturaufspaltung, was auf eine Rekombination aus geladenen (Bi-)Exzitonzuständen hindeutet [FSB⁺08]. Die weitere Zuordnung kann durch das Leistungsverhalten der Emis-

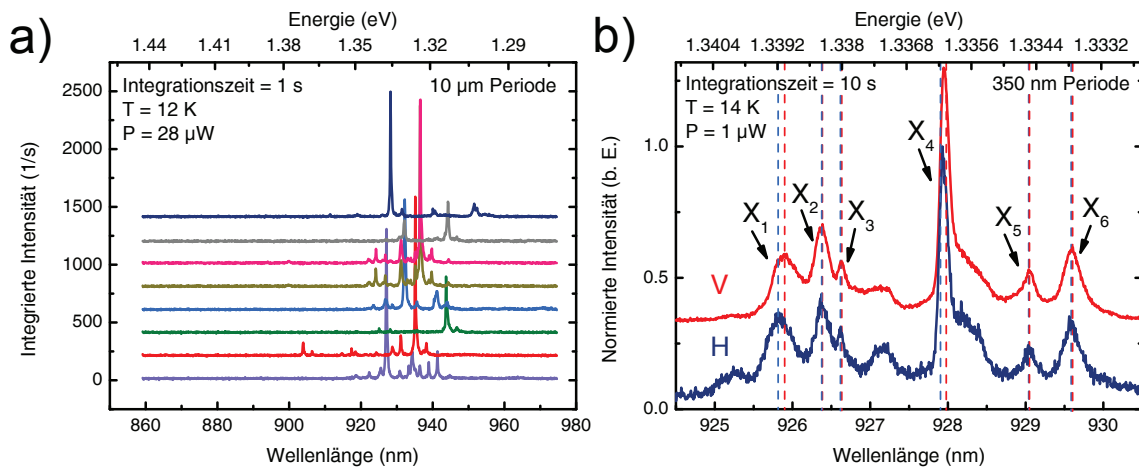


Abbildung 5.7: a) Emission einzelner Quantenpunkte auf einer Periode von 10 µm. Die Spektren stammen von acht verschiedenen Quantenpunkten und wurden zur übersichtlichen Darstellung vertikal versetzt abgebildet. b) Polarisationsaufgelöste Emission eines positionierten Quantenpunktes. Die Intensität wurde normiert und ein Spektrum zur übersichtlichen Darstellung vertikal versetzt abgebildet.

onslinien erfolgen, wie im nächsten Abschnitt gezeigt wird. Die genaue Diskussion der Feinstrukturaufspaltung findet sich in Kapitel 7.

5.3.2 Leistungsverhalten der Emissionslinien

In diesem Abschnitt soll das Leistungsverhalten der Quantenpunktemission untersucht werden. Dabei wird die Probe mit unterschiedlicher Laserintensität bestrahlt, so dass eine variable Ladungsträgerdichte in der Probe erzeugt wird. Mit steigender Anregungsleistung rekombinieren auch Ladungsträger aus höheren Zuständen, so dass im Spektrum höher- und niederenergetische Linien sichtbar werden [LMP⁺98, DGE⁺98]. Abbildung 5.8a zeigt die Emission aus positionierten Quantenpunkten (300 nm Periode) in einer 500 nm großen Mesa bei unterschiedlichen Leistungen. Bei niedriger Anregungsleistung sind zwei Emissionssignale sichtbar. Wird die Anregungsleistung erhöht, steigt die Intensität der Linien unterschiedlich stark an. Daraus kann die Schlussfolgerung gezogen werden, dass die intensive Emission von einem positionierten Quantenpunkt stammt, der nicht exakt im Zentrum der Mesa lokalisiert ist. Dadurch kann die Mesa sehr nahe am Rand noch einen weiteren Quantenpunkt beinhalten, dessen Emission aufgrund der nahen, trockengeätzten Oberfläche allerdings deutlich verbreitert und weniger intensiv ist [WBWR⁺04]. Die Emission dieses Quantenpunktes kann für Experimente durch geeignete Filter oder einen Monochromator unterdrückt werden.

An die Emissionslinien X und XX des zentralen, positionierten Quantenpunktes wurden Lorentz-Kurven angepasst und so der Intensitätsverlauf und die Entwicklung der Halbwertsbreite quantitativ untersucht. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.8b

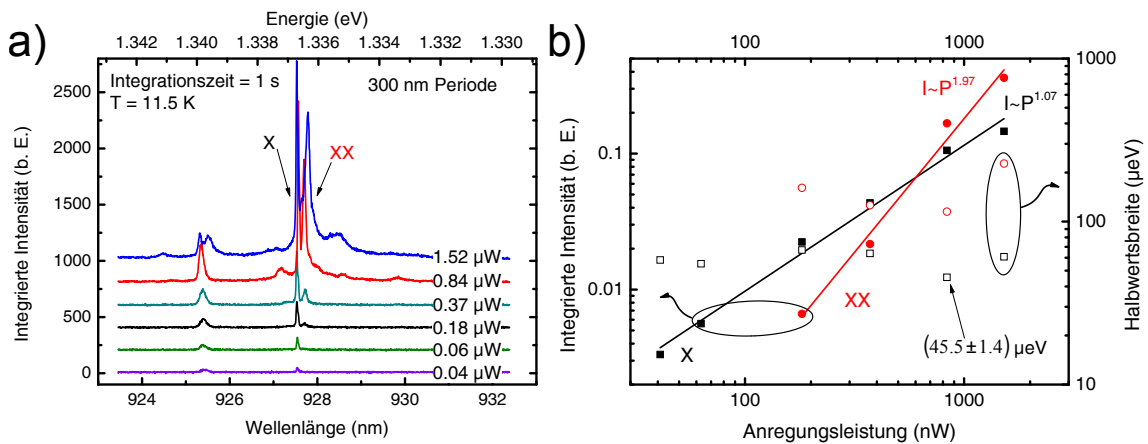


Abbildung 5.8: Photolumineszenz eines einzelnen Quantenpunktes auf einer Periode von 300 nm bei unterschiedlichen Anregungsleistungen. a) Darstellung der vertikal verschobenen Spektren. Es wurden zwei Emissionslinien mit Lorentz-Kurven angepasst und als X und XX bezeichnet. b) Doppeltlogarithmische Darstellung der Abhängigkeit der integrierten Intensität (volle Symbole, linke y-Achse) und Halbwertsbreite (offene Symbole, rechte y-Achse) von der Anregungsleistung, wobei die Werte der Anpassung der Lorentz-Kurven aus Teilbild a verwendet wurden. Die Linien zeigen Ausgleichsgeraden für den Intensitätsverlauf.

dargestellt. Die integrierte Intensität I der Linie X (schwarze, volle Quadrate; linke y-Achse) steigt gemäß $I \propto P^{1.07}$ annähernd linear mit der Anregungsleistung an. Dieses Verhalten wird in der Literatur der Rekombination eines ungeladenen Exzitons zugeordnet [FAL⁺01]. Die integrierte Intensität I der Linie XX (rote, volle Kreise; linke y-Achse) steigt gemäß $I \propto P^{1.97}$ annähernd quadratisch, was in der Literatur als Rekombination eines Biexzitons gedeutet wird [TSS⁺01]. Auch bei leichten Abweichungen vom idealisierten Verlauf sollte die Intensität des Biexzitons quadratisch zum Verlauf der Intensität des Exzitons sein [AZZ⁺05], was hier ebenfalls gut erfüllt ist. Die Linienbreite von X (schwarze, offene Quadrate; rechte y-Achse) und XX (rote, offene Kreise; rechte y-Achse) verändert sich je nach Anregungsleistung leicht, da unterschiedliche Ladungsträgerdichten in der Umgebung des Quantenpunktes vorliegen. Für diesen Quantenpunkt konnte eine minimale Linienbreite von $(45.5 \pm 1.4) \mu\text{eV}$ bei 849 nW erzielt werden. Eine noch geringere Linienbreite konnte für Mesen mit einer Kantenlänge von 800 nm erzielt werden, was in Unterabschnitt 5.3.3 und Kapitel 6 diskutiert wird.

5.3.3 Linienbreite und spektrale Diffusion

Die spektrale Linienbreite der Rekombination von Ladungsträgern in einem Quantenpunkt ist eine wichtige Kenngröße für die Verwendbarkeit in Bauelementen, da sie Rückschlüsse auf die optische Qualität des Quantenpunktes und seiner Umgebung zulässt. Es existieren unterschiedliche Mechanismen, die eine Verbreiterung

der Emissionslinie bewirken. Ein fundamentales Limit ist die Lebensdauer des Zustandes, aus dem die Rekombination stattfindet. Daraus ergibt sich die natürliche Linienbreite, die für selbstorganisierte In(Ga)As Quantenpunkte typischerweise im Bereich um $2 \mu\text{eV}$ liegt [BF02]. Weiterhin wird der Übergang von einer Wechselwirkung mit akustischen Phononen (dominant bei niedrigen Temperaturen) und optischen Phononen (dominant bei höheren Temperaturen) beeinflusst. Die Linienbreite steigt mit zunehmender Temperatur von weniger als $2 \mu\text{eV}$ bei 2 K auf mehr als 5 meV bei Raumtemperatur [BF02]. Auch die räumliche Nähe von fluktuierenden Überschussladungsträgern [TRS⁺00] führt zu einer Verbreiterung aufgrund elektrischer Felder im Quantenpunkt (spektrale Diffusion, siehe Abschnitt 6.1). Solche Überschussladungsträger können an Oberflächen, geätzten Grenzflächen oder elektronischen Potentialsenken (z. B. in der Benetzungsschicht zwischen Quantenpunkten) gebunden sein. Für positionierte Quantenpunkte muss mit Ätzverfahren ein Nukleationszentrum geschaffen werden, dass in der Nähe der Quantenpunkte liegt. Somit spielt vor allem letzterer Effekt eine entscheidende Rolle für die Verbreiterung der Emissionslinien.

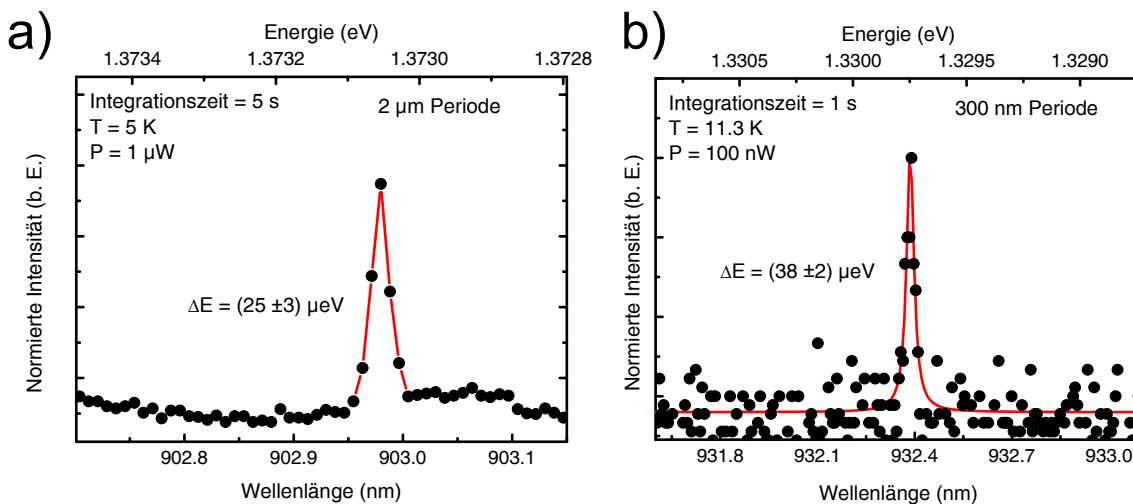


Abbildung 5.9: Photolumineszenz einzelner positionierter Quantenpunkte mit einer Periode von $2 \mu\text{m}$ (a) und 300 nm (b).

In dieser Arbeit wurde die Herstellung positionierter Quantenpunkte auf kleinen Perioden (siehe Abschnitt 4.3) und großen Perioden (siehe Abschnitt 4.2) optimiert. In Abbildung 5.9 sind zwei ausgewählte Spektren von positionierten Quantenpunkten mit einer Periode von $2 \mu\text{m}$ (a) und 300 nm (b) gezeigt. Die Anregungsleistung des Lasers mit einer Wellenlänge von 532 nm wurde so niedrig gewählt, dass nur jeweils eine Linie im Spektrum dominierte. An diese Linien wurde je eine Lorentz-Kurve angepasst und die Halbwertsbreite bestimmt. Die Quantenpunkte mit einer Periode von 300 nm zeigen einen Bestwert von $38 \mu\text{eV}$. Für eine Periode von $2 \mu\text{m}$ wurde ein Bestwert von $25 \mu\text{eV}$ erzielt, der während der Entstehung der Arbeit die bisherigen Rekordwerte von $80 \mu\text{eV}$ [SSJF⁺11] bzw. $63 \mu\text{eV}$ [FNI⁺11] deutlich unter-

bieten konnte. Außerdem ist dieser Bestwert vergleichbar mit der Linienbreite von selbstorganisierten Quantenpunkten unter ähnlichen spektroskopischen Bedingungen [BF02, BOS⁺02]. Die Optimierung der Linienbreite ist ein zentraler Bestandteil dieser Arbeit und wird deswegen in Kapitel 6 gesondert und ausführlich diskutiert.

6 Strategien zur Reduzierung der Linienbreite einzelner positionierter Quantenpunkte

Die Linienbreite der Emission positionierter Quantenpunkte ist ein wichtiges Maß für ihre optische Qualität. Sollen beispielsweise Mikrosäulenresonatoren oder photonische Kristallresonatoren hergestellt werden, die im Bereich der starken Licht-Materie-Kopplung arbeiten, so liegt die typische Vakuum-Rabi-Aufspaltung im Bereich von etwa 100 μeV [RSL⁺04, HBW⁺07, LGD⁺12]. Die höchste gemessene Aufspaltung in photonischen Kristallresonatoren beträgt 226 μeV [OON⁺11] und wird nur noch durch die Aufspaltung von 400 μeV in Mikroscheibenresonatoren übertroffen [PSM⁺05]. Damit diese Aufspaltung im Spektrum deutlich sichtbar wird, ist es notwendig, dass die Linienbreite des Quantenpunktes nicht wesentlich größer ist als die Vakuum-Rabi-Aufspaltung. Mit Hilfe von stark gekoppelten Quantenpunkt-Mikroresonatorsystemen ist beispielsweise die Realisierung von sog. “Quantenrepeatern” möglich, also Bauteilen, die zur Signalübertragung in der Quantenkryptographie dienen [LvLN⁺06, EFF⁺07, OFV09, BDCZ98, HMR08].

Auch Studien zur Feinstrukturaufspaltung (typischerweise im Bereich von 0 μeV bis 100 μeV [BOS⁺02]) können wesentlich einfacher durchgeführt werden, wenn die Linienbreite in der gleichen Größenordnung wie die Feinstrukturaufspaltung liegt. Ein dritter wesentlicher Aspekt für die Optimierung der Linienbreite ist die Tatsache, dass der Verbreiterungsmechanismus der spektralen Diffusion eine zeitliche Verschiebung der Emissionsenergie bewirkt. Soll eine Quantenpunktlinie über längere Zeit exakt in Resonanz mit der Resonatormode eines Bauteils sein, ist eine geringe spektrale Diffusion notwendig [SFV⁺02].

Die Optimierung der Linienbreite von positionierten InAs-Quantenpunkten auf (100)-GaAs-Substrat ist Gegenstand vieler Arbeiten [HHS⁺11, SHS⁺09, SSJF⁺11, AKB⁺08, HHH⁺11] und auch ein Kernpunkt dieser Arbeit. Auch in ähnlichen Systemen mit positionierten Quantenpunkten wird die Linienbreite untersucht und optimiert [KBZG⁺06, KPW⁺04, GFLG⁺11]. Ohne spezielle Behandlung der Probe zur Verbesserung der Auskoppelleffizienz der Quantenpunktemission wurden dabei Linienbreiten von etwa 100 μeV erreicht [CGD⁺11, KBZG⁺06, FGM⁺09]. In dieser Arbeit wurden umfangreiche Studien zur spektralen Diffusion und der Abhängigkeit der Linienbreite von unterschiedlichen Prozess- und Wachstumsparametern in positionierten InAs-Quantenpunkten erstellt. Die Linienbreite wurde dabei durch die

Anpassung einer Lorentz-Kurve an das Spektrum bestimmt. In manchen Fällen war die Linienform leicht asymmetrisch, so dass vor allem an der Basis der Linie einige Punkte außerhalb der Lorentz-Kurve liegen. Diese Abweichung ist entweder durch spektrale Diffusion oder durch die Verbreiterung mit akustischen Phononen begründet [BKMM01] und könnte durch sehr tiefe Temperaturen um 2 K unterdrückt werden [BF02]. Einige Linien würden sich eventuell durch Gauß- oder Voigt-Kurven exakter anpassen lassen. Da es hier aber um statistische Auswertungen geht, wurden alle Spektren mit Lorentz-Kurven angepasst. Der sich dadurch möglicherweise ergebende Fehler liegt im Bereich weniger μeV und mindert nicht die Aussagekraft der hier erzielten Ergebnisse.

6.1 Ursachen der spektralen Diffusion

In diesem Abschnitt soll ein einfaches Bild der spektralen Diffusion [RG00] gezeigt werden, da dieser Mechanismus einen großen Teil zur Verbreiterung der Linien positionierter Quantenpunkte beiträgt. Abbildung 6.1a zeigt eine vereinfachte Schemazeichnung eines positionierten Quantenpunktes (rot) in einer geätzten Mesa. Der Quantenpunkt wurde während des Wachstums mit GaAs einer Dicke c überwachsen, hat einen Abstand a zum geätzten Nanoloch und einen Abstand b zur geätzten Seitenwand der Mesa. An geätzten Grenzflächen oder Oberflächen können Kristallfehler und Rekonstruktionen entstehen, die Potentialsenken für Ladungsträger darstellen [UMT⁺01, MAG⁺04]. Je nach Art des Kristalldefektes beträgt die Dauer der Bindung des Ladungsträgers zwischen wenigen Nanosekunden [ODA⁺99, BFC⁺06] und einigen Sekunden [TRS⁺00, SWB⁺00]. In einer möglichen Benetzungsschicht (rot) kann ebenfalls ein fluktuierender Ladungsträgerhintergrund vorhanden sein [UNL99]. Die möglichen Plätze für solche Ladungsträger werden in dieser Arbeit als “Störstelle” bezeichnet. Diese Ladungsträger können über die Coulomb-Wechselwirkung die Rekombinationsenergie der Ladungsträger im Quantenpunkt beeinflussen [UMT⁺01, EB97]. In einem vereinfachten Bild (siehe Abbildung 6.1b) kann angenommen werden, dass sich die Lage der Energieniveaus im Quantenpunkt verschiebt und die Emissionsenergie des Übergangs verringert (oder vergrößert) wird. Die typische Lebensdauer eines Zustandes im Quantenpunkt liegt in der Größenordnung von Nanosekunden, die typische Integrationszeit für ein Spektrum im Bereich einer Sekunde. Somit kann die Emissionsenergie während der Dauer der Integration häufig verschoben werden, was sich in einer verbreiterten Linie im integrierten Spektrum äußert.

Bei Betrachtung dieses einfachen Bildes wird schnell klar, dass es drei grundlegende Strategien gibt, um die Auswirkungen der spektralen Diffusion auf die Emission positionierter Quantenpunkte abzumildern. Erstens sollte der Abstand zwischen einem optisch aktivem Quantenpunkt und den möglichen Störstellen vergrößert werden [WBWR⁺04]. Besonders die Abstände a und b zu den geätzten Grenzflächen sollten dabei erhöht werden (siehe Abschnitt 6.2). Die nächste Möglichkeit ist die Redu-

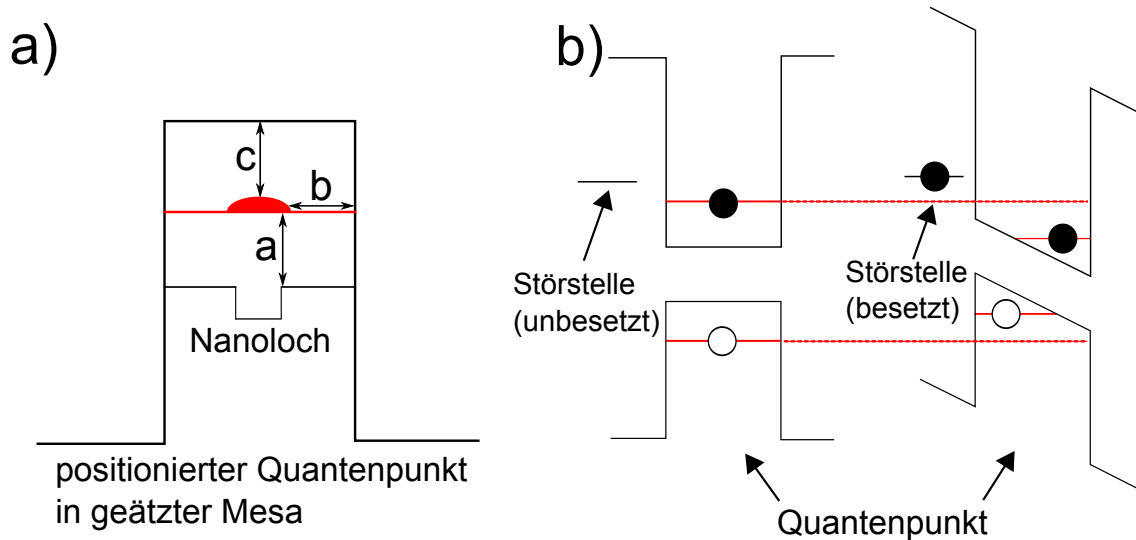


Abbildung 6.1: a) Schematische Darstellung eines positionierten Quantenpunktes in einer Mesa mit den Abständen zu Grenzflächen a , b und c . b) Schematische Darstellung des Bandkantenverlaufes eines Quantenpunktes mit einer unbesetzten bzw. besetzten Störstelle in unmittelbarer Nähe.

zierung der Störstellen, z. B. durch Optimierung des Wachstums oder des Herstellungsprozesses der Nukleationszentren (siehe Abschnitt 6.3). Die dritte Möglichkeit ist das Vorhandensein der Störstellen in Kauf zu nehmen, aber zu verhindern, dass diese mit Ladungsträgern besetzt werden. Dazu kann beispielsweise die Anregungsleistung reduziert werden [ENB96], was aber gleichzeitig eine verringerte Intensität der Quantenpunktemission bewirkt. Eine andere Möglichkeit ist die resonante Anregung von Ladungsträgern in die Energieniveaus des Quantenpunktes, wodurch eine Besetzung von energetisch höher gelegenen Störstellen unterdrückt wird (siehe Abschnitt 6.4).

6.2 Erhöhung des Abstandes zwischen geätzter Grenzfläche und Quantenpunkten

In diesem Abschnitt wird die Erhöhung des Abstandes zwischen dem Quantenpunkt und potentiellen Störstellen als Möglichkeit zur Verringerung der spektralen Diffusion diskutiert. Dazu existieren bereits Vorarbeiten von anderen Forschergruppen [SSJF⁺11, KSR⁺06, AKB⁺08]. Im Rahmen dieser Arbeit konnten die daraus gewonnenen Erkenntnisse genutzt und die Linienbreite weiter optimiert werden.

6.2.1 Stapelung der Quantenpunkte

Die Grenzfläche mit potentiellen Störstellen, die positionierten Quantenpunkten am nächsten liegt, sind die geätzten Nanolöcher, die als Nukleationszentren fungieren. Die einfachste Möglichkeit den Abstand positionierter Quantenpunkte zu dieser Grenzfläche zu erhöhen, würde in der Vergrößerung der auf die Löcher abgeschiedenen GaAs-Schicht bestehen. Für Lochtiefen von 10 nm bis 20 nm ist das allerdings nur begrenzt möglich, da die Lochform beim Überwachsen verändert wird, und somit keine exakte Positionierung einzelner Quantenpunkte mehr möglich ist. Für sehr tiefe, trocken geätzte Löcher wird in der Literatur eine Dicke der GaAs-Pufferschicht bis 55 nm berichtet, was allerdings eine erhebliche Verschlechterung der Positioniergenauigkeit und eine vergrößerte Linienbreite zur Folge hat [PGR⁺09].

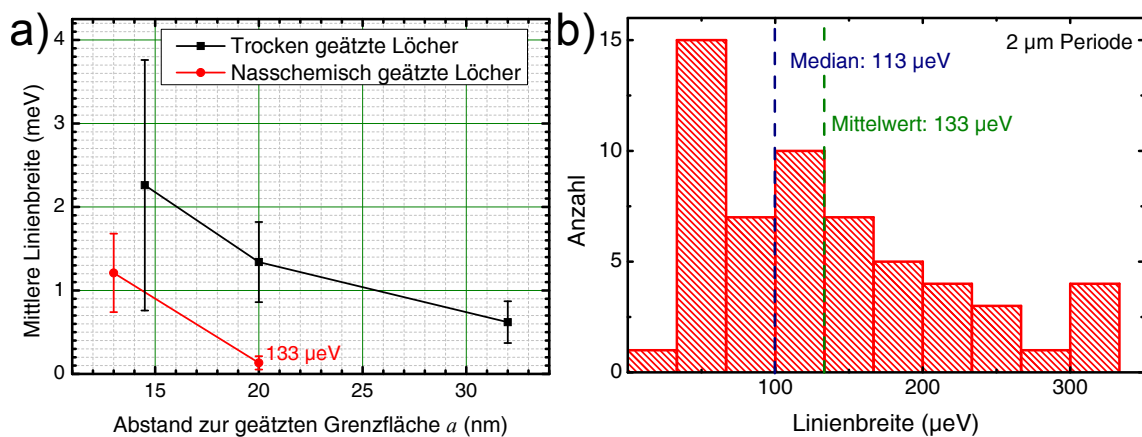


Abbildung 6.2: a) Abhängigkeit der mittleren Linienbreite der Emission positionierter Quantenpunkte vom Abstand zur geätzten Grenzfläche. Es sind Daten für trocken geätzte Löcher (schwarz) und nasschemisch geätzte Löcher (rot) dargestellt. Es sind jeweils der Mittelwert und die Standardabweichung der Linienbreite gezeigt. Die Verbindungslinien sind nur Hilfslinien für den Betrachter. (modifiziert und mit eigenen Daten ergänzt aus [SHS⁺09]) b) Statistische Verteilung der Linienbreiten von positionierten Quantenpunkten mit einer Periode von 2 µm. Der Mittelwert beträgt 133 µeV und ist in Teilbild a) eingezeichnet.

Deswegen wird in dieser Arbeit die Position der Quantenpunkte über ein Verspannungsfeld kontrolliert, das von InAs in den definierten Nanolöchern ausgeht (siehe Unterabschnitt 4.1.3). Diese Stapelung wurde in Vorarbeiten bereits für eine unterschiedliche Anzahl von Quantenpunktschichten durchgeführt (siehe Graph 6 in [SHS⁺09]). Im Rahmen dieser Arbeit wurden vor allem der Ansatz nasschemisch geätzter, mit InAs gefüllter Löcher unterhalb einer Quantenpunktschicht verfolgt. Dabei konnten im Vergleich zu [SHS⁺09] optimierte Resultate erzielt werden, die in Abbildung 6.2 gezeigt sind. Aufgetragen sind der Mittelwert und die Standardabweichung der Linienbreite von Quantenpunkten mit unterschiedlichem Abstand zur geätzten Grenzfläche der Nanolöcher. Der unterschiedliche Abstand wurde durch

Verspannungskopplung erreicht. Es sind Messwerte für unterschiedliche Herstellungsverfahren für die Nanolöcher dargestellt: Schwarze Quadrate zeigen Daten für Quantenpunkte auf trocken geätzten Löchern, die in dieser Arbeit nicht weiter untersucht wurden, da die mittlere Linienbreite im Vergleich zu nasschemisch geätzten Löchern deutlich höher ist. Rote Kreise zeigen die statistischen Ergebnisse für positionierte Quantenpunkte auf nasschemisch geätzten Löchern. Für einen Abstand von 20 nm konnte im Rahmen dieser Arbeit ein Rekordwert für die mittlere Linienbreite von 133 μeV erzielt werden. Dieser Wert ist repräsentativ und nicht durch Messungen an ausgesuchten Quantenpunkten entstanden. Die dahinterstehende Statistik wurde an allen Linien von positionierten Quantenpunkten mit einer Periode von 2 μm aufgenommen und ist in Abbildung 6.2b dargestellt. Die gezeigte Statistik ist stark asymmetrisch, da einzelne Quantenpunkte immer noch eine Linienbreite von bis zu 350 μeV besitzen, was vermutlich an einer Häufung von Kristalldefekten in der Umgebung dieser Quantenpunkte liegt. In die Berechnung der mittleren Linienbreite wurden diese Werte aber trotzdem miteinbezogen, um den repräsentativen Charakter nicht zu mindern. Für die Integration in Bauteile ist allerdings von Interesse, dass viele Linienbreiten unterhalb eines bestimmten Wertes liegen. In der gezeigten Statistik sind fast 50 % aller Linien schmäler als 100 μeV , was typischen Vakuum-Rabi-Aufspaltungen im Bereich der starken Licht-Materie-Wechselwirkung entspricht [RSL⁺04, HBW⁺07, LGD⁺12]. Diese statistischen Werte zeigen, dass die optische Qualität der Quantenpunkte im Vergleich zu früheren Arbeiten signifikant verbessert wurde [SHS⁺09].

6.2.2 Zusammenhang zwischen Linienbreite und Mesagröße

Neben potentiellen Störstellen an der geätzten Grenzfläche der Nukleationszentren, kann auch die geätzte Grenzfläche an der Seitenwand der Mesa eine Linienverbreiterung bewirken [BF02]. Der Abstand der Quantenpunkte zur Oberfläche ist mit mehr als 100 nm zwar deutlich größer als der Abstand zu den Störstellen der Nanolöcher, aber die geätzte Fläche und somit die Anzahl der Defekte ist an den Seitenwänden der Mesa größer, so dass mehr Ladungsträger dort gebunden werden können und zur spektralen Diffusion beitragen. Solche geätzten Seitenflächen in der Nähe der Quantenpunkte sind auch in Bauteilen zu erwarten. Beispielsweise werden die Löcher eines photonischen Kristalls oder die Seitenflächen eines Mikrosäulenresonators typischerweise mit Trockenätzverfahren hergestellt, so dass der Einfluss der dort gebundenen Ladungsträger von enormen Interesse ist.

