

Elektrisch gepumpte Quantenpunkt-Einzelphotonenquellen für die Quantenkommunikation



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

vorgelegt von

Tobias Heindel
aus Bad Windsheim

Würzburg 2013

Eingereicht am: 03.12.2013
bei der Fakultät für Physik und Astronomie

1. Gutachter: Prof. Dr. Stephan Reitzenstein
2. Gutachter: Prof. Dr. Jens Pflaum
der Dissertation

1. Prüfer: Prof. Dr. Stephan Reitzenstein
2. Prüfer: Prof. Dr. Jens Pflaum
3. Prüfer: Prof. Dr. Wolfgang Kinzel
im Promotionskolloquium

Tag des Promotionskolloquiums: 09.10.2014

Doktorurkunde ausgehändigt am:

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	1
Summary	5
1 Einleitung	9
2 Grundlagen	13
2.1 Halbleiter-Quantenpunkte	13
2.1.1 Strukturelle Eigenschaften	13
2.1.2 Ladungsträgereinschluss und exzitonische Emission	15
2.1.3 Mehrteilchen-Zustände	17
2.1.4 Feinstrukturaufspaltung	19
2.1.5 Biexziton-Exziton-Kaskade	23
2.1.6 Elektrische Anregung in einer pin-Diode	25
2.2 Optische Mikroresonatoren	27
2.2.1 Purcell-Effekt	29
2.2.2 Photonen-Auskoppeleffizienz	31
2.3 Statistische Eigenschaften von Licht	33
2.3.1 Photonen-Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung	33
2.3.2 Klassifizierung von Photonen-Zuständen	34
3 Experimentelle Messtechnik	39
3.1 Mikro-Lumineszenz-Spektroskopie	39
3.2 Zeit aufgelöste Mikro-Lumineszenz-Spektroskopie	42
3.3 Photonen-Autokorrelationsmessungen zweiter Ordnung	42
3.4 Photonen-Kreuzkorrelationsmessungen zweiter Ordnung	44
4 Elektrisch getriggerte Einzelphotonenquellen	47
4.1 Technologie der Einzelphotonenquellen	47
4.1.1 Resonatordesign	48
4.1.2 Aktive Schicht	49

4.1.3	Dotierung	51
4.1.4	Wachstum und Prozessierung	52
4.2	Resonanzmoden-Simulationen der Mikroresonatoren	54
4.3	Einführende spektroskopische Untersuchungen	57
4.4	Analyse des Purcell-Effektes	65
4.5	Getriggerte Einzelphotonen-Emission und Effizienz der Mikroresonatoren	70
4.6	Zusammenfassung des Kapitels	77
5	Korrelierte Photonenaare elektrisch gepumpter Quantenpunkte	79
5.1	Technologie der Einzelquantenpunkt-Leuchtdioden	79
5.1.1	Resonatordesign	79
5.1.2	Räumliche Selektion und elektrische Kontaktierung	81
5.2	Einführende spektroskopische Untersuchungen	84
5.3	Korrelierte Photonenaare der Biexziton-Exziton-Kaskade	90
5.4	Quantentomographie von Zweiphotonen-Zuständen	99
5.5	Thermische Manipulation der Feinstrukturaufspaltung	106
5.5.1	Einfluss auf die Emission des Quantenpunkt-Ensembles	107
5.5.2	Einfluss auf die Feinstrukturaufspaltung einzelner Quantenpunkte	108
5.6	Zusammenfassung des Kapitels	111
6	Quanten-Schlüsselverteilung mit elektrisch getriggerten Einzelphotonenquellen	113
6.1	Quanten-Schlüsselverteilung und BB84-Protokoll	113
6.2	Labor-Experiment über eine Distanz von 40 cm	117
6.2.1	Grundcharakterisierung der eingesetzten Einzelphotonenquelle	118
6.2.2	Experimentelle Messanordnung	120
6.2.3	Quanten-Schlüsselverteilungs-Experiment	122
6.3	500 m-Freistrahlexperiment	125
6.3.1	Experimentelle Messanordnung	126
6.3.2	Quanten-Schlüsselverteilungs-Experiment	129
6.4	Zusammenfassung des Kapitels	132
	Literaturverzeichnis	133
A	Anhang	157
A.1	Ratengleichungs-Modell der Biexziton-Exziton-Zerfallskaskade	157
A.1.1	Photonen-Kreuzkorrelationsfunktion zweiter Ordnung	158
A.1.2	Berücksichtigung der zeitlichen Auflösung der Detektoren	159
A.2	Einfluss der Bandbreite von Bandpassfiltern auf das Antibunching	161

A.3 Probenaufbau (Wafer: M3598, für Mikrosäulenresonatoren)	163
A.4 Probenaufbau (Wafer: VC156, für Einzelquantenpunkt-Strukturen)	164
Veröffentlichungen des Autors	165
Danksagung	170
Versicherung an Eides statt	173

Zusammenfassung

Als erste kommerziell verfügbare Technologie der Quanteninformation ermöglicht die Quanten-Schlüsselverteilung eine sichere Datenübertragung indem einzelne Photonen oder quantenmechanisch verschränkte Photonenpaare zur Erzeugung eines Schlüssels verwendet werden. Die hierfür benötigten nicht-klassischen Photonen-Zustände können durch Halbleiter-Quantenpunkte erzeugt werden. Im Gegensatz zu anderen Quanten-Emittoren wie isolierten Atomen, organischen Molekülen oder Fehlstellen in Diamantnanokristallen bieten diese zudem den Vorteil, direkt in komplexe Halbleiter-Mikrostrukturen integriert werden zu können. Quantenpunkte sind somit prädestiniert für die Entwicklung neuartiger optoelektronischer Bauelemente auf einer skalierbaren Technologieplattform.

Vor diesem Hintergrund werden in der vorliegenden Arbeit die Eigenschaften elektrisch gepumpter Quantenpunkt-Mikrostrukturen untersucht. Als optisch aktives Medium dienen dabei selbstorganisierte InAs/GaAs-Quantenpunkte. Die Zielsetzung ist die Erzeugung nicht-klassischen Lichts für Anwendungen in der Quantenkommunikation, wobei ein besonderer Fokus auf dem elektrischen Betrieb der entsprechenden Quantenlichtquellen liegt. Dabei werden sowohl ausgeprägte Resonatoreffekte im Regime der schwachen Licht-Materie-Wechselwirkung ausgenutzt, um helle Einzelphotonenquellen zu realisieren, als auch die Eigenschaften korrelierter Photonenpaare zweier spektral separierter Quantenpunkt-Zustände analysiert. Als Untersuchungsmethode wird in erster Linie die spektral und zeitlich hochauflösende Mikro-Lumineszenz-Spektroskopie bei kryogenen Temperaturen eingesetzt. Zudem erfolgen Experimente zur Photonenzustandstatistik anhand von Messungen der Auto- sowie Kreuzkorrelationsfunktion zweiter Ordnung. Wie im Folgenden aufgeführt, gelingt dabei der Bogenschlag von grundlegenden Untersuchungen an Quantenpunkt-Mikrostrukturen bis hin zur erstmaligen Implementierung elektrisch getriggelter Quantenpunkt-Einzelphotonenquellen in realistischen Experimenten zur Quanten-Schlüsselverteilung außerhalb einer geschützten Laborumgebung.

Elektrisch getriggerte Einzelphotonenquellen

Für die Erzeugung elektrisch getriggelter, einzelner Photonen wurden Quantenpunkte in Mikroresonatoren eingebettet. Diese basieren auf dotierten, zylindrischen Fabry-Pérot Mikrosäulenresonatoren, deren Design bezüglich der Photonen-Auskoppleffizienz optimiert

wurde. Zunächst wurde im Rahmen grundlegender experimenteller Untersuchungen sowie anhand von Simulationsrechnungen auf Basis der Maxwell-Gleichungen der Einfluss des Mikroresonatordurchmessers auf die Auskoppelleffizienz der Photonen analysiert. Hierdurch konnte für die folgenden Experimente ein optimaler Arbeitsbereich identifiziert werden. Um den Purcell-Effekt im Regime der schwachen Licht-Materie-Wechselwirkung auszunutzen, wurde die Emission einzelner Quantenpunkt-Zustände über die Proben temperatur gezielt in spektrale Resonanz mit der optischen Mode der Mikroresonatoren verstimmt. Anhand von Messungen zur Photonenstatistik konnte für diese spektral resonant gekoppelten Quantenpunkt-Mikroresonatorsysteme sowohl unter kontinuierlicher- als auch unter gepulst-elektrischer Anregung Einzelphotonen-Emission ($g^{(2)}(0) < 0,5$), mit gemessenen Werten von $g_{CW}^{(2)}(0) = 0,17$ und $g_{AC}^{(2)}(0) = 0,14$, nachgewiesen werden. Detaillierte Untersuchungen des Purcell-Effektes unter gepulst-elektrischer Anregung zeigten einen Purcell-Faktor von $4,0 \pm 0,2$ nahe dem für die Struktur maximal zu erwartenden Wert von 5. Dies führte zu einer Verkürzung der strahlenden Lebensdauer des Quantenpunkt-Zustandes auf 300 ps, womit ein Hochfrequenz-Betrieb der Einzelphotonenquellen im GHz-Bereich möglich sein sollte. Anhand einer eingehenden Analyse der Emissionsraten sowie der elektrischen Injektionseffizienzen bei Anregungs-Repetitionsraten von bis zu 220 MHz konnte gezeigt werden, dass die untersuchten Mikroresonatoren zudem als äußerst effiziente, elektrisch getriggerte Einzelphotonenquellen eingesetzt werden können. Sowohl bezüglich der Einzelphotonen-Emissionsraten von bis zu $(47,0 \pm 6,9)$ MHz als auch der Gesamteffizienz der Bauteile bis hin zu (34 ± 7) % konnten dabei Rekordwerte erzielt werden.

Korrelierte Photonenpaare elektrisch gepumpter Quantenpunkte

Während in dem vorangehenden Abschnitt die getriggerte Emission einzelner Photonen untersucht wurde, befasst sich dieser Teil der Arbeit mit korrelierten Photonenpaaren der Biexziton-Exziton-Zerfallskaskade elektrisch gepumpter Quantenpunkte. Letztere sind zu diesem Zweck in eine pin-dotierte Halbleiterstruktur eingebettet, welche eine spektral breitbandige Auskopplung sowohl der Exziton- als auch der Biexziton-Emission ermöglicht. Um die räumliche Selektion und elektrische Adressierung einzelner Quantenpunkte zu ermöglichen, wurde ein neuer Ansatz zur elektrischen Kontaktierung von Mesa-Strukturen entwickelt. Ein Vergleich dieser Mesa-Strukturen mit einer konventionellen, auf einer Metall-Lochmaske basierenden Methode zeigte die Überlegenheit des Ansatzes im elektrischen Betrieb der Quantenpunkt-Leuchtdioden. Anhand einer Analyse der Photonen-Kreuzkorrelation einzelner Quantenpunkte wurde des Weiteren ein hoher Korrelationsgrad der linear ko-polarisierten Biexziton-Exziton-Photonenpaare von 79 % beobachtet. Berechnungen auf Basis eines idealen 3-Zustands-Systems zeigten, dass die Polarisationskorrelation in diesem Fall durch Spinflips limitiert ist und ließen auf eine untere

Grenze für die Relaxationszeit zwischen den beiden hellen Exziton-Zuständen von 3 ns schließen. Darüber hinaus wurde eine Quantentomographie des Zweiphotonen-Zustandes der Biexziton-Exziton-Kaskade durchgeführt, wobei eine Fidelity f^+ zu dem perfekten, polarisationsverschränkten Bell-Zustand $|\Psi^+\rangle$ von $f_{\text{entf.}}^+ = 0,45$ bestimmt wurde. Die Beobachtung einer klassischen Polarisationskorrelation ($f^+ \leq 0,5$) ist dabei konsistent mit der Beobachtung einer endlichen Feinstrukturaufspaltung des Exziton-Zustandes von $8,9 \mu\text{eV}$. Darüber hinaus konnte gezeigt werden, dass die mittlere Feinstrukturaufspaltung der Quantenpunkte durch thermisches Ausheilen signifikant reduziert werden kann - was für die Erzeugung polarisationsverschränkter Photonenpaare von höchstem Interesse ist.

Quanten-Schlüsselverteilung mit elektrisch getriggerten Einzelphotonenquellen

Ausgehend von den grundlegenden Untersuchungen dieser Arbeit, erfolgte die erstmalige Implementierung elektrisch getriggelter Quantenpunkt-Einzelphotonenquellen in Experimenten zur Quanten-Schlüsselverteilung. Basierend auf den eingehend analysierten Quantenpunkt-Mikroresonatoren, wurden dabei zwei Experimente in Freistrahloptik mit unterschiedlichen Übertragungsdistanzen durchgeführt. In beiden Fällen wurde ein BB84-Protokoll nachgeahmt, indem auf die einzelnen Photonen eine feststehende Abfolge von vier unterschiedlichen Polarisationszuständen aufmoduliert wurde. Das erste Experiment, durchgeführt im Labormaßstab in Würzburg, basierte auf einem Quantenkanal mit einer Länge von etwa 40 cm und arbeitete bei einer Taktrate von 183 MHz. Die höchste dabei erzielte *ausgesiebte* Schlüsselrate (*sifted-key rate*) betrug 35,4 kbit/s bei einem Quanten-Bitfehlerverhältnis (*QBER*) von 3,8%. Der Einzelphotonen-Charakter ($g^{(2)}(0) < 0,5$) der Emission innerhalb des Quantenkanals konnte jeweils eindeutig nachgewiesen werden ($g^{(2)}(0) = 0,28$ bis $0,49$), wobei eine höhere Anregung der Einzelphotonenquelle aufgrund der unkorrelierten Hintergrundemission der Resonatorgrundmode zu einer Zunahme der Detektion von Zweiphotonen-Emissionsereignissen führte. Das zweite Experiment zur Quanten-Schlüsselverteilung wurde mittels zweier Teleskope über eine Distanz von 500 m in der Münchner Innenstadt zwischen den Dächern zweier Gebäude der Ludwig-Maximilians-Universität realisiert. Für den Betrieb der Einzelphotonenquelle wurde ein kompakter spektroskopischer Aufbau entwickelt, welcher durch den Einsatz eines Pulsröhrenkühlers nicht auf eine Infrastruktur für flüssiges Helium angewiesen war. Bei einer Taktrate von 125 MHz konnte mit diesem System im Einzelphotonen-Regime ($g^{(2)}(0) = 0,46$) eine maximale *sifted-key rate* von 11,6 kbit/s bei einem *QBER* von 6,2% erzielt werden. Diese erstmalige Implementierung elektrisch betriebener, nicht-klassischer Lichtquellen in Experimenten zur Quanten-Schlüsselverteilung stellt einen wichtigen Schritt hinsichtlich der Realisierung effizienter und praktikabler Systeme für die Quantenkommunikation dar.

Summary

Quantum key distribution is the first commercially available technology of quantum information and allows for secure data communication by utilizing single-photons or entangled photon-pairs for key generation. The required non-classical light states can be produced by semiconductor quantum dots. Compared to other quantum emitters, such as isolated atoms, organic molecules or vacancy centers in diamond nanocrystals, they offer the advantage of being capable for the integration into complex semiconductor microstructures. Therefore quantum dots are predestinated for the development of novel optoelectronic devices on a scalable technology platform.

In this context, the work at hand explores the properties of electrically-pumped quantum dot microstructures. Thereby selforganized InAs/GaAs quantum dots serve as optically active medium. Aim of this work is the generation of non-classical light for applications in quantum communication, at which the study focuses specifically on electrical operation of the respective quantum light sources. In this framework pronounced cavity effects in the weak coupling regime of light-matter interaction will be employed to realize bright single-photon sources. Furthermore the properties of correlated photon-pairs from two spectrally-separated quantum dot states will be analyzed. The structures were investigated by means of microluminescence spectroscopy with high spatial and temporal resolution. Moreover, experiments on the photon statistics were performed by measurements of the second-order auto- and cross-correlationfunction. As specified below, achievements within this study range from fundamental investigations on quantum dot microstructures to the first implementation of electrically-triggered quantum dot single-photon sources in realistic quantum key distribution experiments outside a shielded lab environment.