In diesem Abschnitt wurde eine Probe mit positionierten Quantenpunkten mit 300 nm Periode untersucht, die sich in trocken geätzten Mesen (siehe Abbildung 4.8) mit Kantenlängen von 500 nm und 800 nm befinden. Abbildung 6.3a und b zeigen die Häufigkeit der Linienbreiten für Quantenpunkte in einer Mesa mit 500 nm bzw. 800 nm Kantenlänge. In Teilbild c wurden die ermittelten statistischen Werte zusammen mit den Daten einer planaren Probe aus Abbildung 6.2b aufgetragen. Der Mittelwert der Linienbreite für Quantenpunkte in einer 500 nm-Mesa ist mit 370 μeV

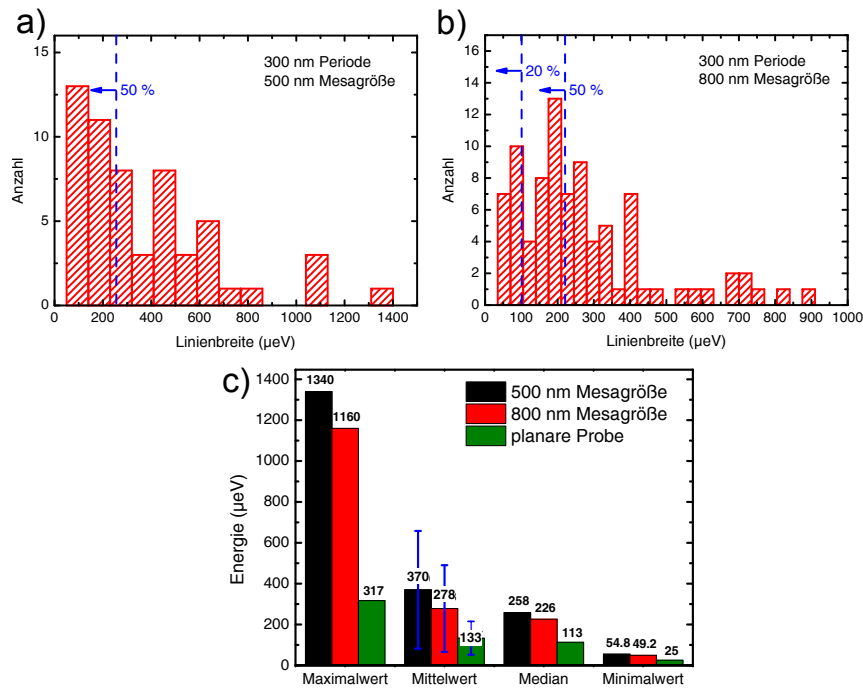


Abbildung 6.3: a) Statistische Auswertung der Linienbreite positionierter Quantenpunkte mit 300 nm Periode in einer Mesa mit 500 nm Kantenlänge. b) Statistische Auswertung der Linienbreite positionierter Quantenpunkte mit 300 nm Periode in einer Mesa mit 800 nm Kantenlänge. c) Vergleich der statistischen Kenngrößen der Linienbreiten von Quantenpunkten in Mesen mit 500 nm Kantenlänge, 800 nm Kantenlänge und einer planaren Probe ohne Mesen (Statistik siehe Abbildung 6.2b). Die blauen Balken geben die Standardabweichung der Linienbreite an.

deutlich größer als der Mittelwert der Linienbreite für Quantenpunkte in einer Mesa mit 800 nm Kantenlänge. Der Minimalwert und der Median sind mit jeweils ca. 50 μeV bzw. 250 μeV fast identisch. Das liegt unter anderem daran, dass in den Spektren der Quantenpunkte in der 500 nm-Mesa mehr Linien mit einer Breite von mehr als 1 meV zu finden sind. Diese Beobachtung lässt vermuten, dass nicht alle geätzten Seitenwände der Mesa gleich viele Defekte enthalten [TMS⁺07], so dass die Stärke der spektralen Diffusion variabel ist. Allerdings wird die Ausbeute schmalere Linien mit geringerer Mesagröße kleiner, so dass für eine Integration der Quantenpunkte in Bauelemente ein großer Abstand zu geätzten Seitenflächen wünschenswert ist.

Wie zu erwarten zeigt eine Probe ohne strukturierte Mesen in allen statistischen Kenngrößen mit Abstand die besten Werte. So konnte beispielsweise eine mittlere Linienbreite von 133 μeV erreicht werden, wobei fast 50% aller Linien schmaler als 100 μeV sind. Diese Beobachtung zeigt, dass die geätzte Seitenfläche der Mesa einen negativen Einfluss auf die Linienbreite der Quantenpunkte besitzt.

6.3 Erhöhung der Kristallqualität

In diesem Abschnitt steht die Reduzierung der Störstellen durch Erhöhung der Kristallqualität im Vordergrund. Solche Störstellen können aus Gitterfehlern, wie z. B. Versetzungen oder Fremdatomen bestehen und potentiell als Auslöser für die spektrale Diffusion dienen. In diesem Abschnitt wird geschildert, wie im Rahmen dieser Arbeit der Fertigungsprozess und das Wachstum der positionierten Quantenpunkte optimiert wurde.

6.3.1 Vergleich unterschiedlicher Herstellungsmethoden für Nukleationszentren

Für die Herstellung der Nukleationszentren werden Löcher in einem Lack durch Ätzen in das darunterliegende Halbleitermaterial übertragen. Dabei kann entweder reaktives Ionenätzen eingesetzt werden, bei dem ein teilweise ionisiertes Gemisch aus Chlor und Argon auf die Probenoberfläche beschleunigt wird. Chlor reagiert chemisch mit der Oberfläche, wohingegen Argon-Ionen einen physikalischen Ätzeffekt hervorrufen. Besonders letzteres kann die Kristallstruktur der Oberfläche schädigen und Defekte hervorrufen [BBPS77]. So gefertigte Nukleationszentren führen zu einer starken spektralen Diffusion in Quantenpunkten nahe der Störstellen [AWB+06, PGR+09, SSS+08a]. Alternativ kann ein nasschemisches Ätzverfahren mit Säuren zum Einsatz kommen, das eine geringere Anzahl an Kristalldefekten erzeugt.

In Voruntersuchungen zu dieser Arbeit wurden positionierte Quantenpunkte auf Nukleationszentren unterschiedlicher Herstellungsart untersucht [SHS+09]. Die Resultate sind in Abbildung 6.2a (ergänzt mit aktuelleren Daten) dargestellt. Dabei ist eindeutig ersichtlich, dass die Effekte der spektralen Diffusion durch den Einsatz nasschemischer Ätzverfahren abgemildert werden können. In dieser Arbeit wurden deswegen nur positionierte Quantenpunkte auf nasschemisch geätzten Nukleationszentren eingesetzt.

6.3.2 Verbesserung der Prozess- und Wachstumsreinheit

Neben Kristallfehlern können auch Fremdatome in der Nähe der Quantenpunkte deren optische Qualität beeinträchtigen. Deswegen muss es ein Ziel sein, während des mehrstufigen Herstellungsverfahrens möglichst wenige Verunreinigungen in die Probe einzubringen [HGF+11]. Während des nasschemischen Ätzens können sich auf der Oberfläche Verunreinigungen festsetzen [MSKC89], die in den zum Ätzen verwendeten Chemikalien vom Hersteller zur Stabilisierung eingesetzt werden. Ein Beispiel ist medizinisch reines Wasserstoffperoxid 30 %, dem typischerweise Dinatriumpyrophosphat (0.015 %), Ammoniumnitrat (0.006 %) und Phosphorsäure

(0.01 %) beigesetzt wird [Mer98]. Weiterhin kann Schwefel aus der zur Reinigung verwendeten Schwefelsäure eine stabile Verbindung mit Gallium an der der GaAs-Oberfläche eingehen [OS90, Ohn91].

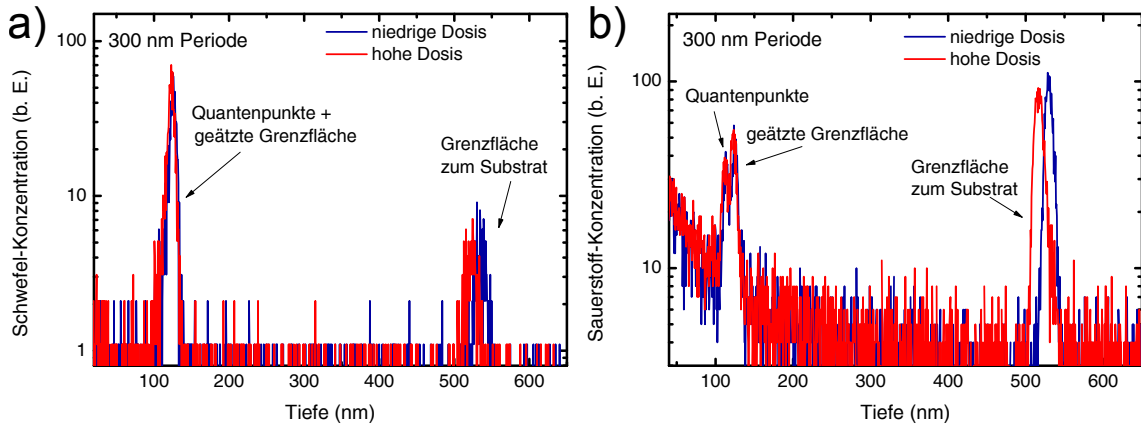


Abbildung 6.4: Vertikaler Verlauf der Schwefel-Konzentration (a) und Sauerstoff-Konzentration (b) einer Probe mit positionierten Quantenpunkten. Die Daten wurden durch Sekundärionen-Massenspektroskopie gewonnen.

Die Schwefelkonzentration lässt sich mit Sekundärionen-Massenspektroskopie (SIMS) [DRD98] nachweisen, wie in Abbildung 6.4a gezeigt wird. Dargestellt ist der vertikale Verlauf der Schwefelkonzentration für unterschiedliche Probenbereiche. Die Oberfläche wäre bei 0 nm zu finden, die geätzten Nanolöcher in einer Tiefe von 120 nm und der Übergang zum Substrat in einer Tiefe von 520 nm. An diesen drei Grenzflächen liegt eine Schwefelkonzentration vor, die sich deutlich vom Rauschniveau abhebt [Ueb70]. Der Schwefel an der geätzten Grenzfläche zeigt, dass trotz der in Abschnitt 3.1 geschilderten chemischen Reinigung, dem thermischen Ausgasen und der Wasserstoff-Oxidentfernung ein gewisser Rest an Verunreinigungen auf der Probe verbleibt. Es finden sich auch noch Spuren von Sauerstoff in der Nähe der geätzten Grenzfläche, wie die SIMS-Messung in Abbildung 6.4b zeigt. Dies ist ebenfalls ein Hinweis darauf, dass die chemische Reinigung und die Oxidentfernung nicht in der Lage sind, das Oberflächenoxid perfekt zu entfernen [LSS79, HWH⁺99]. In den Messungen konnte kein signifikanter Unterschied zwischen Probenbereichen mit unterschiedlicher Belichtungs-dosis oder Lochanzahl beobachtet werden. Auch unbelichtete Bereiche zeigten Sauerstoff und Schwefel, was ebenfalls auf eine großflächige Verunreinigung der Probenoberfläche durch Chemikalien während der Strukturierung hindeutet. Um diesen Effekt zu minimieren, wurde die Zeit, in der die chemisch gereinigten Substrate Sauerstoff ausgesetzt sind, auf weniger als 15 Minuten begrenzt. Dadurch findet sich an der Oberfläche nur eine 0.6 nm bis 3 nm dünne Oxidschicht [VLG83, MC85], die leichter durch eine Wasserstoffreinigung entfernt werden kann.

6.4 Reduzierung der Linienbreite durch spektroskopische Verfahren

Lassen sich Störstellen in der Nähe der Quantenpunkte nicht gänzlich durch optimierte Fertigungsprozesse vermeiden, kann die Anzahl der daran gebundenen Ladungsträger trotzdem durch spektroskopische Verfahren verringert werden. Dabei ist das Ziel, in der Umgebung der positionierten Quantenpunkte nur sehr wenige Ladungsträger zu generieren. Außerdem könnte die Möglichkeit bestehen, dass ein bestimmter Teil des Quantenpunktensembles insensitiver auf spektrale Diffusion ist, so dass man geeignete Quantenpunkte mit spektroskopischen Filtern (z. B. Bandpassfiltern) selektieren kann. Der Zusammenhang zwischen der energetischen Lage der Quantenpunktemission und der Linienbreite wird deswegen hier ebenfalls untersucht.

6.4.1 Variation der Anregungsleistung

Bei der Generierung von Ladungsträgern mit einem Nd:YAG-Laser werden Ladungsträger in der GaAs-Matrix erzeugt. Diese Ladungsträger relaxieren mehrstufig auf die niedrigsten Energieniveaus in ihrer Nähe [UZEM03]. Dies kann entweder der Grundzustand eines Quantenpunktes sein oder Störstellen in dessen Umgebung [SGS96, Rid00]. Mit steigender Anregungsleistung werden mehr Ladungsträger pro Zeitintervall generiert und die Zustände im Quantenpunkt werden aufgefüllt. Damit erhöht sich die Wahrscheinlichkeit, dass freie Ladungsträger auch in umliegenden Störstellen auf einer kurzen Zeitskala gebunden werden [SWT⁺02].

Der experimentelle Zusammenhang wird in Abbildung 6.5 veranschaulicht. Teilbild a zeigt ein repräsentatives Spektrum eines positionierten Quantenpunktes mit schmaler Linienbreite unter verschiedenen Anregungsleistungen. Der Quantenpunkt wurde auf einer Periode von 300 nm und in einer Mesa mit einer Kantenlänge von 800 nm positioniert. Die Anregungsleistung wurde schrittweise von 76 nW bis 2.75 μ W erhöht. Bei niedriger Anregungsleistung ist im hoch aufgelösten Spektrum nur eine Emissionslinie X_1 sichtbar, die durch eine Lorentz-Kurve angepasst werden kann. Die integrierte Intensität unter der Lorentz-Kurve wächst annähernd linear mit der Anregungsleistung und sättigt bei sehr hohen Leistungen [BAB⁺94].

Bei einer Leistung von knapp über 1 μ W taucht etwa 0.3 nm rotverschoben eine weitere Emissionslinie X_2 auf, die ebenfalls durch eine Lorentz-Kurve angenähert werden kann [DGE⁺98]. Deren integrierte Intensität I wächst bei steigender Anregungsleistung P nach $I \propto P^x$ mit einem Exponenten x von etwa 1.3 bis 1.7 an. Das Leistungsverhalten der Linienintensität legt nahe, dass es sich bei X_1 um ein Exziton handelt. Die Linie X_2 könnte ein Biexziton sein, das eine Abweichung vom idealen Exponenten 2 zeigt, was in der Literatur durchaus bekannt ist [MMAMP⁺08]. Eine alternative Erklärung wird weiter unten im Text geboten.

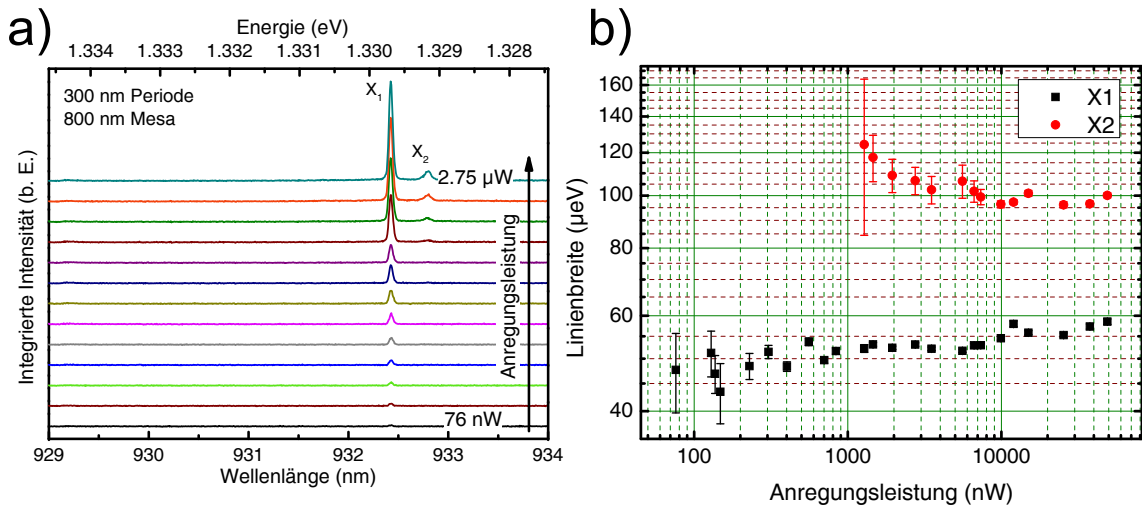


Abbildung 6.5: Untersuchung der Abhängigkeit der Linienbreite eines einzelnen, positionierten Quantenpunktes von der Anregungsleistung. a) Darstellung der Spektren bei Anregungsleistungen zwischen 76 nW und 2.75 μ W. b) Doppeltlogarithmische Darstellung der Linienbreite der Linien X_1 und X_2 . Die Linienbreite wurde durch Anpassung einer Lorentz-Kurve gewonnen.

Das Verhalten der Breite der Emissionslinien mit steigender Anregungsleistung ist in Abbildung 6.5b gezeigt. Die Linie X_1 verbreitert sich von etwa 45 μ eV um ein Drittel auf 60 μ eV. Dieses Verhalten lässt sich durch mehr Ladungsträger in der Umgebung des Quantenpunktes erklären, die eine verstärkte spektrale Diffusion bewirken [TRS⁺00, MAG⁺03]. Eine Verringerung der Anregungsleistung hat also im Allgemeinen eine schmalere Linienbreite zur Folge. Dieses Verhalten kann allerdings nicht beliebig extrapoliert werden, da die Intensität mit der Anregungsleistung absinkt und das Signal-Rausch-Verhältnis abnimmt, wie in Abbildung 6.5 zu sehen ist. Damit steigt auch die Unsicherheit in der Linienbreitenbestimmung, was die größeren Fehlerbalken für kleine Leistungen erklärt.

Die Linie X_2 hingegen zeigt ein unerwartetes Verhalten. Die Linienbreite sinkt mit steigender Leistung von ca. 120 μ eV auf etwa 95 μ eV ab und bleibt dann annähernd konstant. Dieses Verhalten konnte im Rahmen der Arbeit nicht vollständig geklärt werden. Möglich wäre, dass X_2 aus zwei Einzellinien besteht (z. B. aus Biexziton und geladenem Exziton), die energetisch sehr nahe zusammen liegen. Wenn nun die Intensität des Biexzitons schneller mit der Anregungsleistung steigt als die des geladenen Zustands und das Biexziton zudem eine schmalere Linienbreite besitzt, würde sich das genau in dem beobachteten Verlauf widerspiegeln. Dafür spricht auch die Abweichung des Intensitätsanstiegs vom erwarteten quadratischen Anstieg. Eine theoretische Beschreibung eines solchen Falles findet sich in [UMT⁺01]. Eine alternative Erklärung bietet ein Ansatz über die Wechselwirkung des Übergangs mit Phononen, wie beispielsweise in [GSS⁺96b] erläutert wird.

6.4.2 Quasi-resonante Anregung

Eine Möglichkeit, die Anzahl der freien Ladungsträger in der Probe zu reduzieren ist, direkt in einen Zustand des Quantenpunktes Ladungsträger zu generieren [GSK95]. Dabei unterscheidet man zwischen strikt resonanter Anregung in den Grundzustand des Quantenpunktes und quasi-resonanter Anregung in einen höheren Zustand [AGB⁺98, PMV⁺00]. Da bei strikt resonanter Anregung die Trennung zwischen Anregungs- und Emissionssignal schwierig ist [HVL⁺97], wird in dieser Arbeit der Ansatz der quasi-resonanten Anregung untersucht. Dabei wird ein abstimmbarer Titan-Saphir-Laser verwendet, dessen Linienbreite je nach Wellenlänge und Ausgangsleistung ca. 0.5 nm beträgt. Der mögliche Abstimmbereich der Laserwellenlänge liegt zwischen 840 nm und 1000 nm.

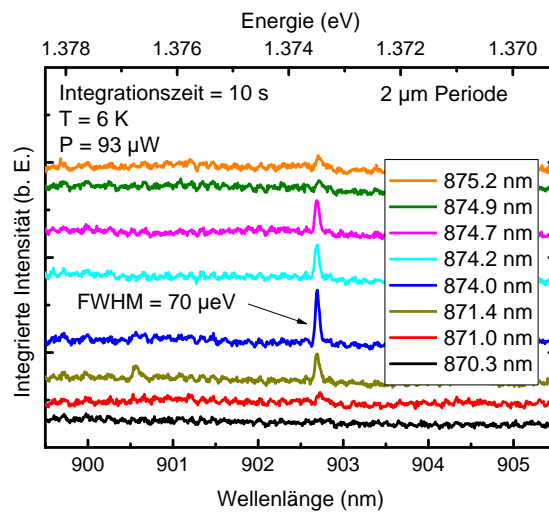


Abbildung 6.6: Emission eines positionierten Quantenpunktes unter quasi-resonanter Anregung.

Die Laserwellenlänge wurde kontinuierlich variiert und dabei die Photolumineszenz eines positionierten Quantenpunktes detektiert. Abbildung 6.6 zeigt die Emission des Quantenpunktes bei Laserwellenlängen von 870.3 nm bis 875.2 nm. Nur in diesem Anregungswellenlängenbereich (unterhalb der GaAs-Bandkante) ist eine Emission aus dem Quantenpunkt zu beobachten. Die Breite der Emissionslinie unter quasi-resonanter Anregung beträgt etwa 70 μeV . Die Statistik der Linienbreiten für Anregung oberhalb der GaAs-Bandkante ist in Abbildung 6.2b gezeigt. Folglich ist die quasi-resonante Linienbreite nicht geringer als typische Linienbreiten bei einer Anregungswellenlänge von 532 nm. Weiterhin konnte nur in wenigen Ausnahmefällen überhaupt Emission unter quasi-resonanter Anregung beobachtet werden. Eine mögliche Erklärung für dieses Phänomen ist die geringe Effizienz, mit der die höheren Zustände gepumpt werden können. So ist in der hier gezeigten Messung eine fast 100fach höhere Anregungsleistung im Vergleich zu nicht-resonanter Anregung nötig.

Dies kann wiederum eine lokale Aufheizung der Probe bewirken [BAW⁺92, RUK⁺07] und die Linie so thermisch verbreitern [BF02].

Folglich konnte durch quasi-resonante Anregung keine Verbesserung der Linienbreite positionierter Quantenpunkte beobachtet werden. Es ist allerdings nicht auszuschließen, dass durch Veränderung des Bandverlauf im Quantenpunkt ein effizient pumpbarer, höherer Zustand und somit eine Reduzierung der Linienbreite ermöglicht werden kann. Weiterhin könnte künftig ein solcher Quantenpunkt in einer Kavität platziert werden und so der Anteil der detektierten spontanen Emission erhöht werden, wodurch eine niedrigere Anregungsleistung möglich wäre.

6.4.3 Zusammenhang zwischen Emissionsenergie und Linienbreite

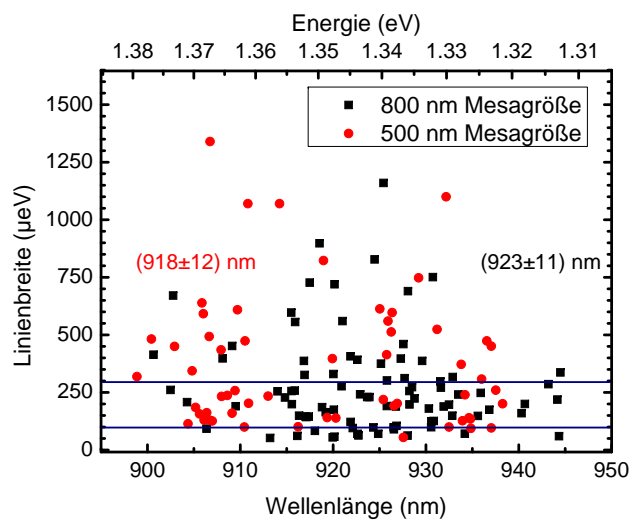


Abbildung 6.7: Häufigkeit der Linienbreiten von einzelnen positionierten Quantenpunkten pro Wellenlänge für unterschiedliche Mesa-Kantenlängen (schwarz: 800 nm, rot: 500 nm). Die Linienbreiten wurden aus der Anpassung von Lorentz-Kurven an die gemessenen Quantenpunkt-Spektren gewonnen.

In diesem Abschnitt wird untersucht, ob ein Zusammenhang zwischen der Linienbreite der Emission der Quantenpunkte und deren energetischen Lage vorliegt. Dazu wurde die Emissionsenergie jeder Quantenpunktlinie bestimmt und zusammen mit der Linienbreite in Abbildung 6.7 dargestellt. Es wurden Quantenpunkte in Mesen mit einer Kantenlänge von 500 nm und 800 nm untersucht. Die Emissionslinien verteilen sich in einem Wellenlängenbereich von 900 nm bis 945 nm. Schmale Linien ($<100 \mu\text{eV}$, untere blaue Linie) sind dabei im Wellenlängenbereich von 905 nm bis 945 nm zu finden. Insgesamt nimmt die Häufigkeit sehr breiter Linien ($>300 \mu\text{eV}$, obere blaue Linie) mit der Emissionswellenlänge etwas ab. Für eine Bauteilintegration ist es also von Vorteil, die Resonanz der Bauteile auf den längerwelligen Bereich

der Ensembleemission abzustimmen, was mit Ergebnissen für CdSe-Quantenpunkte in der Literatur übereinstimmt [MSS⁺94].

Der Mittelwert der Wellenlänge liegt bei 918 nm für Mesen mit einer Kantenlänge von 500 nm und bei 923 nm für Mesen mit einer Kantenlänge von 800 nm. Da die Quantenpunkte identisch hergestellt wurden, ist dieser Unterschied auf die natürliche Schwankung der Emissionswellenlänge zurückzuführen. Die Standardabweichung ist mit 12 nm für die kleineren Mesen etwas größer (11 nm für eine Kantenlänge von 800 nm). Dazu trägt wahrscheinlich die verstärkte spektrale Diffusion in den 500 nm-Mesen bei (siehe Unterabschnitt 6.2.2).

7 Reduzierung der Feinstrukturaufspaltung von In(Ga)As-Quantenpunkten

Wie bereits in Abschnitt 2.1 beschrieben, kann der Exziton-Zustand in einem Quantenpunkt eine energetische Feinstrukturaufspaltung besitzen (siehe Abbildung 2.2). Dies äußert sich in einer Aufspaltung der Exziton- und Biexzitonlinie im Emissionsspektrum des Quantenpunktes. Diese Feinstrukturaufspaltung ist für den Einsatz von Quantenpunkten als Quellen verschränkter Photonen hinderlich, da für einen signifikanten Verschränkungsgrad die Feinstrukturaufspaltung kleiner als die homogene Linienbreite des (Bi-)Exzitons sein muss [YSA⁺06, YSS⁺05]. Aus diesem Grund wurde im Rahmen dieser Arbeit die Feinstrukturaufspaltung von positionierten Quantenpunkten untersucht und Ansätze entwickelt, diese zu reduzieren. In der Literatur wird gezeigt, dass eine kleine Feinstrukturaufspaltung mit lateralen elektrischen Feldern [GSD⁺07], Ausheilverfahren [LBW⁺04, ESY⁺07], Verspannung [PKD⁺11] oder Magnetfeldern [SYS⁺06] auf einen Wert nahe Null reduziert werden kann. Da die Feinstrukturaufspaltung von Quantenpunkten statistischen Fluktuationen unterworfen ist, können in einem Ensemble von Quantenpunkten auch verschwindende Aufspaltungen beobachtet werden [HUM⁺07, YSA⁺06]. Alle diese Verfahren benötigen zusätzliche Prozessschritte, angelegte Felder oder bieten nur eine geringe Ausbeute, was nicht mit einer skalierbaren Integration in Bauteile vereinbar ist. In diesem Abschnitt sollen deshalb Konzepte dargestellt werden, bei denen die Feinstrukturaufspaltung möglichst vieler Quantenpunkten schon direkt nach der Herstellung der Quantenpunkte gering ist.

7.1 Feinstrukturaufspaltung der Emission von Quantenpunkten auf (100)-orientiertem GaAs

Selbstorganisierte In(Ga)As-Quantenpunkte auf (100) GaAs besitzen typischerweise eine Feinstrukturaufspaltung zwischen 0 μeV [YSS⁺05] und 100 μeV [BOS⁺02]. Für positionierte In(Ga)As-Quantenpunkte wurden in der Literatur Werte zwischen 20 μeV und 60 μeV [HHS⁺11, SSJF⁺11] nachgewiesen. Die beiden durch die Feinstruktur aufgespaltenen Emissionslinien des Exzitons bzw. Biexzitons sind unter-

schiedlich linear polarisiert (siehe Abbildung 2.2). Daher kann durch eine polarisationsaufgelöste Messung die Lage der energetischen Niveaus bestimmt werden.

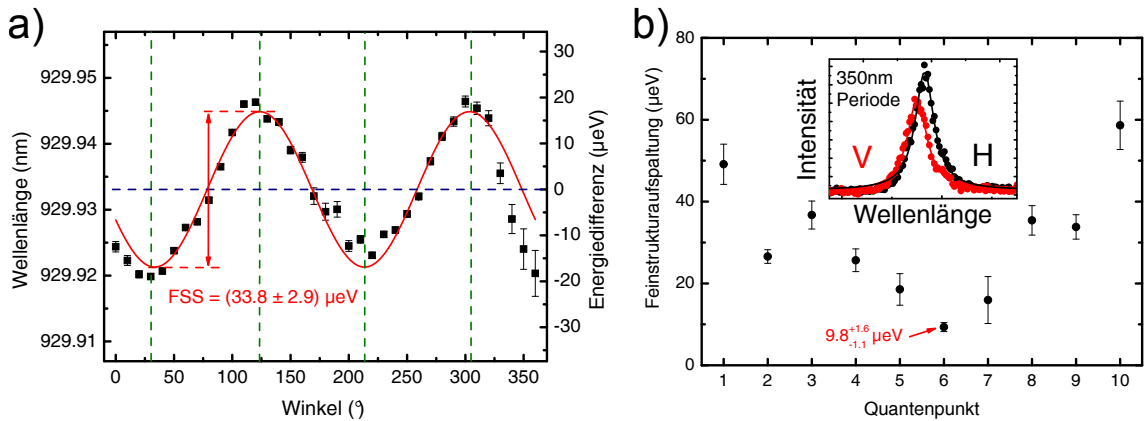


Abbildung 7.1: Feinstrukturaufspaltung des Exziton-Übergangs in einem positionierten InAs-Quantenpunkt auf (100)-GaAs. a) Wellenlänge des Exzitons bei unterschiedlichen Drehwinkeln eines Linearpolarisators mit sinusförmiger Anpassung. b) Statistische Auswertung der Feinstrukturaufspaltung von 10 positionierten Quantenpunkten. Das eingebettete Teilbild zeigt exemplarisch die beiden vertikal (V) und horizontal (H) polarisierten Emissionslinien.

In Abbildung 7.1a ist das Ergebnis einer polarisationsaufgelösten Messung an der Exziton-Linie eines repräsentativen positionierten Quantenpunkts mit 350 nm Periode dargestellt. Zur Messung wurde ein Linearpolarisator in 10°-Schritten von 0° bis 360° gedreht und an jedes gemessene Spektrum eine Lorentz-Kurve angepasst. Die mittlere Emissionswellenlänge ist gegen den Drehwinkel aufgetragen, wobei die Fehlerbalken nur den Fehler durch die Anpassung der Lorentz-Kurven berücksichtigen. Eine geringe lineare Verschiebung der Messpunkte wurde ausgeglichen. Diese Verschiebung war vermutlich thermisch begründet, da die Messung über einen längeren Zeitraum aufgenommen wurde und die Proben temperatur nur auf etwa 1 K stabil war. Die Messwerte lassen sich durch eine Sinuskurve anpassen. Die Feinstrukturaufspaltung wird durch die Differenz der beiden Extremwerte bestimmt und beträgt $(33.8 \pm 2.9) \mu\text{eV}$.

Diese Messung wurde für insgesamt 10 positionierte Quantenpunkte durchgeführt (siehe Abbildung 7.1b) und Aufspaltungen zwischen ca. 10 μeV und 60 μeV festgestellt, was gut mit den in der Literatur beobachteten Werten für positionierte Quantenpunkte übereinstimmt [SSJF⁺11]. Der minimale Wert $9.8_{-1.1}^{+1.6} \mu\text{eV}$ stellt zum Zeitpunkt der Arbeiten den kleinsten berichteten Wert für die Feinstrukturaufspaltung eines positionierten In(Ga)As-Quantenpunktes auf (100)-GaAs dar. Allerdings ist diese Aufspaltung zu groß, um auf eine effiziente Weise polarisationsverschränkte Photonen aus der Biexziton-Exziton-Kaskade eines positionierten Quantenpunkts zu erhalten. In künftigen Arbeiten könnte diese Aufspaltung durch Ausheilverfahren oder elektrische bzw. magnetische Felder reduziert werden

[GSD⁺07, LBW⁺04, SYS⁺06]. Zur Generation verschränkter Photonenpaare ist zudem noch eine spezielle Messtechnik möglich [TT08, ALP⁺06]. Im Folgenden sollen noch weitere Wachstumskonzepte untersucht werden, die eine kleine Feinstrukturaufspaltung versprechen, wie z. B. Quantenpunkte in invertierten Pyramiden in (111)-GaAs [MFG⁺10].

7.2 Quantenpunktemission von invertierten Pyramiden auf (111)B-orientiertem GaAs

Berechnungen der Elektronen- und Lochaufenthaltswahrscheinlichkeiten in (111)B-orientierten InAs-Quantenpunkten haben gezeigt, dass aufgrund der Symmetrie der Wellenfunktion eine verschwindende Feinstrukturaufspaltung zu erwarten ist [SB09]. Dieses Verhalten wird in der Literatur bei positionierten InAs-Quantenpunkten in invertierten Pyramiden in (111)B-GaAs ausgenutzt [KPW⁺04, WPD⁺04], um polarisationsverschränkte Photonen zu erzeugen [MFG⁺10]. Andere Veröffentlichungen zeigen bereits schmale Emissionslinien [MDYP09], eine geringe Ensembleverbreiterung [BWP04, MGF⁺10] und eine erfolgreiche Integration in einen photonischen Kristall [GFD⁺08]. Dabei werden mit Elektronenstrahlolithographie und nasschemischen Ätzverfahren pyramidenförmige Löcher in (111)B-GaAs hergestellt. Diese Quantenpunkte werden mittels metallorganischer chemischer Gasphasenabscheidung (MOCVD, vom engl. *metal organic chemical vapor deposition*) hergestellt. Da dieses Verfahren mit Trägergasen bei hohen Wachstumsdrücken (z. B. 20 mbar bis 100 mbar in [HMK⁺97, ONIA94, TNA01]) arbeitet, ist die Anzahl der Fremdatome im Restgas der Kammer im Vergleich mit Wachstum durch MBE-Verfahren höher. Dadurch steigt die Wahrscheinlichkeit, dass Verunreinigungen in den Kristall eingebaut werden. Um dieses Problem zu umgehen, wurde im Rahmen dieser Arbeit das Wachstum von Quantenpunkten in invertierten Pyramiden in (111)B-GaAs mittels MBE untersucht.

Die Herstellung der invertierten Pyramiden startet mit einem Standard-Elektronenstrahlolithographie-Schritt, bei dem Löcher mit einem Durchmesser zwischen 50 nm und 2 μm in einer Aluminiummaske auf der Probenoberfläche hergestellt werden. Mit einem Gemisch von 1:8:50 $\text{NH}_4\text{OH}:\text{H}_2\text{O}_2:\text{H}_2\text{O}$ können nun unterhalb dieser Löcher invertierte Pyramiden hergestellt werden, da bevorzugt (111)A-Flächen geätzt werden. Je nach Ätzdauer und Durchmesser bilden sich vollständige, invertierte Pyramiden oder abgeschnittene Pyramidenrümpfe. Abbildung 7.2a zeigt eine REM-Aufnahme einer durch Ätzen entstandenen invertierten Pyramide in (111)B-GaAs. Die Kantenlänge der Pyramide beträgt 2.73 μm , die Tiefe etwa 1.76 μm . Die Seitenflächen der Pyramide sind (111)A-orientiert. Vor dem Wachstum wird die Probe chemisch gereinigt und eine Oxidentfernung mit einem Wasserstoffplasma durchgeführt, das identisch zur Reinigung bei positionierten Quantenpunkten auf (100)-GaAs ist. Das Wachstum startet bei einer Substrattemperatur von 600 $^\circ\text{C}$ [WSWW92] mit einer 30 nm dicken AlGaAs-Schicht, die die beste Glättung

der Oberfläche zeigte [STN93, BGLK02]. Generell sind die Wachstumsparameter bei Epitaxie auf (111)-Substraten wesentlich kritischer im Vergleich zum Wachstum auf (100)-GaAs [SFJ94]. Auf die Pufferschicht wird 10 nm InGaAs abgeschieden. Alle Schichtdicken werden hier mit einem nominellen Schichtdickenäquivalent angegeben, das planarem Wachstum auf (100)-GaAs entsprechen würde, da die realen Wachstumsraten von der Kristallorientierung abhängen [KTH87]. Das Resultat ist in Abbildung 7.2b zu sehen: InGaAs lagert sich bevorzugt in den Kanten der Pyramide an, wo eine (100)-Fläche zur Verfügung steht. Die Spitze hingegen zeigt eine Materialverarmung, so dass kein Quantenpunkt in der Pyramide entsteht. Dieses Verhalten unterscheidet sich vom Wachstum mittels MOCVD, bei dem ein selbst-limitierendes Wachstum in der Spitze stattfindet [PDR⁺11]. Dieses Verhalten ließ sich trotz umfangreicher Variation von Probertemperatur, Pyramidengröße, III-V-Flussverhältnis, Wachstumsrate und des Verkippungswinkels der Probe während des Wachstums nicht ändern. Im Rahmen der Arbeit war es also nicht möglich InGaAs-Quantenpunkte in invertierten Pyramiden in (111)B-GaAs mittels MBE herzustellen. Dieser Effekt scheint MBE-spezifisch zu sein, da dort mit Molekularstrahlen und nicht mit Hilfe von Trägergasen gearbeitet wird [PDR⁺11].

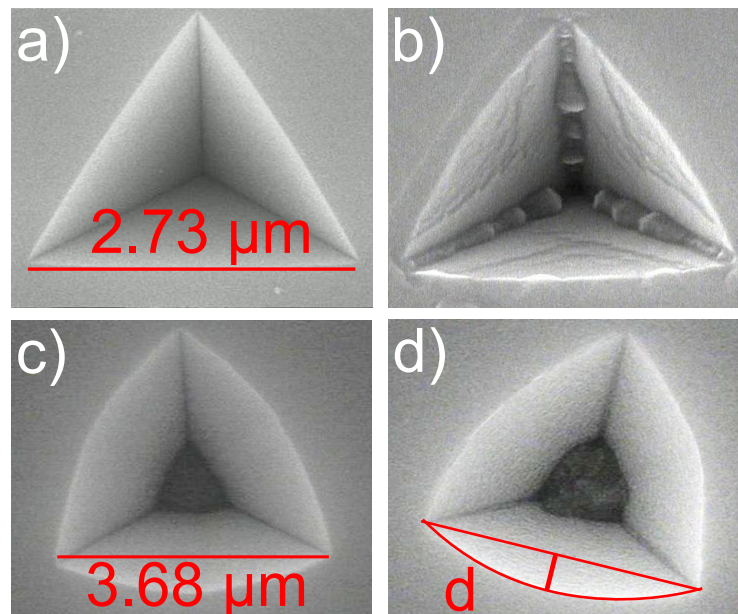


Abbildung 7.2: Exemplarische REM-Aufnahmen von invertierten Pyramiden und Pyramidenrümpfen. a) Geätzte invertierte Pyramide in (111)B-GaAs. b) Mit AlGaAs-Pufferschicht und In(Ga)As überwachsene invertierte Pyramide. c) Geätzter Pyramidenrumpf mit AlGaAs-Pufferschicht d) Überwachsender Pyramidenrumpf mit In(Ga)As-Ansammlung.

Deswegen wurde der Ansatz leicht geändert und statt vollständige Pyramiden zu ätzen, wurden nur Pyramidenrümpfe geätzt, die ein Plateau am tiefsten Punkt enthalten (siehe Abbildung 7.2c). Diese Fläche ist (111)B-orientiert und besitzt einen

variablen Durchmesser, je nach Ätzdauer und Größe des Loches in der Aluminiummaske. Der abgebildete Pyramidenrumpf wurde mit einer AlGaAs-Pufferschicht überwachsen. Die Kantenlänge beträgt etwa $3.68\ \mu\text{m}$, die Tiefe ca. $1.73\ \mu\text{m}$. Am Übergang der Seitenflächen der Pyramide zur Oberfläche des Substrats ist eine Wölbung zu erkennen, die zeigt, dass der Ätzprozess vorzeitig gestoppt wurde, bevor sich aus dem ursprünglich kreisförmigen Loch eine Pyramide mit annähernd perfekter triangulärer Basisfläche ausgebildet hat. Die Abweichung des gezeigten Pyramidenrumpfes von einer Pyramide mit geraden Kanten beträgt $d = 440\ \text{nm}$. Diese invertierten Pyramidenrumpfe werden bei einer Substrattemperatur von $580\ \text{°C}$ mit $30\ \text{nm}$ AlGaAs Pufferschicht überwachsen. Darauf wird bei einer Substrattemperatur von $540\ \text{°C}$ ein Schichtdickenäquivalent von $10\ \text{nm}$ InGaAs abgeschieden. Abbildung 7.2d zeigt das Wachstumsergebnis: Auf dem Rumpf der Pyramide hat sich eine Materialanhäufung aus InGaAs gebildet, deren Kristallsymmetrie eine verschwindende Feinstrukturaufspaltung bewirken sollte [KDO⁺10]. Für die Untersuchung der optischen Eigenschaften der so hergestellten Quantenpunkte wird eine Deckschicht aus $100\ \text{nm}$ AlGaAs abgeschieden.

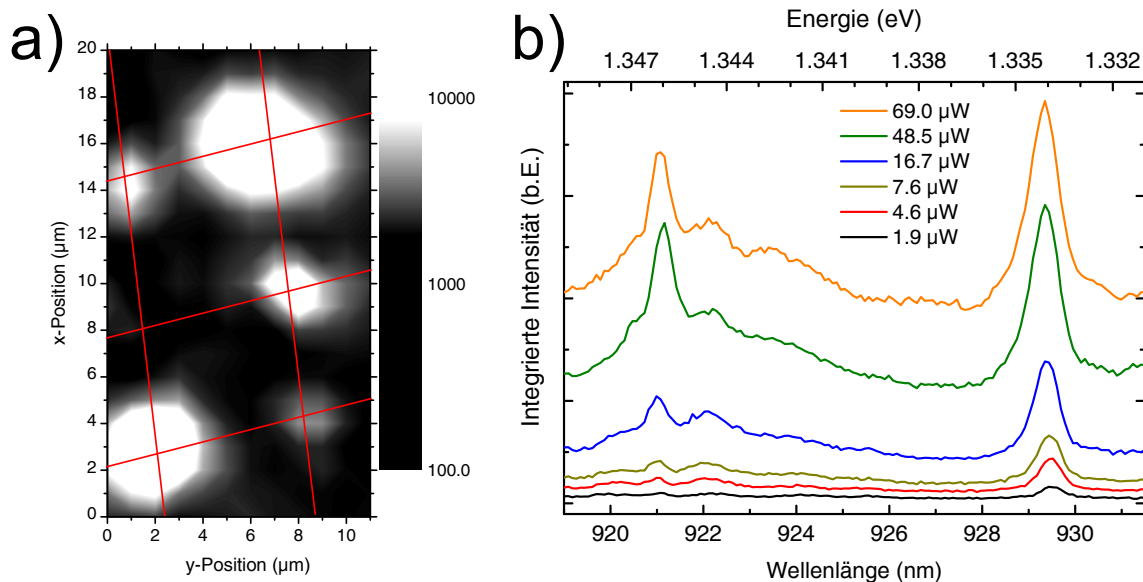


Abbildung 7.3: Photolumineszenz aus InAs-Quantenpunkten in Pyramidenrumpfen. a) Räumliche Verteilung der Photolumineszenz auf einer Fläche von $12\ \mu\text{m}$ auf $20\ \mu\text{m}$. Die Helligkeit spiegelt die integrierte Intensität im Bereich von $880\ \text{nm}$ bis $940\ \text{nm}$ wider. b) Leistungsabhängige Aufnahme der Photolumineszenz eines Quantenpunktes.

Zum Nachweis, dass diese Quantenpunkte optisch aktiv sind, wurde eine Intensitätskarte der Photolumineszenz aufgenommen. Dabei wurde ein Bereich der Probe untersucht, bei dem die invertierten Pyramidenrumpfe einen Abstand von $6\ \mu\text{m}$ besitzen. Zur Anregung und Signalkollimation wurde ein Objektiv mit einer 100fach-Vergrößerung und einer numerischen Apertur von 0.7 verwendet. Abbildung 7.3a

zeigt die räumliche Verteilung der Photolumineszenz. Die Helligkeit stellt die integrierte Intensität im Spektralbereich von 880 nm bis 940 nm dar. Die Schnittpunkte der roten Linien zeigen die aufgrund der Position der Quantenpunkte erwarteten Intensitätsmaxima. An 5 der 6 Positionen kann Emission festgestellt werden, die auf den Ort des Quantenpunktes beschränkt ist. Eine Position zeigt keine Emission, was auf das Fehlen eines optisch aktiven Quantenpunktes zurückgeführt werden kann. Abbildung 7.3b zeigt die spektral aufgelöste Emission eines einzelnen Quantenpunktes in einem Pyramidenrumpf bei unterschiedlichen Anregungsleistungen. Bei niedriger Leistung sind nur wenige Emissionslinien im Spektrum sichtbar, die höchstwahrscheinlich von Ladungsträgerrekombinationen im Quantenpunkt stammen. Mit steigender Anregungsleistung taucht eine breite Hintergrundemission auf, die vermutlich einer Rekombination an Defekten oder einer Emission in den InAs-Ansammlungen in den Kanten der Pyramide zuzuordnen ist [KPW⁺04].

Zusammenfassend war es im Rahmen dieser Arbeit möglich, das Konzept von positionierten InAs-Quantenpunkten in invertierten Pyramidenrumpfen in (111)B-GaAs erstmalig mit Molekularstrahlepitaxie zu realisieren. Dies birgt Potential für die Herstellung von Bauteilen, da das Verfahren der MBE für die Herstellung von Proben höchster Reinheit und Güte bekannt ist. Künftig könnten also Quellen verschränkter Photonen oder Einzelphotonenquellen mit höherer Kristallqualität und damit mit höherer optischer Güte hergestellt werden.

7.3 Emission von Quantenpunkten auf (111)B-GaAs und (211)-GaAs

Im vorigen Abschnitt wurde das Quantenpunktwachstum in invertierten Pyramiden(-rumpfen) in einem (111)-GaAs-Substrat vorgestellt. Als Alternativansatz wurde ein Wachstum von Quantenpunkten auf planarem (111)B-GaAs untersucht. Da beim Abscheiden von InGaAs auf dieser Oberfläche nur große trianguläre Strukturen entstehen [YFJ96, LL98], wurde eine sogenannte *Droplet-Epitaxie* (engl. für Tröpfchen-Epitaxie) verwendet. Dabei wird elementares Indium auf der Oberfläche abgeschieden, ohne dass gleichzeitig ein Gruppe-V-Element angeboten wird. Aufgrund der Oberflächenspannung von Indium bilden sich auf der Oberfläche Droplets aus. Diese werden unter As-Atmosphäre erhitzt, wobei unter idealen Bedingungen kristalline InAs-Quantenpunkte entstehen. Die so entstandenen Quantenpunkte besitzen aufgrund des (111)-Kristallgitters eine dreizählige Symmetrie. In der Literatur wurde experimentell gezeigt, dass die Feinstrukturaufspaltung solcher Droplets sehr klein werden kann, wobei durchaus noch Oszillationen der zentralen Emissionsenergie sichtbar sind [SWO⁺10].

Hier wurden nun InAs-Quantenpunkte auf (111)B-GaAs mit einer geringen Feinstrukturaufspaltung durch Droplet-Epitaxie hergestellt. Dazu wurde eine Pufferschicht aus 150 nm GaAs auf (111)B-orientiertes GaAs gewachsen, dass etwa 2°

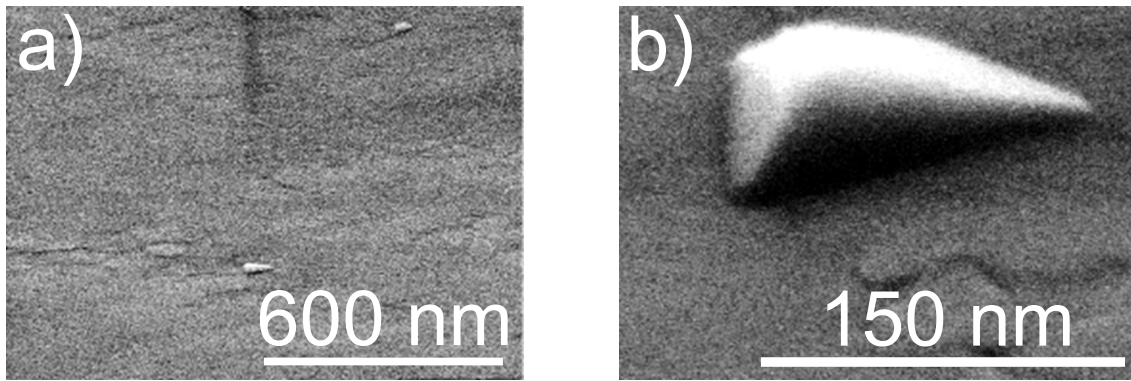


Abbildung 7.4: REM-Aufnahmen von durch Droplet-Epitaxie hergestellten InAs-Quantenpunkten auf einer (111)B-GaAs-Oberfläche. a) Übersichtsaufnahme der Oberfläche. b) Detailaufnahme eines einzelnen Quantenpunkts.

in Richtung der (211)-Kristallebene verkippt ist [HMC91]. Die Substrattemperatur beträgt 600 °C für das Wachstum der Pufferschicht. Anschließend wurde das Ventil der Arsenquelle geschlossen und während einer Wachstumspause von 200 Sekunden das restliche Arsen in der Wachstumskammer abgepumpt und die Substrattemperatur auf 470 °C gesenkt. Durch die Abscheidung von etwa 1.5 Monolagen Gallium werden freie Arsenbindungen an der Oberfläche mit Gallium abgesättigt. Danach werden ca. zwei Monolagen Indium abgeschieden, das Droplets auf der Oberfläche formt. Zum Erreichen des thermischen Gleichgewichts wird eine 20-sekündige Wachstumspause durchgeführt, bevor die Droplets für 100 s unter Arsenatmosphäre zu Quantenpunkten ausgeheilt werden. Abbildung 7.4 zeigt REM-Aufnahmen solcher InAs-Quantenpunkte mit einer Oberflächendichte in der Größenordnung von 10^8 cm^{-2} . Die Quantenpunkte bilden sich bevorzugt an Stufen der GaAs-Oberfläche. Die Basis ist dreieckig mit einer Seitenlänge von etwa 150 nm. Die Höhe wurde mit einem Rasterkraftmikroskop bestimmt und beträgt typischerweise zwischen 10 nm und 15 nm.

Zur Beurteilung der optischen Eigenschaften der so hergestellten Quantenpunkte muss ein elektronischer Einschluss geschaffen werden. Da InAs bei Substrattemperaturen über 540 °C desorbiert, GaAs aber auf (111)B-Substrat eine Substrattemperatur von etwa 600 °C benötigt, um mit hoher Kristallqualität zu wachsen, muss mit einem speziellen Verfahren eine Deckschicht auf die Quantenpunkte gewachsen werden [HKY88]. Dazu wird ein Zyklus aus 2.5 Sekunden Gallium, 3 Sekunden Wachstumspause, 3 Sekunden Arsen und 3 Sekunden Pause insgesamt 60 mal wiederholt. Jeder Zyklus entspricht dem Abscheiden einer Monolage Gallium und einer Monolage Arsen. Insgesamt werden die Quantenpunkte so mit 15 nm GaAs bedeckt. Anschließend wird die Substrattemperatur in 140 Sekunden auf 600 °C erhöht und 100 nm GaAs abgeschieden.

Aufgrund der niedrigen Dichte der Quantenpunkte können bei räumlich aufgelösten Photolumineszenzmessungen leicht einzelne Emissionslinien, wie in Abbildung 7.5a

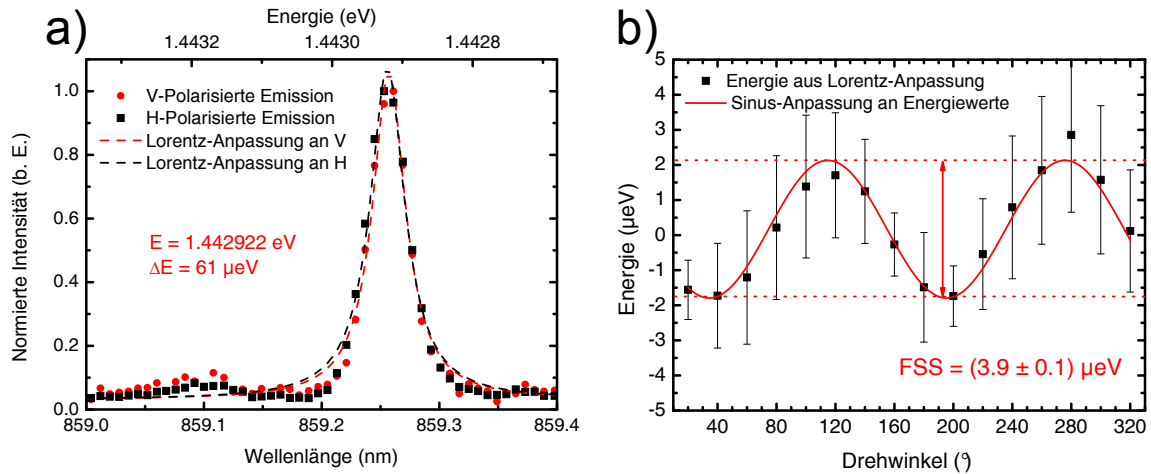


Abbildung 7.5: Emission von InAs-Quantenpunkten auf (111)B-GaAs. a) Vertikal (rot) und horizontal (schwarz) polarisierte Emission mit angepassten Lorentz-Kurven. b) Energieverschiebung der Emissionslinie aus Teilbild a mit dem Drehwinkel eines Linearpolarisators im Strahlengang. Die rote Sinus-Kurve wurde an die Energiewerte angepasst und die doppelte Amplitude als Feinstrukturaufspaltung (FSS) angegeben.

gezeigt, nachgewiesen werden. Die Spektren wurden polarisationsaufgelöst (vertikal und horizontal linear polarisiert) aufgenommen und anschließend normiert, um eine bessere Vergleichbarkeit herzustellen. Die Quantenpunkte emittieren im Vergleich zu In(Ga)As-Quantenpunkten auf (100)-Substrat blau verschoben bei etwa 850 nm bis 860 nm. An die Datenpunkte der Spektren werden Lorentz-Kurven angepasst und daraus kann eine typische Linienbreite von ca. 60-100 μeV extrahiert werden. In Teilbild a sind zwei unterschiedlich linear polarisierte Linien zu sehen, die energetisch sehr nah zusammen liegen. Um die Feinstrukturaufspaltung bestimmen zu können, wurde die energetische Verschiebung der Emissionslinie in Teilbild a für unterschiedliche Drehwinkel des Linearpolarisators in Abbildung 7.5b aufgetragen. Dabei wurde eine lineare Verschiebung der Messdaten aufgrund von Temperaturinstabilitäten während des Experimentes subtrahiert. Die Energieposition und der Fehler stammen aus der Anpassung der Lorentz-Kurve an die Messdaten. An die so erhaltenen Punkte kann eine Sinuskurve angepasst werden, deren doppelte Amplitude den Wert der Feinstrukturaufspaltung angibt. Für die gezeigten Emissionslinien ergibt sich eine Feinstrukturaufspaltung von $(3.9 \pm 0.1) \mu\text{eV}$. Diese Feinstrukturaufspaltung liegt somit bereits in der Größenordnung der homogenen Linienbreite und sollte künftig die Beobachtung von verschränkten Photonen aus der Biexziton-Exziton-Kaskade eines solchen Quantenpunktes ermöglichen. Im Rahmen der Messungen wurden auch Linien mit verschwindender Feinstrukturaufspaltung beobachtet. Da allerdings nicht ausgeschlossen werden konnte, dass diese Emissionslinien von geladenen Exzitonen stammen, wurden diese nicht berücksichtigt.

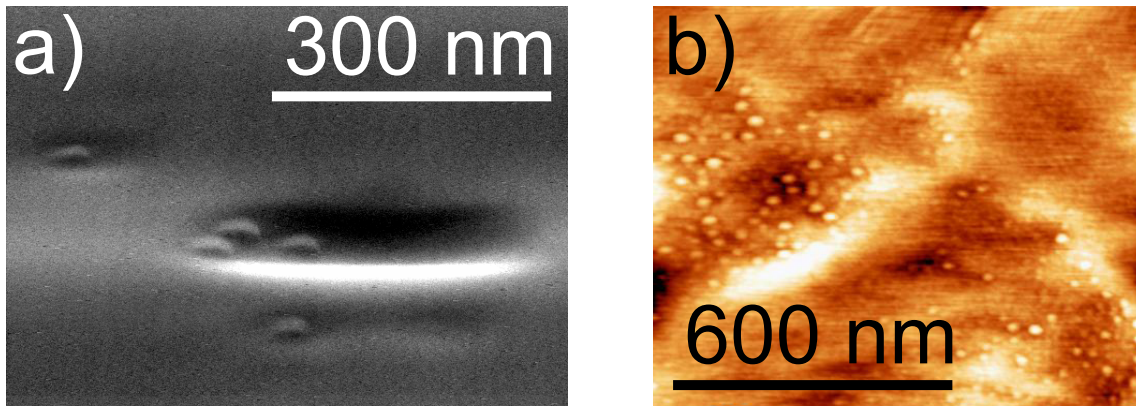


Abbildung 7.6: a) REM-Aufnahme von InAs-Quantenpunkten auf (211)-orientiertem GaAs. b) AFM-Aufnahme von InAs-Quantenpunkten auf (211)-orientiertem GaAs.

In der Literatur wird beschrieben, dass auf einer (211)-orientierten GaAs-Oberfläche ein Quantenpunkt看stum im Stranski-Krastanov-Modus möglich ist [DKX⁺10, STXJ04] und man aufgrund der piezoelektrischen Felder im Quantenpunkt ebenfalls eine geringe Feinstrukturaufspaltung erwarten sollte [GDD⁺11, GBD⁺11]. Dieses Verhalten sollte im Rahmen der Arbeit untersucht werden. Dazu wurde auf einem (211)-orientierten GaAs-Substrat bei einer Substrattemperatur von 620 °C eine insgesamt 1040 nm dicke Pufferschicht aus unterschiedlich dicken GaAs- und AlAs-Schichten gewachsen, die zur Erhöhung der Kristallqualität dienen. Die Substrattemperatur wird in den letzten 50 nm der Pufferschicht auf 500 °C verringert und anschließend werden 2 nm Schichtdickenäquivalent InAs abgeschieden. Es bilden sich Quantenpunkte bevorzugt an Stufen in der GaAs-Oberfläche, wie in Abbildung 7.6a gezeigt wird. Die mittlere Höhe der Quantenpunkte konnte aus AFM-Aufnahmen zu etwa 1.5 nm bestimmt werden (siehe Abbildung 7.6b).

Zur Beurteilung der optischen Eigenschaften wurde eine Deckschicht aus GaAs mit einem ähnlichen Verfahren wie für InAs-Quantenpunkte auf (111)B-GaAs hergestellt (siehe oben). Abbildung 7.7a zeigt das Spektrum eines einzelnen InAs-Quantenpunktes auf (211)-GaAs. An die Messdaten wurden vier Lorentz-Kurven mit Linienbreiten zwischen 136 μeV und 195 μeV angepasst. Diese Linienbreite lässt auf eine im Vergleich zum (100)-Materialsystem höhere Anzahl von Kristalldefekten schließen. Dies liegt vermutlich vor allem an der Substrattemperatur während des Überwachsens der Quantenpunkte, da (211)-GaAs eine Substrattemperatur von etwa 600 °C benötigt, um annähernd ohne Defekte zu wachsen. InAs-Quantenpunkte können aber nur bei Substrattemperaturen bis 540 °C hergestellt werden [RRSW91], so dass hier zwangsläufig im Wachstum ein kritischer Bereich entsteht.