Electrically-Triggered Single-Photon Sources

For the generation of electrically-triggered single-photons quantum dots were embedded in microcavities. The latter ones are based on doped Fabry-Pérot micropillar resonators featuring a design that was optimized for enhanced photon-extraction efficiency. First, in the course of fundamental experimental studies as well as simulations based on Maxwell's equations the influence of the micropillars' diameter on the photon extraction efficiency was investigated. Within the following experiments this enabled the identification of sui-

table operating ranges. In order to exploit the Purcell effect in the weak-coupling regime, the emission of single quantum dot states was spectrally matched to the fundamental cavity mode via temperature tuning. Photon statistic measurements on these resonantly-coupled quantum dot micropillar systems proved single-photon emission ($g^{(2)}(0) < 0.5$) under continuous electrical as well as pulsed electrical excitation, with measured values of $g_{CW}^{(2)}(0) = 0.17$ and $g_{AC}^{(2)}(0) = 0.14$. Detailed studies on the Purcell effect under pulsed electrical operation yielded a Purcell factor of (4.0 ± 0.2) , close to the maximal expected value of 5 for this structure. Due to the Purcell effect the radiative lifetime of the quantum dot state was reduced to 300 ps which should allow for repetition rates up to the GHz range. A detailed investigation of the photon emission rates and carrier injection efficiencies at excitation repetition rates of up to 220 MHz showed, that the micropillar cavities can be used as extremely efficient single-photon sources. Record high values for single-photon emission rates of up to (47.0 ± 6.9) MHz as well as overall efficiencies of up to (34 ± 7) % were achieved for these devices.

Correlated Photon-Pairs of Electrically Pumped Quantum Dots

While triggered emission of single-photons was investigated in the previous paragraph, correlated photon-pairs of the biexciton-exciton radiative cascade of electrically-pumped quantum dots is explored in this part of the work. For this purpose quantum dots are integrated into structures made of pin-doped semiconductors which enable a spectrally broad outcoupling of the exciton and biexciton emission. In order to realize spatial selectivity and electrical operation of single quantum dots, a novel method for electrical contacting of mesa structures was developed. Comparing these mesa structures to a conventional method using a metal mask with apertures, demonstrates the superiority of the mesa-approach under electrical operation of the quantum dot light-emitting diodes. Moreover, a high correlation-degree of 79 % of the co-polarized biexciton-exciton photon-pairs is observed by means of photon cross-correlation measurements on single quantum dots. Calculations based on an ideal 3-level system show, that the polarization correlation is limited by spin-flips and suggest a lower bound of the relaxation time between the bright-exciton states of 3 ns. Furthermore quantum tomography of the two-photon state of the biexciton-exciton cascade was performed. Thereby a fidelity f^+ to the maximally entangled Bell-state $|\Psi^+\rangle$ of $f_{\text{entf.}}^+ = 0.45$ is obtained. The observation of a classical polarization correlation ($f^+ \leq 0.5$) is consistent with a finite fine-structure splitting of the exciton state of 8.9 μeV . In addition, a significant reduction of the mean fine-structure splitting of the quantum dots was demonstrated by rapid thermal annealing - being of major importance for the generation of polarization-entangled photon-pairs.

Quantum Key Distribution

Using Electrically Triggered Single-Photon Sources

Based on the fundamental investigations in this work, the first implementation of electrically driven quantum dot single-photon sources into quantum key distribution experiments was carried out. Utilizing the investigated quantum dot micropillar cavities, two free space experiments were performed with different transmission distances. In both cases a BB84-protocoll was emulated by modulating the single-photons with a fixed pattern of four different polarization settings. The first experiment, performed on a lab-scale in Würzburg, is based on a 40 cm quantum channel and worked at a clock rate of 183 MHz. Sifted-key rates of up to 35.4 kbit/s with a quantum bit error ratio (QBER) of 3.8 % were achieved. Single-photon emission ($g^{(2)}(0) < 0.5$) within the quantum channel was proven unambiguously ($g^{(2)}(0) = 0.28$ bis 0.49), where a higher excitation of the single-photon source lead to an increase in two-photon emission events due to uncorrelated background emission by the fundamental cavity mode. The second quantum key distribution experiment was realized over a distance of 500 m in downtown Munich, connecting two buildings of the Ludwig-Maximilians-Universität via telescopes on the rooftops. A compact spectroscopic setup was developed for the operation of the single photon source. By using a closed-cycle pulse-tube cryostat for cooling of the single-photon source no liquid helium supply was needed. Using this system at a clock rate of 125 MHz, a maximum sifted-key rate of 11.6 kbit/s at a QBER of 6.2 % was achieved in the single-photon regime ($g^{(2)}(0) = 0.46$). This first implementation of an electrically-driven non-classical light source in quantum key distribution experiments can be considered as a major step toward the realization of efficient and practical quantum communication systems.

1 Einleitung

Stand das vergangene Jahrhundert mit bahnbrechenden Errungenschaften wie dem Transistor und dem Computer noch im Zeichen des Elektrons, so wird dieses Jahrhundert bereits jetzt häufig als das des Photons bezeichnet [Hey00]. Tatsächlich haben ab den 1960er Jahren die immensen Fortschritte in der modernen Halbleitertechnologie, welche zur Entwicklung des ersten Diodenlasers [Hal62, Bim12] und der optischen Datenübertragung mittels Lichtwellenleitern (Glasfasern) führten [Str11], zu dramatischen Veränderungen in der Informationstechnologie geführt [San02a]. Heute zirkulieren Weltweit unglaubliche Datenmengen in den interkontinentalen Glasfasernetzen - jedoch erreichen die gesendeten Informationen nicht immer nur den Adressaten, für den sie bestimmt waren. Gerade in jüngster Zeit rückte durch Enthüllungen diverser Abhörskandale erneut der Sicherheitsaspekt in den Vordergrund. Klassische Verschlüsselungs-Techniken beruhen auf einer möglichst großen rechnerischen Komplexität und damit auf der Hoffnung, dass einem potentieller Abhörer zu wenig Zeit bzw. Rechenleistung zur Verfügung steht, um die Chiffre zu entschlüsseln [Gis02], womit diese Verfahren prinzipiell angreifbar bleiben.

Im Jahre 1984 postulierten die beiden Informatiker und Physiker C.H. Bennett und G. Brassard ein Protokoll zur Verteilung eines geheimen Schlüssels zwischen zwei Parteien, indem man die fundamentalen quantenmechanischen Eigenschaften einzelner Photonen im Sinne Heisenbergs Unschärferelation ausnutzt [Ben84]. Dieses viel zitierte Protokoll, bekannt geworden unter dem Namen BB84, stellte eine Revolution auf dem Gebiet der Kryptographie dar und war zugleich der Startschuss für das innovative Forschungsgebiet der Quanten-Schlüsselverteilung (QKD¹) [Gis02]. In den Folgejahren wurde eine Vielzahl weiterer QKD-Protokolle entwickelt. So zum Beispiel das E91 Protokoll, welches im Jahre 1991 von seinem Namensgeber A. Ekert postuliert wurde und auf verschränkten Photonenpaaren basiert [Eke91]. Dem Forschungsgebiet der Quanteninformation lieferte die QKD nicht nur neue Impulse, sondern ist auch deren erste kommerzielle Anwendung [Kla02, Moo07], welche ihre Feuertaufe bereits bei einer ersten Banktransaktion im Jahre 2004 [Pop04] oder den Schweizer Parlamentswahlen im Jahre 2007 bestand [Pee09].

1 Quantum Key Distribution

Aufgrund des Mangels an effizienten Einzelphotonenquellen wurde jedoch das erste QKD-Experiment im Jahre 1992 [Ben92] sowie eine Vielzahl weiterer QKD-Experimente mit stark abgeschwächten Lasern durchgeführt [Ali09, Che09, Zha06, Nau13, Wan13]. Diese Art von Lichtquellen sind, auch bei einer für Laser extrem niedrigen mittleren Intensität (typischerweise 0,4 Photonen/Puls), durch eine Poisson-Statistik charakterisiert. Dies hat zur Folge, dass zum einen die Effizienz abgeschwächter, kohärenter Pulse - im Sinne der Besetzungswahrscheinlichkeit eines Pulses mit genau einem Photon - sehr niedrig ist, da die meisten Pulse kein einziges Photon enthalten. Zum anderen besitzen bei einer Poisson-Statistik auch Mehr-Photonenzustände eine endliche Wahrscheinlichkeit, wodurch zahlreiche Abhör-Szenarien, wie zum Beispiel das heimliche Abzweigen von Informationen (PNS^1 -attack), möglich werden. Durch die Verwendung sogenannter *Decoy*²-Zustände kann auch in diesen Fällen eine sichere Datenübertragung erreicht werden, jedoch auf Kosten einer stark reduzierten Schlüsselrate [Wan05].

QKD-Experimente, welche auf Emittlern nicht-klassischen Lichts basieren, wurden bisher ausschließlich mit optisch gepumpten Quellen realisiert: So konnte das BB84 Protokoll mit der Emission einzelner Stickstoff- oder Silizium-Fehlstellen in Diamant-Nanokristallen [Bev02, All04, Lei13] oder einzelner Halbleiter-Quantenpunkte [Wak02a, Aic04] mittels Experimenten in Freistrahloptik realisiert werden. Und auch QKD-Experimente mit einer Glasfaser als Quantenkanal wurden mit optisch gepumpten Quantenpunkte-Strukturen demonstriert [Int09, Col10, Tak10]. Diese Arbeiten bestätigten das große Potential nicht-klassischer Lichtquellen für die QKD - die zur optischen Anregung der Einzelphotonenemitter nötigen externen Lasersysteme stellen jedoch hinderliche Faktoren für eine weitere Miniaturisierung der Systeme dar.

Die Zielsetzung dieser Arbeit besteht in der effizienten elektrischen Erzeugung nicht-klassischer Photonen-Zustände für die Anwendung in der Quanten-Kryptographie. Als Quanten-Emitter werden hierfür selbstorganisiert gewachsene InAs/GaAs-Quantenpunkte eingesetzt, welche in dotierte Mikrostrukturen integriert sind. Dabei werden zwei unterschiedliche Ansätze verfolgt: Für die effiziente Erzeugung einzelner, getriggelter Photonen werden Quantenpunkte untersucht, welche in Mikrosäulenresonatoren hoher Güte eingebettet sind. Durch die spektral resonante Kopplung eines einzelnen Quantenpunkt-Zustandes an die optische Mode des Mikroresonators, kann der Purcell-Effekt im Regime der schwachen Licht-Materiewechselwirkung ausgenutzt werden. Dies ermöglicht die

1 Photon Number Splitting

2 engl. für Köder;

Realisierung hoher Auskoppelleffizienzen und damit hoher Emissionsraten der einzelnen Photonen. Mit der Perspektive quantenmechanisch verschränkte Photonpaare über die Biexziton-Exziton-Zerfallskaskade zu erzeugen, werden in einem zweiten Ansatz einzelne Quantenpunkte in Mikroresonatoren geringerer Güte integriert. Die damit verbundene breitbandigere Auskopplung des Lichts erlaubt eingehende Studien an der spektral separierten Emission des Biexziton- und Exziton-Zustandes einzelner, elektrisch gepumpter Quantenpunkte. Ausgehend von diesen grundlegenden Untersuchungen, erfolgt die erstmalige Implementierung elektrisch betriebener Quantenpunkt-Einzelphotonenquellen in Experimenten zur QKD. Vor diesem Hintergrund ist die Arbeit wie folgt gegliedert:

In **Kapitel 2** werden die für das Verständnis dieser Arbeit notwendigen, physikalischen und konzeptionellen Grundlagen erläutert. Dabei wird auf die strukturellen, elektronischen und optischen Eigenschaften von Halbleiter-Quantenpunkten, das Konzept der optischen Mikroresonatoren sowie die statistischen Eigenschaften von Lichtfeldern eingegangen. Die Unterschiede zwischen klassischen und nicht-klassischen Photonen-Zuständen werden dabei besonders herausgestellt.

Kapitel 3 beschreibt die Messtechnik der durchgeführten Experimente. Die Quantenpunkt-Mikrostrukturen werden mittels spektral sowie zeitlich hochauflösender Mikro-Elektrolumineszenzspektroskopie bei kryogenen Temperaturen untersucht. Als Schlüssel-Experimente sind dabei die Messungen der Photonen-Autokorrelation und der Photonen-Kreuzkorrelation zweiter Ordnung hervorzuheben. Diese erlauben eine Analyse der Photonenstatistik eines einzelnen oder zweier spektral separierter Quantenpunkt-Zustände.

Die Präsentation der experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit beginnt in **Kapitel 4**, mit Untersuchungen an elektrisch betriebenen Quantenpunkt-Einzelphotonenquellen. Diese basieren auf zylindrischen Fabry-Pérot Mikrosäulenresonatoren, deren Design bezüglich der Photonen-Auskoppelleffizienz optimiert wurde. Anhand von Simulationsrechnungen sowie einer experimentellen Charakterisierung wird deutlich, dass die Photonen-Auskoppelleffizienz durch die Wahl des Durchmessers der Mikroresonatoren maximiert werden kann. Sowohl unter kontinuierlicher- als auch gepulst-elektrischer Anregung wird die Emission einzelner, konsekutiv abfolgender Photonen nachgewiesen. Betrachtungen zu den Emissionsraten und der elektrischen Injektionseffizienz bei Anregungs-Repetitionen von bis zu 220 MHz zeigen, dass die untersuchten Mikroresonatoren mit einem ausgeprägten Purcell-Effekt als effiziente, elektrisch getriggerte Einzelphotonen-Emitter eingesetzt werden können. Sowohl bezüglich der Einzelphotonen-Emissionsrate als auch der Gesamt-

fizienz der Bauteile können dabei Ergebnisse erzielt werden, welche den aktuellen Stand der Technologie widerspiegeln.

Kapitel 5 befasst sich mit der elektrischen Erzeugung korrelierter Photonenpaare über die Biexziton-Exziton-Zerfallskaskade einzelner Quantenpunkte. Letztere sind zu diesem Zweck in eine pin-dotierte Halbleiterstruktur eingebettet, welche eine spektral breitbandige Auskopplung sowohl der Exziton- als auch der Biexziton-Emission in Wachstumsrichtung ermöglicht. Um sowohl eine starke räumliche Selektion als auch die elektrische Adressierung einzelner Quantenpunkte zu realisieren, wird eine neuartige Methode zur elektrischen Kontaktierung von dotierten Mesa-Strukturen entwickelt. Die realisierten Einzelquantenpunkt-Leuchtdioden lassen einen hohen Polarisations-Korrelationsgrad der Biexziton-Exziton-Photonenpaare beobachten. Aus den Experimenten kann dabei in Verbindung mit Berechnungen auf Basis eines idealen 3-Zustands-Systems auf eine untere Grenze für die durch Spinflips bestimmte Relaxationszeit zwischen den beiden hellen Exziton-Zuständen geschlossen werden. Darüber hinaus wird eine Quantentomographie des Zweiphotonen-Zustandes der Biexziton-Exziton-Kaskade durchgeführt, wodurch die Fidelity f^+ zu dem perfekten, polarisationsverschränkten Bell-Zustand $|\Psi^+\rangle$ bestimmt werden kann. Zum Abschluss dieses Kapitels wird gezeigt, dass die mittlere Feinstrukturaufspaltung der Quantenpunkte durch thermisches Ausheilen signifikant reduziert werden kann - was hinsichtlich der Erzeugung quantenmechanisch verschränkter Photonenpaare von höchstem Interesse ist.

Kapitel 6 beschreibt die erstmalige Implementierung elektrisch betriebener Quantenpunkt-Einzelphotonenquellen in Experimenten zur Quanten-Schlüsselverteilung (QKD). Hierfür wird zunächst das Konzept der QKD sowie das BB84 Protokoll vorgestellt und erläutert. Basierend auf den in Kapitel 4 analysierten Quantenpunkt-Mikroresonatoren, werden anschließend zwei Experimente in Freistrahloptik mit unterschiedlichen Übertragungsdistanzen demonstriert: Das erste, durchgeführt im Labormaßstab in Würzburg, basiert auf einem Quantenkanal mit einer Länge von ca. 40 cm. Das zweite QKD-Experiment wurde über eine Distanz von 500 m in der Münchner Innenstadt zwischen den Dächern zweier Gebäude der Ludwig-Maximilians-Universität realisiert. In beiden Experimenten wird ein BB84-Protokoll nachgeahmt, indem auf die einzelnen Photonen eine feststehende Abfolge von vier unterschiedlichen Polarisationszuständen aufmoduliert wird. Die in diesem Kapitel demonstrierte Implementierung elektrisch betriebener, nicht-klassischer Lichtquellen in QKD-Experimenten stellt einen wichtigen Schritt hinsichtlich der Realisierung effizienter und praktikabler QKD-Systeme dar.