Das Spektrum in Abbildung 7.7a wurde mit einem Linearpolarisator analysiert und die Verschiebung der Emissionslinie in Abbildung 7.7b dargestellt. An die erhaltenen Daten lässt sich eine Sinuskurve anpassen, die eine Feinstrukturaufspaltung von

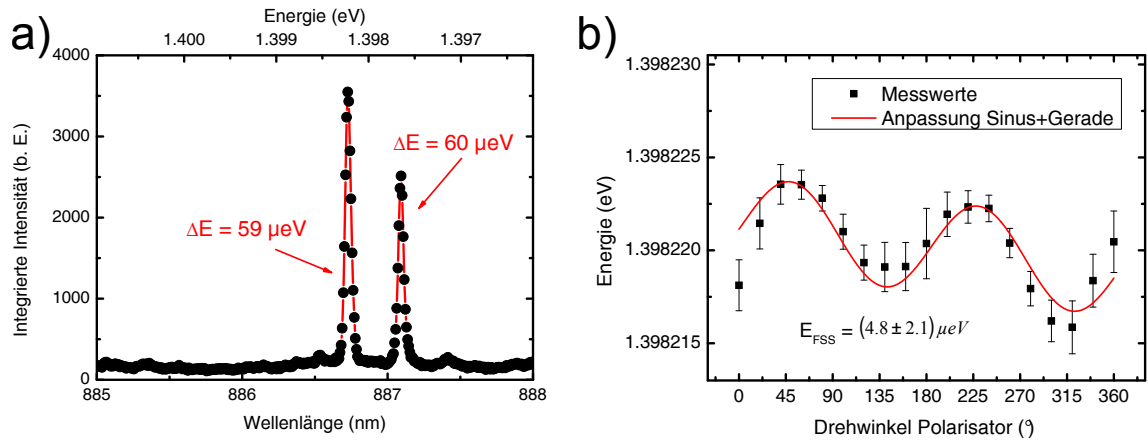


Abbildung 7.7: Photolumineszenz eines einzelnen InAs-Quantenpunkts auf (211)-GaAs. a) Gemessenes Spektrum (schwarze Kreise) und angepasste Lorentz-Kurven. b) Polarisationsabhängige Messung der Emissionsenergie von Linie X aus Teilbild a mit angepasster Sinus-Kurve.

$(4.8 \pm 2.1) \mu\text{eV}$ ergibt. Diese Art von selbstorganisierten Quantenpunkten auf (211)-GaAs sind also ein viel versprechender Ansatz bei der künftigen Untersuchung von Emittieren verschränkter Photonen.

7.4 Reduzierung der Feinstrukturaufspaltung von positionierten InAs-Quantenpunkten durch ein laterales elektrisches Feld

Zur Kontrolle der Emissionseigenschaften von Quantenpunkten kann ein laterales elektrisches Feld eingesetzt werden. Dabei kann die Intensität und Lage der Emissionslinien beeinflusst werden [GSD⁺07, RKD⁺08], die Bindungsenergie des Biexzitons verändert [KHM⁺11, VUH⁺07], und die Feinstrukturaufspaltung reduziert werden [UHV⁺09, KKL⁺05, BKL⁺11]. In dieser Arbeit wird dazu eine ‐Plattenkondensator‐-Anordnung verwendet [KHM⁺11, UHV⁺09], bei der der Quantenpunkt in der Mitte eines Spalts zwischen zwei Goldkontakten positioniert wird. Die Kontakte werden direkt auf die Probe aufgebracht, so dass sich der Quantenpunkt etwa 100 nm unterhalb des Spalts befindet. Eine Schemazeichnung des Querschnitts und eine Aufnahme mit einem Elektronenmikroskop sind in Abbildung 7.8 zu finden. Die Goldkontakte werden mittels Elektronenstrahlolithographie definiert und anhand der Referenzstrukturen zur Position der Quantenpunkte ausgerichtet.

Das elektrische Feld entsteht zwischen den Ladungsträgeransammlungen unterhalb der Schottky-Kontakte an der Halbleiter-Metall-Grenzfläche [GSD⁺07]. In der Lite-

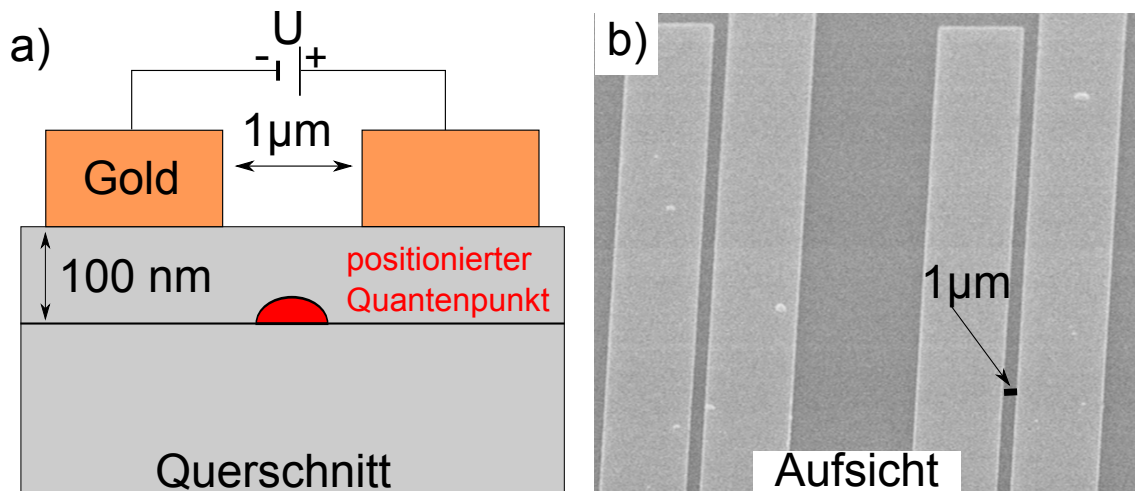


Abbildung 7.8: a) Schemazeichnung der Kontaktierung von positionierten Quantenpunkten zum Anlegen eines lateralen elektrischen Feldes. b) REM-Aufnahme von zwei ‘Plattenkondensatoren’. Der Abstand der Kontakte beträgt ca. $1\ \mu\text{m}$.

ratur wurden Simulationen zum Verlauf des elektrischen Feldes zwischen den Kontakten durchgeführt [KHM⁺11]. Die Kontakte haben einen Abstand d und es wird eine Spannung U angelegt. In der Mitte zwischen den Kontakten verschwindet die vertikale Komponente des elektrischen Feldes E_{\perp} und es existiert nur eine laterale Komponente E_{lat} . Der Betrag des elektrischen Feldvektors $|\vec{E}|$ am Ort der Quantenpunkte ist in dieser Simulation etwa 84 % des Betrags der elektrischen Feldstärke E zwischen zwei Kondensatorplatten mit $E = U/d$. Die tatsächliche Feldstärke am Ort der Quantenpunkte kann vom idealisierten Modell der Simulation abweichen. Dafür sind z. B. Rauheiten der Kontaktfläche verantwortlich [GSD⁺07]. Deswegen wird in dieser Arbeit als Abschätzung für die Größenordnung der elektrischen Feldstärke am Ort der Quantenpunkte die ‘Plattenkondensator’-Näherung $E = U/d$ verwendet. Im Modellsystem sollte der Stromfluss zwischen den Kontakten für Feldstärken bis ca. $\pm 90\ \text{kV}/\text{cm}$ verschwindend gering sein. In der Praxis lassen sich Leckströme durch Verunreinigungen im Halbleiter und auf der Oberfläche nicht gänzlich vermeiden, so dass je nach Probe und Art der Kontaktierung unterschiedliche Stromflüsse gemessen werden können [BKL⁺11]. Diese können eine Veränderung der Quantenpunkttemperatur bewirken, was sich in einer Rotverschiebung der Emission äußert. Verlässliche Messergebnisse sind also nur für einen geringen Stromfluss zu erwarten.

Die in diesem Abschnitt diskutierten Messungen wurden bei etwa 20 K Proben-temperatur durchgeführt. Der Stromfluss während aller gezeigten Messungen war nicht messbar ($< 0.1\ \mu\text{A}$), so dass Temperaturveränderungen aufgrund von Stromfluss keine Rolle spielen. Abbildung 7.9 zeigt Messungen der Photolumineszenz von positionierten Quantenpunkten mit einer Periode von $1\ \mu\text{m}$. Bei kleinen elektrischen Feldern sind drei Emissionslinien X_1 bis X_3 zu sehen. Bei einer Feldstärke von etwa $50\ \text{kV}/\text{cm}$ verschwindet die Linie X_3 und eine neue Emissionslinie X_4 taucht auf

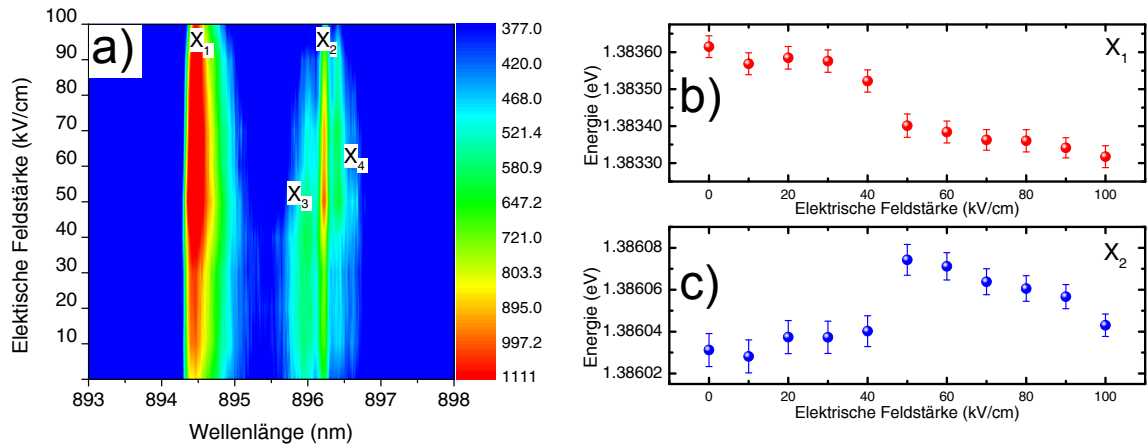


Abbildung 7.9: Photolumineszenz von positionierten Quantenpunkten in einem lateralen elektrischen Feld. a) Falschfarbendarstellung der Emission bei unterschiedlichen elektrischen Feldstärken. b) Energetische Verschiebung der Emissionsenergie der Linie X₁. c) Energetische Verschiebung der Emissionsenergie der Linie X₂.

und bleibt bis etwa 90 kV/cm sichtbar. Die Linien X₁ und X₂ sind durchgehend mit wechselnder Intensität sichtbar. Die energetische Verschiebung der Linien X₁ und X₂ wird in Abbildung 7.9b und c dargestellt. Mit steigendem elektrischen Feld emittiert die Linie X₁ rotverschoben bis zu einer Energieverschiebung von etwa 300 μeV bei 100 kV/cm. Größere Feldstärken konnten in dieser Arbeit aufgrund von einsetzendem Stromfluss nicht ohne thermische Effekte erzielt werden [KHM⁺11]. Solche Energieverschiebungen zu niedrigeren Energien sind typisch für die Emission des Exzitons, da das elektrische Feld die Ladungsträger des Exzitons räumlich trennt und so die Bindungsenergie verringert [BKL⁺11].

Der Verlauf der Emissionsenergie der Linie X₂ ist weniger eindeutig. Nach einer leichten Blauverschiebung von ca. 10 μeV springt die Linienposition zwischen zwei Messwerten etwa 35 μeV zu höherer Energie. Mit noch höheren Feldstärken nimmt die Emissionsenergie linear ab. Eine solche Zunahme der Energie, gefolgt von einer Reduzierung der Energie, wurde beispielsweise in [KHM⁺11] gemessen und der Rekombination des Biexzitons zugeordnet. In dem hier vorliegenden Fall scheint allerdings noch ein zusätzlicher Effekt wichtig zu sein: Durch das anliegende elektrische Feld kommt es zu einer Verkippung der elektrischen Bänder. Dadurch können einzelne Ladungsträger aus dem Quantenpunkt tunneln. Wenn diese Linie bei niedrigen Feldern der Rekombination eines Biexzitons zuzuordnen ist, kann bei höheren Feldern ein Ladungsträger aus dem Quantenpunkt tunneln und so ein geladenes Exziton entstehen, dessen Übergang im Spektrum leicht verschoben ist. Dafür spricht auch die verschwindende Feinstrukturaufspaltung der Linie bei hohen Feldern, wie im Anschluss gezeigt wird (siehe Abbildung 7.10b).

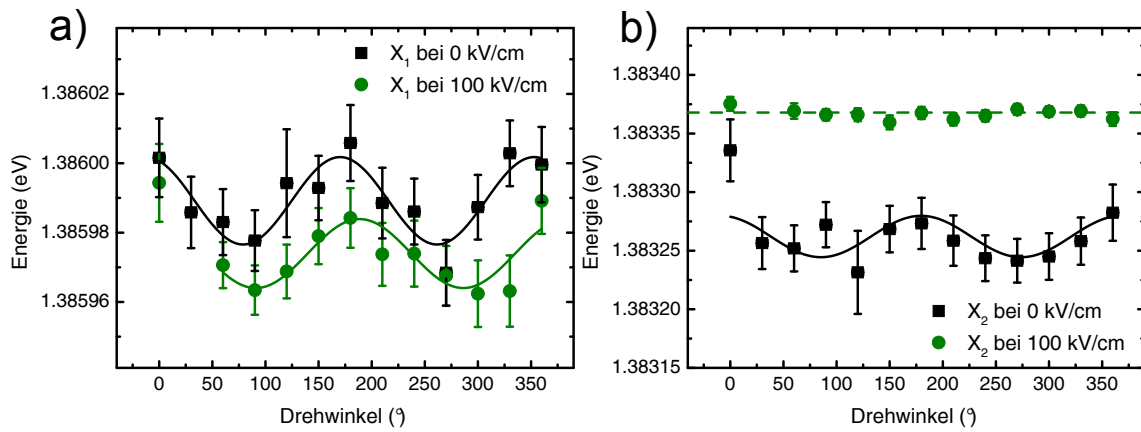


Abbildung 7.10: Verschiebung der Emissionslinien X₁ (a) und X₂ (b) mit dem Drehwinkel eines Linearpolarisators. Die Messwerte ohne angelegtes elektrisches Feld sind schwarz dargestellt. Grün sind Messwerte bei einem elektrischen Feld von 100 kV/cm.

Die Feinstrukturaufspaltung der Linien X₁ und X₂ wurde durch die Analyse der linearen Polarisation der Emissionslinien genauer untersucht. Da die Probe zwischen der nun geschilderten Messung und der spannungsabhängigen Messung in Abbildung 7.9 auf Raumtemperatur erhitzt wurde, weichen die absoluten Energien der Emissionslinien etwas voneinander ab. Abbildung 7.10 zeigt die polarisationsabhängige Emission der Quantenpunktlinien X₁ (a) und X₂ (b). Wie in den vorangegangenen Abschnitten beschrieben, wurde die Feinstrukturaufspaltung durch Anpassung einer Sinus-Kurve bestimmt. Die Quantenpunktlinie X₁ zeigt ohne elektrisches Feld eine Feinstrukturaufspaltung von $(25 \pm 2) \mu\text{eV}$. Die Aufspaltung wird durch das elektrische Feld auf $(15 \pm 2) \mu\text{eV}$ reduziert. Diese Reduzierung der Feinstrukturaufspaltung ist durch die Kompensation der internen Feldasymmetrien im Quantenpunkt mit dem angelegten elektrischen Feld begründet [KKL⁺05]. Voraussetzung dafür ist, dass die Richtung des angelegten Feldes mit der Asymmetrie parallel ist, weswegen ein laterales Feld verwendet wurde. Linie X₂ zeigt ein anderes Verhalten mit einer Aufspaltung, die von $(22 \pm 5) \mu\text{eV}$ auf einen Wert unterhalb der Auflösungsgrenze sinkt. Dies ist dadurch zu erklären, dass diese Linie ohne angelegtes Feld vermutlich auf die Rekombination des Biexzitons zurückzuführen ist, wohingegen für höhere elektrische Felder ein geladenes Exziton vorliegt, das keine Feinstrukturaufspaltung besitzt [BOS⁺02].

Durch die hier gezeigte Technologie ist es im Prinzip möglich, die Feinstrukturaufspaltung einzelner positionierter Quantenpunkte durch Anlegen eines lateralen elektrischen Feldes zu reduzieren. Dies stellt einen wichtigen Schritt für die skalierbare Realisierung von Emitttern verschränkter Photonen zur Quantenkryptographie dar und wurde im Rahmen dieser Arbeit erstmalig im InAs/GaAs-Materialsystem für einen positionierten Quantenpunkt demonstriert.

7.5 Nachweis der zeitlichen Korrelation der Emission der Biexziton-Exziton-Kaskade

Im Rahmen dieser Arbeit konnten keine Quantenpunkte mit einer Feinstrukturaufspaltung von weniger als $0.5 \mu\text{eV}$ und ausreichender Emissionsintensität zum Nachweis der Polarisationsverschränkung der Photonen aus der Biexziton-Exziton-Kaskade hergestellt werden. Dennoch wurde die Messtechnik zum Nachweis von verschränkten Photonen in Kooperation mit der Spektroskopie-Gruppe der Technischen Physik (Universität Würzburg) zur Bestimmung der Korrelation zwischen Biexziton und Exziton etabliert. Dazu wurden selbstorganisierte Quantenpunkte in einer Diodenstruktur verwendet, die mit einer Gleichspannung von $U_{DC} = 4.25 \text{ V}$ angeregt wurden.

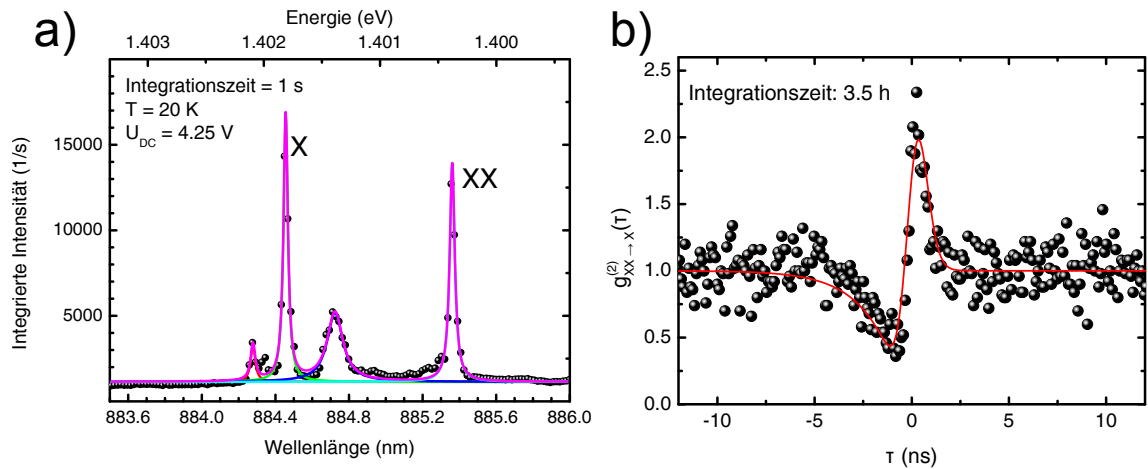


Abbildung 7.11: a) Elektrolumineszenz eines selbstorganisierten InAs-Quantenpunkts. An die Messdaten (schwarz) wurden vier Lorentz-Kurven angepasst. b) Gemessener Verlauf der zeitlichen Korrelation zwischen Biexziton (XX, Startsignal) und Exziton (X, Stoppsignal). An die Messdaten wurde eine Kurve nach [Aic05] angepasst.

Abbildung 7.11a zeigt das gemessene Spektrum bei einer Proben temperatur von 20 K . Es sind im Wesentlichen vier Emissionslinien sichtbar mit Linienbreiten zwischen $46 \mu\text{eV}$ und $164 \mu\text{eV}$. Diese Abweichung der gemessenen Linienbreite von der natürlichen Linienbreite des Quantenpunktes wird vermutlich von Überschussladungsträgern durch den elektrischen Betrieb verursacht. Die beiden intensivsten Linien wurden mit polarisationsaufgelösten und leistungsabhängigen Messungen als Exziton (X) und Biexziton (XX) identifiziert. Die Feinstrukturaufspaltung beträgt jeweils ca. $6 \mu\text{eV}$. Durch spektrale Filterung und durch zeitlich aufgelöste Messungen der emittierten Photonen, kann die zeitliche Korrelation $g_{XX \rightarrow X}^{(2)}(\tau)$ der Emission von X und XX bestimmt werden. Das vom Biexziton emittierte Photon dient dabei als Startsignal, das Photon des Exzitons als Stopp-Signal. Abbildung 7.11b zeigt die zeitliche Charakteristik einer solchen Messung.

Für große Zeitdifferenzen τ zwischen dem Start- und Stopp-Signal ist $g_{XX \rightarrow X}^{(2)}(\tau) \approx 1$. Dies heißt, dass für große Zeitdifferenzen keine Korrelation vorliegt. Direkt vor der Detektion des Biexziton-Photons bei $\tau = 0$ sinkt $g_{XX \rightarrow X}^{(2)}(\tau)$ auf etwa 0.35 ab. Somit ist die Wahrscheinlichkeit klein, dass unmittelbar vor dem Biexziton ein Exziton detektiert wird. Dies ist leicht verständlich, da zur Detektion eines XX-Photons ein Quantenpunkt nötig ist, der vier Ladungsträger beinhaltet. Würde unmittelbar vorher ein X-Photon emittiert werden, wäre der Quantenpunkt leer und könnte nicht schnell genug mit vier Ladungsträgern aufgefüllt werden. Im Anschluss an die Detektion des XX-Photons steigt die Wahrscheinlichkeit, dass ein X-Photon gemessen wird auf $g_{XX \rightarrow X}^{(2)}(\tau) \approx 2$ an. Dies kann dadurch erklärt werden, dass der Quantenpunkt nach der Emission des XX-Photons in einem definierten Zustand ist und genau ein Exziton beinhaltet. Der Verlauf der Messdaten stimmt mit Resultaten in der Literatur überein [CMS⁺04, RMG⁺01, MRM⁺01].

Die hier beschriebene Messtechnik kann künftig mit polarisationsaufgelösten Messungen erweitert werden, um den Nachweis zu erbringen, dass Quantenpunkte verschränkte Photonen emittieren [ALP⁺06]. Dazu wird die Methode der Quantentomographie verwendet [AJK05], mit deren Hilfe durch Messungen der Korrelation unterschiedlicher Polarisationszustände die Dichtematrix des Systems rekonstruiert werden kann.

8 Skalierbare Integration positionierter Quantenpunkte in Bauteile

Es ist heutzutage möglich Einzelphotonenquellen oder Quellen verschränkter Photonen mit Quantenpunkten herzustellen. Dabei kommen allerdings Verfahren zum Einsatz, die darauf beruhen, dass sich ein zufällig verteilter Quantenpunkt am passenden Ort in einem Bauteil befindet oder es müssen aufwändige Positionsbestimmungsverfahren für Quantenpunkte eingesetzt werden. In dieser Arbeit wird ein skalierbares Verfahren nach [SSS⁺08a] eingesetzt, um eine elektrisch betriebene Einzelphotonenquelle mit einem einzelnen positionierten Quantenpunkt [SHH⁺12] und ein gekoppeltes System aus einem positionierten Quantenpunkt in einer dreidimensionalen photonischen Kristallkavität zu realisieren.

8.1 Photonische Kristalle mit positionierten Quantenpunkten

Im Rahmen dieser Arbeit wurde in Zusammenarbeit mit der Gruppe um Prof. Arakawa von der Universität Tokyo ein Konzept erarbeitet, mit dem ein Einzelquantenpunktlaser auf Basis eines positionierten Quantenpunktes in der Kavität eines zwei- oder dreidimensionalen [AGN⁺08, HTK⁺02] photonischen Kristallresonators realisiert werden kann. In der Literatur konnten bereits erfolgreich positionierte Quantenpunkte in photonische Kristalle integriert werden [SSS⁺08b, GFD⁺08], aber noch kein Laserbetrieb wie für selbstorganisierte Quantenpunkte [NKI⁺10, TIG⁺11] erzielt werden.

Ziel dieser Arbeiten ist es, einen Quantenpunkt in das Maximum des elektrischen Feldes in einer photonischen Kristallkavität höchster Güte zu positionieren [BHA⁺05]. Dabei soll das in Abschnitt 3.1 gezeigte skalierbare Verfahren zum Einsatz kommen. Dadurch soll die spontane Emission verstärkt werden und für hohe Anregungsleistungen stimulierte Emission stattfinden. Die Anforderungen an ein so gekoppeltes System sind enorm: Die optische Qualität der positionierten Quantenpunkte muss sehr hoch sein und die Linienbreite sollte kleiner als 100 μeV sein. Weiterhin wird eine Resonanz der Emissionswellenlänge der Quantenpunkte und der Kavitätsmode benötigt. Die Effizienz des Lasers kann durch den Anteil der spontanen Emission,

die zur Laseremission beiträgt mit $\beta = F_P/(F_P+1)$ ausgedrückt werden [BY91]. Die Höhe des Purcell-Faktors $F_P \propto Q/V_m$ wird dabei durch die Güte der Kavität und das Modenvolumen bestimmt. Da sich mit photonischen Kristallen eine Güte von mehr als 10^5 und kleine Modenvolumina erzielen lassen (siehe Abschnitt 2.3), scheint ein gekoppeltes System aus einem einzelnen Quantenpunkt und einem photonischen Kristallresonator viel versprechend zur Realisierung eines Einzelquantenpunktlasers.

In dieser Arbeit wurden ein Konzept und die Bausteine entwickelt, um einen Einzelquantenpunktlaser skalierbar mit positionierten Quantenpunkten in photonischen Kristallresonatoren zu realisieren. Aufgrund des kleinen Modenvolumens eines photonischen Kristallresonators darf die Position des Quantenpunkts nur wenige 10 nm vom Zentrum der Kavitätsmode abweichen, um eine ausreichende Kopplung an das elektrische Feld sicherzustellen. Diese Anforderung konnte im Verlauf der Arbeit nicht erfüllt werden, weswegen der experimentelle Nachweis des Laserbetriebs eines solchen Systems Gegenstand künftiger Untersuchungen sein wird.

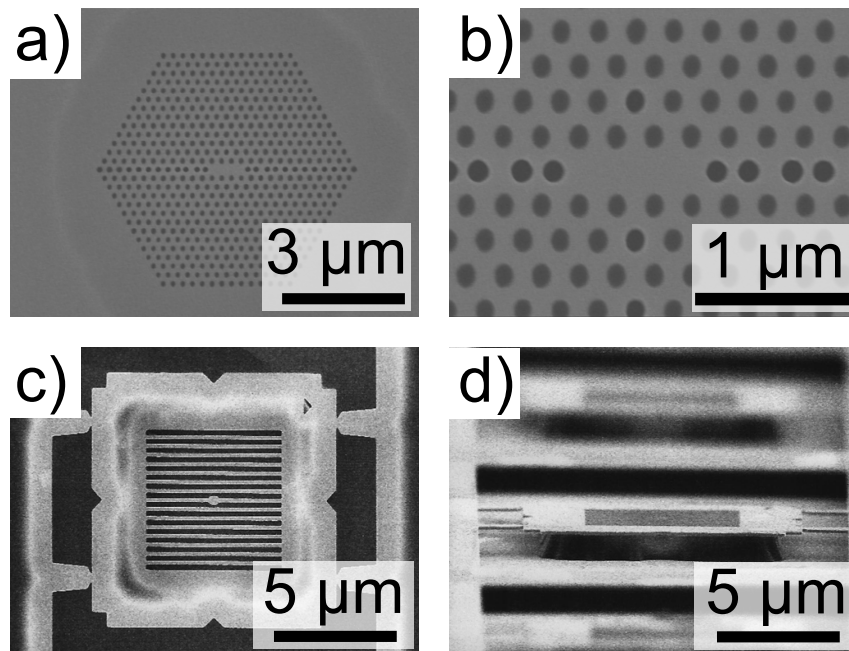


Abbildung 8.1: REM-Aufnahmen von photonischen Kristallkavitäten mit positionierten Quantenpunkten. a) Hexagonales Lochmuster in GaAs mit einer L3-Kavität. Der unterätzte Bereich ist durch unterschiedliche Graustufen sichtbar. b) Vergrößerung auf die L3-Kavität aus Teilbild a. c) Aufsicht auf die zentrale Platte eines dreidimensionalen photonischen Kristalls. Der positionierte Quantenpunkt befindet sich in der Mitte der Platte. d) Seitenansicht der Platte aus Teilbild c. Die Platten sind komplett unterätzt und somit freischwebend.

Die Herstellung der positionierten Quantenpunkte beginnt mit dem Wachstum einer $\text{Al}_{0.75}\text{Ga}_{0.25}\text{As}$ -Opferschicht und der Herstellung einer Schicht positionierter Quantenpunkte in der Mitte einer GaAs-Schicht, deren Dicke auf den photonischen Kris-

tallresonator angepasst ist. Zweidimensionale photonische Kristalle werden durch ein trocken geätztes Lochmuster realisiert (siehe Abbildung 8.1a). Durch selektives nasschemisches Ätzen mit Flusssäure kann die AlGaAs-Opferschicht unterhalb des Resonators entfernt werden, so dass eine freitragende Membran entsteht. Die Kavität besteht aus einer Aperiodizität im Lochmuster. Dazu kann beispielsweise eine L3-Kavität verwendet werden (siehe Abbildung 8.1b).

Dreidimensionale photonische Kristalle können durch manuelle Stapelung einzelner geätzter Platten realisiert werden (siehe Abbildung 8.1c und d). Das Lochmuster wird hier durch ein gekreuztes Linienmuster ersetzt, das ebenfalls trocken geätzt wird. Die mittlere Platte des Aufbaus beinhaltet den positionierten Quantenpunkt. Die Ausrichtung des Plattenmusters zur Position des Quantenpunktes ist ein kritischer Parameter. Die hier erforderliche Genauigkeit konnte im Laufe der Arbeit nicht erreicht werden, so dass nur die prinzipielle Durchführbarkeit dieses Konzepts bestätigt werden konnte.

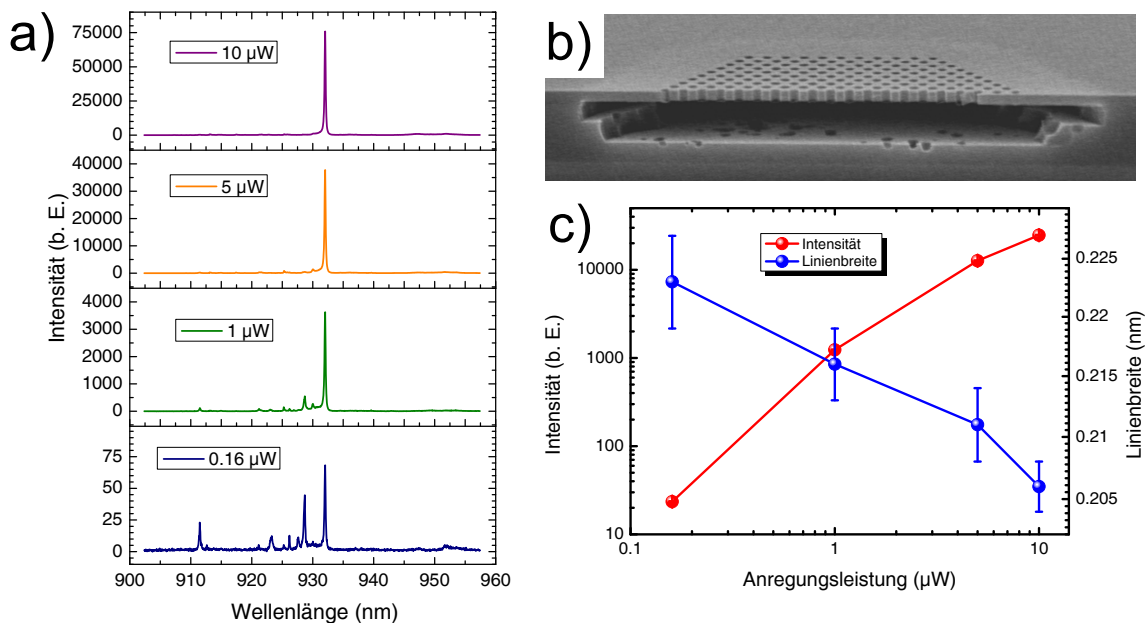


Abbildung 8.2: Leistungsabhängige Photolumineszenz eines positionierten Quantenpunktes in der Kavität eines zweidimensionalen photonischen Kristalls. a) Vier Spektren des Quantenpunktes bei unterschiedlichen Anregungsleistungen. b) REM-Aufnahme der Spaltkante eines solchen gekoppelten Systems. c) Doppeltlogarithmische Auftragung der Intensität (rot) und Breite (blau) der dominanten Linie in Teilbild a).

Dazu wurde eine Großzahl positionierter Quantenpunkte mit einer Periode von 10 μm in zweidimensionalen photonischen Kristallresonatoren auf ihre optischen Eigenschaften hin untersucht. In über 1000 untersuchten Systemen konnte ein gekoppelter Quantenpunkt identifiziert werden, dessen Intensität mehr als drei Größenordnungen ansteigt (siehe Abbildung 8.2). Die Messungen erfolgten bei einer

Probentemperatur von etwa 10 K. Bei niedrigen Anregungsleistungen um 160 nW sind viele Linien sichtbar (Abbildung 8.2a), die auf Emission aus unterschiedlichen Quantenpunktzuständen und der Kavitätsmode zurückzuführen sind. Unter Umständen könnte sich auch ein zweiter, spektral verstimmter Quantenpunkt in der Kavität befinden, dessen Emission durch die Umverteilung der Moden in der Kavität unterdrückt wird. Bei hoher Anregungsleistung verschwinden diese Linien und die Kavitätsmode dominiert das Spektrum. Die Anregung erfolgte mit einem Laser mit einer Wellenlänge von 820 nm in Zustände unterhalb der Bandkante von GaAs, wodurch die Anzahl freier Ladungsträger in der Probe reduziert werden sollte. Die aus der Linienbreite der Mode bestimmte Güte der Kavität beträgt etwa 5000. Bei steigender Anregungsleistung nimmt die Linienbreite der Kavitätsmode etwa 8 % ab. Ein solcher Effekt kann entweder beim Übergang von spontaner Emission zu stimulierter Emission beobachtet werden oder auch durch Sättigung von absorbierenden Zuständen in der Kavität [ST58, MSJK94, XGF⁺07, NKI⁺10].

Somit stellen diese Resultate noch keinen zweifelsfreien Nachweis der Realisierung eines skalierbar herstellbaren Einzelquantenpunktlaser dar. Die optischen Ergebnisse sind aber viel versprechend, um diesen Nachweis mit einer optimierten Genauigkeit der Bauteilausrichtung zur Position der Quantenpunkte künftig zu erbringen.

8.2 Mikrosäulenresonatoren mit positionierten Quantenpunkten

Für die Realisierung einer elektrisch betriebenen Einzelphotonenquelle mit einem positionierten Quantenpunkt ist ein Resonatorsystem notwendig, um die Lichtausbeute der Einzelphotonenquelle zu erhöhen und so den Einzelphotonencharakter der Emission nachweisen zu können. Deswegen wurden positionierte Quantenpunkte in einem DBR-Resonator, bestehend aus 25 (5) p-dotierten (n-dotierten) GaAs/AlAs-Schichten im unteren (oberen) Spiegel, gewachsen. Die Spiegel schließen eine undotierte GaAs-Kavität ein, die an die Wellenlänge der Quantenpunkte angepasst ist. Analog zum in [SSS⁺08a, SHS⁺09] beschriebenen Verfahren, können Mikrosäulenresonatoren mit unterschiedlichen Durchmessern um die Quantenpunkte geätzt werden und so ein lateraler Einschluss des Lichtfeldes im Resonator gewährleistet werden. Die elektrische Kontaktierung einzelner Mikrotürmchen erfolgt nach Planarisierung mit BCB durch Goldringkontakte [BRK⁺08] (siehe Abschnitt 3.3. Die Güte des Resonators liegt im Bereich zwischen 200 und 300, was eine Verstärkung der Emission [MMA⁺09], aber noch keine starke Licht-Materie-Wechselwirkung [APG99] erwarten lässt.

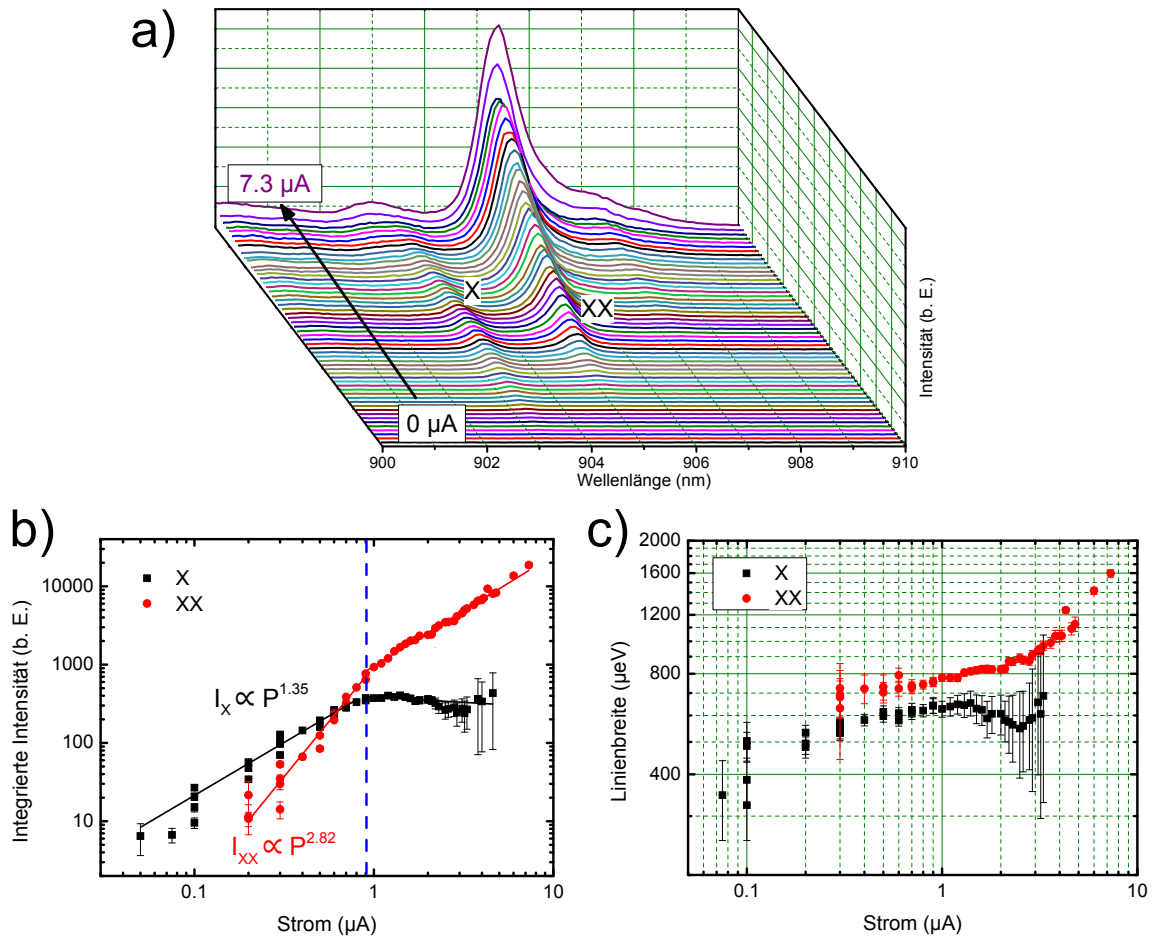


Abbildung 8.3: Leistungsabhängige Untersuchung der Elektrolumineszenz eines positionierten Quantenpunktes in einem elektrisch kontaktierten Mikrosäulenresonator außerhalb der Resonanz mit der Kavitätsmode. a) Spektren der Quantenpunktemission für Ströme zwischen 0 μA und 7.3 μA . Die beiden in (b) und (c) untersuchten Linien sind mit X und XX gekennzeichnet. b) Doppeltlogarithmische Darstellung des integrierten Intensitätsverlaufes in Abhängigkeit des Stroms. Die Daten für X (schwarze Quadrate) und XX (rote Kreise) wurden durch Anpassung von Lorentz-Kurven an die Spektren in (a) gewonnen. Das Steigungsverhalten der Intensitäten I_X und I_{XX} wurde durch lineare Anpassungen an die Daten berechnet. c) Abhängigkeit der Linienbreite vom Strom in doppeltlogarithmischer Auftragung.

8.2.1 Elektrolumineszenz aus positionierten Quantenpunkten

Im ersten Schritt soll die Elektrolumineszenz positionierter Quantenpunkte anhand eines repräsentativen Quantenpunktes untersucht werden [HSD⁺11, BCPK04, MRW⁺10]. Dazu wurde ein Quantenpunkt herangezogen, dessen Emissionslinien nicht in Resonanz mit der Kavitätsmode sind. Mit einer Erhöhung des Stroms durch

den Mikrosäulenresonator, in dem sich der Quantenpunkt befindet, kann die Rate der im Quantenpunkt rekombinierenden Ladungsträger vergrößert werden. Die Emissionsspektren bei Strömen von 0 μA bis 7.3 μA sind in Abbildung 8.3a gezeigt. Bei sehr niedrigen Strömen taucht eine Emissionslinie X bei etwa 903 nm auf. Bei höheren Strömen erscheint um 905 nm eine zweite Linie XX, die das Spektrum ab etwa 0.6 μA dominiert. Für die höchsten abgebildeten Ströme sind weitere breite Emissionsbereiche sichtbar, die wahrscheinlich auf höhere Zustände oder Kavitätsmoden [AUU⁺09] zurückzuführen sind.

Zur Identifizierung der Emissionslinien wurden an X und XX Lorentz-Kurven angepasst und deren Fläche integriert. Die so erhaltenen Werte für die integrierte Intensität der Linien wurden in Abbildung 8.3b doppeltlogarithmisch aufgetragen. Die Daten können bis etwa 0.9 μA Strom sehr gut durch eine Gerade angepasst werden. Die Steigung der Geraden gibt den Exponenten x eines Potenzgesetzes $I \propto P^x$ an. Die Emissionslinie X steigt in diesem Bereich niedriger Anregungsleistung mit $x = 1.36$ an, die Linie XX mit $x = 2.82$. Vermutlich handelt es sich somit um die Rekombination eines Exzitons (X) und Biexzitons (XX), da die Intensität des Biexzitons etwa quadratisch zur Intensität des Exzitons ansteigt. Die Abweichung vom Idealfall eines linearen bzw. quadratischen Anstiegs ist in der Literatur bekannt [MMAMP⁺08, AKB⁺08] und wird auf eine nicht-strahlende Rekombination zurückgeführt [SUH⁺05] oder auf das Tunneln von Ladungsträgern aufgrund der Bandverbiegung bei hohen Spannungen [KHS⁺08].

Ab einem Strom von etwa 0.9 μA bleibt die Intensität der Emissionslinie X etwa konstant bzw. fällt für hohe Ströme leicht ab, was die Zuordnung zur exzitonenischen Rekombination unterstützt, da nicht beliebig viele Rekombinationen pro Zeitintervall aus dem Exzitonenzustand stattfinden können. Die Fehlerbalken spiegeln die Unsicherheit der Anpassungen wider und werden für hohe Ströme aufgrund des zunehmenden spektralen Hintergrunds größer. Die Intensität der XX-Linie steigt für hohe Ströme weniger stark an. Daraus kann die Schlussfolgerung gezogen werden, dass die Emission des Biexzitons ebenfalls absättigt. Da beide Emissionslinien ab dem gleichen Strom einen niedrigeren Intensitätsanstieg zeigen, ist eine mögliche Erklärung, dass die Relaxation der Ladungsträger in den jeweiligen Energiezustand nicht schnell genug stattfindet [SPM⁺08].

In Abbildung 8.3c wurde die Entwicklung der Linienbreiten mit steigendem Strom untersucht. Für kleine Ströme ist die Intensität der Linien sehr schwach, weswegen der Fehler bei der Bestimmung der Linienbreite groß ist. Die niedrigste Linienbreite liegt im Bereich zwischen 300 μeV und 400 μeV , was repräsentativ für diese Art elektrisch kontaktierter, positionierter Quantenpunkte ist. Die schmalste Linienbreite der Elektrolumineszenz beträgt 170 μeV und wurde während parallel zu dieser Arbeit stattfindenden Messungen an dieser Probe beobachtet [SHH⁺12]. Für höhere Ströme steigt die Halbwertsbreite der Linie X auf etwa 600 μeV an und bleibt dort etwa konstant. Die Halbwertsbreite der Linie XX beträgt für niedrige Ströme etwa 700 μeV und steigt mit zunehmender Verbreiterung auf über 1.5 meV an.

8.2.2 Elektrisch betriebene Einzelphotonenquellen mit positionierten Quantenpunkten

Jeder mögliche Zustand im Quantenpunkt kann nicht von zwei identischen Ladungsträgern besetzt werden. Die Rekombination von Ladungsträgern aus unterschiedlichen Zuständen erzeugt Photonen mit unterschiedlichen Energien. Deswegen kann ein idealisierter Quantenpunkt (ohne entartete Energielevel) aus jedem Energieniveau nur ein Photon in der Lebensdauer des Zustandes emittieren. Durch spektrale Filterung kann ein Quantenpunkt somit als Einzelphotonenquelle verwendet werden [MKB⁺00], was ein wesentlicher Baustein bestimmter Quantenkryptographieprotokolle ist [BB84]. Die Güte einer Einzelphotonenquelle kann durch den Verlauf der Autokorrelationsfunktion $g^{(2)}(\tau)$ bestimmt werden. Diese gibt in diesem Fall die Wahrscheinlichkeit an, dass zwei Photonen in einem Zeitabstand τ emittiert werden. Die Autokorrelationsfunktion kann mit einem experimentellen Aufbau nach Hanbury-Brown und Twiss gemessen werden. Dabei treffen die emittierten Photonen auf einen 50/50-Strahlteiler und werden dort mit je 50 % Wahrscheinlichkeit in einen der beiden Einzelphotonendetektoren gelenkt. Das erste auftreffende Photon startet die Messung. τ ist die Zeitspanne, die bis zum Auftreffen eines Photons auf dem zweiten Detektor vergeht. Die entstehenden Messdaten folgten näherungsweise der Funktion [MIK⁺02]:

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - (1 - g^{(2)}(\tau = 0)) \cdot \exp\left(\frac{-|\tau - \tau_0|}{\tau_1}\right) \quad (8.1)$$

τ_0 und τ_1 sind Konstanten, die von der Rate der spontanen Emission und der Pumprate abhängen. Der Wert $g^{(2)}(\tau = 0)$ wird nun verwendet, um zu entscheiden, ob ein Emittierer eine Einzelphotonenquelle ist. Dabei wird in der Literatur häufig ein Grenzwert von $g^{(2)}(\tau = 0) < 0.5$ verwendet, da für diesen Fall im Mittel weniger als zwei Photonen zur gleichen Zeit detektiert werden.

In dieser Arbeit wurde zur Realisierung einer elektrisch betriebenen Einzelphotonenquelle [BAS⁺06, SWO⁺10] ein positionierter Quantenpunkt in einem Mikrosäulenresonator mit einem Durchmesser von 2.5 μm verwendet. Abbildung 8.4a zeigt das Emissionsspektrum des Systems bei 17.5 K und einer Betriebsspannung von 5.0 V. An die Messdaten der Quantenpunktemission und der Kavitätsmode des Mikrosäulenresonators wurde jeweils eine Lorentz-Kurve angepasst. Die Quantenpunktemission ist wenige Nanometer zur Kavitätsmode verstimmbar sichtbar. Die Berechnung der Güte Q des Resonators aus dem Verhältnis von Wellenlänge zu Halbwertsbreite beträgt $Q \approx 220$. An diesem System wurde unter Anregung durch Gleichspannung die Autokorrelationsfunktion mit einem Messaufbau nach Hanbury-Brown und Twiss [BT56] bestimmt. Abbildung 8.4b zeigt das Ergebnis der Messung. An die Messdaten wird eine Funktion nach Gleichung 8.1 angenähert. Der daraus erhaltene Wert $g^{(2)}(\tau = 0) = 0.69$ wird allerdings maßgeblich durch die endliche Zeitaufösung der Detektoren (ca. 780 ps) bestimmt. Es ist möglich diese Zeitaufösung zu entfalten

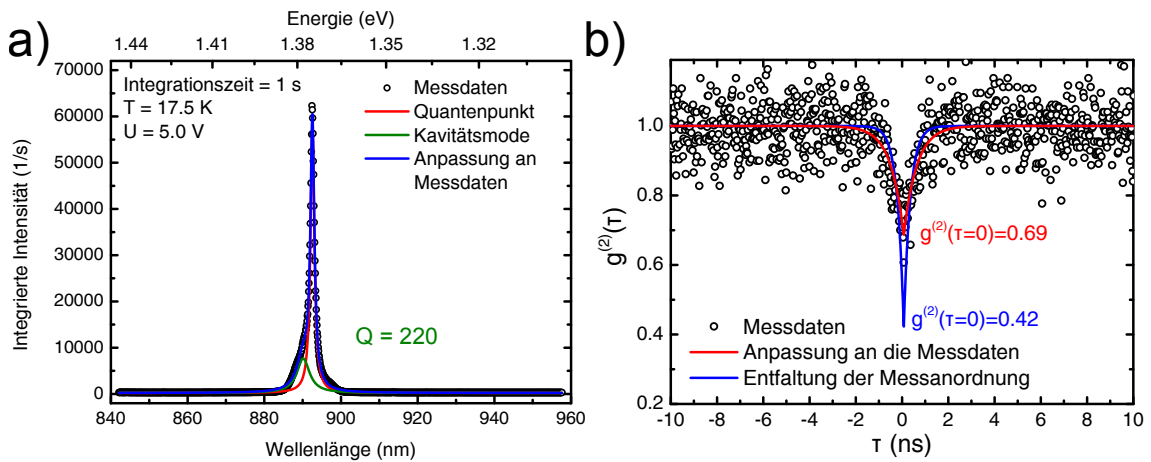


Abbildung 8.4: a) Elektrolumineszenz eines positionierten Quantenpunktes in spektraler Nähe zur Kavitätsmode eines Mikrosäulenresonators. b) Gemessene Autokorrelationsfunktion der Emission in (a). Die Daten (schwarze offene Kreise) wurden durch eine im Text beschriebene Funktion angenähert (rot). Die blaue Kurve stellt die Näherungsfunktion nach Entfaltung der endlichen Zeitauflösung der Detektoren dar.

[HSL⁺10] und so einen bereinigten Wert für $g^{(2)}(\tau = 0)$ zu erhalten. Der so erhaltene Wert ist ein Maß für die Qualität der Einzelphotonenemission und beträgt:

$$g^{(2)}(\tau = 0) = 0.42$$

Damit ist der Grenzwert von 0.5 (siehe Unterabschnitt 2.1.2) deutlich unterschritten und ein Nachweis erbracht, dass die in dieser Arbeit realisierte Quelle als Einzelphotonenemitter eingesetzt werden kann. In der Literatur wurden bisher nur optisch betriebene Einzelphotonenquellen mit positionierten Quantenpunkten [SHH⁺09, MSMMH⁺09, BMP⁺06, HCC⁺07, MOB⁺05] oder lithographisch definierten Quantenpunkten¹ [VSS⁺11] beschrieben, sowie die Einzelphotonenemission aus einer invertierten Pyramide in (111)-GaAs [PDM⁺12, Bai05]. Diese Arbeit zeigt somit die erste Realisierung einer elektrisch betriebenen Einzelphotonenquelle mit einem skalierbar positionierten Quantenpunkt [SHH⁺12] in einem Resonator auf Basis von (100)-orientiertem GaAs. Dies stellt einen weiteren wichtigen Schritt in Richtung der praktischen, alltagstauglichen Anwendung solcher Quellen für die Quantenkryptographie dar.

¹Details zum Herstellungsprozess solcher lithographisch definierten Quantenpunkte finden sich u. a. in [SC86, FSK⁺96, SKO⁺96]

Nomenklatur

ΔE_{LB}	Energieunterschied der Leitungsbandkanten
ΔE_{VB}	Energieunterschied der Valenzbandkanten
λ	Wellenlänge
λ_D	Diffusionslänge
τ	Zeitunterschied
τ_0 und τ_1	Zeitkonstanten der Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung
τ_D	mittlere Zeit
X^\uparrow, X^\downarrow	Exzitonische Energieniveaus im Quantenpunkt
a	Abstand zwischen optisch aktivem, positionierten Quantenpunkt und geätztem Loch
b	Abstand zwischen optisch aktivem, positionierten Quantenpunkt und Seitenwand einer Mesa
c	GaAs-Schichtdicke über einem positionierten Quantenpunkt
D	Diffusionskoeffizient
d	Schichtdicke
E_{Bindung}	Bindungsenergie
E_{FSS}	Energieunterschied der beiden exzitonischen Niveaus aufgrund der Feinstrukturaufspaltung
$E_{\text{Gap, InAs}}$	Bandlückenenergie von InAs
E_{OF}	Oberflächenenergie
E_{Stufe}	Energiebeitrag von Materialstufen zur Oberflächenenergie
$E_{\text{Verspannung}}$	Verspannungsenergie

$g^{(2)}(\tau)$	Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung
h	Planksches Wirkungsquantum mit dem Wert $6.63 \cdot 10^{-34} \text{Js}$
I	Intensität
m	Faktor zur Berücksichtigung des zugrunde liegenden Kristallgitters bei Diffusionsprozessen auf Oberflächen
n	Brechungsindex
P	Anregungsleistung
Q	Güte eines Resonators (engl. Q-factor)
R_s	Diffusionskoeffizient
t	Zeit
V_{Mode}	Modenvolumen eines Resonators
AFM(-Aufnahme)	Rasterkraftmikroskop(-Aufnahme), vom engl. atomic force microscope
Al	Aluminium
As	Arsen
BCB	Benzocyclobuten: aromatische Kohlenwasserstoffverbindung mit der Polymere gebildet werden können
E-Beam(-Anlage)	Elektronenstrahlolithographie(-Anlage), vom engl. electron beam lithography
FSS	Feinstrukturaufspaltung, engl. fine structure splitting
Ga	Gallium
H	horizontale Polarisierung
IGP	Ionengetterpumpe
In	Indium
LB	Leitungsband
LHe	flüssiges Helium
MBE	Molekularstrahlepitaxie (engl. molecular beam epitaxy)

Nd:YAG-Laser	Neodym-dotierter Yttrium-Aluminium-Granat-Laser
PCA(-Schritt)	partial capping and annealing (-Schritt); in-situ-Ausheilschritt von Quantenpunkten nach Abscheiden einer dünnen GaAs-Schicht
PMMA	Polymethylmethacrylat
QP	Quantenpunkt
REM(-Aufnahme)	Rasterelektronenmikroskop(-Aufnahme)
RIE	vom engl. reactive ion etching; reaktives Ionen-Ätzen
SIMS	Sekundärionen-Massenspektroskopie
TEM(-Aufnahme)	Transmissionselektronenmikroskop(-Aufnahme)
UV	ultra-violett
V	vertikale Polarisation
VB	Valenzband
WCE	vom engl. wet chemical etching; nasschemisches Ätzen
X	Exziton
X^+	positiv geladenes Exziton
X^-	negativ geladenes Exziton
X_1 bis X_6	Emissionslinien eines Quantenpunktes
XX	Biexziton

Literaturverzeichnis

- [AAK⁺70] Z. I. Alferov, V. M. Andreev, M. B. Kagan, I. I. Protasov und V. G. Trofim: *Solar-energy converters based on p-n Al_xGa_{1-x}As - GaAs heterojunctions*. Soviet Physics - Semiconductors, 4:2047, 1970.
- [AASN03a] Y. Akahane, T. Asano, B. S. Song und S. Noda: *High-Q photonic nanocavity in a two-dimensional photonic crystal*. Nature, 425(6961):944–947, 2003.
- [AASN03b] Y. Akahane, T. Asano, B. S. Song und S. Noda: *Investigation of high-Q channel drop filters using donor-type defects in two-dimensional photonic crystal slabs*. Applied Physics Letters, 83(8):1512–1514, 2003.
- [AB98] G. Attard und C. Barnes: *Surfaces*. Oxford Chemistry Primers. Oxford University Press, Oxford, 1998.
- [Ada85] S. Adachi: *GaAs, AlAs, and Al_xGa_{1-x}As: Material parameters for use in research and device applications*. Journal of Applied Physics, 58(3):R1–R29, 1985.
- [AGB⁺98] F. Adler, M. Geiger, A. Bauknecht, D. Haase, P. Ernst, A. Dornen, F. Scholz und H. Schweizer: *Self-assembled InAs/GaAs quantum dots under resonant excitation*. Journal of Applied Physics, 83(3):1631–1636, 1998.
- [AGLC91] M. T. Asom, M. Geva, R. E. Leibenguth und S. N. G. Chu: *Interface disorder in AlAs/(Al)GaAs Bragg reflectors*. Applied Physics Letters, 59(8):976–978, 1991.
- [AGN⁺08] K. Aoki, D. Guimard, M. Nishioka, M. Nomura, S. Iwamoto und Y. Arakawa: *Coupling of quantum-dot light emission with a three-dimensional photonic-crystal nanocavity*. Nature Photonics, 2(11):688–692, 2008.
- [AHK03] M. Achermann, J. A. Hollingsworth und V. I. Klimov: *Multiexcitons confined within a subexcitonic volume: Spectroscopic and dynamical signatures of neutral and charged biexcitons in ultrasmall semiconductor nanocrystals*. Physical Review B, 68:245302, 2003.
- [Aic05] T. Aichele: *Dissertation*. Dissertation, Humboldt-Universität zu Berlin, 2005.

- [AJK05] J. B. Altepeter, E. R. Jeffrey und P. G. Kwiat: *Photonic State Tomography*. Advances In Atomic, Molecular, and Optical Physics, 52:105 – 159, 2005.
- [AKB⁺08] P. Atkinson, S. Kiravittaya, M. Benyoucef, A. Rastelli und O. G. Schmidt: *Site-controlled growth and luminescence of InAs quantum dots using in situ Ga-assisted deoxidation of patterned substrates*. Applied Physics Letters, 93(10):101908, 2008.
- [ALP⁺06] 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*. Physical Review Letters, 96:130501, 2006.
- [AMS86] M. Asada, Y. Miyamoto und Y. Suematsu: *Gain and the threshold of three-dimensional quantum-box lasers*. IEEE Journal of Quantum Electronics, 22(9):1915 – 1921, 1986.
- [ANG⁺89] D. J. Arent, S. Nilsson, Y. D. Galeuchet, H. P. Meier und W. Walter: *Indium adatom migration during molecular beam epitaxial growth of strained InGaAs/GaAs single quantum wells*. Applied Physics Letters, 55(25):2611–2613, 1989.
- [APG99] L. C. Andreani, G. Panzarini und J. M. Gérard: *Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities: Theory*. Physical Review B, 60:13276–13279, 1999.
- [APS⁺06] F. Arciprete, E. Placidi, V. Sessi, M. Fanfoni, F. Patella und A. Balzarotti: *How kinetics drives the two- to three-dimensional transition in semiconductor strained heterostructures: The case of InAs/GaAs(001)*. Applied Physics Letters, 89(4):041904, 2006.
- [AR04] Z. I. Alferov und V. D. Rumyantsev: *Next Generation Photovoltaics - High efficiency through full spectrum utilization*, Kapitel Trends in the development of solar photovoltaics, Seiten 19–49. Series in Optics and Optoelectronics. IOP Publishing Ltd, 2004.
- [AS82] Y. Arakawa und H. Sakaki: *Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current*. Applied Physics Letters, 40(11):939–941, 1982.
- [ASBR08] P. Atkinson, O. G. Schmidt, S. P. Bremner und D. A. Ritchie: *Formation and ordering of epitaxial quantum dots*. Comptes Rendus Physique, 9(8):788 – 803, 2008.
- [ASS⁺10] 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*. Applied Physics Letters, 96(15):151102, 2010.