2 Grundlagen

Dieses Kapitel erläutert die physikalischen und konzeptionellen Grundlagen der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten experimentellen Untersuchungen. In Abschnitt 2.1 werden zunächst die strukturellen, elektronischen und optischen Eigenschaften von Halbleiter-Quantenpunkten vorgestellt. Diese Quanten-Emitter bilden das zentrale nanoskopische Element aller Experimente dieser Arbeit. Abschnitt 2.2 stellt das Konzept der optischen Mikroresonatoren vor, mit deren Hilfe die Photonen-Auskoppleffizienz von Quantenpunkt-Einzelphtonenquellen erhöht werden kann. Die statistischen Eigenschaften von Lichtfeldern werden schließlich in Abschnitt 2.3 beschrieben und dabei insbesondere auf die Unterschiede zwischen klassischen und nicht-klassischen Photonen-Zuständen eingegangen.

2.1 Halbleiter-Quantenpunkte

Halbleiter-Quantenpunkte, welche aufgrund ihrer diskreten elektronischen und optischen Eigenschaften häufig auch als künstliche Atome bezeichnet werden [Gér01, Fin01a, Bim06], sind seit ihrer Entdeckung im Jahre 1985 durch Goldstein und Glas [Gol85] ein zentraler Bestandteil der Forschung auf dem Gebiet der Halbleiter-Quantenoptik. Insbesondere die Möglichkeit, Quantenpunkte als Emitter einzelner, zeitlich separierter Photonen oder quantenmechanisch polarisationsverschränkter Photonenpaare einsetzen zu können, macht sie zu geeigneten Systemen für die Grundlagenforschung sowie für zukünftige Anwendungen in der Quanteninformations-Verarbeitung [Shi07, Lad10, Buc12]. In diesem Unterkapitel wird neben einer Einführung in die grundlegenden strukturellen, elektronischen und optischen Eigenschaften von Halbleiter-Quantenpunkten insbesondere auch auf die Eigenschaften der sogenannten Biexziton-Exziton-Zerfallskaskade in Quantenpunkten eingegangen.

2.1.1 Strukturelle Eigenschaften

Als Quantenpunkt (QP) bezeichnet man ein in eine Halbleitermatrix eingebettetes ein-kristallines Cluster von einigen hundert bis tausend Atomen, wobei das Material des QPes verschieden von dem der umgebenden Matrix ist. QPe entstehen beispielsweise beim epi-

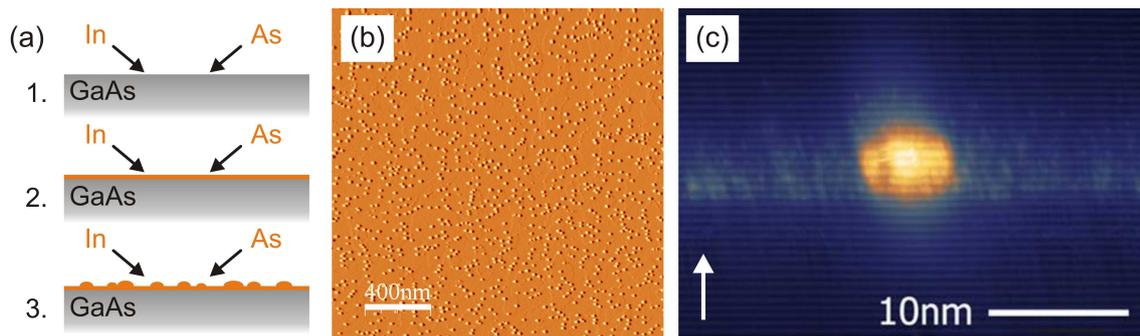


Abbildung 2.1: (a) Schematische Darstellung des selbstorganisierten, epitaktischen Wachstums von InAs/GaAs-Quantenpunkten (QP): Im Stranski-Krastanow-Wachstumsmodus bildet sich auf dem GaAs-Substrat (1.) zunächst eine pseudomorph verspannte Benetzungsschicht aus InAs (2.). Ab einer kritischen Schichtdicke von wenigen Monolagen beginnt anschließend die Relaxation zu InAs-QPen (3.). (b) AFM-Aufnahme einer Schicht InAs/GaAs-QPe vor dem Überwachsen (mit freundlicher Genehmigung von J. Treu, Universität Würzburg). (c) XSTM-Aufnahme eines einzelnen, überwachsenen InAs/GaAs-QPes in einem Querschnitt parallel zur Wachstumsrichtung, symbolisiert durch einen Pfeil (mit freundlicher Genehmigung von P. Koenraad, Technische Universität Eindhoven).

taktischen Wachstum einzelner Monolagen eines Materials A auf einem Substrat B, wenn diese unterschiedliche Gitterkonstanten aufweisen. Die aus solchen verspannungsinduzierten Selbstordnungsprozessen resultierenden Nanocluster werden auch als *selbstorganisierte Quantenpunkte* bezeichnet. Je nach Materialsystem können dabei unterschiedliche Wachstumsmodi realisiert sein [Lay78]. Die in dieser Arbeit eingesetzten InAs/GaAs-QPe entstehen im Stranski-Krastanow-Wachstumsmodus¹ (siehe Abbildung 2.1 (a)). Dabei bildet sich zunächst eine Benetzungsschicht (engl.: *wetting layer*), in der das aufgewachsene InAs die laterale Gitterkonstante des Substrates GaAs übernimmt ($a_{\text{InAs}} = 6,0583 \text{ \AA}$, $a_{\text{GaAs}} = 5,6532 \text{ \AA}$). Man spricht in diesem Zusammenhang von einer pseudomorph verspannten Schicht. Ab einer kritischen Schichtdicke von etwa 1,6 Monolagen (vgl. Referenz [SQ6]) kann sich das aufgebaute Spannungsfeld durch die Bildung von kleinen Inseln - den Quantenpunkten - lösen und der Halbleiterkristall relaxiert in einen energetisch günstigeren Zustand. Der Übergang vom zweidimensionalen Wachstum der Benetzungsschicht zum dreidimensionalen Wachstum der QPe wird dabei maßgeblich durch das Widerspiel von Oberflächenenergie und den mit dem Volumen zunehmenden Gitterverspannungen bestimmt. Abbildung 2.1 (b) zeigt die Rasterkraftmikroskop- (AFM²-) Aufnahme einer unüberwachsenen Schicht von InAs/GaAs-QPen. Typische Flächendichten liegen bei

1 Weitere Wachstumsmodi: Volmer-Weber und Frank-van-der-Merve;

2 Atomic Force Microscope

diesem Materialsystem im Bereich von $n_{\text{QP}} \approx (10^8 - 10^{10}) \text{ cm}^{-2}$. Die interne atomare Struktur eines mit GaAs überwachsenen InAs/GaAs-QPes zeigt Abbildung 2.1 (c), welche an einem Querschnitt parallel zur Wachstumsrichtung mit einem Rastertunnelmikroskop (XSTM¹) aufgenommen wurde [Kei12]. In der vorliegenden Arbeit wurden ausschließlich InAs/GaAs-QPe eingesetzt, welche während des Wachstums einem sogenannten PCA²-Schritt unterzogen werden. Dieser Herstellungsprozess wird in Abschnitt 4.1.2 näher erläutert.

2.1.2 Ladungsträgereinschluss und exzitonische Emission

Da das InAs-Material der QPe eine geringere Bandlücke aufweist als die umgebende GaAs-Matrix ($E_{\text{g}}^{\text{InAs}} \approx 0,36 \text{ eV}$ bzw. $E_{\text{g}}^{\text{GaAs}} \approx 1,42 \text{ eV}$ bei 300 K) stellt jeder QP einen dreidimensionalen Potentialtopf für Elektronen aus dem Leitungsband und Löchern aus dem Valenzband dar. Als Folge der geringen Ausdehnung des QP-Potentials in allen drei Raumrichtungen, welche im Bereich der de-Broglie Wellenlänge λ_{dB} der Ladungsträger liegen³, werden die elektronischen und optischen Eigenschaften von QPen maßgeblich durch quantenmechanische Effekte bestimmt. Abbildung 2.2 zeigt, ausgehend vom dreidimensionalen Volumenhalbleiter, schematisch die Zustandsdichte $D(E)$ bei einer sukzessiven Reduzierung der Dimensionalität. Bei einem Volumenhalbleiter (3D), einem Quantenfilm (2D) oder einem Quantendraht (1D) liegt jeweils weiterhin eine quasi-kontinuierlich verteilte Zustandsdichte vor. Erst im Falle eines QPes (0D), bei welchem die Ladungsträger keinen einzigen Translationsfreiheitsgrad mehr besitzen, ergibt sich eine vollständige Quantisierung und die Zustandsdichte entspricht einer Abfolge von Dirac'schen Deltafunktionen: $D(E) \propto \delta(E - E_i)$. Dabei bezeichnet E_i die diskreten Eigenenergien des Einschlusspotentials mit dem entsprechenden Satz an Quantenzahlen i . Befinden sich freie Ladungsträger, welche optisch oder elektrisch generiert wurden, in der Umgebung eines QPes so können beispielsweise ein Elektron und ein Loch aus dem Leitungsband bzw. Valenzband unter Streuung mit Phononen strahlungslos in das QP-Potential relaxieren und dessen diskrete Energie-Niveaus besetzen (siehe auch Abbildung 2.3 (a)). Das aus dem Elektron-Loch-Paar resultierende Quasiteilchen, bezeichnet als Quantenpunkt-Exziton (X), ist sowohl über die Coulombwechselwirkung als auch durch das QP-Potential gebunden bzw. lokalisiert. Betrachtet man zur Veranschaulichung die Analogie zum Wasserstoff- (H-) Atom, so ergibt

¹ Cross-sectional Scanning Tunneling Microscope

² Partial Capping and Annealing

³ Es gilt $\lambda_{\text{dB}} \propto h/\sqrt{2m^*k_{\text{B}}T}$, mit dem Planck'schen Wirkungsquantum h , der effektiven Masse der Ladungsträger m^* und der Boltzmann Konstante k_{B} . Für typische Halbleiter mit effektiven Massen von $m^* \approx 0,1 \cdot m_0$, wobei m_0 die freie Elektronenmasse bezeichnet, ergeben sich de-Broglie Wellenlängen von einigen 10 nm.

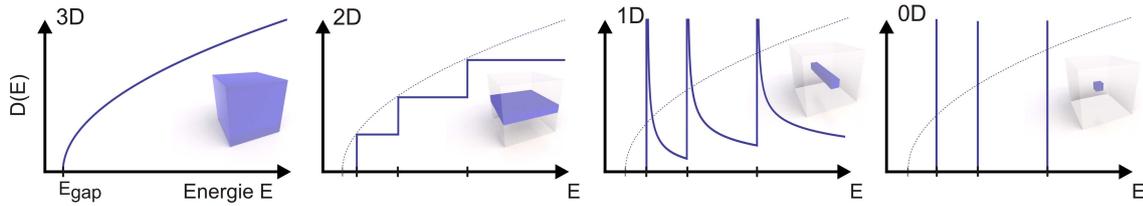


Abbildung 2.2: Zustandsdichte $D(E)$ der Ladungsträger in einem Halbleiter bei schrittweiser Reduktion der Dimensionalität: Für den Volumenhalbleiter (3D), den Quantenfilm (2D) und den Quantendraht (1D) ergibt sich jeweils eine quasi-kontinuierlich verteilte Zustandsdichte. Bei einem Quantenpunkt (0D) hingegen, welcher die Ladungsträger in allen drei Raumdimensionen einschließt, ergibt sich eine vollständige Quantisierung. Dies führt zu der Ausbildung diskreter Energieniveaus und somit zu einer δ -förmigen Zustandsdichte.

sich für den Bohr-Radius eines Exzitons im Volumenhalbleiter [Kli05]:

$$a_B^X = a_B^H \cdot \frac{\epsilon}{\mu} = 0,529 \text{ \AA} \cdot \frac{\epsilon}{\mu}, \quad (2.1)$$

wobei a_B^H den Bohrradius des H-Atoms, ϵ die Dielektrizitätskonstante und μ die effektive, reduzierte Masse des Elektron-Loch-Paares bezeichnet. Damit ergeben sich für typische Halbleiter ($\epsilon \approx 10$, $\mu \approx 0,1$) Exziton-Bohrradien im Bereich von zehn Nanometern (z.B.: $a_{B,\text{GaAs}}^X = 11,2 \text{ nm}$, $a_{B,\text{InAs}}^X = 32,7 \text{ nm}$), was im Bereich der QP-Ausdehnung selbst liegt. Der hieraus resultierende dreidimensionale Ladungsträgereinschluss führt, wie bereits erläutert, zu einer diskontinuierlichen Zustandsdichte und folglich zu der Ausbildung diskreter Energieniveaus - ähnlich dem Termschema eines Atoms.

Abbildung 2.3 (a) zeigt vereinfacht die Bandstruktur eines QPes entlang einer Raumrichtung, wobei Einflüsse von Gitterverspannungen sowie die Benetzungsschicht vernachlässigt wurden. Schematisch dargestellt sind des Weiteren die Energieniveaus e_0 bzw. h_0 des Grundzustandes der Elektronen und Löcher, sowie je zwei höhere, angeregte Zustände $e_{1,2}$ bzw. $h_{1,2}$. Absolute und relative Lagen der Energieniveaus von Elektronen und Löchern werden maßgeblich durch die räumliche Struktur des Einschlusspotentials bestimmt und hängen damit von der Materialkomposition, Form und Größe des QPes ab. Wird in dem Halbleiter ein Photon absorbiert, dessen Energie größer als die Bandlücke von GaAs ist, so wird zunächst ein freies Elektron-Loch-Paar erzeugt. Beide Ladungsträger können anschließend unter Streuung mit Phononen strahlungslos, auf einer Zeitskala von wenigen Pikosekunden [Hei97], in das QP-Potential relaxieren und dessen niedrigste Energieniveau besetzen. Nach einer charakteristischen Zeitdauer, welche der natürlichen Lebensdauer τ_X des Exziton-Zustandes entspricht ($\tau_X \approx 1 \text{ ns}$), kann das Elektron-Loch-Paar schließlich strahlend rekombinieren. Da die Symmetrien der Elektron- und Loch-Wellenfunktionen

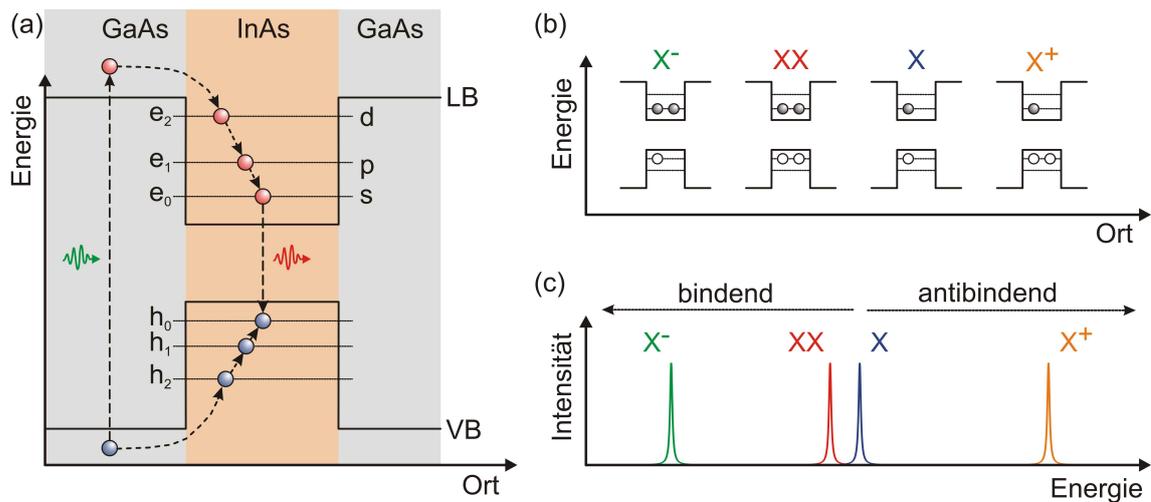


Abbildung 2.3: (a) Schematische Darstellung des Verlaufs der Bandstruktur eines QPes entlang einer Raumrichtung (LB: Leitungsband, VB: Valenzband, e_i/h_i : Energieniveaus der Elektronen/Löcher): Ein im QP-Potential gebundenes Elektron-Loch-Paar, genannt Exziton, rekombiniert strahlend und führt zu diskreten Emissionslinien in einem Spektrum (siehe auch Unterabbildung (c)). (b) Mehrteilchenkonfigurationen in der s-Schale eines QPes: Exziton (X), einfach geladene Trion-Zustände (X^- bzw. X^+) und Biexziton (XX). (c) Schematisches Emissionsspektrum der Mehrteilchenkomplexe aus (b): Aufgrund von Austausch- und Coulomb-Wechselwirkungen zwischen den Ladungsträgern besitzen die QP-Zustände unterschiedliche Rekombinationsenergien.

der beiden Zustände e_0 und h_0 s-artigen Charakter besitzen, werden diese Zustände in Analogie zu Atomorbitalen auch s-Schale genannt [Ban99]. Abhängig von der Art der QPe existieren mitunter auch höhere Zustände, wie die p- und d-Schale [Fin01b]. Jedes der Energieniveaus ist lediglich Spin-entartet und kann entsprechend dem Pauli-Prinzip mit je zwei Ladungsträgern entgegengesetzten Spins besetzt werden. In Abhängigkeit von der externen Anregungsstärke können daher auch höhere Zustände des QPes besetzt werden.