- [AUU⁺09] S. Ates, S. M. Ulrich, A. Ulhaq, S. Reitzenstein, A. Löffler, S. Hofling, A. Forchel und P. Michler: *Non-resonant dot-cavity coupling and its potential for resonant single-quantum-dot spectroscopy*. Nature Photonics, 3(12):724–728, 2009.
- [AWB⁺06] P. Atkinson, M. B. Ward, S. P. Bremner, D. Anderson, T. Farrow, G. A. C. Jones, A. J. Shields und D. A. Ritchie: *Site-Control of InAs Quantum Dots using Ex-Situ Electron-Beam Lithographic Patterning of GaAs Substrates*. Japanese Journal of Applied Physics, 45:2519–2521, 2006.
- [AZL⁺07] B. Alloing, C. Zinoni, L. H. Li, A. Fiore und G. Patriarche: *Structural and optical properties of low-density and In-rich InAs/GaAs quantum dots*. Journal of Applied Physics, 101(2):024918, 2007.
- [AZZ⁺05] B. Alloing, C. Zinoni, V. Zwiller, L. H. Li, C. Monat, M. Gobet, G. Buchs, A. Fiore, E. Pelucchi und E. Kapon: *Growth and characterization of single quantum dots emitting at 1300 nm*. Applied Physics Letters, 86(10):101908, 2005.
- [BAB⁺94] K. Brunner, G. Abstreiter, G. Böhm, G. Tränkle und G. Weimann: *Sharp-Line Photoluminescence and Two-Photon Absorption of Zero-Dimensional Biexcitons in a GaAs/AlGaAs Structure*. Physical Review Letters, 73:1138–1141, 1994.
- [Bai05] MH Baier: *Correlated photon emission from pyramidal quantum dot heterostructures*. Dissertation, École Polytechnique Fédérale de Lausanne, 2005.
- [BAS⁺06] A. J. Bennett, P. Atkinson, P. See, M. B. Ward, R. M. Stevenson, Z. L. Yuan, D. C. Unitt, D. J. P. Ellis, K. Cooper, D. A. Ritchie und A. J. Shields: *Single-photon-emitting diodes: a review*. physica status solidi (b), 243(14):3730–3740, 2006.
- [BAW⁺92] K. Brunner, G. Abstreiter, M. Walther, G. Böhm und G. Tränkle: *Optical characterization of GaAs/AlGaAs nanostructures fabricated by focussed laser beam induced thermal interdiffusion*. Surface Science, 267:218 – 222, 1992.
- [BB84] C. H. Bennett und G. Brassard: *Quantum cryptography : Public key distribution and coin tossing*. Proceedings of IEEE International Conference on Computers, Systems and Signal Processing, 1984.
- [BBG⁺02] W. L. Barnes, G. Björk, J. M. Gerard, P. Jonsson, J. A. E. Wasey, P. T. Worthing und V. Zwiller: *Solid-state single photon sources: light collection strategies*. The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics, 18:197–210, 2002.
- [BBH⁺11] G. Biasiol, V. Baranwal, S. Heun, M. Prasciolu, M. Tormen, A. Locatelli, T. O. Montes, M. A. Nino und L. Sorba: *Composition unifor-*

- mity of site-controlled InAs/GaAs quantum dots.* Journal of Crystal Growth, 323(1):176 – 179, 2011.
- [BBPS77] J. C. Bean, G. E. Becker, P. M. Petroff und T. E. Seidel: *Dependence of residual damage on temperature during Ar+ sputter cleaning of silicon.* Journal of Applied Physics, 48(3):907–913, 1977.
- [BCPK04] M. H. Baier, C. Constantin, E. Pelucchi und E. Kapon: *Electroluminescence from a single pyramidal quantum dot in a light-emitting diode.* Applied Physics Letters, 84(11):1967–1969, 2004.
- [BDCZ98] H. J. Briegel, W. Dür, J. I. Cirac und P. Zoller: *Quantum Repeaters: The Role of Imperfect Local Operations in Quantum Communication.* Physical Review Letters, 81:5932–5935, 1998.
- [BES⁺07] A. J. Bennett, D. J. P. Ellis, A. J. Shields, P. Atkinson, I. Farrer und D. A. Ritchie: *Observation of the Purcell effect in high-index-contrast micropillars.* Applied Physics Letters, 90(19):191911, 2007.
- [BEZ00] D. Bouwmeester, A. K. Ekert und A. Zeilinger (Herausgeber): *The Physics of Quantum Information: Quantum Cryptography, Quantum Teleportation, Quantum Computation.* Springer, Berlin, 2000.
- [BF02] M. Bayer und A. Forchel: *Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in In_{0.60}Ga_{0.40}As/GaAs self-assembled quantum dots.* Physical Review B, 65:041308, 2002.
- [BFC⁺06] A. Berthelot, I. Favero, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, R. Ferreira und J. M. Gerard: *Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantum dot.* Nature Physics, 2(11):759–764, 2006.
- [BFRH11] C. G. Bailey, D. V. Forbes, R. P. Raffaele und S. M. Hubbard: *Near 1 V open circuit voltage InAs/GaAs quantum dot solar cells.* Applied Physics Letters, 98(16):163105, 2011.
- [BGLK02] G. Biasiol, A. Gustafsson, K. Leifer und E. Kapon: *Mechanisms of self-ordering in nonplanar epitaxy of semiconductor nanostructures.* Physical Review B, 65:205306, 2002.
- [BHA⁺97] O. Baklenov, D. L. Huffaker, A. Anselm, D. G. Deppe und B. G. Streetman: *Influence of Al content on formation of InAlGaAs quantum dots grown by molecular beam epitaxy.* Journal of Applied Physics, 82(12):6362–6364, 1997.
- [BHA⁺05] A. Badolato, K. Hennessy, M. Atatüre, J. Dreiser, E. Hu, P. M. Petroff und A. Imamoglu: *Deterministic Coupling of Single Quantum Dots to Single Nanocavity Modes.* Science, 308(5725):1158–1161, 2005.
- [BKL⁺11] J. Beetz, C. Kistner, M. Lerner, C. Schneider, S. Reitzenstein, S. Höfling, M. Kamp und A. Forchel: *In-plane manipulation of quantum*

- dots in high quality laterally contacted micropillar cavities.* Applied Physics Letters, 98(19):191111, 2011.
- [BKM⁺01] C. Becher, A. Kiraz, P. Michler, A. Imamoglu, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, Lidong Zhang und E. Hu: *Nonclassical radiation from a single self-assembled InAs quantum dot.* Physical Review B, 63:121312, 2001.
- [BKMM01] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal und H. Mariette: *Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission.* Physical Review B, 63:155307, 2001.
- [BMP⁺06] M. H. Baier, A. Malko, E. Pelucchi, D. Y. Oberli und E. Kapon: *Quantum-dot exciton dynamics probed by photon-correlation spectroscopy.* Physical Review B, 73:205321, 2006.
- [BNZ03] G. Bester, S. Nair und A. Zunger: *Pseudopotential calculation of the excitonic fine structure of million-atom self-assembled $In_{1-x}Ga_xAs/GaAs$ quantum dots.* Physical Review B, 67:161306, 2003.
- [BOS⁺02] 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 $In(Ga)As/(Al)GaAs$ quantum dots.* Physical Review B, 65:195315, 2002.
- [BRK⁺08] 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.* Applied Physics Letters, 92(9):091107, 2008.
- [BSH⁺00] M. Bayer, O. Stern, P. Hawrylak, S. Fafard und A. Forchel: *Hidden symmetries in the energy levels of excitonic artificial atoms.* Nature, 405(6789):923–926, 2000.
- [BSPY00] O. Benson, C. Santori, M. Pelton und Y. Yamamoto: *Regulated and Entangled Photons from a Single Quantum Dot.* Physical Review Letters, 84:2513–2516, 2000.
- [BT56] R. H. Brown und R. Q. Twiss: *Correlation between Photons in two Coherent Beams of Light.* Nature, 177(4497):27–29, 1956.
- [BUA⁺05] A. Bennett, D. Unitt, P. Atkinson, D. Ritchie und A. Shields: *High performance single photon sources from photolithographically defined pillar microcavities.* Optics Express, 13(1):50–55, 2005.
- [BWA⁺91] T. Van Buuren, M. K. Weilmeier, I. Athwal, K. M. Colbow, J. A. Mackenzie, T. Tiedje, P. C. Wong und K. A. R. Mitchell: *Oxide thickness effect and surface roughening in the desorption of the oxide from GaAs.* Applied Physics Letters, 59(4):464–466, 1991.

- [BWPK04] M. H. Baier, S. Watanabe, E. Pelucchi und E. Kapon: *High uniformity of site-controlled pyramidal quantum dots grown on prepatterned substrates*. Applied Physics Letters, 84(11):1943–1945, 2004.
- [BY91] G. Bjork und Y. Yamamoto: *Analysis of semiconductor microcavity lasers using rate equations*. IEEE Journal of Quantum Electronics, 27:2386–2396, 1991.
- [CABA99] L. Chu, M. Arzberger, G. Bohm und G. Abstreiter: *Influence of growth conditions on the photoluminescence of self-assembled InAs/GaAs quantum dots*. Journal of Applied Physics, 85(4):2355–2362, 1999.
- [CBM⁺10] J. Claudon, J. Bleuse, N. S. Malik, M. Bazin, P. Jaffrennou, N. Gregersen, C. Sauvan, P. Lalanne und J. M. Gerard: *A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire*. Nature Photonics, 4(3):174–177, 2010.
- [CC90a] N. Chand und S. N. G. Chu: *A comprehensive study and methods of elimination of oval defects in MBE-GaAs*. Journal of Crystal Growth, 104(2):485 – 497, 1990.
- [CC90b] N. Chand und S. N. G. Chu: *Origin and improvement of interface roughness in AlGaAs/GaAs heterostructures grown by molecular beam epitaxy*. Applied Physics Letters, 57(17):1796–1798, 1990.
- [CECP09] J. Chan, M. Eichenfield, R. Camacho und O. Painter: *Optical and mechanical design of a zipper photonic crystaloptomechanical cavity*. Optics Express, 17(5):3802–3817, 2009.
- [CGD⁺11] R. Carron, P. Gallo, B. Dwir, A. Rudra und E. Kapon: *Dilute-nitride GaInAsN/GaAs site-controlled pyramidal quantum dots*. Applied Physics Letters, 99(18):181113, 2011.
- [Cha75] T. H. P. Chang: *Proximity effect in electron-beam lithography*. Journal of Vacuum Science and Technology, 12(6):1271–1275, 1975.
- [Cha89] N. Chand: *MBE growth of high-quality GaAs*. Journal of Crystal Growth, 97(2):415 – 429, 1989.
- [CMS⁺04] C. Couteau, S. Moehl, J. Suffczynski, J. A. Gaj, F. Tinjod, J. M. Gerard, K. Kheng, H. Mariette, R. Romestain und J. P. Poizat: *Photon Correlations and Cross-Correlations from a Single CdTe/ZnTe Quantum Dot*. Acta Physica Polonica A, 106:169, 2004.
- [CRM⁺04] G. Costantini, A. Rastelli, C. Manzano, R. Songmuang, O. G. Schmidt, K. Kern und H. von Kanel: *Universal shapes of self-organized semiconductor quantum dots: Striking similarities between InAs/GaAs(001) and Ge/Si(001)*. Applied Physics Letters, 85(23):5673–5675, 2004.

- [Dav98] J. H. Davies: *Elastic and piezoelectric fields around a buried quantum dot: A simple picture*. Journal of Applied Physics, 84(3):1358–1365, 1998.
- [dB29] L. de Broglie: *The wave nature of the electron*. Nobel Lecture, Seiten 244–256, 1929.
- [DCK⁺08] G. E. Dialynas, N. Chatzidimitriou, S. Kalliakos, S. Tsintzos, P. G. Savvidis, Z. Hatzopoulos und N. T. Pelekanos: *Single dot spectroscopy on InAs/GaAs piezoelectric quantum dots*. physica status solidi (a), 205(11):2566–2568, 2008.
- [Deu10] Bundeskriminalamt Deutschland: *Polizeiliche Kriminalstatistik 2010*. Technischer Bericht, Bundesministerium des Inneren, 2010.
- [DGE⁺98] E. Dekel, D. Gershoni, E. Ehrenfreund, D. Spektor, J. M. Garcia und P. M. Petroff: *Multiexciton Spectroscopy of a Single Self-Assembled Quantum Dot*. Physical Review Letters, 80:4991–4994, 1998.
- [DGR⁺11] N. L. Dias, A. Garg, U. Reddy, J. D. Young, V. B. Verma, R. P. Mirin und J. J. Coleman: *Directed self-assembly of InAs quantum dots on nano-oxide templates*. Applied Physics Letters, 98(14):141112, 2011.
- [Dic54] R. H. Dicke: *Coherence in Spontaneous Radiation Processes*. Physical Review, 93:99–110, 1954.
- [DKX⁺10] G. E. Dialynas, S. Kalliakos, C. Xenogianni, M. Androulidaki, T. Kehagias, P. Komninou, P. G. Savvidis, Z. Hatzopoulos und N. T. Pelekanos: *Piezoelectric InAs (211)B quantum dots grown by molecular beam epitaxy: Structural and optical properties*. Journal of Applied Physics, 108(10):103525, 2010.
- [DLP⁺11] W. Dörfler, A. Lechleiter, M. Plum, G. Schneider und C. Wieners: *Photonic Crystals: Mathematical Analysis and Numerical Approximation*. Springer, Basel, 2011.
- [DMF⁺09] P. B. Deotare, M. W. McCutcheon, I. W. Frank, M. Khan und M. Loncar: *High quality factor photonic crystal nanobeam cavities*. Applied Physics Letters, 94(12):121106, 2009.
- [DRD98] H. Düsterhöft, M. Riedel und B. K. Düsterhöft: *Einführung in die Sekundärionenmassenspektroskopie*. Teubner, Wiesbaden, 1998.
- [DSB⁺09] A. Dousse, J. Suffczynski, R. Braive, A. Miard, A. Lemaitre, I. Sagnes, L. Lanco, J. Bloch, P. Voisin und P. Senellart: *Scalable implementation of strongly coupled cavity-quantum dot devices*. Applied Physics Letters, 94(12):121102, 2009.
- [DSB⁺10] 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(7303):217–220, 2010.

- [EB97] S. A. Empedocles und M. G. Bawendi: *Quantum-Confined Stark Effect in Single CdSe Nanocrystallite Quantum Dots*. Science, 278(5346):2114–2117, 1997.
- [EFF⁺07] D. Englund, A. Faraon, I. Fushman, N. Stoltz, P. Petroff und J. Vuckovic: *Controlling cavity reflectivity with a single quantum dot*. Nature, 450(7171):857–861, 2007.
- [EHH⁺91] M. T. Emeny, L. K. Howard, K. P. Homewood, J. D. Lambkin und C. R. Whitehouse: *A photoluminescence study of indium desorption from strained Ga_{1-x}In_xAs/GaAs*. Journal of Crystal Growth, 111(1-4):413 – 418, 1991.
- [Eke91] A. K. Ekert: *Quantum cryptography based on Bell’s theorem*. Physical Review Letters, 67:661–663, 1991.
- [ENB96] S. A. Empedocles, D. J. Norris und M. G. Bawendi: *Photoluminescence Spectroscopy of Single CdSe Nanocrystallite Quantum Dots*. Physical Review Letters, 77:3873–3876, 1996.
- [ESLJ89] K. R. Evans, C. E. Stutz, D. K. Lorange und R. L. Jones: *Cation incorporation rate limitations in molecular-beam epitaxy: Effects of strain and surface composition*. Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures, 7(2):259–263, 1989.
- [ESY⁺07] D. J. P. Ellis, R. M. Stevenson, R. J. Young, A. J. Shields, P. Atkinson und D. A. Ritchie: *Control of fine-structure splitting of individual InAs quantum dots by rapid thermal annealing*. Applied Physics Letters, 90(1):011907, 2007.
- [FAL⁺01] J. J. Finley, A. D. Ashmore, A. Lemaitre, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, I. E. Itskevich, P. A. Maksym, M. Hopkinson und T. F. Krauss: *Charged and neutral exciton complexes in individual self-assembled InGaAs quantum dots*. Physical Review B, 63:073307, 2001.
- [Far95] R. F. C. Farrow (Herausgeber): *Molecular Beam Epitaxy: Applications to Key Materials*. Noyes Publications, New Jersey, 1995.
- [FGM⁺09] M. Felici, P. Gallo, A. Mohan, B. Dwir, A. Rudra und E. Kapon: *Site-Controlled InGaAs Quantum Dots with Tunable Emission Energy*. Small, 5(8):938–943, 2009.
- [FNI⁺11] S. Faure, M. Nishioka, S. Ishida, D. Guimard und Y. Arakawa: *Metal Organic Chemical Vapor Deposition Growth of High Spectral Quality Site-Controlled InAs Quantum Dots Using In situ Patterning*. Applied Physics Express, 4(11):112001, 2011.
- [FSB⁺08] T. Farrow, P. See, A. J. Bennett, M. B. Ward, P. Atkinson, K. Cooper, D. J. P. Ellis, D. C. Unitt, D. A. Ritchie und A. J. Shields:

- Single-photon emitting diode based on a quantum dot in a micro-pillar.* Nanotechnology, 19(34):345401, 2008.
- [FSK⁺96] A. Forchel, R. Steffen, T. Koch, M. Michel, M. Albrecht und T. L. Reinecke: *Optical studies of free-standing single InGaAs/GaAs quantum dots.* Semiconductor Science and Technology, 11(11S):1529, 1996.
- [GBD⁺11] S. Germanis, A. Beveratos, G. E. Dialynas, G. Deligeorgis, P. G. Savvidis, Z. Hatzopoulos und N. T. Pelekanos: *InAs/GaAs (211)B quantum dots with negligible FSS for the generation of entangled photons.* arXiv:1103.5424v1, 2011.
- [GDD⁺11] S. Germanis, G. E. Dialynas, G. Deligeorgis, P. G. Savvidis, Z. Hatzopoulos und N. T. Pelekanos: *Polarization Resolved Single Dot Spectroscopy of (211)B InAs Quantum Dots.* AIP Conference Proceedings, 1399(1):417–418, 2011.
- [GFD⁺08] P. Gallo, M. Felici, B. Dwir, K. A. Atlasov, K. F. Karlsson, A. Rudra, A. Mohan, G. Biasiol, L. Sorba und E. Kapon: *Integration of site-controlled pyramidal quantum dots and photonic crystal membrane cavities.* Applied Physics Letters, 92(26):263101, 2008.
- [GFLG⁺11] N. Gogneau, B. Fain, L. Le Gratiet, G. Patriarche, L. Largeau, G. Beaudoin, C. Ulysse, D. Elvira, R. Braive, A. Beveratos, I. Robert-Philip und I. Sagnes: *Selective growth of site-controlled Quantum Dots.* In: *Winter Topicals (WTM), 2011 IEEE*, Seiten 37–38, 2011.
- [GHFB79] F. Gounand, M. Hugon, P. R. Fournier und J. Berlande: *Super-radiant cascading effects in rubidium Rydberg levels.* Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics, 12(4):547, 1979.
- [GLH⁺95] M. Grundmann, N. N. Ledentsov, R. Heitz, L. Eckey, J. Christen, J. Böhrer, D. Bimberg, S. S. Ruvimov, P. Werner, U. Richter, J. Heydenreich, V. M. Ustinov, A. Y. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kopev und Z. I. Alferov: *InAs/GaAs quantum dots radiative recombination from zero-dimensional states.* physica status solidi (b), 188(1):249–258, 1995.
- [GLS⁺96] M. Grundmann, N. N. Ledentsov, O. Stier, D. Bimberg, V. M. Ustinov, P. S. Kopev und Z. I. Alferov: *Excited states in self-organized InAs/GaAs quantum dots: Theory and experiment.* Applied Physics Letters, 68(7):979–981, 1996.
- [GM93] N. Grandjean und J. Massies: *Epitaxial growth of highly strained In_xGa_{1-x}As on GaAs(001): the role of surface diffusion length.* Journal of Crystal Growth, 134(1-2):51–62, 1993.
- [GMH⁺98] J. M. Garcia, T. Mankad, P. O. Holtz, P. J. Wellman und P. M. Petroff: *Electronic states tuning of InAs self-assembled quantum dots.* Applied Physics Letters, 72(24):3172–3174, 1998.

- [GMRS⁺97] J. M. Garcia, G. Medeiros-Ribeiro, K. Schmidt, T. Ngo, J. L. Feng, A. Lorke, J. Kotthaus und P. M. Petroff: *Intermixing and shape changes during the formation of InAs self-assembled quantum dots*. Applied Physics Letters, 71(14):2014–2016, 1997.
- [GRG⁺00] S. Gehrsitz, F. K. Reinhart, C. Gourgon, N. Herres, A. Vonlanthen und H. Sigg: *Refractive index of $Al_xGa_{1-x}As$ below the band gap: Accurate determination and empirical modeling*. Journal of Applied Physics, 87:7825–7837, 2000.
- [GSD⁺07] B. D. Gerardot, S. Seidl, P. A. Dalgarno, R. J. Warburton, D. Granados, J. M. Garcia, K. Kowalik, O. Krebs, K. Karrai, A. Badolato und P. M. Petroff: *Manipulating exciton fine structure in quantum dots with a lateral electric field*. Applied Physics Letters, 90(4):041101, 2007.
- [GSG⁺98] J. M. Gerard, B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard und V. Thierry-Mieg: *Enhanced Spontaneous Emission by Quantum Boxes in a Monolithic Optical Microcavity*. Physical Review Letters, 81:1110–1113, 1998.
- [GSK90] D. Gammon, B. V. Shanabrook und D. S. Katzer: *Interfaces in GaAs/AlAs quantum well structures*. Applied Physics Letters, 57(25):2710–2712, 1990.
- [GSK95] D. Gammon, E. S. Snow und D. S. Katzer: *Excited state spectroscopy of excitons in single quantum dots*. Applied Physics Letters, 67(16):2391–2393, 1995.
- [GSS⁺96a] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer und D. Park: *Fine Structure Splitting in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots*. Physical Review Letters, 76:3005–3008, 1996.
- [GSS⁺96b] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer und D. Park: *Homogeneous Linewidths in the Optical Spectrum of a Single Gallium Arsenide Quantum Dot*. Science, 273(5271):87–90, 1996.
- [Har09] P. Harrison: *Quantum Wells, Wires and Dots - Theoretical and Computational Physics of Semiconductor Nanostructures*. Wiley, 2009.
- [HBPH04] K. Hennessy, A. Badolato, P. M. Petroff und E. Hu: *Positioning photonic crystal cavities to single InAs quantum dots*. Photonics and Nanostructures - Fundamentals and Applications, 2(2):65 – 72, 2004.
- [HBW⁺07] K. Hennessy, A. Badolato, M. Winger, D. Gerace, M. Atature, S. Gulde, S. Falt, E. L. Hu und A. Imamoglu: *Quantum nature of a strongly coupled single quantum dot-cavity system*. Nature, 445(7130):896–899, 2007.

- [HCC⁺07] T. P. Hsieh, J. I. Chyi, H. S. Chang, W.-Y.Chen, T. M. Hsu und W. H. Chang: *Single photon emission from an InGaAs quantum dot precisely positioned on a nanoplane*. Applied Physics Letters, 90(7):073105, 2007.
- [HDMS03] H. Heidemeyer, U. Denker, C. Müller und O. G. Schmidt: *Morphology Response to Strain Field Interferences in Stacks of Highly Ordered Quantum Dot Arrays*. Physical Review Letters, 91:196103, 2003.
- [HFK⁺62] R. N. Hall, G. E. Fenner, J. D. Kingsley, T. J. Soltys und R. O. Carlson: *Coherent Light Emission From GaAs Junctions*. Physical Review Letters, 9:366–368, 1962.
- [HGF⁺11] M. Helfrich, R. Groger, A. Forste, D. Litvinov, D. Gerthsen, T. Schimmel und D. Schaadt: *Investigation of pre-structured GaAs surfaces for subsequent site-selective InAs quantum dot growth*. Nano-scale Research Letters, 6(1):211, 2011.
- [HHG⁺11] J. Hendrickson, M. Helfrich, M. Gehl, D. Hu, D. Schaadt, S. Linden, M. Wegener, B. Richards, H. Gibbs und G. Khitrova: *InAs quantum dot site-selective growth on GaAs substrates*. physica status solidi (c), 8(4):1242–1245, 2011.
- [HHH⁺11] M. Helfrich, D. Z. Hu, J. Hendrickson, M. Gehl, D. Rülke, R. Gröger, D. Litvinov, S. Linden, M. Wegener, D. Gerthsen, T. Schimmel, M. Hetterich, H. Kalt, G. Khitrova, H. M. Gibbs und D. M. Schaadt: *Growth and annealing of InAs quantum dots on pre-structured GaAs substrates*. Journal of Crystal Growth, 323(1):187 – 190, 2011.
- [HHR⁺11] M. Helfrich, J. Hendrickson, D. Rülke, H. Kalt, M. Hetterich, G. Khitrova, H. Gibbs, S. Linden, M. Wegener, D. Z. Hu und D. M. Schaadt: *Thermal annealing of InAs quantum dots on patterned GaAs substrates*. AIP Conference Proceedings, 1399(1):217–218, 2011.
- [HHS⁺11] 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*. Applied Physics Letters, 98(13):131104, 2011.
- [HIWK90] M. Hata, T. Isu, A. Watanabe und Y. Katayama: *Distributions of growth rates on patterned surfaces measured by scanning microprobe reflection high-energy electron diffraction*. Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures, 8(4):692–696, 1990.
- [HKY88] Y. Horikoshi, M. Kawashima und H. Yamaguchi: *Migration-Enhanced Epitaxy of GaAs and AlGaAs*. Japanese Journal of Applied Physics, 27:169–179, 1988.

- [HLRK97] A. Hartmann, L. Loubies, F. Reinhardt und E. Kapon: *Self-limiting growth of quantum dot heterostructures on nonplanar 111B substrates*. Applied Physics Letters, 71(10):1314–1316, 1997.
- [HMC91] T. Hayakawa, M. Morishima und S. Chen: *Surface reconstruction limited mechanism of molecular-beam epitaxial growth of AlGaAs on (111)B face*. Applied Physics Letters, 59(25):3321–3323, 1991.
- [HMK⁺97] F. Heinrichsdorff, M. H. Mao, N. Kirstaedter, A. Krost, D. Bimberg, A. O. Kosogov und P. Werner: *Room-temperature continuous-wave lasing from stacked InAs/GaAs quantum dots grown by metalorganic chemical vapor deposition*. Applied Physics Letters, 71(1):22–24, 1997.
- [HMR08] C. Y. Hu, W. J. Munro und J. G. Rarity: *Deterministic photon entangler using a charged quantum dot inside a microcavity*. Physical Review B, 78:125318, 2008.
- [HMS04] H. Heidemeyer, C. Müller und O. G. Schmidt: *Highly ordered arrays of In(Ga)As quantum dots on patterned GaAs (001) substrates*. Journal of Crystal Growth, 261(4):444 – 449, 2004.
- [HSD⁺11] 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*. Journal of Crystal Growth, 323(1):194 – 197, 2011.
- [HSH⁺06] R. Herrmann, T. Sünner, T. Hein, A. Löffler, M. Kamp und A. Forchel: *Ultrahigh-quality photonic crystal cavity in GaAs*. Optics Letters, 31(9):1229–1231, 2006.
- [HSL⁺10] T. Heindel, C. Schneider, M. Lermer, 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*. Applied Physics Letters, 96(1):011107, 2010.
- [HTK⁺02] T. D. Happ, I. I. Tartakovskii, V. D. Kulakovskii, J. P. Reithmaier, M. Kamp und A. Forchel: *Enhanced light emission of $In_xGa_{1-x}As$ quantum dots in a two-dimensional photonic-crystal defect microcavity*. Physical Review B, 66:041303, 2002.
- [HUM⁺07] R. Hafenbrak, S. M. Ulrich, P. Michler, L. Wang, A. Rastelli und O. G. Schmidt: *Triggered polarization-entangled photon pairs from a single quantum dot up to 30 K*. New Journal of Physics, 9(9):315, 2007.
- [HVL⁺97] R. Heitz, M. Veit, N. N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev und Zh. I. Alferov: *Energy relaxation by multiphonon processes in InAs/GaAs quantum dots*. Physical Review B, 56:10435–10445, 1997.

- [HWH⁺99] R. Hey, M. Wassermeier, M. Höricke, E. Wiebicke und H. Kostial: *Minimizing interface contamination in MBE overgrowth*. Journal of Crystal Growth, 201/202(0):582 – 585, 1999.
- [IKA98] T. Ishikawa, S. Kohmoto und K. Asakawa: *Site control of self-organized InAs dots on GaAs substrates by in situ electron-beam lithography and molecular-beam epitaxy*. Applied Physics Letters, 73(12):1712–1714, 1998.
- [IL02] H. Ibach und H. Lüth: *Einführung in die Festkörperphysik*. Springer, Berlin, 2002.
- [INKA00] 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*. Applied Physics Letters, 76(2):167–169, 2000.
- [JJWm08] J. D. Joannopoulos, S. G. Johnson, N. J. Winn und R. D. Meade: *Photonic Crystals: Molding the Flow of Light (Second Edition)*. Princeton University Press, Princeton, 2008.
- [JMH⁺96] S. Jeppesen, M. S. Miller, D. Hessman, B. Kowalski, I. Maximov und L. Samuelson: *Assembling strained InAs islands on patterned GaAs substrates with chemical beam epitaxy*. Applied Physics Letters, 68(16):2228–2230, 1996.
- [Joh87] S. John: *Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices*. Physical Review Letters, 58:2486–2489, 1987.
- [JP95] D. E. Jesson und S. J. Pennycook: *Incoherent Imaging of Crystals Using Thermally Scattered Electrons*. Proceedings of the Royal Society of London. Series A: Mathematical and Physical Sciences, 449(1936):273–293, 1995.
- [JVF97] J. D. Joannopoulos, P. R. Villeneuve und S. Fan: *Photonic crystals*. Solid State Communications, 102(2-3):165 – 173, 1997.
- [KAF⁺10] T. Kleinjung, K. Aoki, J. Franke, A. K. Lenstra, E. Thome, J. W. Bos, P. Gaudry, A. Kruppa, P. L. Montgomery, D. A. Osvik, H. Riele, A. Timofeev und P. Zimmermann: *Factorization of a 768-bit RSA modulus*. 2010.
- [KBML07] A. V. Kavokin, J. J. Baumberg, G. Malpuech und F. P. Laussy (Herausgeber): *Microcavities*. Oxford Science Publications, Oxford, 2007.
- [KBW⁺99] V. D. Kulakovskii, G. Bacher, R. Weigand, T. Kummell, A. Forchel, E. Borovitskaya, K. Leonardi und D. Hommel: *Fine Structure of Biexciton Emission in Symmetric and Asymmetric CdSe/ZnSe Single Quantum Dots*. Physical Review Letters, 82:1780–1783, 1999.

- [KBZG⁺06] S. Kiravittaya, M. Benyoucef, R. Zapf-Gottwick, A. Rastelli und O. G. Schmidt: *Ordered GaAs quantum dot arrays on GaAs(001): Single photon emission and fine structure splitting*. Applied Physics Letters, 89(23):233102, 2006.
- [KBZG⁺08] S. Kiravittaya, M. Benyoucef, R. Zapf-Gottwick, A. Rastelli und O.G. Schmidt: *Optical fine structure of single ordered GaAs quantum dots*. Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures, 40(6):1909 – 1912, 2008.
- [KDO⁺10] K. F. Karlsson, M. A. Dupertuis, D. Y. Oberli, E. Pelucchi, A. Rudra, P. O. Holtz und E. Kapon: *Fine structure of exciton complexes in high-symmetry quantum dots: Effects of symmetry breaking and symmetry elevation*. Physical Review B, 81:161307, 2010.
- [KHM⁺11] M. Kaniber, M. F. Huck, K. Müller, E. C. Clark, F. Troiani, M. Bichler, H. J. Krenner und J. J. Finley: *Electrical control of the exciton-biexciton splitting in self-assembled InGaAs quantum dots*. Nanotechnology, 22(32):325202, 2011.
- [KHS04] S. Kiravittaya, H. Heidemeyer und O. G. Schmidt: *Growth of three-dimensional quantum dot crystals on patterned GaAs (001) substrates*. Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures, 23(3-4):253 – 259, 2004.
- [KHS07] S. Kiravittaya, H. Heidemeyer und O. G. Schmidt: *Lateral Alignment of Epitaxial Quantum Dots*, Kapitel : In(Ga)As Quantum Dot Crystals on Patterned GaAs(001) Substrates, Seiten 489–511. Springer, Heidelberg, 2007.
- [KHS⁺08] 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*. Optics Express, 16(19):15006–15012, 2008.
- [KKL⁺05] K. Kowalik, O. Krebs, A. Lemaître, S. Laurent, P. Senellart, P. Voisin und J. A. Gaj: *Influence of an in-plane electric field on exciton fine structure in InAs-GaAs self-assembled quantum dots*. Applied Physics Letters, 86(4):041907, 2005.
- [KKSS07] G. S. Kar, S. Kiravittaya, M. Stoffel und O. G. Schmidt: *Lateral Alignment of Epitaxial Quantum Dots*, Kapitel : Ordered SiGe island arrays: Long range material distribution and possible device applications, Seiten 373–396. Springer, Heidelberg, 2007.
- [KLN⁺08] M. Kaniber, A. Laucht, A. Neumann, J. M. Villas-Boas, M. Bichler, M. C. Amann und J. J. Finley: *Investigation of the nonresonant dot-cavity coupling in two-dimensional photonic crystal nanocavities*. Physical Review B, 77:161303, 2008.

- [KMC98] A. Konkar, A. Madhukar und P. Chen: *Stress-engineered spatially selective self-assembly of strained InAs quantum dots on nonplanar patterned GaAs(001) substrates*. Applied Physics Letters, 72(2):220–222, 1998.
- [KMR⁺10] C. Kistner, K. Morgener, S. Reitzenstein, C. Schneider, S. Höfling, L. Worschech, A. Forchel, P. Yao und S. Hughes: *Strong coupling in a quantum dot micropillar system under electrical current injection*. Applied Physics Letters, 96(22):221102, 2010.
- [KNI⁺02] S. Kohmoto, H. Nakamura, T. Ishikawa, S. Nishikawa, T. Nishimura und K. Asakawa: *Site-controlled self-organization of InAs quantum dots*. Materials Science and Engineering: B, 88(2-3):292 – 297, 2002.
- [KNNA02] S. Kohmoto, H. Nakamura, S. Nishikawa und K. Asakawa: *Three-dimensional site control of self-organized InAs quantum dots by in situ scanning tunneling probe-assisted nanolithography and molecular beam epitaxy*. Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures, 20(3):762–765, 2002.
- [KOS⁺11] N. Kumagai, S. Ohkouchi, M. Shirane, Y. Igarashi, M. Nomura, Y. Ota, S. Yorozu, S. Iwamoto und Y. Arakawa: *Effects of growth temperature of partial GaAs cap on InAs quantum dots in In-flush process for single dot spectroscopy*. physica status solidi (c), 8(2):248–250, 2011.
- [KPW⁺04] E. Kapon, E. Pelucchi, S. Watanabe, A. Malko, M. H. Baier, K. Leifer, B. Dwir, F. Michelini und M. A. Dupertuis: *Site- and energy-controlled pyramidal quantum dot heterostructures*. Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures, 25:288 – 297, 2004.
- [KRS06] S. Kiravittaya, A. Rastelli und O. G. Schmidt: *Photoluminescence from seeded three-dimensional InAs/GaAs quantum-dot crystals*. Applied Physics Letters, 88(4):043112, 2006.
- [KSR⁺06] S. Kiravittaya, R. Songmuang, A. Rastelli, H. Heidemeyer und O. Schmidt: *Multi-scale ordering of self-assembled InAs/GaAs(001) quantum dots*. Nanoscale Research Letters, 1:1–10, 2006.
- [KTH87] E. Kapon, M. C. Tamargo und D. M. Hwang: *Molecular beam epitaxy of GaAs/AlGaAs superlattice heterostructures on nonplanar substrates*. Applied Physics Letters, 50(6):347–349, 1987.
- [KTY⁺08] T. Kihira, S. Tanaka, M. Yamagiwa, Y. Ogawa, F. Minami und N. Koguchi: *Exciton and multi-exciton structures in GaAs quantum dots studied by single-photon correlation spectroscopy*. Journal of Luminescence, 128:800 – 802, 2008.
- [KW97] T. I. Kamins und R. Stanley Williams: *Lithographic positioning of self-assembled Ge islands on Si(001)*. Applied Physics Letters, 71(9):1201–1203, 1997.

- [LBW⁺04] W. Langbein, P. Borri, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter und A. D. Wieck: *Control of fine-structure splitting and biexciton binding in $In_xGa_{1-x}As$ quantum dots by annealing*. Physical Review B, 69:161301, 2004.
- [Leo95] U. Leonhardt: *Quantum-State Tomography and Discrete Wigner Function*. Physical Review Letters, 74:4101–4105, 1995.
- [LGD⁺12] M. Lerner, N. Gregersen, F. Dunzer, S. Reitzenstein, S. Höfling, J. Mörk, L. Worschech, M. Kamp und A. Forchel: *Bloch-Wave Engineering of Quantum Dot Micropillars for Cavity Quantum Electrodynamics Experiments*. Physical Review Letters, 108:057402, 2012.
- [LJSP00] H. Lee, J. A. Johnson, J. S. Speck und P. M. Petroff: *Controlled ordering and positioning of InAs self-assembled quantum dots*. Papers from the 27th conference on the physics and chemistry of semiconductor interfaces, 18(4):2193–2196, 2000.
- [LL98] C. J. Lobo und R. Leon: *InGaAs island shapes and adatom migration behavior on (100), (110), (111), and (311) GaAs surfaces*. Journal of Applied Physics, 83:4168–4172, 1998.
- [LLBX04] J. Liang, H. Luo, R. Beresford und J. Xu: *A growth pathway for highly ordered quantum dot arrays*. Applied Physics Letters, 85(24):5974–5976, 2004.
- [LMP⁺98] L. Landin, M. S. Miller, M. E. Pistol, C. E. Pryor und L. Samuelson: *Optical Studies of Individual InAs Quantum Dots in GaAs: Few-Particle Effects*. Science, 280(5361):262–264, 1998.
- [Lou00] R. Loudon: *The Quantum Theory of Light*. Oxford University Press, Oxford, 2000.
- [LPG04] A. Lemaitre, G. Patriarche und F. Glas: *Composition profiling of InAs/GaAs quantum dots*. Applied Physics Letters, 85(17):3717–3719, 2004.
- [LSB02] S. C. Lee, A. Stintz und S. R. J. Brueck: *Nanoscale limited area growth of InAs islands on GaAs(001) by molecular beam epitaxy*. Journal of Applied Physics, 91(5):3282–3288, 2002.
- [LSC⁺91] Z. Lu, M. T. Schmidt, D. Chen, R. M. Osgood, W. M. Holber, D. V. Podlesnik und J. Forster: *GaAs-oxide removal using an electron cyclotron resonance hydrogen plasma*. Applied Physics Letters, 58(11):1143–1145, 1991.
- [LSS79] G. Laurence, F. Simondet und P. Saget: *Combined RHEED-AES study of the thermal treatment of (001) GaAs surface prior to MBE growth*. Applied Physics A: Materials Science & Processing, 19:63–70, 1979.

- [LvLN⁺06] T. D. Ladd, P. van Loock, K. Nemoto, W. J. Munro und Y. Yamamoto: *Hybrid quantum repeater based on dispersive CQED interactions between matter qubits and bright coherent light*. New Journal of Physics, 8(9):184, 2006.
- [MAG⁺03] T. Makino, R. Andre, J. M. Gerard, R. Romestain, L. S. Dang, M. Bartels, K. Lischka und D. Schikora: *Single quantum dot spectroscopy of CdSe/ZnSe grown on vicinal GaAs substrates*. Applied Physics Letters, 82(14):2227–2229, 2003.
- [MAG⁺04] T. Makino, R. Andre, J. M. Gerard, R. Romestain, L. S. Dang, M. Bartels, K. Lischka und D. Schikora: *Time domain investigation on excitonic spectral diffusion in CdSe quantum dots grown on vicinal surface GaAs substrates*. Solid State Communications, 130(1-2):63–66, 2004.
- [MB94] J. Y. Marzin und G. Bastard: *Calculation of the energy levels in InAsGaAs quantum dots*. Solid State Communications, 92(5):437 – 442, 1994.
- [MB05] Z. Mi und P. Bhattacharya: *Molecular-beam epitaxial growth and characteristics of highly uniform InAs/GaAs quantum dot layers*. Journal of Applied Physics, 98(2):023510, 2005.
- [MC85] J. Massies und J. P. Contour: *Substrate chemical etching prior to molecular-beam epitaxy: An x-ray photoelectron spectroscopy study of GaAs 001 surfaces etched by the H₂SO₄-H₂O₂-H₂O solution*. Journal of Applied Physics, 58(2):806–810, 1985.
- [MDM⁺09] Y. Mazur, V. G. Dorogan, E. Marega, G. G. Tarasov, D. F. Cesar, V. Lopez-Richard, G. E. Marques und G. J. Salamo: *Mechanisms of interdot coupling in (In,Ga)As/GaAs quantum dot arrays*. Applied Physics Letters, 94(12):123112, 2009.
- [MDM⁺10] Y. Mazur, V. G. Dorogan, E. Marega, D. F. Cesar, V. Lopez-Richard, G. E. Marques, Z. Zhuchenko, G. G. Tarasov und G. J. Salamo: *Cooperative Effects in the Photoluminescence of (In,Ga)As/GaAs Quantum Dot Chain Structures*. Nanoscale Research Letters, 5(6):991–1001, 2010.
- [MDYP09] L. O. Mereni, V. Dimastrodonato, R. J. Young und E. Pelucchi: *A site-controlled quantum dot system offering both high uniformity and spectral purity*. Applied Physics Letters, 94(22):223121, 2009.
- [Mer98] Merck KGaA: *Wasserstoffperoxid: Sicherheitsdatenblatt gemäß EG-Richtlinie 91/155/EWG*, 26.02.1998.
- [MFG⁺10] A. Mohan, M. Felici, P. Gallo, B. Dwir, A. Rudra, J. Faist und E. Kapon: *Polarization-entangled photons produced with high-symmetry site-controlled quantum dots*. Nature Photonics, 4(5):302–306, 2010.

- [MGF⁺10] A. Mohan, P. Gallo, M. Felici, B. Dwir, A. Rudra, J. Faist und E. Kapon: *Record-Low Inhomogeneous Broadening of Site-Controlled Quantum Dots for Nanophotonics*. *Small*, 6(12):1268–1272, 2010.
- [Mic03] P. Michler (Herausgeber): *Single Quantum Dots: Fundamentals, Applications and New Concepts*. Springer, Berlin, 2003.
- [Mic09] P. Michler (Herausgeber): *Single Semiconductor Quantum Dots*. Springer, Heidelberg, 2009.
- [MIK⁺02] P. Michler, A. Imamoglu, A. Kiraz, C. Becher, M. D. Mason, P. J. Carson, G. F. Strouse, S. K. Buratto, W. V. Schoenfeld und P. M. Petroff: *Nonclassical Radiation from a Single Quantum Dot*. *physica status solidi (b)*, 229(1):399–405, 2002.
- [MKB⁺00] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, Lidong Zhang, E. Hu und A. Imamoglu: *A Quantum Dot Single-Photon Turnstile Device*. *Science*, 290(5500):2282–2285, 2000.
- [MMA⁺09] M. Munsch, A. Mosset, A. Auffeves, S. Seidelin, J. P. Poizat, J. M. Gerard, A. Lemaitre, I. Sagnes und P. Senellart: *Continuous-wave versus time-resolved measurements of Purcell factors for quantum dots in semiconductor microcavities*. *Physical Review B*, 80:115312, 2009.
- [MMAMP⁺08] G. Munoz-Matutano, B. Alen, J. Martinez-Pastor, L. Seravalli, P. Frigeri und S. Franchi: *Selective optical pumping of charged excitons in unintentionally doped InAs quantum dots*. *Nanotechnology*, 19(14):145711, 2008.
- [MNSP01] W. Ma, R. Nötzel, H. P. Schönherr und K. H. Ploog: *Shape transition of coherent three-dimensional (In,Ga)As islands on GaAs(100)*. *Applied Physics Letters*, 79(25):4219–4221, 2001.
- [MOB⁺05] A. Malko, D. Y. Oberli, M. H. Baier, E. Pelucchi, F. Michelini, K. F. Karlsson, M. A. Dupertuis und E. Kapon: *Single-photon emission from pyramidal quantum dots: The impact of hole thermalization on photon emission statistics*. *Physical Review B*, 72:195332, 2005.
- [MRG⁺01] E. Moreau, I. Robert, J. M. Gérard, I. Abram, L. Manin und V. Thierry-Mieg: *Single-mode solid-state single photon source based on isolated quantum dots in pillar microcavities*. *Applied Physics Letters*, 79(18):2865–2867, 2001.
- [MRM⁺01] E. Moreau, I. Robert, L. Manin, V. Thierry-Mieg, J. M. Gerard und I. Abram: *Quantum Cascade of Photons in Semiconductor Quantum Dots*. *Physical Review Letters*, 87:183601, 2001.
- [MRW⁺10] M. Mehta, D. Reuter, A. D. Wieck, S. Michaelis de Vasconcellos, A. Zrenner und C. Meier: *An intentionally positioned (In,Ga)As quan-*

- tum dot in a micron sized light emitting diode.* Applied Physics Letters, 97(14):143101, 2010.
- [MSJK94] U. Mohideen, R. E. Slusher, F. Jahnke und S. W. Koch: *Semiconductor Microlaser Linewidths.* Physical Review Letters, 73:1785–1788, 1994.
- [MSKC89] B. I. Miller, A. Shahar, U. Koren und P. J. Corvini: *Quantum wires in InGaAs/InP fabricated by holographic photolithography.* Applied Physics Letters, 54(2):188–190, 1989.
- [MSMMH⁺09] J. Martin-Sanchez, G. Munoz-Matutano, J. Herranz, J. Canet-Ferrer, B. Alen, Y. Gonzalez, P. Alonso-Gonzalez, D. Fuster, L. Gonzalez, J. Martinez-Pastor und F. Briones: *Single Photon Emission from Site-Controlled InAs Quantum Dots Grown on GaAs(001) Patterned Substrates.* ACS Nano, 3(6):1513–1517, 2009.
- [MSS⁺94] D. M. Mittleman, R. W. Schoenlein, J. J. Shiang, V. L. Colvin, A. P. Alivisatos und C. V. Shank: *Quantum size dependence of femtosecond electronic dephasing and vibrational dynamics in CdSe nanocrystals.* Physical Review B, 49:14435–14447, 1994.
- [MSS⁺05] D. R. Matthews, H. D. Summers, P. M. Snowton, P. Blood, P. Rees und M. Hopkinson: *Dynamics of the wetting-Layer-quantum-dot interaction in InGaAs self-assembled systems.* IEEE Journal of Quantum Electronics, 41(3):344 – 350, 2005.
- [MW95] L. Mandel und E. Wolf: *Optical Coherence and Quantum Optics.* Cambridge University Press, 1995.
- [NCI00] S. Noda, A. Chutinan und M. Imada: *Trapping and emission of photons by a single defect in a photonic bandgap structure.* Nature, 407(6804):608–610, 2000.
- [NEC11] NEC: *Ultrafast fibre optics set new speed record,* April 2011. <http://www.newscientist.com/article/mg21028095.500-ultrafast-fibre-optics-set-new-speed-record.html>.
- [NIIA11] S. Nakayama, S. Ishida, S. Iwamoto und Y. Arakawa: *Effect of cavity mode volume on photoluminescence from silicon photonic crystal nanocavities.* Applied Physics Letters, 98(17):171102, 2011.
- [NKI⁺10] M. Nomura, N. Kumagai, S. Iwamoto, Y. Ota und Y. Arakawa: *Laser oscillation in a strongly coupled single-quantum-dot-nanocavity system.* Nature Physics, 6(4):279–283, 2010.
- [NKMN03] S. Naritsuka, O. Kobayashi, K. Mitsuda und T. Nishinaga: *Oxygen incorporation mechanism in AlGaAs layers grown by molecular beam epitaxy.* Journal of Crystal Growth, 254(3-4):310 – 315, 2003.
- [Noz02] A. J. Nozik: *Quantum dot solar cells.* Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures, 14(1-2):115 – 120, 2002.

- [NTIA11] M. Nomura, K. Tanabe, S. Iwamoto und Y. Arakawa: *Design of a high-Q H0 photonic crystal nanocavity for cavity QED*. *physica status solidi (c)*, 8(2):340–342, 2011.
- [ODA⁺99] C. Obermüller, A. Deisenrieder, G. Abstreiter, K. Karrai, S. Grosse, S. Manus, J. Feldmann, H. Lipsanen, M. Sopanen und J. Ahopelto: *Pauli-blocking imaging of single strain-induced semiconductor quantum dots*. *Applied Physics Letters*, 74(21):3200–3202, 1999.
- [OFV09] J. L. O’Brien, A. Furusawa und J. Vuckovic: *Photonic quantum technologies*. *Nature Photonics*, 3(12):687–695, 2009.
- [Ohn91] T. Ohno: *Sulfur passivation of GaAs surfaces*. *Physical Review B*, 44:6306–6311, 1991.
- [ONIA94] J. Oshinowo, M. Nishioka, S. Ishida und Y. Arakawa: *Highly uniform InGaAs/GaAs quantum dots (15 nm) by metalorganic chemical vapor deposition*. *Applied Physics Letters*, 65(11):1421–1423, 1994.
- [OO01] A. Ohtake und M. Ozeki: *In situ observation of surface processes in InAs/GaAs(001) heteroepitaxy: The role of As on the growth mode*. *Applied Physics Letters*, 78(4):431–433, 2001.
- [OON⁺11] R. Ohta, Y. Ota, M. Nomura, N. Kumagai, S. Ishida, S. Iwamoto und Y. Arakawa: *Strong coupling between a photonic crystal nanobeam cavity and a single quantum dot*. *Applied Physics Letters*, 98(17):173104, 2011.
- [OS90] T. Ohno und K. Shiraishi: *First-principles study of sulfur passivation of GaAs(001) surfaces*. *Physical Review B*, 42:11194–11197, 1990.
- [Our03] K. Oura: *Surface science: an introduction*. *Advanced texts in physics*. Springer, Berlin, 2003.
- [PAF⁺06] F. Patella, F. Arciprete, M. Fanfoni, A. Balzarotti und E. Placidi: *Apparent critical thickness versus temperature for InAs quantum dot growth on GaAs(001)*. *Applied Physics Letters*, 88(16):161903, 2006.
- [PCS92] S. J. Pearton, J. W. Corbett und M. Stavola (Herausgeber): *Hydrogen in Crystalline Semiconductors*. Springer, Berlin, 1992.
- [PD94] P. M. Petroff und S. P. DenBaars: *MBE and MOCVD growth and properties of self-assembling quantum dot arrays in III-V semiconductor structures*. *Superlattices and Microstructures*, 15(1):15 – 21, 1994.
- [PDM⁺12] E. Pelucchi, V. Dimastrodonato, L.O. Mereni, G. Juska und A. Gocalinska: *Semiconductor nanostructures engineering: Pyramidal quantum dots*. *Current Opinion in Solid State and Materials Science*, 16(2):45 – 51, 2012.

- [PDR⁺11] E. Pelucchi, V. Dimastrodonato, A. Rudra, K. Leifer, E. Kapon, L. Bethke, P. A. Zestanakis und D. D. Vvedensky: *Decomposition, diffusion, and growth rate anisotropies in self-limited profiles during metalorganic vapor-phase epitaxy of seeded nanostructures*. Physical Review B, 83:205409, 2011.
- [PGR⁺09] T. J. Pfau, A. Gushterov, J. P. Reithmaier, I. Cestier, G. Eisenstein, E. Linder und D. Gershoni: *Site-controlled InAs quantum dots grown on a 55 nm thick GaAs buffer layer*. Applied Physics Letters, 95(24):243106, 2009.
- [PGR⁺10] T. J. Pfau, A. Gushterov, J. P. Reithmaier, I. Cestier und G. Eisenstein: *High optical quality site-controlled quantum dots*. Microelectronic Engineering, 87:1357 – 1359, 2010.
- [PKD⁺11] J. D. Plumhof, V. Krapek, F. Ding, K. D. Jöns, R. Hafenbrak, P. Klenovsky, A. Herklotz, K. Dörr, P. Michler, A. Rastelli und O. G. Schmidt: *Strain-induced anticrossing of bright exciton levels in single self-assembled GaAs/Al_xGa_{1-x}As and In_xGa_{1-x}As/GaAs quantum dots*. Physical Review B, 83:121302, 2011.
- [PL95] C. Priester und M. Lannoo: *Origin of Self-Assembled Quantum Dots in Highly Mismatched Heteroepitaxy*. Physical Review Letters, 75:93–96, 1995.
- [PMFF⁺00] N. Perret, D. Morris, L. Franchomme-Fossé, R. Côté, S. Fafard, V. Aimez und J. Beauvais: *Origin of the inhomogeneous broadening and alloy intermixing in InAs/GaAs self-assembled quantum dots*. Physical Review B, 62:5092–5099, 2000.
- [PMV⁺00] M. Paillard, X. Marie, E. Vanelle, T. Amand, V. K. Kalevich, A. R. Kovsh, A. E. Zhukov und V. M. Ustinov: *Time-resolved photoluminescence in self-assembled InAs/GaAs quantum dots under strictly resonant excitation*. Applied Physics Letters, 76(1):76–78, 2000.
- [PSM⁺05] E. Peter, P. Senellart, D. Martrou, A. Lemaitre, J. Hours, J. M. Gerard und J. Bloch: *Strong coupling for a single quantum dot in a microdisk*. physica status solidi (c), 2(11):3825–3828, 2005.
- [PSS⁺09] D. W. Prather, S. Shi, A. Sharkawy, J. Murakowski und G. J. Schneider: *Photonic Crystals: Theory, Applications, and Fabrication*. John Wiley & Sons, Inc., Hoboken, New Jersey, 2009.
- [PTP46] E. M. Purcell, H. C. Torrey und R. V. Pound: *Resonance Absorption by Nuclear Magnetic Moments in a Solid*. Physical Review, 69:37–38, 1946.
- [RG00] H. D. Robinson und B. B. Goldberg: *Light-induced spectral diffusion in single self-assembled quantum dots*. Physical Review B, 61:R5086–R5089, 2000.

- [RHG⁺07] 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*. Applied Physics Letters, 90(25):251109, 2007.
- [RHM⁺02] B. J. Riel, K. Hinzer, S. Moisa, J. Fraser, P. Finnie, P. Piercy, S. Fafard und Z. R. Wasilewski: *InAs/GaAs(1 0 0) self-assembled quantum dots: arsenic pressure and capping effects*. Journal of Crystal Growth, 236(1-3):145 – 154, 2002.
- [RHS⁺03] S. Rodt, R. Heitz, A. Schliwa, R. L. Sellin, F. Guffarth und D. Bimberg: *Repulsive exciton-exciton interaction in quantum dots*. Physical Review B, 68:035331, 2003.
- [Rid00] B. K. Ridley: *Quantum Processes in Semiconductors*. Oxford University Press, Oxford, 2000.
- [RKD⁺08] M. E. Reimer, M. Korkusinski, D. Dalacu, J. Lefebvre, J. Lapointe, P. J. Poole, G. C. Aers, W. R. McKinnon, P. Hawrylak und R. L. Williams: *Prepositioned single quantum dot in a lateral electric field*. Physical Review B, 78:195301, 2008.
- [RMG⁺01] D. V. Regelman, U. Mizrahi, D. Gershoni, E. Ehrenfreund, W. V. Schoenfeld und P. M. Petroff: *Semiconductor Quantum Dot: A Quantum Light Source of Multicolor Photons with Tunable Statistics*. Physical Review Letters, 87:257401, 2001.
- [RRSW91] J. P. Reithmaier, H. Riechert, H. Schlötterer und G. Weimann: *Indium desorption during MBE growth of strained InGaAs layers*. Journal of Crystal Growth, 111(1-4):407 – 412, 1991.
- [RSA78] R. L. Rivest, A. Shamir und L. Adleman: *A method for obtaining digital signatures and public-key cryptosystems*. Communications of the ACM, 21:120–126, 1978.
- [RSL⁺04] 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):197–200, 2004.
- [RSS⁺07] S. Rodt, R. Seguin, A. Schliwa, F. Guffarth, K. Pötschke, U.W. Pohl und D. Bimberg: *Size-dependent binding energies and fine-structure splitting of excitonic complexes in single InAs/GaAs quantum dots*. Journal of Luminescence, 122-123:735 – 739, 2007.
- [RUK⁺07] A. Rastelli, A. Ulhaq, S. Kiravittaya, L. Wang, A. Zrenner und O. G. Schmidt: *In situ laser microprocessing of single self-assembled quantum dots and optical microcavities*. Applied Physics Letters, 90(7):073120, 2007.

- [Sak04] K. Sakoda: *Optical Properties of Photonic Crystals*. Springer, Berlin, 2004.
- [Sal95] T. Sale (Herausgeber): *Vertical Cavity Surface Emitting Lasers*. John Wiley and Sons Inc., 1995.
- [Sax80] A. K. Saxena: *The conduction band structure and deep levels in $Ga_{1-x}Al_xAs$ alloys from a high-pressure experiment*. Journal of Physics C: Solid State Physics, 13(23):4323, 1980.
- [SB09] R. Singh und G. Bester: *Nanowire Quantum Dots as an Ideal Source of Entangled Photon Pairs*. Physical Review Letters, 103:063601, 2009.
- [SC86] A. Scherer und H. G. Craighead: *Fabrication of small laterally patterned multiple quantum wells*. Applied Physics Letters, 49(19):1284–1286, 1986.
- [Sch07] O. G. Schmidt (Herausgeber): *Lateral Alignment of Epitaxial Quantum Dots*. Springer, Heidelberg, 2007.
- [Sch11] C. Schneider: *Konzepte zur skalierbaren Realisierung von effizienten, halbleiterbasierten Einzelphotonenquellen*. Dissertation, Universität Würzburg, 2011.
- [SCP⁺96] W. Seifert, N. Carlsson, A. Petersson, L. E. Wernersson und L. Samuelson: *Alignment of InP Stranski–Krastanow dots by growth on patterned GaAs/GaInP surfaces*. Applied Physics Letters, 68(12):1684–1686, 1996.
- [SFJ94] K. Sato, M. R. Fahy und B. A. Joyce: *The Growth of High Quality GaAs on GaAs (111)A*. Japanese Journal of Applied Physics, 33:L905–L907, 1994.
- [SFV⁺02] C. Santori, D. Fattal, J. Vuckovic, G. S. Solomon und Y. Yamamoto: *Indistinguishable photons from a single-photon device*. Nature, 419(6907):594–597, 2002.
- [SGS96] D. F. Schroeter, D. J. Griffiths und P. C. Sercel: *Defect-assisted relaxation in quantum dots at low temperature*. Physical Review B, 54:1486–1489, 1996.
- [Sha49] C. Shannon: *Communication Theory of Secrecy Systems*. Bell System Technical Journal, 28:656–715, 1949.
- [SHH⁺09] 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*. Applied Physics Letters, 94(11):111111, 2009.
- [SHH⁺12] 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.* Applied Physics Letters, 100(9):091108, 2012.
- [Shi07] A. J. Shields: *Semiconductor quantum light sources.* Nature Photonics, 1:215–223, 2007.
- [SHP09] M. Seliger, U. Hohenester und G. Pfanner: *Entangled photons from quantum dot devices: efficiency of post-selection.* physica status solidi (b), 246(2):289–292, 2009.
- [SHS⁺09] C. Schneider, A. Huggenberger, T. Sünner, T. Heindel, M. Strauß, S. Göpfert, 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):434012, 2009.
- [SIE⁺87] A. J. SpringThorpe, S. J. Ingrej, B. Emmerstorfer, P. Mandeville und W. T. Moore: *Measurement of GaAs surface oxide desorption temperatures.* Applied Physics Letters, 50(2):77–79, 1987.
- [SJ11] S. Strauf und F. Jahnke: *Single quantum dot nanolaser.* Laser & Photonics Reviews, 5(5):607–633, 2011.
- [SJK⁺09] S. Stobbe, J. Johansen, P. T. Kristensen, J. M. Hvam und P. Lodahl: *Frequency dependence of the radiative decay rate of excitons in self-assembled quantum dots: Experiment and theory.* Physical Review B, 80:155307, 2009.
- [SJPL⁺00] O. G. Schmidt, N. Y. Jin-Phillipp, C. Lange, U. Denker, K. Eberl, R. Schreiner, H. Gräbeldinger und H. Schweizer: *Long-range ordered lines of self-assembled Ge islands on a flat Si (001) surface.* Applied Physics Letters, 77(25):4139–4141, 2000.
- [SKN⁺02] O. G. Schmidt, S. Kiravittaya, Y. Nakamura, H. Heidemeyer, R. Songmuang, C. Müller, N. Y. Jin-Phillipp, K. Eberl, H. Wawra, S. Christiansen, H. Gräbeldinger und H. Schweizer: *Self-assembled semiconductor nanostructures: climbing up the ladder of order.* Surface Science, 514(1-3):10 – 18, 2002.
- [SKO⁺96] R. Steffen, T. Koch, J. Oshinowo, F. Faller und A. Forchel: *Photoluminescence study of deep etched InGaAs/GaAs quantum wires and dots defined by low-voltage electron beam lithography.* Applied Physics Letters, 68(2):223–225, 1996.
- [SNS98] H. Saito, K. Nishi und S. Sugou: *Influence of GaAs capping on the optical properties of InGaAs/GaAs surface quantum dots with 1.5 μ m emission.* Applied Physics Letters, 73(19):2742–2744, 1998.