2.1.3 Mehrteilchen-Zustände

Die möglichen Zustandskonfigurationen der s-Schale eines QPes sind in Abbildung 2.3 (b) schematisch dargestellt. Neben dem bisher diskutierten, elektrisch neutralen Exziton ($e+h$) kann auch ein einfach, negativ bzw. positiv geladenes Exziton ($2e+h$ bzw. $e+2h$) oder zwei Exzitonen ($2e+2h$) in einem QP-Potential lokalisiert sein. Wie bei dem Exziton können auch diese Quasiteilchen, welche als Trionen (X^- bzw. X^+) und Biexziton (XX) bezeichnet werden, aufgrund des starken Ladungsträgereinschlusses in einem QP nicht mehr als Summe von unabhängigen Einteilchenzuständen betrachtet werden. Sie weisen,

wie im Folgenden erläutert, jeweils leicht unterschiedliche Rekombinationsenergien auf, wodurch sich in den Emissionsspektren einzelner QPe mitunter eine große Linienvielfalt ergibt [Bay00, Fin01b]. Abbildung 2.3 (c) zeigt schematisch das Emissionsspektrum eines QPes mit der im InAs/GaAs-Materialsystem häufig auftretenden Abfolge der Emissionslinien [Rod05, Seg06, Mli09, Yam12]. Quantenmechanisch können diese Quasiteilchen durch folgenden Hamiltonoperator beschrieben werden:

$$\hat{H} = \hat{H}_e + \hat{H}_h + \hat{H}_{\text{Coulomb}} + \hat{H}_A, \quad (2.2)$$

wobei \hat{H}_e und \hat{H}_h die Einteilchen-Hamiltonoperatoren der Elektronen bzw. Löcher darstellen. \hat{H}_A repräsentiert eine zusätzliche Austauschwechselwirkung, welche in Abschnitt 2.1.4 näher erläutert wird. Die Änderung der Energien der Quasiteilchen gegenüber den Einteilchenzuständen wird durch den Hamiltonoperator der Coulombwechselwirkung \hat{H}_{Coulomb} hervorgerufen, welcher für zwei Ladungsträger i und j gegeben ist durch:

$$\hat{H}_{\text{Coulomb}} = \int \int \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \frac{|\Psi_i(r_i)|^2 |\Psi_j(r_j)|^2}{|r_i - r_j|} dr_i dr_j. \quad (2.3)$$

Für ein elektrisch neutrales Exziton ist die Coulombwechselwirkung rein attraktiv, die dementsprechend positive Bindungsenergie liegt im Bereich einiger 10 meV [Sti99]. Da die Einschlussenergie der Ladungsträger im InAs/GaAs-Materialsystem deutlich größer ist als die Bindungsenergien der Mehrteilchenzustände, können jedoch auch antibindende Quasiteilchen auftreten. Aus Abbildung 2.3 (c) wird ersichtlich, dass beispielsweise die Bindungsenergie¹ des positiv geladenen Trions X^+ häufig negativ ist. Dies ist eine Folge der höheren effektiven Masse der Löcher relativ zu den Elektronen [Rod05]. Hierdurch sind die Loch-Wellenfunktionen stärker im QP-Potential lokalisiert, die repulsive Coulombwechselwirkung der beiden Löcher überwiegt daher der attraktiven Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern und führt zu einem antibindenden X^+ -Zustand. Für das negativ geladene Trion ergibt sich mit diesen Betrachtungen eine positive Bindungsenergie, was einem bindenden Zustand X^- entspricht. Im Falle des Biexziton-Komplexes XX herrschen repulsive Anteile der Coulombwechselwirkung sowohl für die beiden Elektronen im Leitungsband als auch für die beiden Löcher im Valenzband. Ob sich ein bindender oder antibindender XX -Zustand ausbildet, hängt insbesondere von der Größe des jeweiligen QPes ab [Rod03, Sar06]. Bei größeren QPen wird tendenziell die attraktive Coulombwechselwirkung über die repulsiven Anteile dominieren - es ergeben sich bindende Biexziton-Zustände. In kleineren QPen hingegen überwiegt der repulsive Anteil - die

¹ Definiert relativ zum Exziton: $\Delta E_{\text{Bin}}^{\text{Zustand}} = E_X - E_{\text{Zustand}}$

Biexziton-Komplexe werden antibindend. Typische Bindungsenergien für die beschriebenen Mehrteilchenzustände liegen im Bereich einiger meV [Rod05].

Die Eigenschaft der QPe, Mehrteilchenkomplexe mit unterschiedlichen Emissionsenergien zu bilden, ermöglicht es, sie als Emittierer nicht-klassischen Lichts einzusetzen [Mic00b]. Denn jeder dieser Zustände emittiert unter Rekombination eines Elektron-Loch-Paares nur ein einzelnes Photon, und muss vor der Emission eines weiteren Lichtquants wieder angeregt werden. Wird einer dieser Emissionskanäle spektral selektiert, so fungiert er folglich als Emittierer einzelner, sequentiell abfolgender Photonen. Darüberhinaus führt die Eigenschaft der QPe, einen Biexziton-Zustand bilden zu können, zu dem interessanten Phänomen der Biexziton-Exziton-Zerfallskaskade - im Folgenden auch XX-X-Kaskade genannt. Befindet sich ein QP in dem XX-Zustand, so kann zunächst eines der beiden Elektron-Loch-Paare strahlend rekombinieren und ein Photon der Energie $E_{XX} = E_X - \Delta E_{\text{Bin}}^{XX}$ emittieren. Nach dieser Rekombination befindet sich der QP mit dem verbliebenen Elektron-Loch-Paar im Exziton-Zustand, der wiederum unter Aussendung eines Photons der Energie E_X in den Grundzustand übergehen kann. Die XX-X-Kaskade fungiert somit als Emittierer zweifarbig, zeitlich korrelierter Photonenpaare - ein Phänomen, welches in Kapitel 5 an elektrisch betriebenen Einzelquantenpunkt-Leuchtdioden detailliert untersucht wird. Des Weiteren können über die XX-X-Kaskade auch quantenmechanisch polarisationsverschränkte Photonenpaare erzeugt werden, wie im übernächsten Abschnitt 2.1.5 näher erläutert wird.

2.1.4 Feinstrukturaufspaltung

Bei hinreichend hoher spektraler Auflösung der Messapparatur offenbart sich in den Emissionsspektren einzelner QPe eine komplexere Substruktur der Mehrteilchenkomplexe. Tatsächlich bestehen die Emissionslinien des Biexziton- und Exziton-Zustandes im Allgemeinen aus jeweils einem Linien-Dublett. Die entsprechende energetische Aufspaltung wird als *Feinstrukturaufspaltung* bezeichnet und ist für Exziton und Biexziton dem Betrag nach identisch. Die Emissionslinien der geladenen Trion-Komplexe zeigen hingegen keinerlei Substruktur. Diese Beobachtungen können erklärt werden, indem die Spin-Eigenschaften der beteiligten, fermionischen Ladungsträger berücksichtigt werden.

Die Projektion des Eigendrehimpulses bzw. Spins auf die z-Achse (Wachstumsrichtung) beträgt für Elektronen $s_z = \pm \frac{1}{2}$ und für Löcher¹ $j_z = \pm \frac{3}{2}$. Im weiteren Verlauf wird die

¹ Die exzitonischen Zustände besitzen in Zinkblende-Materialien, wie GaAs und InAs, überwiegend Schwer-Loch- (engl.: *heavy-hole*, *hh*) Charakter. Leicht-Loch- (engl.: *light-hole*, *lh*) und SO-Loch- (engl.: *split-off*, *so*) Band spielen meist eine untergeordnete Rolle [Huo12], da beide energetisch vom hh-Band abgespalten sind [He04, Jas06]. Diese Aufspaltung resultiert bei dem *lh*-Band aus biaxialen Verspannungen der QP-Struktur und bei dem *so*-Band aus der Spin-Bahn-Wechselwirkung der Löcher.

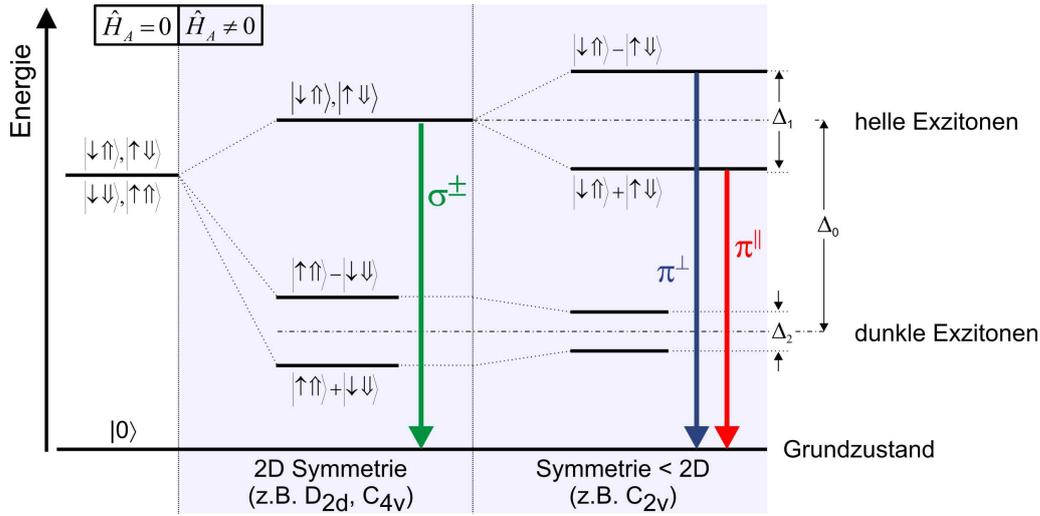


Abbildung 2.4: Termschema der Energieniveaus des Exziton-Zustandes eines QPes bei verschwindender (links) und endlicher (rechts, blau unterlegt) Spin-Austauschwechselwirkung \hat{H}_A zwischen Elektronen und Löchern. \uparrow bzw. \downarrow symbolisiert den Elektronen-Spin und \uparrow bzw. \downarrow den Loch-Spin. Der ursprünglich vierfach entartete Exziton-Zustand wird bei $\hat{H}_A \neq 0$ in optisch erlaubte (*helle*) und verbotene (*dunkle*) Zustandskonfigurationen aufgespalten. Ist die Rotationssymmetrie des QP-Potentials um die Wachstumsrichtung gebrochen (Symmetrie $< 2D$), so sind auch die beiden hellen Exzitonenzustände in ein Dublett aufgespalten. (Der Normierungsfaktor $1/\sqrt{2}$ der Spin-Konfigurationen wurde hier vereinfachend weggelassen.)

folgende symbolische Notation verwendet: $s_z = +\frac{1}{2} = \uparrow$ sowie $s_z = -\frac{1}{2} = \downarrow$ für Elektronen und $j_z = +\frac{3}{2} = \uparrow$ sowie $j_z = -\frac{3}{2} = \downarrow$ für Löcher. Aus der Addition der Drehimpulse folgen für das Exziton, welches aus einem Elektron und einem Loch besteht, vier mögliche Gesamtdrehimpulse: $S_z^X = \pm 1, \pm 2$. Da bei der strahlenden Rekombination der Ladungsträger das emittierte Photon einen Drehimpuls von $|\Delta S_z^X| = 1$ davonträgt, koppeln nur die beiden Exziton-Zustände $|\downarrow\uparrow\rangle$ und $|\uparrow\downarrow\rangle$ mit einem Gesamtdrehimpuls $S_z^X = \pm 1$ an das Lichtfeld und werden daher als *helle Exzitonen* bezeichnet (engl. *bright excitons*). Die beiden Exziton-Zustände $|\uparrow\uparrow\rangle$ und $|\downarrow\downarrow\rangle$ mit einem Gesamtdrehimpuls von $S_z^X = \pm 2$ sind hingegen nach den Auswahlregeln für Dipolübergänge optisch verboten und werden daher als *dunkle Exzitonen* bezeichnet (engl. *dark excitons*). Ohne jegliche Austauschwechselwirkung zwischen den Ladungsträgern wäre der Exziton-Zustand mit den beiden hellen und den beiden dunklen Zuständen vierfach entartet.

Die Spin-Austauschwechselwirkung zwischen Elektron und Loch führt jedoch zu einem zusätzlichen Term \hat{H}_A in Gleichung 2.2, der für ein QP-Potential mit $C_{2\nu}$ -Symmetrie wie

folgt dargestellt werden kann [Ivc97, Yam12]:

$$\hat{H}_A = \underbrace{2\Delta_0 J_z S_z}_{\hat{H}_A^0} + \underbrace{\Delta_1 (J_x S_x - J_y S_y)}_{\hat{H}_A^{\text{FSS}}} + \underbrace{\Delta_2 (J_x S_x + J_y S_y)}_{\hat{H}_A^1}, \quad (2.4)$$

wobei $S = (S_x, S_y, S_z)$ und $J = (J_x, J_y, J_z)$ die Gesamtdrehimpuls-Operatoren der beteiligten Elektronen bzw. Löcher repräsentieren und Δ_i Parameter sind, welche durch das QP-Potential bestimmt werden. Die Gestalt von \hat{H}_A und der Einfluss auf den Exziton-Zustand ist nun abhängig von der Symmetrie des QPes (siehe Abbildung 2.4). Im Falle eines QPes mit zylindrischer Symmetrie bezüglich der Wachstumsrichtung (Symmetriegruppe D_{2d} oder C_{4v}) entsteht die sogenannte isotrope Austauschwechselwirkung bei welcher die beiden Terme \hat{H}_A^0 und \hat{H}_A^1 in Gleichung 2.4 von Null verschieden sind. Der erste dieser beiden Terme spaltet die dunklen Zustände energetisch von den hellen Zuständen ab und der zweite bewirkt eine Aufhebung der energetischen Entartung der dunklen Zustände. Die spektrale Aufspaltung Δ_0 zwischen hellen und dunklen Exziton-Zuständen wurde in den Arbeiten [Bay99, Bay02] über magnetfeldabhängige Messungen ermittelt und liegt in Abhängigkeit von der QP-Größe im Bereich von $\approx 10 - 200 \mu\text{eV}$. Die hellen Zustände dagegen bleiben von der isotropen Austauschwechselwirkung unbeeinflusst und sind weiterhin zweifach entartet. Rekombinieren Exzitonen aus diesem Zustand, so sind die entsprechenden Photonen aufgrund der Helizität von ± 1 zirkular polarisiert (σ^\pm). Besteht jedoch eine Asymmetrie des QP-Potentials innerhalb der Wachstumsebene, was einer Symmetrierniedrigung auf C_{2v} entspricht, so wirkt auch der Term \hat{H}_A^{FSS} in Gleichung 2.4. Dieser mischt die beiden Zustände $|\downarrow\uparrow\rangle$ und $|\uparrow\downarrow\rangle$ zu zwei Linearkombinationen $\frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\downarrow\rangle \pm |\downarrow\uparrow\rangle)$ und hebt damit auch die Entartung der hellen Zustände des Exzitons auf - man spricht von einer anisotropen Austauschwechselwirkung. Die Emission des Exziton-Zustandes wird daher in Spektren als Linien-Dublett beobachtet, wobei die beiden Komponenten zueinander orthogonale, lineare Polarisation (π^\perp, π^\parallel) besitzen. Die entsprechende Feinstrukturaufspaltung ΔE_{FSS} (engl. *fine-structure splitting*) des hellen Exziton-Zustandes liegt für InAs/GaAs-QPe im Bereich $\approx 0 - 100 \mu\text{eV}$. Die ursächliche Anisotropie kann sowohl durch eine morphologische Asymmetrie des QP-Potentials innerhalb der Wachstumsebene als auch durch intrinsische Asymmetrien des Halbleiter-Substrates hervorgerufen werden, womit auch ein perfekt kreisrunder QP eine endliche Feinstrukturaufspaltung aufweisen kann.

Im Gegensatz zu dem elektrisch neutralen Exziton-Zustand zeigen die geladenen Trion-Zustände (X^- und X^+) keinerlei Feinstrukturaufspaltung. Betrachtet man beispielsweise den X^- -Zustand, so befinden sich die beiden Elektronen aufgrund des Pauli-Prinzips in einem Spin-Singulett Zustand mit einem verschwindenden Gesamtdrehimpuls $S_z^{X^-} = 0$.

Das einzelne Loch im Valenzband, welches beide Spin-Orientierungen annehmen kann, wechselwirkt also mit einer verschwindenden lokalen Spin-Dichte des Spin-Singulets der Elektronen. Hieraus folgt, dass auch die Austauschwechselwirkung zwischen den Elektronen und dem Loch verschwindet und so keine Aufspaltung der Emissionslinien in den Emissionsspektren beobachtet wird. Für den positiv geladenen Trion-Zustand X^+ verläuft die Argumentation analog. Eine weitere Folge der Spin-Singulett Konfiguration der Elektronen bzw. Löcher bei Trion-Zuständen ist, dass bei diesen nur helle Zustände existieren. Dies ist insbesondere bei der Realisierung einer effizienten Einzelphotonenquelle von Bedeutung. Würde hierfür ein neutrales Exziton eingesetzt, so würden die injizierten Ladungsträger, deren Spin-Orientierung in den gängigen Anregungs-Szenarien zufällig verteilt ist, mit gleicher Wahrscheinlichkeit die hellen und die dunklen Exziton-Zustände besetzen. Da die dunklen Zustände nicht an das Lichtfeld koppeln, kann die Besetzung nur durch Spinflip-Prozesse in die hellen Zustände oder durch eine weitere Anregung in den Biexziton-Zustand abgebaut werden. Die Anzahl der von dem hellen Exziton emittierten Photonen pro injiziertem Elektron-Loch-Paar ist entsprechend verringert, wodurch die Effizienz der Einzelphotonenquelle reduziert wird. Werden hingegen Trion-Zustände, bei welchen keine dunklen Zustände existieren, für die Realisierung einer solchen Lichtquelle eingesetzt, können höhere Einzelphotonen-Emissionsraten erzielt werden [Str07, Rei08a]. Bei den in Kapitel 4 untersuchten, elektrisch betriebenen Einzelphotonenquellen wurden daher die eingesetzten InAs/GaAs-QPe n-dotiert, um die Bildung negativ geladener Trion-Zustände zu begünstigen.

Bei der Emission des Biexziton-Zustandes wiederum wird in Spektren ein Linien-Dublett beobachtet, sofern eine anisotrope Austauschwechselwirkung \hat{H}_A^{FSS} aufgrund des QP-Potentials vorhanden ist. Der Biexziton-Zustand selbst weist jedoch eine verschwindende Elektron-Loch Austauschwechselwirkung ($\hat{H}_A = 0$) auf, da die beiden Elektronen und Löcher jeweils nach dem Pauli-Prinzip gepaarte Spins besitzen. Die dennoch beobachtete Aufspaltung der Biexziton-Emissionslinie liegt in diesem Fall darin begründet, dass die Rekombination des Elektron-Loch-Paares in einem der beiden hellen Exziton-Zustände mündet. Der durch die Austauschwechselwirkung aufgespaltene Exziton-Zustand bietet dem Zerfall des Biexzitons daher zwei mögliche Endzustände und prägt damit die Feinstrukturaufspaltung ΔE_{FSS} auch der Biexziton-Emissionslinie auf. Die weiteren Auswirkungen einer Austauschwechselwirkung auf die Eigenschaften der XX-X-Kaskade werden in dem folgenden Abschnitt näher erläutert.

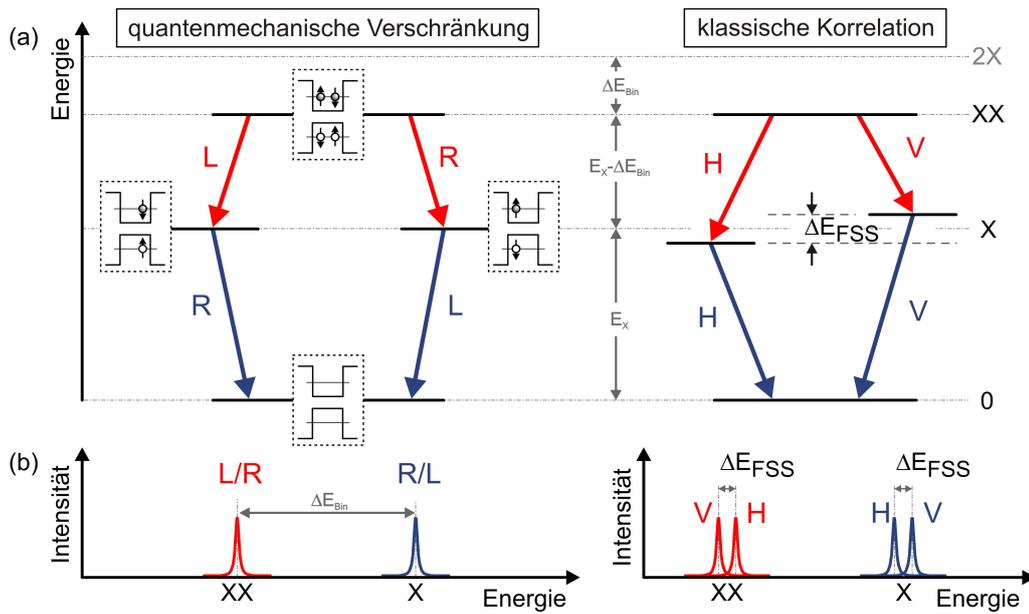


Abbildung 2.5: (a) Termschema der Biexziton-Exziton- (XX-X-) Zerfallskaskade für einen Quantenpunkt mit verschwindender (links) bzw. endlicher (rechts) Feinstrukturaufspaltung ΔE_{FSS} der beiden Zustände des hellen Exzitons. Im Falle $\Delta E_{FSS} = 0$ kann nicht zwischen den beiden möglichen Zerfallskanälen unterschieden werden (vgl. Emissionsspektrum in (b), links) und der Quantenpunkt emittiert ein quantenmechanisch polarisationsverschränktes Photonenpaar $|\Psi^+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|LR\rangle + |RL\rangle)$. Gilt $\Delta E_{FSS} \neq 0$, sind die Zerfallskanäle unterscheidbar (vgl. auch Emissionsspektrum in (b), rechts). Hierdurch wird in zeitintegrierten Messungen die quantenmechanische Verschränkung zerstört, und es kann eine klassische Polarisationskorrelation der emittierten XX-X-Paare beobachtet werden.

2.1.5 Biexziton-Exziton-Kaskade

Für den sequentiell von der XX-X-Kaskade emittierten Zweiphotonen-Zustand ergeben sich, wie in Abbildung 2.5 dargestellt, zwei fundamental unterschiedliche Situationen im Falle einer verschwindenden oder endlichen anisotropen Elektron-Loch Austauschwechselwirkung.

Ist bei einem QP keine anisotrope Austauschwechselwirkung vorhanden, so resultieren aus der hohen Symmetrie des QP-Potentials zwei mögliche, energetisch äquivalente Zerfallskanäle. Diese Situation ist in Abbildung 2.5(a) auf der linken Seite dargestellt. Je nachdem, welches der beiden Elektron-Loch-Paare zuerst strahlend rekombiniert, wird ein links-zirkular- (L-) oder rechts-zirkular- (R-) polarisiertes Photon emittiert. Da der Exziton-Zustand energetisch entartet ist, weisen beide Zerfallskanäle exakt dieselbe Energiedifferenz auf. Dies gilt auch für die darauffolgende Rekombination des Exziton-Zustandes, bei dem je nach vorausgegangenem Biexziton-Photon entweder ein R- oder

L-polarisiertes Photon emittiert wird. Die beiden möglichen XX-X-Zerfallskanäle und damit auch die beiden emittierten Zweiphotonen-Zustände $|LR\rangle$ und $|RL\rangle$ sind hinsichtlich ihrer Energie ununterscheidbar (vgl. Abbildung 2.5 (b), links). Sind beide Zerfallskanäle darüber hinaus auch gleich wahrscheinlich, so wird die in einer Messung beobachtete Polarisation des Exziton-Photons vollkommen unbestimmt, jedoch abhängig von der Polarisation des vorausgehenden Biexziton-Photons, sein. In diesem Fall ist der von der XX-X-Kaskade erzeugte Zweiphotonen-Zustand ein quantenmechanisch maximal verschränkter Bell-Zustand der Gestalt [Ben00]:

$$|\Psi^+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|LR\rangle + |RL\rangle) . \quad (2.5)$$

Dieser in der zirkularen (RL) Polarisations-Basis ausgedrückte Bell-Zustand kann auch in der rektilinearen (HV) Polarisations-Basis, mit den horizontal- und vertikal-linearpolarisierten Eigenvektoren $|H\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|L\rangle + |R\rangle)$ bzw. $|V\rangle = \frac{i}{\sqrt{2}}(|R\rangle + |L\rangle)$ dargestellt werden. Ebenso ist eine Darstellung in der diagonalen (DA) Polarisations-Basis, welche durch die diagonal- und antidiagonal-linearpolarisierten Eigenvektoren $|D\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|H\rangle + |V\rangle)$ bzw. $|A\rangle = \frac{i}{\sqrt{2}}(|H\rangle - |V\rangle)$ aufgespannt wird, möglich. Folglich ergibt sich eine in allen drei Polarisations-Basen völlig äquivalente Formulierung des Bell-Zustandes:

$$|\Psi^+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|LR\rangle + |RL\rangle) \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(|HH\rangle + |VV\rangle) \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(|DD\rangle + |AA\rangle) . \quad (2.6)$$

Dies zeigt, dass der Zustand $|\Psi^+\rangle$ in jeder der drei Polarisations-Basen verschränkt ist. Des Weiteren sagt Gleichung 2.6 voraus, dass sich in polarisationsaufgelösten Messungen in der HV- und DA-Basis jeweils eine Polarisations-Korrelation der beiden emittierten Photonen ergibt, in der RL-Basis hingegen eine Polarisations-Antikorrelation.

Existiert bei einem QP jedoch eine anisotrope Austauschwechselwirkung, so werden die beiden Zerfallskanäle der XX-X-Kaskade energetisch unterscheidbar (siehe Abbildung 2.5 (a), rechts). Das Biexziton rekombiniert nun strahlend zu einem der beiden, um die Feinstrukturaufspaltung ΔE_{FSS} , energetisch aufgespaltenen Endzustände des hellen Exzitons: $\frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\downarrow\rangle \pm |\downarrow\uparrow\rangle)$. Da diese eine Linearkombination der vormals reinen Zustände $|\uparrow\downarrow\rangle$ und $|\downarrow\uparrow\rangle$ darstellen, ergibt sich aus der Mischung von L- und R-polarisierten Photonen nun die Emission von H- und V-polarisierten Photonen. Die beiden emittierten Photonen eines Zerfallskanals sind bzgl. ihrer Polarisation korreliert, und es ergeben sich die beiden Zweiphotonen-Zustände $|HH\rangle$ und $|VV\rangle$. Durch die energetische Aufspaltung des Exziton-Zustandes entwickelt sich zwischen diesen beiden Zuständen eine Phasendifferenz,

wodurch der emittierte Zweiphotonen-Zustand folgende Gestalt annimmt [Hud07, Ste08]:

$$|\Psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|HH\rangle + e^{i\Delta E_{\text{FSS}}\tau/\hbar}|VV\rangle), \quad (2.7)$$

wobei τ die Zeitdifferenz zwischen der Emission des Biexziton- und des Exziton-Photons angibt ($\hbar = h/(2\pi)$, mit dem Planck'schen Wirkungsquantum h). In zeitintegrierten Messungen, wie sie in Unterkapitel 5.4 durchgeführt werden, führt der Phasenterm in Gleichung 2.7 zu einem reduzierten Überlapp zwischen $|\Psi\rangle$ und dem maximal verschränkten Zweiphotonen-Zustand $|\Psi^+\rangle$ aus Gleichung 2.6 - die quantenmechanische Verschränkung wird zerstört. Sie kann in diesem Fall nur nachgewiesen werden, sofern die Feinstrukturaufspaltung ΔE_{FSS} im Bereich der homogenen, nur durch die strahlende Lebensdauer τ_X limitierte, Linienbreite $\gamma_X = \hbar/\tau_X$ des Exziton-Zustandes liegt. Ein Maß für die Qualität eines Zweiphotonen-Zustandes $|\Psi\rangle$ der XX-X-Kaskade ist nach obiger Diskussion der Überlapp des Zustandes $|\Psi\rangle$ mit dem maximal verschränkten Bell-Zustand $|\Psi^+\rangle$, welcher quantitativ durch die sogenannte Fidelity f^+ beschrieben wird. Der Bell-Zustand $|\Psi^+\rangle$ ist damit per Definition durch $f^+ = 1$ charakterisiert. Für Lichtquellen, welche lediglich klassisch korrelierte Photonenpaare emittieren, ergibt sich mit $f^+ \leq 0,5$ hingegen eine obere Grenze, womit die Fidelity ein geeignetes Testkriterium für die Beobachtung quantenmechanisch verschränkter Photonenpaare darstellt [You06, Haf07, Mic09]. Eine experimentelle Bestimmung der Fidelity f^+ des Zweiphotonen-Zustandes einer XX-X-Kaskade erfolgt in Abschnitt 5.4 an einem elektrisch gepumpten QP.

2.1.6 Elektrische Anregung in einer pin-Diode

Zur Anregung der Lumineszenz von QPen müssen freie Ladungsträger in der Halbleiterstruktur vorhanden sein. Die Erzeugung von freien Elektron-Loch-Paaren kann beispielsweise optisch-nichtresonant mit einem Laser der Wellenlänge $\lambda_{\text{Laser}} \leq \frac{hc}{E_g}$ erfolgen, wobei E_g die Bandlücke der den QP umgebenden Halbleiter-Matrix darstellt (h : Planck'sches Wirkungsquantum, c : Lichtgeschwindigkeit;). Des Weiteren können QPe optisch auch quasi- oder strikt-resonant angeregt werden, indem ein abstimmbarer Laser auf die Resonanzenergie eines höheren Energieniveaus des QPes oder gar des zu untersuchenden Energieniveaus selbst eingestellt wird. Diese als Resonanzfluoreszenz bezeichnete Methode wird bei Experimenten angewendet, bei welchen störende Einflüsse - hervorgerufen durch die Ladungsträger-Relaxation in das QP-Potential - ausgeschaltet werden müssen [Ate09].