- [SPM⁺08] G. Sek, P. Podemski, J. Misiewicz, L. H. Li, A. Fiore und G. Patriarce: *Photoluminescence from a single InGaAs epitaxial quantum rod*. Applied Physics Letters, 92(2):021901, 2008.
- [SPR⁺06] G. Sek, P. Poloczek, K. Ryczko, J. Misiewicz, A. Löffler, J. P. 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*. Journal of Applied Physics, 100(10):103529, 2006.
- [SPS⁺01] C. Santori, M. Pelton, G. Solomon, Y. Dale und Y. Yamamoto: *Triggered Single Photons from a Quantum Dot*. Physical Review Letters, 86:1502–1505, 2001.
- [SPY01] G. S. Solomon, M. Pelton und Y. Yamamoto: *Single-mode Spontaneous Emission from a Single Quantum Dot in a Three-Dimensional Microcavity*. Physical Review Letters, 86:3903–3906, 2001.
- [SRS⁺06] R. Seguin, S. Rodt, A. Schliwa, K. Pötschke, U. W. Pohl und D. Bimberg: *Size-dependence of anisotropic exchange interaction in InAs/GaAs quantum dots*. physica status solidi (b), 243(15):3937–3941, 2006.
- [SS66] M. Shinada und S. Sugano: *Interband Optical Transitions in Extremely Anisotropic Semiconductors. I. Bound and Unbound Exciton Absorption*. Journal of the Physical Society of Japan, 21(10):1936–1946, 1966.
- [SS76] D. J. Stirland und B. W. Straughan: *A review of etching and defect characterisation of gallium arsenide substrate material*. Thin Solid Films, 31(1-2):139 – 170, 1976.
- [SSJF⁺11] J. Skiba-Szymanska, A. Jamil, I. Farrer, M. B. Ward, C. A. Nicoll, D. J. P. Ellis, J. P. Griffiths, D. Anderson, G. A. C. Jones, D. A. Ritchie und A. J. Shields: *Narrow emission linewidths of positioned InAs quantum dots grown on pre-patterned GaAs(100) substrates*. Nanotechnology, 22(6):065302, 2011.
- [SSR⁺05] R. Seguin, A. Schliwa, S. Rodt, K. Pötschke, U. W. Pohl und D. Bimberg: *Size-Dependent Fine-Structure Splitting in Self-Organized InAs/ GaAs Quantum Dots*. Physical Review Letters, 95:257402, 2005.
- [SSS⁺08a] C. Schneider, M. Strauß, T. Sünner, A. Huggenberger, D. Wiener, S. Reitzenstein, M. Kamp, S. Höfling und A. Forchel: *Lithographic alignment to site-controlled quantum dots for device integration*. Applied Physics Letters, 92(18):183101, 2008.

- [SSS⁺08b] T. Sünner, C. Schneider, M. Strauß, A. Huggenberger, D. Wiener, S. Höfling, M. Kamp und A. Forchel: *Scalable fabrication of optical resonators with embedded site-controlled quantum dots*. Optics Letters, 33(15):1759–1761, 2008.
- [SSW⁺07] M. Scheibner, T. Schmidt, L. Worschech, A. Forchel, G. Bacher, T. Passow und D. Hommel: *Superradiance of quantum dots*. Nature Physics, 3(2):106–110, 2007.
- [ST58] A. L. Schawlow und C. H. Townes: *Infrared and Optical Masers*. Physical Review, 112:1940–1949, 1958.
- [STMH96] G. S. Solomon, J. A. Trezza, A. F. Marshall und J. S. Harris, Jr.: *Vertically Aligned and Electronically Coupled Growth Induced InAs Islands in GaAs*. Physical Review Letters, 76:952–955, 1996.
- [STN93] X. Q. Shen, M. Tanaka und T. Nishinaga: *Resharping effect of ALAs and fabrication of quantum-wires on V-grooved substrates by molecular beam epitaxy*. Journal of Crystal Growth, 127:932 – 936, 1993.
- [STS⁺02] R. M. Stevenson, R. M. Thompson, A. J. Shields, I. Farrer, B. E. Kardynal, D. A. Ritchie und M. Pepper: *Quantum dots as a photon source for passive quantum key encoding*. Physical Review B, 66:081302, 2002.
- [STXJ04] T. Suzuki, Y. Temko, M. C. Xu und K. Jacobi: *InAs quantum dots on GaAs (112)B*. Journal of Applied Physics, 96(11):6398–6404, 2004.
- [SUH⁺05] H. Z. Song, T. Usuki, S. Hirose, K. Takemoto, Y. Nakata, N. Yokoyama und Y. Sakuma: *Site-controlled photoluminescence at telecommunication wavelength from InAs/InP quantum dots*. Applied Physics Letters, 86(11):113118, 2005.
- [SvK38] I. N. Stranski und L. von Krastanow: *Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von Ionenkristallen aufeinander*. Sitzungsberichte / Akademie der Wissenschaften in Wien, Mathematisch-Naturwissenschaftliche Klasse 2B, 146:797–810, 1938.
- [SWB⁺00] J. Seufert, R. Weigand, G. Bacher, T. Kummell, A. Forchel, K. Leonardi und D. Hommel: *Spectral diffusion of the exciton transition in a single self-organized quantum dot*. Applied Physics Letters, 76(14):1872–1874, 2000.
- [SWL⁺09] A. Schliwa, M. Winkelnkemper, 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*. Physical Review B, 80:161307, 2009.
- [SWO⁺10] 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*. Applied Physics Letters, 96(9):093112, 2010.
- [SWT⁺02] S. Sanguinetti, K. Watanabe, T. Tateno, M. Wakaki, N. Koguchi, T. Kuroda, F. Minami und M. Gurioli: *Role of the wetting layer in the carrier relaxation in quantum dots*. Applied Physics Letters, 81(4):613–615, 2002.
- [SYS⁺06] R. M. Stevenson, R. J. Young, P. See, D. G. Gevaux, K. Cooper, P. Atkinson, I. Farrer, D. A. Ritchie und A. J. Shields: *Magnetic-field-induced reduction of the exciton polarization splitting in InAs quantum dots*. Physical Review B, 73:033306, 2006.
- [SZ97] M. O. Scully und M. S. Zubairy: *Quantum Optics*. Cambridge University Press, 1997.
- [TFY⁺97] T. Takebe, M. Fujii, T. Yamamoto, K. Fujita und T. Watanabe: *Orientation-dependent Ga surface diffusion in molecular beam epitaxy of GaAs on GaAs patterned substrates*. Journal of Applied Physics, 81(11):7273–7281, 1997.
- [Thu05] F. Thueselt: *Physik der Halbleiterbauelemente*. Springer, Berlin, 2005.
- [TIG⁺11] A. Tandaechanurat, S. Ishida, D. Guimard, M. Nomura, S. Iwamoto und Y. Arakawa: *Lasing oscillation in a three-dimensional photonic crystal nanocavity with a complete bandgap*. Nature Photonics, 5(2):91–94, 2011.
- [TMS⁺07] T. Tran, A. Muller, C. K. Shih, P. S. Wong, G. Balakrishnan, N. Nuntawong, J. Tatebayashi und D. L. Huffaker: *Single dot spectroscopy of site-controlled InAs quantum dots nucleated on GaAs nanopyramids*. Applied Physics Letters, 91(13):133104, 2007.
- [TNA01] J. Tatebayashi, M. Nishioka und Y. Arakawa: *Over 1.5 μm light emission from InAs quantum dots embedded in InGaAs strain-reducing layer grown by metalorganic chemical vapor deposition*. Applied Physics Letters, 78(22):3469–3471, 2001.
- [TRK⁺09] S. M. Thon, M. T. Rakher, H. Kim, J. Gudat, W. T. M. Irvine, P. M. Petroff und D. Bouwmeester: *Strong coupling through optical positioning of a quantum dot in a photonic crystal cavity*. Applied Physics Letters, 94(11):111115, 2009.
- [TRS⁺00] V. Türcck, S. Rodt, O. Stier, R. Heitz, R. Engelhardt, U. W. Pohl, D. Bimberg und R. Steingrüber: *Effect of random field fluctuations on excitonic transitions of individual CdSe quantum dots*. Physical Review B, 61:9944–9947, 2000.
- [TSS⁺01] R. M. Thompson, R. M. Stevenson, A. J. Shields, I. Farrer, C. J. Lobo, D. A. Ritchie, M. L. Leadbeater und M. Pepper: *Single-photon*

- emission from exciton complexes in individual quantum dots.* Physical Review B, 64:201302, 2001.
- [TT08] F. Troiani und C. Tejedor: *Entangled photon pairs from a quantum-dot cascade decay: The effect of time reordering.* Physical Review B, 78:155305, 2008.
- [Ueb70] J. J. Uebbing: *Use of Auger Electron Spectroscopy in Determining the Effect of Carbon and Other Surface Contaminants on GaAs-Cs-O Photocathodes.* Journal of Applied Physics, 41(2):802–804, 1970.
- [UHV⁺09] S. M. Ulrich, R. Hafenbrak, M. M. Vogel, L. Wang, A. Rastelli, O. G. Schmidt und P. Michler: *Control of single quantum dot emission characteristics and fine structure by lateral electric fields.* physica status solidi (b), 246(2):302–306, 2009.
- [UMT⁺01] A. V. Uskov, I. Magnusdottir, B. Tromborg, J. Morg und R. Lang: *Line broadening caused by Coulomb carrier-carrier correlations and dynamics of carrier capture and emission in quantum dots.* Applied Physics Letters, 79:1679, 2001.
- [UNL99] A. V. Uskov, K. Nishi und R. Lang: *Collisional broadening and shift of spectral lines in quantum dot lasers.* Applied Physics Letters, 74:3081, 1999.
- [UZEM03] V. M. Ustinov, A. E. Zhukov, A. Y. Egorov und N. A. Maleev: *Quantum Dot Lasers.* Oxford University Press, Oxford, 2003.
- [VC08] V. B. Verma und J. J. Coleman: *High density patterned quantum dot arrays fabricated by electron beam lithography and wet chemical etching.* Applied Physics Letters, 93(11):111117, 2008.
- [VLG83] R. P. Vasquez, B. F. Lewis und F. J. Grunthaler: *X-ray photoelectron spectroscopic study of the oxide removal mechanism of GaAs (100) molecular beam epitaxial substrates in in situ heating.* Applied Physics Letters, 42(3):293–295, 1983.
- [VSS⁺11] V. B. Verma, M. J. Stevens, K. L. Silverman, N. L. Dias, A. Garg, J. J. Coleman und R. P. Mirin: *Photon antibunching from a single lithographically defined InGaAs/GaAs quantum dot.* Optics Express, 19(5):4182–4187, 2011.
- [VUH⁺07] M. M. Vogel, S. M. Ulrich, R. Hafenbrak, P. Michler, L. Wang, A. Rastelli und O. G. Schmidt: *Influence of lateral electric fields on multiexcitonic transitions and fine structure of single quantum dots.* Applied Physics Letters, 91(5):051904, 2007.
- [Wan37] G. H. Wannier: *The Structure of Electronic Excitation Levels in Insulating Crystals.* Physical Review, 52:191–197, Aug 1937.

- [WBWR⁺04] C. F. Wang, A. Badolato, I. Wilson-Rae, P. M. Petroff, E. Hu, J. Urayama und A. Imamoglu: *Optical properties of single InAs quantum dots in close proximity to surfaces*. Applied Physics Letters, 85(16):3423–3425, 2004.
- [WC09] D. B. Williams und C. B. Carter: *The Transmission Electron Microscope*. Springer, Berlin, 2009.
- [WCA⁺83] G. P. Williams, F. Cerrina, J. Anderson, G. J. Lapeyre, R. J. Smith, J. Hermanson und J. A. Knapp: *Study of III-V semiconductor band structure by synchrotron photoemission*. Physica B+C, 117-118, Part 1(0):350 – 352, 1983.
- [WCM85] X. S. Wu, L. A. Coldren und J. L. Merz: *Selective etching characteristics of HF for $Al_xGa_{1-x}As/GaAs$* . Electronics Letters, 21(13):558–559, 1985.
- [WFM99] Z. R. Wasilewski, S. Fafard und J. P. McCaffrey: *Size and shape engineering of vertically stacked self-assembled quantum dots*. Journal of Crystal Growth, 201-202:1131 – 1135, 1999.
- [WM08] D. F. Walls und G. J. Milburn: *Quantum Optics (2nd Edition)*. Springer, Berlin, 2008.
- [WPD⁺04] S. Watanabe, E. Pelucchi, B. Dwir, M. H. Baier, K. Leifer und E. Kapon: *Dense uniform arrays of site-controlled quantum dots grown in inverted pyramids*. Applied Physics Letters, 84(15):2907–2909, 2004.
- [WRS06] L. Wang, A. Rastelli und O. G. Schmidt: *Structural and optical properties of In(Ga)As/GaAs quantum dots treated by partial capping and annealing*. Journal of Applied Physics, 100(6):064313, 2006.
- [WSWW92] D. A. Woolf, Z. Sobiesierski, D. I. Westwood und R. H. Williams: *The molecular beam epitaxial growth of GaAs/GaAs(111)B: doping and growth temperature studies*. Journal of Applied Physics, 71(10):4908–4915, 1992.
- [WWW⁺81] G. Wicks, W. I. Wang, C. E. C. Wood, L. F. Eastman und L. Rathbun: *Photoluminescence of $Al_xGa_{1-x}As$ grown by molecular beam epitaxy*. Journal of Applied Physics, 52(9):5792–5796, 1981.
- [XCM94] Q. Xie, P. Chen und A. Madhukar: *InAs island-induced-strain driven adatom migration during GaAs overlayer growth*. Applied Physics Letters, 65(16):2051–2053, 1994.
- [XGF⁺07] Z. G. Xie, S. Götzinger, W. Fang, H. Cao und G. S. Solomon: *Influence of a Single Quantum Dot State on the Characteristics of a Microdisk Laser*. Physical Review Letters, 98:117401, 2007.

- [XMCK95] Q. Xie, A. Madhukar, P. Chen und N. P. Kobayashi: *Vertically Self-Organized InAs Quantum Box Islands on GaAs(100)*. Physical Review Letters, 75:2542–2545, 1995.
- [Yab87] E. Yablonovitch: *Inhibited Spontaneous Emission in Solid-State Physics and Electronics*. Physical Review Letters, 58(20):2059–2062, 1987.
- [YFJ96] H. Yamaguchi, M. R. Fahy und B. A. Joyce: *Inhibitions of three dimensional island formation in InAs films grown on GaAs (111)A surface by molecular beam epitaxy*. Applied Physics Letters, 69(6):776–778, 1996.
- [YG89] E. Yablonovitch und T. J. Gmitter: *Photonic band structure: The face-centered-cubic case*. Physical Review Letters, 63:1950–1953, 1989.
- [YIK93] M. Yamada, Y. Ide und K. Tone: *Interaction of atomic hydrogen with GaAs (001) surface oxide: volatile Ga-oxide formation*. Applied Surface Science, 70-71, Part 2(0):531 – 535, 1993.
- [YLW10] K. Yu, A. Lakhani und M. C. Wu: *Subwavelength metal-optic semiconductor nanopatch lasers*. Optics Express, 18(9):8790–8799, 2010.
- [YNK⁺87] K. Yamanaka, S. Naritsuka, K. Kanamoto, M. Mihara und M. Ishii: *Electron traps in AlGaAs grown by molecular-beam epitaxy*. Journal of Applied Physics, 61(11):5062–5069, 1987.
- [YSA⁺06] R. J. Young, R. M. Stevenson, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie und A. J. Shields: *Improved fidelity of triggered entangled photons from single quantum dots*. New Journal of Physics, 8(2):29, 2006.
- [YSS⁺05] R. J. Young, R. M. Stevenson, A. J. Shields, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie, K. M. Groom, A. I. Tartakovskii und M. S. Skolnick: *Inversion of exciton level splitting in quantum dots*. Physical Review B, 72:113305, 2005.
- [YTA⁺07] T. Yang, J. Tatebayashi, K. Aoki, M. Nishioka und Y. Arakawa: *Effects of rapid thermal annealing on the emission properties of highly uniform self-assembled InAs/GaAs quantum dots emitting at 1.3 μm* . Applied Physics Letters, 90(11):111912, 2007.
- [YTC00] Y. Yamamoto, F. Tassone und C. Cao (Herausgeber): *Semiconductor Cavity Quantum Electrodynamics*. Springer, Berlin, 2000.
- [ZKH⁺10] Y. Zhang, M. Khan, Y. Huang, J. Ryou, P. Deotare, R. Dupuis und M. Lončar: *Photonic crystal nanobeam lasers*. Applied Physics Letters, 97(5):051104, 2010.
- [ZMBL09] Y. Zhang, M. W. McCutcheon, I. B. Burgess und M. Loncar: *Ultra-high-Q TE/TM dual-polarized photonic crystal nanocavities*. Optics Letters, 34(17):2694–2696, 2009.

- [Zre00] A. Zrenner: *A close look on single quantum dots*. The Journal of Chemical Physics, 112(18):7790–7798, 2000.

Veröffentlichungen des Autors

Zeitschriftenartikel als Erstautor

- 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*, Journal of Crystal Growth **323**, 194-197, (2011).
- 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*, Applied Physics Letters **98**, 131104, (2011).

Zeitschriftenartikel als Koautor

- C. Schneider, M. Strauß, T. Sünner, A. Huggenberger, D. Wiener, S. Reitzenstein, M. Kamp, S. Höfling und A. Forchel: *Lithographic alignment to site-controlled quantum dots for device integration*, Applied Physics Letters **92**, 183191, (2008).
- T. Sünner, C. Schneider, M. Strauß, A. Huggenberger, D. Wiener, S. Höfling, M. Kamp und A. Forchel: *Scalable fabrication of optical resonators with embedded site-controlled quantum dots*, Optics Letters **33**, 1759, (2008).
- 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 system*, Applied Physics Letters **94**, 111111, (2009).
- C. Schneider, A. Huggenberger, T. Sünner, T. Heindel, M. Strauß, S. Göpfert, P. Weinmann, S. Reitzenstein, L. Worschech, S. Höfling und A. Forchel: *Single site-controlled In(Ga)As/GaAs quantum dots: growth, properties and device integration*, Nanotechnology **20**, 434012, (2009).
- S. Reitzenstein, C. Schneider, S. Münch, C. Kistner, M. Strauß, A. Huggenberger, P. Franek, P. Weinmann, M. Kamp, S. Höfling, L. Worschech und A. Forchel: *Semiconductor Cavity Quantum Electrodynamics with Single Quantum Dots*, Acta Physica Polonica A **116**, 445, (2009).

- J. Heinrich, A. Huggenberger, T. Heindel, S. Reitzenstein, S. Höfling, L. Worschech und A. Forchel: *Single photon emission from positioned GaAs/AlGaAs photonic nanowires*, Applied Physics Letters **96**, 211117, (2010).
- S. Reitzenstein, C. Schneider, F. Albert, A. Huggenberger, T. Heindel, M. Lerner, S. Stobbe, P. Weinmann, P. Lodahl, S. Höfling, M. Kamp, L. Worschech und A. Forchel: *Cavity quantum electrodynamics studies with site-controlled InGaAs quantum dots integrated into high quality microcavities*, SPIE Proceedings, DOI: 10.1117/12.876794, (2011).
- C. Schneider, T. Heindel, A. Huggenberger, T. A. Niederstrasser, S. Reitzenstein, A. Forchel, S. Höfling und A. Forchel: *Microcavity enhanced single photon emission from an electrically driven site-controlled quantum dot*, Applied Physics Letters **100**, 091108, (2012).

Konferenzbeiträge

- A. Huggenberger, C. Schneider, M. Strauß, C. Drescher, S. Heckelmann, T. Heindel, T. Sünner, P. Weinmann, S. Reitzenstein, M. Kamp, S. Höfling, L. Worschech und A. Forchel: *Growth and Device Integration of Site-Controlled In(Ga)As/GaAs Quantum Dots*, International Nano-Optoelectronics Workshop (INOW 2010), 1.-15.August 2010, Beijing and Changchun, China.
- A. Huggenberger, C. Schneider, M. Strauß, C. Drescher, S. Heckelmann, T. Sünner, T. Heindel, P. Weinmann, S. Höfling, S. Reitzenstein, M. Kamp, L. Worschech und A. Forchel: *Site-Controlled In(Ga)As/GaAs Quantum Dots for Integration into Optically and Electrically Operated Devices*, The 16th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (ICMBE 2010), 22.-27. August 2010, Berlin, Deutschland.
- A. Huggenberger, C. Schneider, C. Drescher, T. Heindel, P. Weinmann, C. Kistner, M. Kamp, S. Reitzenstein, S. Höfling, L. Worschech und A. Forchel: *Advanced growth of site-controlled InAs quantum dots and improvement of their optical qualities*, First German-Japanese Workshop on nanolasers, 21. Dezember 2009, Tokyo, Japan.
- A. Huggenberger, C. Schneider, S. Heckelmann, C. Drescher, M. Kamp, S. Reitzenstein, S. Höfling und A. Forchel: *Device Integration of site-controlled InAs quantum dots grown on patterned (100) GaAs substrate*, Joint Workshop on Advances in Nanophotonics and Spintronics, 4.-5. Oktober 2010, Würzburg, Deutschland.
- A. Huggenberger, C. Schneider, A. Niederstrasser, S. Heckelmann, T. Heindel, M. Kamp, S. Reitzenstein, L. Worschech, S. Höfling und A. Forchel:

Site-controlled In(Ga)As quantum dots for device integration: Narrow spectral linewidth and electrical current injection, The 3rd Japan-German Workshop on Quantum Dot Nanolasers, 08. November 2011, Tokyo, Japan.

- A. Huggenberger, C. Schneider, S. Heckelmann, S. Herrmann, M. Kamp, S. Reitzenstein, S. Höfling, L. Worschech und A. Forchel: *Narrow emission linewidth from site-controlled InAs quantum dots grown on patterned (100) GaAs substrate*, 38th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS 2011), 22.-26. Mai 2011, Berlin, Deutschland.
- A. Huggenberger, C. Schneider, S. Heckelmann, F. Albert, M. Kamp, S. Reitzenstein, S. Höfling, L. Worschech und A. Forchel: *Narrow emission from site-controlled InAs quantum dots grown on patterned (100) GaAs substrate for device integration*, Quantum Dot Day 2011, Bristol, England.
- A. Huggenberger, C. Schneider, T. Heindel, M. Kamp, S. Reitzenstein, S. Höfling, L. Worschech und A. Forchel: *Site-controlled In(Ga)As Quantum Dots with Narrow Emission Linewidth for Integration into Nanophotonic Devices*, International Quantum Electronics Conference 2011 (IQEC 2011), Sydney, Australien.
- A. Huggenberger, C. Schneider, T. Heindel, P. Weinmann, C. Kistner, M. Kamp, S. Reitzenstein, S. Höfling und A. Forchel: *Experimental realization of a spectrally resonant site-controlled quantum dot-micropillar cavity system*, DPG Frühjahrstagung 2009, 22.-27. März 2009, Dresden, Deutschland.
- A. Huggenberger, C. Schneider, T. Heindel, A. Niederstrasser, S. Reitzenstein, S. Höfling, L. Worschech, A. Forchel und M. Kamp: *Single site-controlled InGaAs quantum dots: narrow linewidth and electrical current injection*, DPG Frühjahrstagung 2012, 25.-20. März 2012, Berlin, Deutschland.

Danksagung

In diesem Abschnitt möchte ich mich bei allen Personen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben:

- Herrn Prof. Dr. rer. nat. Dr. h. c. Alfred Forchel für die Aufnahme am Lehrstuhl für Technische Physik, die Betreuung der Doktorarbeit und die Ermöglichung einer spannenden und abwechslungsreichen Tätigkeit als Wissenschaftler.
- Herrn Prof. Dr. Martin Kamp für den fachlichen Rat und die gute Zusammenarbeit auf persönlicher Ebene.
- Herrn Prof. Dr. Lukas Worschech für die Diskussionen und Anregungen zu meiner Arbeit.
- Herrn Prof. Dr. Stephan Reitzenstein für die fachliche Leitung der Spektroskopie und die sehr angenehme Zusammenarbeit.
- Herrn Sven Höfling für die Aufnahme in die Arbeitsgruppe, die fachlichen Diskussionen und die zahlreichen visionären Anregungen im Bezug auf meine Arbeit. Außerdem möchte ich ein herzliches Dankeschön dafür aussprechen, dass ich neben meiner wissenschaftlichen Arbeit auch vielfältige weitere Aufgaben übernehmen konnte.
- Christian Schneider für zahlreiche fachliche Diskussionen und fachfremde Gespräche, die Betreuung meiner Masterarbeit und die daraus entstandene Freundschaft.
- Matthias Lermer für fachlichen Rat, vor allem aber für Erlebnisse wie 12-Stunden-Frankenwarte und “Ride through the Night”. Solche Dinge helfen, auch die Durststrecken in der wissenschaftlichen Arbeit zu überwinden. A-hu!
- Theresa Steinl für unglaubliches Engagement bei der Prozessierung der Proben und viel Geduld im Umgang mit uns typischen Physikern.
- Margit Wagenbrenner für ihre zuverlässige Arbeit als gute Seele des Reinraums und fürs Finden meiner Schuhe. Und natürlich auch für ihren Humor.
- Monika Emmerling für ihre Expertise, mit der sie mir häufig bei meiner Arbeit geholfen hat.
- Adriana Wolf, Silke Kuhn und Selina Handel für ihren Rat und ihre Unterstützung bei der Arbeit im Reinraum.

- Gerhard Heller für die gute und freundschaftliche Zusammenarbeit im MSL und als angenehmer Kollege bei der Rufbereitschaft. Und natürlich für das Bereitstellen von genügend vollständigen Inbusschlüsselsätzen.
- unseren spektroskopischen Kellerkindern, insbesondere Tobias Heindel, Ferdinand Albert, Peter Gold und Tristan Braun für die erfolgreiche Zusammenarbeit, die große Hilfsbereitschaft und die sympathischen außeruniversitären Zusammenkünfte.
- den anderen MBE'ern und Optos für Rat und angenehme Zusammenarbeit.
- meinen ehemaligen Bürokollegen Micha Strauß, Thomas Schlereth, Jan Heinrich und Adreas Löffler für das gleichsam produktive und angenehme Büroklima.
- meinen Diplomanden Stephan Heckelmann, Sebastian Maier, Alexander Niederstrasser und Julian Treu für ihre hervorragende Arbeit und die super Zusammenarbeit. Viel Erfolg bei eurem weiteren Bildungs- und Arbeitsweg!
- den unzähligen internationalen Wissenschaftlern, Gästen und Studenten am Lehrstuhl, die das Leben am Lehrstuhl interessant machen und mit ihrer Arbeit viele Experimente erst ermöglichen.
- meiner Familie, die mir auf meinem Bildungsweg immer mit Rat und Tat zur Seite gestanden hat und mich bestens gefördert hat. Danke!
- meiner Lebensgefährtin Yvonne Giehl für ihre Geduld und Unterstützung während meiner Doktorarbeit!

Lebenslauf

von Alexander Huggenberger, geboren am 09.10.1983 in Lauingen a. d. Donau

09/1994 – 06/2003 Johann-Michael-Sailer Gymnasium Dillingen

Allgemeine Hochschulreife (Abitur) im Juni 2003

07/2003 – 05/2004 Zivildienst

Sozialdienst des Bayerischen Roten Kreuzes

10/2004 – 10/2008 Universität Würzburg

Elitestudiengang FOKUS Physik-Nanostrukturtechnik

09/2007 Universität Würzburg

Bachelor of Science „Nanostrukturtechnik“

10/2008 Universität Würzburg

Master of Science with honors „FOKUS Physik-Nanostrukturtechnik“

09/2008 – 01/2011 Nanoinitiative Bayern GmbH und nachfolgend

02/2011 – 12/2011 Initiative Junge Forscherinnen und Forscher e.V.

Wissenschaftlicher Mitarbeiter im Schulbesuchsteam, Referent bei Fortbildungen und Vorträgen, Organisation und Durchführung von Veranstaltungen, Mitarbeit an der Gründung der Initiative Junge Forscherinnen und Forscher e.V.

Seit 11/2008 Universität Würzburg

Wissenschaftlicher Mitarbeiter mit Möglichkeit zur Promotion am Lehrstuhl für technische Physik in der Arbeitsgruppe „Optoelectronic materials and devices I“.

Würzburg, 15. Mai 2012

Alexander Huggenberger

Versicherung an Eides statt

Gemäß §5 Abs. 2 Ziff. 2 der Promotionsordnung der Fakultät für Physik und Astronomie der Universität Würzburg

Hiermit erkläre ich an Eides statt, dass ich die Dissertation selbstständig und ohne Hilfe eines Promotionsberaters angefertigt und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Die Dissertation wurde bisher weder vollständig noch teilweise einer anderen Hochschule oder in einem anderen Prüfungsfach mit dem Ziel, einen akademischen Grad zu erwerben, vorgelegt.

Am 12.08.2008 wurde mir von der Julius-Maximilians-Universität Würzburg der akademische Grad „Bachelor of Science“ nach erfolgreicher Teilnahme am Studiengang Physik verliehen. Am 22.07.2009 wurde mir von der Julius-Maximilians-Universität Würzburg der akademische Grad „Master of Science with honors“ nach erfolgreicher Teilnahme am Elitestudiengang FOKUS Physik-Nanostrukturtechnik verliehen. Weitere akademische Grade habe ich weder erworben noch versucht zu erwerben.

Würzburg, den 15. Mai 2012

Alexander Huggenberger