Als weitere, anwendungs-relevante Möglichkeit der Anregung bietet sich bei QPen die Integration in dotierte Halbleiterstruktur an, womit die Elektronen bzw. Löcher über elek-

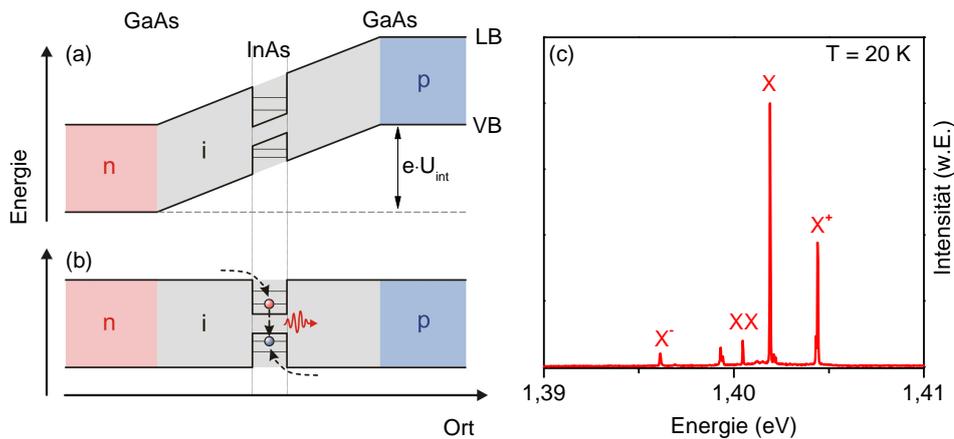


Abbildung 2.6: Funktionsprinzip einer Quantenpunkt-Leuchtdiode (QP-LED): (a) Schematischer Verlauf der Bandstruktur eines in eine pin-dotierten Halbleiterstruktur integrierten QPes. Aufgrund des pn-Überganges bildet sich eine Antidiffusionsspannung U_{int} aus, welche über dem intrinsischen (i) Bereich der Diode abfällt. (b) Ab einer angelegten Spannung $U \geq U_{\text{int}}$ in Durchlassrichtung der Diode können Ladungsträger in den QP injiziert werden. (c) Exemplarisches Emissionsspektrum einer QP-LED im elektrischen Betrieb ($T = 20 \text{ K}$). Detaillierte experimentelle Untersuchungen an diesen QP-LEDs folgen in Kapitel 5.

trische Kontakte injiziert werden können. Diese elektrische Anregung der QP-Lumineszenz ist insbesondere hinsichtlich Anwendungen in der Informations- und Quanteninformationsverarbeitung von Interesse und ermöglicht die Realisierung hochintegrierter, optoelektronischer QP-Bauelemente. Abbildung 2.6 (a) zeigt schematisch den Bandkantenverlauf eines in eine dotierte Halbleiterstruktur eingebetteten QPes entlang der Wachstumsrichtung, wobei zunächst keine äußere Spannung an dem Bauteil anliegt. Der aus InAs bestehende QP ist in eine undotierte, intrinsische (i) Halbleiter-Matrix aus GaAs eingebettet. Diese wird umgeben von einem unteren, n-dotierten sowie einem oberen, p-dotierten Bereich aus GaAs. Aufgrund des pn-Überganges bildet sich eine intrinsische Antidiffusionsspannung U_{int} aus, welche über dem undotierten Teil der Diode abfällt und ein konstantes elektrisches Feld im Bereich des QPes erzeugt. Um Ladungsträger in das Bauteil injizieren zu können, muss eine Spannung $U \geq U_{\text{int}}$ an die Kontakte in Durchlassrichtung der Diode angelegt werden. Kompensiert die angelegte äußere Spannung gerade die Antidiffusionsspannung ($U = U_{\text{int}}$), so befindet sich die Struktur im sogenannten Flachband-Fall (siehe Abbildung 2.6 (b)). Ab diesem Punkt werden Elektronen und Löcher von den Kontakten in die intrinsische Schicht injiziert und können unter Streuung mit Phononen in den Potentialtopf des QPes relaxieren und schließlich - nach der Lebensdauer des jeweiligen exzitonischen Zustandes - strahlend rekombinieren. Die Besetzungswahrscheinlichkeit und damit auch die Emissionsintensität eines exzitonischen Zustandes hängt dabei stark von

der Anzahl der injizierten Ladungsträger pro Zeit ab.

Abbildung 2.6 (c) zeigt exemplarisch das Emissionsspektrum eines einzelnen, in eine pin-dotierte Diode integrierten QPe unter elektrischer Anregung und einer Temperatur von $T = 20$ K. Neben der Emission des neutralen Exzitons (X) sind auch die negativ und positiv geladenen Trion-Zustände (X^- bzw. X^+) sowie das Biexziton (XX) zu beobachten. Detaillierte Untersuchungen an solchen Einzelquantenpunkt-LEDs erfolgen in Kapitel 5. Das grundlegende Konzept, QPe in eine pin-Diode zu integrieren und damit elektrisch betreibbare QP-LEDs zu realisieren, liegt allen in dieser Arbeit untersuchten Mikrostrukturen zugrunde. Um jedoch die Funktionalität über die einer herkömmlichen LED hinaus zu erweitern, und die effiziente elektrische Erzeugung einzelner Photonen oder korrelierter Photonenpaare zu ermöglichen, sind komplexere Mikrostrukturen notwendig. Im folgenden Unterkapitel wird erläutert, wie mit dem Konzept des optischen Mikroresonators die Licht-Auskoppeleffizienz verbessert werden kann.

2.2 Optische Mikroresonatoren

Wird Licht in einem optischen Resonator auf ein Volumen $V \approx (\lambda/n)^3$ lokalisiert, dessen Ausdehnung in allen drei Raumrichtungen in der Größenordnung der Lichtwellenlänge liegt, führt dies zur Ausbildung diskreter optischer Moden mit einem großen freien Spektralbereich. Die Eigenschaften eines Emitters (z.B. ein QP) der in solch einen Mikroresonator eingebracht wird, können durch die modifizierte optische Zustandsdichte des Resonators maßgeblich beeinflusst werden. Das Forschungsgebiet der sogenannten *cavity quantum electrodynamics* (cQED) basiert auf Mikroresonatoren und behandelt die Wechselwirkung von Quantenemittern mit dem quantisierten elektromagnetischen Feld eines Resonators hoher Güte. Erste cQED-Experimente wurden an Atomen durchgeführt, die mittels Dipolfallen im Zentrum eines optischen Resonators gehalten wurden [Mab02]. Durch die Realisierung von Mikroresonatoren mit integrierten QPen wurde die Beobachtung von cQED-Effekten erstmals auch im Festkörper möglich [Gér98, Sol01].

Abbildung 2.7 zeigt schematisch die drei prominentesten Mikroresonator-Systeme auf der Basis von Halbleiter-Heterostrukturen: Zylindrische Fabry-Pérot Mikrosäulenresonatoren, Mikro-Scheibenresonatoren und photonische Kristallresonatoren. Zylindrische Fabry-Pérot Mikrosäulenresonatoren (engl. *micropillar cavity*) bestehen meist aus einer λ/n dicken Kavität, welche zwischen einem unteren bzw. oberen dielektrischen Bragg-Spiegel (DBR¹) hoher Reflektivität eingebettet ist (vgl. Abbildung 2.7 (a)) [Gér96, Rei10b]. Eine

¹ Distributed Bragg Reflector

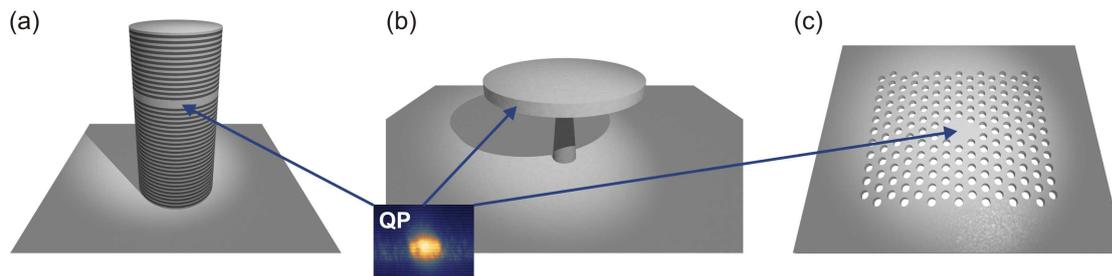


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung der drei prominentesten Typen halbleiterbasierter Mikroresonatoren: (a) Zylindrische Fabry-Pérot Mikrosäulenresonatoren, (b) Mikro-Scheibenresonatoren und (c) photonische Kristallresonatoren. Pfeile deuten die Position integrierter Quantenpunkte an (XSTM-Aufnahme mit freundlicher Genehmigung von P. Koenraad, Technische Universität Eindhoven). In Kapitel 4 werden die säulenförmigen Mikroresonatoren (engl. *micropillar cavity*) eingesetzt, um effiziente, elektrisch betriebene Einzelphotonenquellen zu realisieren.

Lokalisierung des Lichts erfolgt hier zum einen in Wachstumsrichtung durch Reflexion an den beiden DBRs, zum anderen in lateraler Richtung durch eine Modenföhrung aufgrund des Brechungsindex-Sprungs von Halbleiter zu Vakuum. Die Auskopplung und Detektion von Licht erfolgt dabei in Wachstumsrichtung über den oberen DBR. Dieses Konzept säulenförmiger Mikroresonatoren wird in Kapitel 4 verfolgt, um effiziente, elektrisch betriebene Einzelphotonenquellen zu realisieren. Ein weiteres Mikroresonator-System stellen die sogenannten Mikro-Scheibenresonatoren (engl. *microdisk cavity*) dar (vgl. Abbildung 2.7 (b)) [McC92, Sri07]. In diesen bilden sich sogenannte *whispering gallery modes* (WGM¹) aus, welche am äußeren Rand der flachen Zylinderscheibe kreisförmig in der Wachstumsebene propagieren und durch innere Totalreflexion in der Scheibe gehalten werden. Ein ebenfalls weit verbreiteter Typ von Mikroresonatoren basiert auf photonischen Kristallen (engl. *photonic crystal cavity*) (vgl. Abbildung 2.7 (c)) [Pai99, Nod07]. Bei diesen wird durch eine Modulation des Brechungsindexes auf der Größenskala der Lichtwellenlänge - realisiert beispielsweise durch das Ätzen eines periodischen Lochgitters - eine künstliche photonische Bandlücke erzeugt, in welcher keine Lichtpropagation statt finden kann. Die eigentliche Kavität entsteht erst durch das Einbringen eines Defektes, der durch das Weglassen bzw. Versetzen eines oder mehrerer Einheitszellen des Lochgitters entsteht. In diesem Defekt erfolgt wiederum eine dreidimensionale Lokalisierung des Lichts, in lateraler Richtung durch die photonische Bandlücke und in Wachstumsrichtung durch den Brechungsindex-Sprung von Halbleiter zu Vakuum.

1 engl. für Flöster-Galerie Moden;

Unabhängig von der speziellen Geometrie des Mikroresonators liegt den meisten in Halbleiterstrukturen durchgeführten cQED-Experimenten folgende Modellvorstellung zugrunde (vgl. auch Abbildung 2.8 (a)): Betrachtet wird ein idealisierter QP, welcher als Zwei-Niveau-System mit Grundzustand $|G\rangle$ und angeregten Exziton-Zustand $|X\rangle$ beschrieben wird und resonant an die unbesetzte Mode $|0\rangle$ eines optischen Resonators der Güte $Q = E_C/\gamma_C$ koppelt. Dabei bezeichnet E_C die Resonanzenergie und γ_C die Linienbreite der Resonatormode. Befindet sich der QP anfänglich in seinem angeregten Zustand, so wird er nach einer charakteristischen Zeit $\tau_X = \hbar/\gamma_X$ durch die spontane Emission eines Photons in seinen Grundzustand übergehen. Im Grenzfall eines verlustfreien Resonators ($Q \rightarrow \infty$) kann das zwischen den Spiegeln propagierende Photon von dem QP reabsorbiert und anschließend wieder emittiert werden. In diesem Fall, bei welchem die spontane Emission zu einem reversiblen Prozess wird, kommt es zu einer quantenmechanischen Verschränkung zwischen den beiden Zuständen $|X,0\rangle$ und $|G,1\rangle$, bei welchen sich abwechselnd kein bzw. ein Photon in der Kavität befindet. Das entsprechende Quasiteilchen $|\Psi_{\text{Polariton}}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|G,1\rangle \pm |X,0\rangle)$ wird als Polariton bezeichnet, und besteht zu gleichen Anteilen aus Licht und Materie. Der Vorgang des kohärenten Energieaustausches eines Emitters mit dem Vakuumfeld einer Resonatormode ist als Vakuum-Rabi-Oszillation bekannt und charakteristisch für das Regime der *starken Kopplung*. In QP-Mikroresonatoren wurden Vakuum-Rabi-Oszillationen erstmals im Jahre 2004, von zwei unterschiedlichen Arbeitsgruppen nahezu zeitgleich beobachtet [Rei04, Yos04]. Aufgrund der endlichen Güte realer Resonatoren verläuft eine Vakuum-Rabi-Oszillation stets gedämpft, da das Photon den Resonator nach einer charakteristischen Zeitdauer $\tau_C = Q\hbar/E_C$ wieder verlässt. Ist die Dämpfung durch die Resonatorverluste so stark, dass das Photon die Kavität verlässt, bevor es von dem QP erstmalig reabsorbiert werden kann, so befindet sich das System im Regime der *schwachen Kopplung*. Die experimentellen Untersuchungen dieser Arbeit konzentrieren sich auf das Regime der schwachen Kopplung, welches im Folgenden näher erläutert wird.

2.2.1 Purcell-Effekt

Betrachtet man das Regime der schwachen Kopplung, so bleibt der Prozess der spontanen Emission irreversibel und es treten keine Vakuum-Rabi-Oszillationen auf. Das Emissionsverhalten eines Emitters wird dennoch stark von einem Mikroresonator beeinflusst. Nach *Fermis Goldener Regel*, welche für einen elektrischen Dipolübergang die Form

$$\frac{1}{\tau} = \frac{4\pi}{\hbar} \rho(\omega_0) |\langle \vec{d} \cdot \vec{f}(r_0) \rangle|^2 \quad (2.8)$$

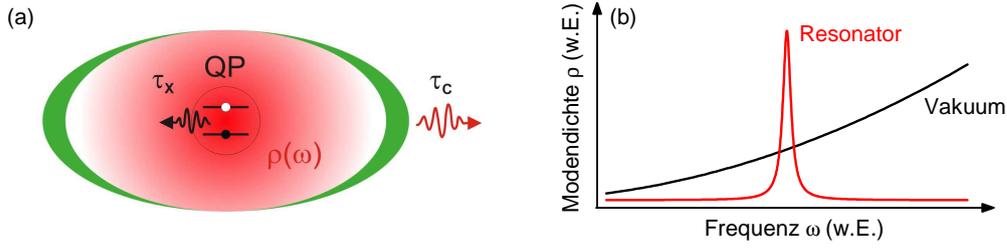


Abbildung 2.8: (a) Schematische Darstellung eines cQED-Experimentes: Die Spiegel eines optischen Resonators (grün) definieren eine Modendichte $\rho(\omega)$ des elektromagnetischen Feldes (rot), welche an einen Zwei-Niveau-Emitter (z.B. ein QP) koppelt. Im Regime der schwachen Kopplung zwischen Emitter und Mode ist die Zeitskala τ_c der Resonatorverluste kleiner als die spontane Lebensdauer τ_x des Emitters. (b) Schematische Darstellung der Modendichte im Vakuum und in einem Mikroresonator.

annimmt, ist die spontane Emissionsrate $\Gamma = 1/\tau$ direkt proportional zu der Modendichte $\rho(\omega_0)$ bei der Übergangsfrequenz ω_0 , mit dem Dipolmatrixelement $|\langle \vec{d} \cdot \vec{f}(r_0) \rangle|$ des entsprechenden Überganges [Gér98]. Befindet sich ein Emitter in spektraler Resonanz mit der optischen Mode eines Mikroresonators, so kann seine strahlende Lebensdauer durch die ihn umgebende, erhöhte optische Modendichte deutlich verkürzt sein [Gér98, Sol01]. Umgekehrt kann der Emitter gegenüber dem Vakuum auch eine längere Lebensdauer aufweisen, wenn sich die Emission in dem freien Spektralbereich des Resonators befindet [Bay01]. Abbildung 2.8 (b) zeigt zur Verdeutlichung schematisch die optische Modendichte $\rho(\omega)$ innerhalb eines Resonators sowie im Vakuum.

Dieser sogenannte *Purcell-Effekt* wurde bereits 1946 von seinem Namensgeber für Atome in Resonatoren vorhergesagt [Pur46]. Das Verhältnis der Lebensdauern eines Emitters im Vakuum τ_{Vakuum} und in Resonanz mit der optischen Mode eines Resonators τ_{Res} wird als *Purcell-Faktor* F_P bezeichnet. In der Halbleiterphysik wird dieser Quotient nicht auf das Vakuum, sondern auf den unendlich ausgedehnten, homogenen Festkörper mit Brechungsindex n bezogen. Der Purcell-Faktor $F_P = \frac{\tau_{3D}}{\tau_{\text{Res}}}$ kann in diesem Fall wie folgt ausgedrückt werden [Gay03]:

$$F_P = \underbrace{\frac{3Q(\lambda_C/n)^3}{4\pi^2 V_M}}_{F_P^{\text{max}}} \cdot \underbrace{\frac{\gamma_C^2}{4\Delta^2 + \gamma_C^2}}_{\text{spektral}} \cdot \underbrace{\frac{|\vec{E}(\vec{r})|^2}{|\vec{E}_{\text{max}}|^2}}_{\text{räumlich}}. \quad (2.9)$$

Der erste Term hängt, mit der Güte Q , dem effektiven Modenvolumen V_M und der Resonanzwellenlänge λ_C , ausschließlich von den Resonatoreigenschaften ab. Der zweite Term trägt einer endlichen spektralen Verstimmung Δ zwischen Emitter und Resonatormode Rechnung und beschreibt - entsprechend der optischen Modendichte - ein Lorentzprofil.

Der dritte Term berücksichtigt des Weiteren, dass das elektrische Feld $\vec{E}(\vec{r})$ am Ort des Emitters durch einen endlichen räumlichen Überlapp gegenüber dem Maximum des elektrischen Feldes \vec{E}_{\max} der optischen Mode reduziert sein kann. Im Falle spektraler Resonanz ($\Delta = 0$) sowie perfektem räumlichen Überlapp zwischen Dipol-Emitter und Resonatormode ergibt sich für den Purcell-Faktor folglich die obere Grenze:

$$F_{\text{P}}^{\max} = \frac{3Q(\lambda_{\text{C}}/n)^3}{4\pi^2 V_{\text{M}}} . \quad (2.10)$$

Daraus wird ersichtlich, dass für das Erreichen hoher Purcell-Faktoren die technologische Herausforderung in der Optimierung des Verhältnisses Q/V_{M} besteht. Dadurch wird es möglich, die strahlende Lebensdauer eines QPes in einer Halbleiterstruktur erheblich zu verringern und somit die spontane Emissionsrate zu erhöhen. Für die Entwicklung eines Bauteils, welches die effiziente Erzeugung einzelner Photonen ermöglicht, ist jedoch die alleinige Maximierung des Purcell-Faktors F_{P} nach Gleichung 2.9 nicht ausreichend. Wie im Folgenden erläutert wird, ist hierfür auch die Photonen-Auskoppleffizienz des gesamten Bauteils zu optimieren.

2.2.2 Photonen-Auskoppleffizienz

Von einem QP, der in einer Halbleiter-Matrix räumlich isotrop Photonen emittiert, kann aufgrund der inneren Totalreflexion an einer ebenen Grenzfläche des Halbleiters zum Vakuum nur ein Bruchteil ϵ der gesamten Emission aus dem Halbleiter ausgekoppelt und somit durch eine externe Linse eingesammelt werden. Für Halbleiter wie GaAs ist dieser Anteil auf einen Wert von $\epsilon \approx 3\%$ limitiert [Bar02, Zwi04]. Für die Realisierung eines optoelektronischen Bauteils hoher Effizienz, besteht folglich eine Herausforderung in der Steigerung von ϵ . Eine Möglichkeit ist die Implementierung eines Bragg-Spiegels hoher Reflektivität unterhalb des QPes. Durch ihn werden die in den unteren Halbraum des Halbleiters emittierten Photonen zurück in Richtung Halbleiter-Vakuum-Grenzfläche reflektiert, wodurch ϵ um maximal einen Faktor zwei gesteigert werden kann. Eine erheblich größere Steigerung der Photonen-Ausbeute wird, wie im Folgenden erläutert, durch den Einsatz von Mikroresonatoren möglich.

Hierfür wird im Folgenden zunächst der *Kopplungsfaktor der spontanen Emission* β betrachtet. Befindet sich ein Emitter in spektraler Resonanz mit der optischen Mode eines Mikroresonators, so kann seine spontane Emissionsrate gegenüber dem Volumenhalbleiter nach $\tau_{\text{Res}}^{-1} = \frac{F_{\text{P}}}{\tau_{3\text{D}}}$ um den Purcell-Faktor erhöht sein (vgl. Unterkapitel 2.2.1). Die Emissionsrate in alle anderen, unerwünschten Moden ist hingegen geringer bzw. möglicherweise sogar unterdrückt: $\tau_{\text{nichtresonant}}^{-1} = \frac{\gamma}{\tau_{3\text{D}}}$. Der Anteil β der gesamten spontanen Emission,

welcher direkt in eine gewünschte Resonatormode eingekoppelt werden kann, ergibt sich demnach zu

$$\beta = \frac{F_P/\tau_{3D}}{F_P/\tau_{3D} + \gamma/\tau_{3D}} \approx \frac{F_P}{F_P + 1} . \quad (2.11)$$

Der β -Faktor hängt bei Mikrosäulenresonatoren näherungsweise nur von dem Purcell-Faktor ab, da die spontane Emissionsrate in nichtresonante Moden vergleichbar mit der spontanen Emissionsrate im Volumenhalbleiter ist ($\gamma \approx 1$) [Gér01, Bar02]. Den Koppplungsfaktor der spontanen Emission zu maximieren, ist insbesondere im Bezug auf die Realisierung eines sogenannten *schwollenlosen-Lasers* ($\beta \rightarrow 1$) notwendig [Nod06].

Ein hoher β -Faktor hat bei einer gegebenen Mikroresonator-Geometrie jedoch nicht automatisch eine hohe Photonenausbeute zur Folge. Um hohe Purcell-Faktoren zu erzielen, muss nach Gleichung 2.10 ein kleines Modenvolumen und somit im Falle der Mikrosäulenresonatoren auch ein kleiner Resonatordurchmesser realisiert sein. Als Folge der geringen Abmessungen gewinnt, sowohl in idealen als auch realen Mikrosäulenresonatoren, die Streuung der Photonen an den Resonatorseitenwänden an Bedeutung. Dieser Verlustkanal trägt über einen Term $Q_{\text{Randstreuung}}^{-1}$ zur Gesamtverlustrate Q^{-1} bei und dominiert ab einem gewissen kritischen Resonatordurchmesser, sodass näherungsweise gilt [Bar02, Riv99]:

$$Q^{-1} = Q_{2D}^{-1} + Q_{\text{Randstreuung}}^{-1} . \quad (2.12)$$

Q_{2D} beschreibt dabei die Güte des planaren bzw. lateral unstrukturierten Resonators, welche maßgeblich von der Reflektivität und damit von der Anzahl der Spiegelpaare in den beiden DBRs abhängt. Für ein asymmetrisches Resonatordesign, bei welchem der obere DBR eine geringere Anzahl an Spiegelpaaren aufweist als der untere, beschreibt Q_{2D} anschaulich die Auskopplung der Photonen durch den oberen DBR in Richtung Sammeloptik. Der zweite Term $Q_{\text{Randstreuung}}^{-1} = \kappa J_0^2(k_t r_C)/r_C$, welcher die Verluste durch Streuung an den Resonatorseitenwänden beschreibt, verhält sich indirekt proportional zum Resonatordurchmesser $d_C = 2r_C$. Dabei ist κ eine phänomenologische Proportionalitätskonstante und $J_0(k_t r_C)$ die Bessel-Funktion erster Art, welche die radiale Intensitätsverteilung in einem Resonator mit Radius r_C beschreibt. Für große Resonatordurchmesser ist der Beitrag $Q_{\text{Randstreuung}}^{-1}$ gering und der Q -Faktor des Resonators ist vergleichbar mit der Güte Q_{2D} des planaren Mikroresonators. Mit abnehmendem Resonatordurchmesser nimmt die Feldintensität der optischen Mode im Bereich der Resonatorseitenwand zu, wodurch auch die Wahrscheinlichkeit $Q_{\text{Randstreuung}}^{-1}$, dass ein Photon in lateraler Richtung aus dem Resonator gestreut wird, anwächst. Die aus dem Resonator lateral herausgestreuten Photonen sind für eine Sammeloptik mit einer endlichen numerischen Aperatur verloren und der Q -Faktor des Mikroresonators wird entsprechend reduziert. In diesem Fall lässt sich al-

so der Anteil des gesamten Photonенflusses, welcher über den oberen DBR in Richtung Sammeloptik ausgekoppelt wird, durch das Verhältnis Q/Q_{2D} beschreiben. Berücksichtigt man des Weiteren, dass von diesen ausgekoppelten Photonен wiederum ein Anteil β in einer bestimmten Resonatormode geführt wird (siehe Gleichung 2.11), so ergibt sich für die nutzbare Photonен-Auskoppeeffizienz η_{ph} des Mikroresonators folgender Zusammenhang:

$$\eta_{\text{ph}} = \frac{Q}{Q_{2D}} \cdot \frac{F_{\text{P}}}{F_{\text{P}} + 1} . \quad (2.13)$$

Nach obiger Diskussion wird ersichtlich, dass bei Mikrosäulenresonatoren eine Optimierung der Photonен-Auskoppeeffizienz η_{ph} mit einem Kompromiss zwischen geringen Verlusten durch Seitenwandstreuung $Q_{\text{Randstreuung}}^{-1}$ einerseits und hohen Purcell-Faktoren F_{P} andererseits verbunden ist. Nach Barnes et al. [Bar02] wurde die nach dem damaligen Stand der Technologie somit zu erreichende Photonен-Auskoppeeffizienz für Mikrosäulenresonatoren zu $\eta_{\text{ph}} \approx 70\%$ abgeschätzt. Das anhand von Gleichung 2.13 diskutierte Verhalten von η_{ph} wird in Kapitel 4 sowohl experimentell als auch anhand von Simulationsrechnungen analysiert, um effiziente Einzelphotonенquellen zu realisieren.

2.3 Statistische Eigenschaften von Licht

Eine Analyse der zeitlichen Verteilung der von einer Lichtquelle ausgesandten Photonен erlaubt Rückschlüsse auf die zugrundeliegenden Emissionsprozesse. In dieser Arbeit sowie generell auf dem Gebiet der Quanteninformation, sind Experimente zum Nachweis und der Charakterisierung nicht-klassischer Photonен-Zustände von grundlegender Bedeutung. Die *Photonен-Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung* $g^{(2)}(\tau)$, welche im Folgenden eingeführt und erläutert wird, erlaubt dabei eine quantitative Charakterisierung der Photonенstatistik.

2.3.1 Photonен-Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung

R. J. Glauber entwickelte im Jahre 1963 eine quantenmechanische Beschreibung der Photonенstatistik eines Lichtfeldes [Gla63]. Demnach lässt sich die Photonен-Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ eines stationären Lichtfeldes, formuliert in der zweiten Quantisierung, wie folgt darstellen [Lou05a, Wie09]:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}^\dagger(t + \tau) \hat{a}(t + \tau) \hat{a}(t) \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}(t) \rangle^2} . \quad (2.14)$$

Dabei bezeichnet \hat{a}^\dagger und \hat{a} den Erzeugungs- und Vernichtungsoperator eines Photons in einer bestimmten Mode zur Zeit t bzw. $t + \tau$ und $\langle \rangle$ entspricht der Bildung eines quantenmechanischen Erwartungswertes. Im Einzelphotonenbild gesprochen kann 2.14 als die bedingte Wahrscheinlichkeit interpretiert werden, mit der zur Zeit $t + \tau$ ein Photon von einer Lichtquelle emittiert wird, nachdem bereits zur Zeit t ein Photon ausgesandt wurde. Im klassischen Bild der elektromagnetischen Welle nimmt $g^{(2)}(\tau)$ folgende Gestalt an [Lou05b]:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2}, \quad (2.15)$$

wobei $\langle \rangle$ eine zeitliche Mittelung der Intensität I bedeutet. Um Aussagen über die Natur des zu untersuchenden Lichtfeldes treffen zu können, ist insbesondere der Fall $\tau \rightarrow 0$, welcher das Auftreten zweier Photonen zur selben Zeit beschreibt, entscheidend. Gleichung 2.14 lässt sich in diesem Fall vereinfachen zu

$$g^{(2)}(\tau = 0) = 1 + \frac{V(\hat{n}) - \langle \hat{n} \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2}, \quad (2.16)$$

wobei $\langle \hat{n} \rangle \equiv \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle$ die mittlere Anzahl der Photonen und $V(\hat{n}) \equiv \langle \hat{n}^2 \rangle - \langle \hat{n} \rangle^2$ die Varianz der Photonenzahl eines gegebenen Feldzustandes angibt. Wie in dem folgenden Abschnitt erläutert wird ist das Verhalten von $g^{(2)}(\tau \rightarrow 0)$ charakteristisch für unterschiedliche Klassen von Photonen-Zuständen.

2.3.2 Klassifizierung von Photonen-Zuständen

Lichtfelder können in Abhängigkeit von der statistischen Verteilung ihrer Photonen in drei Klassen eingeteilt werden: *thermische*-, *kohärente*- und nicht-klassische *Fock*-Zustände. Die ersten beiden Zustandsarten werden im Folgenden zunächst in einer klassischen Betrachtung erläutert, bevor anschließend in das quantenmechanische Bild übergegangen wird.

Allgemein kann über die *Cauchy-Schwartz'sche Ungleichung* gezeigt werden [Tho04], dass solange die Intensität I in Gleichung 2.15 eine klassische Variable ist - also eine elektromagnetische Welle im Sinne der Maxwell-Gleichungen beschreibt - $g^{(2)}(\tau)$ folgende Relationen erfüllen muss:

$$\begin{aligned} g^{(2)}(\tau) &\leq g^{(2)}(0), \\ g^{(2)}(0) &\geq 1. \end{aligned} \quad (2.17)$$

Dieses Verhalten, bei dem $g^{(2)}(\tau)$ ein lokales Maximum bei $\tau = 0$ aufweist, ist charakteris-

tisch für ein klassisches Lichtfeld und wird als *Bunching*¹ bezeichnet. Anschaulich bedeutet dieses Bunching, dass die Photonen bevorzugt in Gruppen auftreten bzw. die Intensitätsfluktuationen durch Energiebündel charakterisiert sind, welche in unregelmäßigen Abständen aufeinander abfolgen. Für ein Lichtfeld mit maximalen Intensitätsfluktuationen, wie es von thermischen Lichtquellen emittiert wird, ergibt sich $g^{(2)}(0) = 2$. Der Grenzfall von $g^{(2)}(0) = 1$ entspricht hingegen einem kohärenten Zustand, der ein völlig stabiles Lichtfeld aufweist. Dieser Feldzustand wird in guter Näherung bei Lasern beobachtet.

In einer vollständig quantenmechanischen Betrachtung nach Gleichung 2.14 wird auch ein nicht-klassischer Feldzustand möglich, der durch $g^{(2)}(0) < 1$ gekennzeichnet ist und somit Gleichung 2.17 verletzt. Dieses als *Antibunching* bezeichnete Verhalten bedeutet, dass die Photonen sowohl zeitlich als auch räumlich voneinander separiert sind, was somit dem *Bunching* der Photonen eines klassischen Lichtfeldes entgegensteht [Wal79]. Der Grenzfall $g^{(2)}(0) = 0$ ergibt sich für einen Feldzustand der zu jedem Zeitpunkt nur ein einzelnes Photon enthält, und charakterisiert damit eine ideale Einzelphotonenquelle. Der Besetzungszahloperator erfüllt in diesem Fall die Eigenwertgleichung $\hat{n}|1\rangle = 1|1\rangle$. Experimentell wurde ein *Antibunching* erstmals im Jahre 1977 von Kimble et al. in der Emission von Natrium-Atomen [Kim77] und im Jahre 2000 erstmals auch an Halbleiter-QPen [Mic00a, Mic00b] beobachtet. Um die besonderen Eigenschaften einer Einzelphotonenquelle quantitativ zu veranschaulichen, zeigt Abbildung 2.9 (a) die Wahrscheinlichkeitsverteilungen $P(n, \mu)$ der auftretenden Photonenzahl n für die drei Gattungen von Lichtfeld-Zuständen bei mittleren Photonenzahlen von $\langle \hat{n} \rangle \equiv \mu = 1, 5$ und 10. Der qualitative Verlauf der entsprechenden $g^{(2)}(\tau)$ -Funktionen ist in Abbildung 2.9 (b) bis (d) dargestellt. Die drei Arten von Photonen-Zuständen werden im Folgenden separat anhand dieser Abbildung erläutert:

- **Thermisches Licht**

Die Emission einer thermischen Lichtquelle resultiert aus einer Vielzahl voneinander unabhängiger Emittoren und kann als inkohärente Superposition von Lichtfeldern angesehen werden. Die Wahrscheinlichkeitsverteilung $P_{\text{thermisch}}(n, \mu)$ der Photonen folgt daher der Bose-Einstein Verteilung eines *schwarzen Strahlers* und lässt sich wie folgt als die *geometrische Verteilung* darstellen [Lou05b]:

$$P_{\text{thermisch}}(n, \mu) = \frac{\mu^n}{(\mu + 1)^{n+1}}. \quad (2.18)$$

Die Fluktuationen in der Photonenzahl bzw. der Intensität einer thermischen

¹ engl. für klumpen oder bündeln;

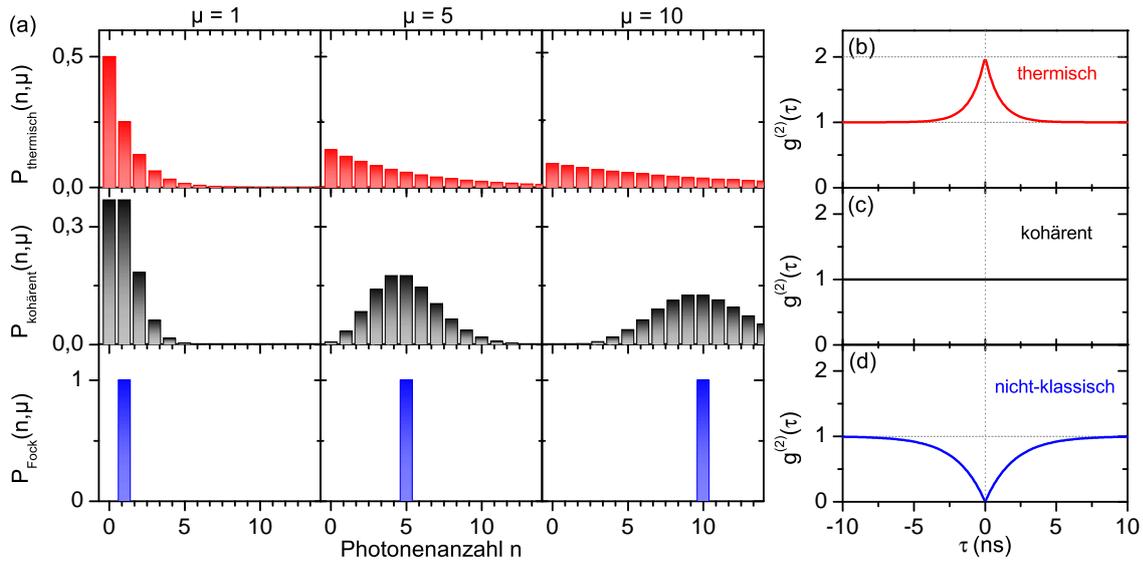


Abbildung 2.9: (a) Wahrscheinlichkeitsverteilungen $P(n, \mu)$ der Photonenzahl n für drei fundamental unterschiedliche Arten von Lichtquellen, jeweils für eine mittlere Photonenzahl $\mu = 1, 5$ und 10 . Während thermische (obere Graphen-Zeile) und kohärente (mittlere Graphen-Zeile) Lichtquellen in ihrer Emission endliche Schwankungen der Photonenzahl aufweisen (Varianz $V(\hat{n}) > 0$), sind nicht-klassische Fock-Zustände (untere Graphen-Zeile) durch eine exakt definierte Anzahl an Photonen charakterisiert $V(\hat{n}) = 0$. (b) bis (d) zeigen das qualitative Verhalten der korrespondierenden Photon-Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ (vgl. Diskussion im Text).

Lichtquelle, quantifiziert durch die Varianz der Verteilung 2.18, sind hoch und liegen mit $V(\hat{n})_{\text{thermisch}} = \mu^2 + \mu$ über der mittleren Photonenzahl μ . Für die Photon-Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung ergibt sich nach Gleichung 2.16 mit der Varianz $V(\hat{n})_{\text{thermisch}}$ der oben diskutierte Bunching-Effekt: $g^{(2)}(0)_{\text{thermisch}} = 2$ (siehe auch Abbildung 2.9 (b)). Es ist hervorzuheben, dass für thermisches Licht nach Gleichung 2.18 der Zustand, welcher kein einziges Photon enthält ($n = 0$), stets die höchste Besetzungswahrscheinlichkeit aufweist. Thermisches Licht ist folglich weit entfernt von dem gewünschten Zustand einer Einzelphotonenquelle, bei dem $P(n, \mu)$ ein scharfes Maximum bei $n = 1$ haben sollte.

- **Kohärentes Licht**

Kohärentes Licht, wie es in guter Näherung von einem Laser emittiert wird, zeichnet sich durch sehr geringe Schwankungen in der Photonenzahl aus. Die entsprechende Wahrscheinlichkeitsverteilung $P_{\text{kohärent}}(n, \mu)$ der Photonen folgt in diesem Fall der *Poisson-Verteilung*

$$P_{\text{kohärent}}(n, \mu) = e^{-\mu} \frac{\mu^n}{n!}, \quad (2.19)$$

deren Varianz gleich dem Mittelwert ist: $V(\hat{n})_{\text{kohärent}} = \mu$. Das resultierende Rauschen wird als *shot noise* oder *photon noise* bezeichnet, und ist das absolute untere Limit für das Rauschen in der Intensität eines makroskopischen Lasers. Mit der Varianz $V(\hat{n})_{\text{kohärent}}$ ergibt sich nach Gleichung 2.16 im Falle einer kohärenten Lichtquelle: $g^{(2)}(0)_{\text{kohärent}} = 1$ (siehe auch Abbildung 2.9 (c)). Aufgrund der endlichen Varianz schwankt die Besetzungszahl n auch bei extrem abgeschwächten Lasern um den Mittelwert μ , womit auch kohärente Lichtemitter weit von der gewünschten Photonenzahl einer Einzelphotonenquelle entfernt sind.

- **Nichtklassisches Licht**

Nichtklassisches Licht wird durch sogenannte *Fock-Zustände* $|n_i\rangle$ repräsentiert. Diese stellen die reinste Form des Lichts dar und sind als Eigenzustände des Besetzungszahl-Operators über $\hat{n}_i |n_i\rangle = n_i |n_i\rangle$ mit $n_i = 0, 1, 2, \dots, \infty$ definiert. Ein Fock-Zustand besitzt demnach eine exakt definierte Photonenzahl, womit die Wahrscheinlichkeitsverteilung gegeben ist durch

$$P_{\text{Fock}}(n) = \delta_{n, n_i} , \quad (2.20)$$

wobei δ_{n, n_i} das Kronecker-Delta bezeichnet. Die Reinheit der Fock-Zustände hat des Weiteren zur Folge, dass der Mittel- bzw. Erwartungswert gleich dem Eigenwert des Zustandes ($\mu = n_i$) und die Varianz identisch Null ist ($V(\hat{n})_{\text{Fock}} = 0$). Dieses Verhalten grenzt nicht-klassische Feldzustände klar von thermischem und kohärentem Licht ab, welche beide eine endliche Varianz aufweisen (vgl. Abbildung 2.9 (a)). Nach Gleichung 2.16 folgt, wegen $V(\hat{n})_{\text{Fock}} = 0$ und $\mu = n_i$, für den Wert der Photonenzahl-Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung bei $\tau = 0$:

$$g^{(2)}(0) = 1 - \frac{1}{n_i} . \quad (2.21)$$

Eine ideale Einzelphotonenquelle, welche in den Photonenzahl-Zustand $|1\rangle$ emittiert, ist damit durch $g^{(2)}(0) = 0$ charakterisiert. Sendet eine Lichtquelle hingegen exakt zwei Photonen zur selben Zeit aus ($|2\rangle$), so folgt $g^{(2)}(0) = 0,5$. In Experimenten wird daher für eine Einzelphotonenquelle die Bedingung $g^{(2)}(0) < 0,5$ angewendet, womit von weniger als zwei Photonen bzw. zwei Einzelphotonenemittern ausgegangen werden kann.

Aus obiger Diskussion wird ersichtlich, dass ein bloßes Abschwächen einer thermischen oder kohärenten Lichtquelle nicht ausreicht, um einzelne Photonen auf Knopfdruck zu erzeugen. Denn hierdurch wird zwar der Mittelwert μ der Photonenzahl verringert, nicht

jedoch die Natur der Statistik selbst - die Varianz $V(\hat{n})$ bleibt endlich (vgl. Abbildung 2.9(a)). Wird beispielsweise ein gepulster Laser so stark abgeschwächt, dass im Mittel 0,1 Photonen pro Puls emittiert werden ($\mu = 0,1$), so liegt die bedingte Wahrscheinlichkeit $P(n > 1 | n > 0, \mu) \cong \mu/2$, dass ein besetzter Puls mehr als ein Photon enthält bei etwa 5%, wobei 90% aller Pulse kein einziges Photon enthalten ($P(n = 0, \mu) \cong 1 - \mu$) [Gis02]. Im Hinblick auf Anwendungen im Bereich der sicheren Datenübertragung durch Verfahren der Quanten-Schlüsselverteilung motivieren diese Überlegungen die Entwicklung effizienter, elektrisch betriebener Einzelphotonenquellen, wie sie in Kapitel 4 dieser Arbeit beschrieben und schließlich in Kapitel 6 erstmals in Experimenten zur Quanten-Schlüsselverteilung eingesetzt werden.

3 Experimentelle Messtechnik

Dieses Kapitel beschreibt die in dieser Arbeit eingesetzte experimentelle Messtechnik. Generell wurden die QP-Mikrostrukturen mittels spektral sowie zeitlich hochauflösender Mikro-Elektrolumineszenz- (μEL -) und Mikro-Photolumineszenz- (μPL -) Spektroskopie bei kryogenen Temperaturen untersucht. Hierbei wird das von der Probe unter elektrischer oder optischer Anregung emittierte Licht mit einer Ortsauflösung von wenigen Mikrometern eingesammelt und anschließend spektral, und gegebenenfalls auch zeitlich, analysiert. In den meisten Experimenten erfolgte die Ladungsträgerinjektion in die QP-Halbleiterproben durch einen elektrischen Pulsgenerator (μEL). Nur in Einzelfällen wurde auf eine optische Anregung (μPL) der Halbleiterstrukturen durch einen Laser zurückgegriffen (siehe z.B. Abschnitt 5.5). Als Schlüssel-Experimente dieser Arbeit sind die Messung der Photonen-Autokorrelation und der Photonen-Kreuzkorrelation zweiter Ordnung hervorzuheben.

In Abschnitt 3.1 wird zunächst die grundlegende Messanordnung der μEL -Spektroskopie beschrieben, welche die Basis aller durchgeführten Experimente bildet. In Abschnitt 3.2 folgt die Erläuterung der Messanordnung für zeitaufgelöste Messungen zur Charakterisierung der Lebensdauer von QP-Zuständen. Das Photonen-Autokorrelationsexperiment wird in Abschnitt 3.3 vorgestellt und insbesondere im Rahmen von Kapitel 4 eingesetzt. Eine Beschreibung des Experiments zur Durchführung von polarisationsaufgelösten Photonen-Kreuzkorrelationsmessungen folgt schließlich in Abschnitt 3.4 und wird im Rahmen von Kapitel 5 verwendet. Die Messanordnungen für Experimente zur Quanten-Schlüsselverteilung werden separat in Kapitel 6 beschrieben.

3.1 Mikro-Lumineszenz-Spektroskopie

Die μEL - und μPL -Untersuchungen erfolgten an der in Abbildung 3.1 (a) schematisch dargestellten Messanordnung. Die Probe ist auf dem Kältefinger eines Durchfluss-Kryostaten (Modell: Janis ST500-Atto, *Cryophysics*) montiert und wird mit flüssigem Helium auf eine Temperatur von etwa 10 K gekühlt. In den Kältefinger ist sowohl ein Thermoelement als auch eine Heizspule integriert, welche in Verbindung mit einer PID-Elektronik eine Regelung der Temperatur in einem Bereich von 10 K bis Raumtemperatur mit ei-

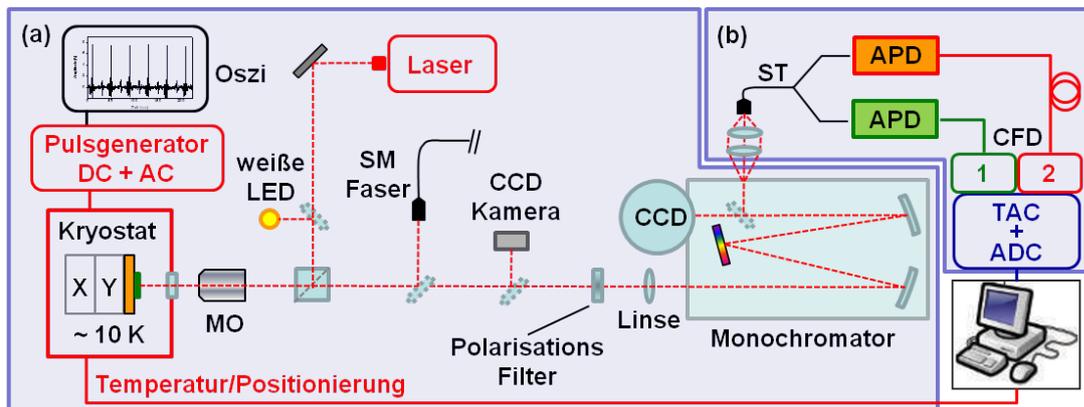


Abbildung 3.1: (a) Schematische Darstellung der Messanordnung zur spektral hochauflösenden Mikro-Elektrolumineszenz- (μ EL-) und Mikro-Photolumineszenz- (μ PL-) Spektroskopie: Die Probe kann durch einen elektrischen Pulsgenerator oder einen Laser angeregt werden. Das Lumineszenz-Signal wird durch ein Mikroskopobjektiv (MO) eingesammelt, in einem Monochromator spektral zerlegt und durch eine CCD-Kamera detektiert. (b) Glasfaserbasierte Hanbury-Brown und Twiss (HBT) Messanordnung zur Messung der Photonen-Autokorrelationsfunktion $g^{(2)}(\tau)$: Die Detektion einzelner Photonen erfolgt mittels Si-basierter Avalanche Photo Dioden (APDs) am Ende eines 50:50-Strahlteilers (ST).

ner Genauigkeit von ca. 0,1 K ermöglichen. Unterhalb des Kältefingers befinden sich zwei Piezoaktuatoren (Modell: ANPx101, *attocube systems*), mit deren Hilfe die Probe in der lateralen Ebene mit einer Präzision von bis zu 10 nm bei einem maximalen Verfahrweg von 5 mm positioniert werden kann. Dies ermöglicht die räumliche Adressierung einzelner Mikrostrukturen. Der nötige thermische Kontakt zwischen dem Probenträger und dem Kühlkörper des Kryostaten ist dabei mittels zweier flexibler Kupferlitzen realisiert. Für die elektrische Adressierung der Proben sind in einer Durchführung des Kryostaten flexible Miniatur-Koaxialkabel verlegt, welche probenseitig auf einem Stecker mit einer integrierten 50 Ω -Impedanzanpassung enden (vgl. [E1106]). Die Koaxialkabel werden für den elektrischen Betrieb der Halbleiter-Mikrostrukturen an einen Pulsgenerator (Modell: AVN-1-C-P-PN-OT, *Avtech Electrosystems*) angeschlossen, welcher kurze Spannungspulse mit Halbwertsbreiten von 200 ps bis 1 ns bei einer maximalen Repetitionsrate von 250 MHz generiert. Zu den Spannungspulsen kann des Weiteren eine variable Gleichspannung addiert werden. Das von der Probe emittierte Licht wird mittels eines Mikroskopobjektives (Modell: M Plan Apo NIR, *Mitutoyo*) mit einer numerischen Apertur (NA) von 0,40 und 20-facher Vergrößerung vor dem Glasfenster des Kryostaten eingesammelt und als kollimierter Strahl auf die optische Achse gelenkt. Das Lumineszenz-Signal der Probe wird anschließend mit Hilfe einer Linse auf den Eingangsspalt (50 μ m) eines Gitter-Monochromators (Acton SP2750, *Princeton Instruments*) fokussiert und an des-

sem Ausgang mit einer mit flüssigem Stickstoff gekühlten Silizium-CCD Kamera (Modell: SPEC-10, *Princeton Instruments*) mit 1340 Pixel x 100 Pixel detektiert. Für die Aufnahme von Spektren kann zwischen zwei optischen Gittern mit 300 Linien/mm oder 1200 Linien/mm gewählt werden, wobei mit letzterem eine maximale spektrale Auflösung von $\Delta E = 35 \mu\text{eV}$ ($\Delta\lambda = 0,023 \text{ nm}$ bei $\lambda = 900 \text{ nm}$) erzielt wird. Für polarisationsaufgelöste Messungen kann vor dem Monochromator ein Linearpolarisator in Kombination mit einem $\lambda/4$ -Wellenplättchen eingesetzt werden.

Des Weiteren besteht die Möglichkeit, die Lumineszenz der Mikrostrukturen ohne den Einsatz des Monochromators direkt in eine Singlemode- (SM-) Glasfaser einzukoppeln (vgl. Abbildung 3.1 (a)). In diesem Fall erfolgt die spektrale Filterung über einen raumsparenden Interferenzfilter. Diese Methode wird in Kapitel 6 bei der Durchführung von QKD-Experimenten eingesetzt und näher erläutert.

Für eine optische Anregung der Probe stehen diverse Lasersysteme zur Verfügung: Ein durchstimmbarer Titan:Saphir- (Ti:Sa-) Laser (Modell: 3900, *Spectra Physics*) im Dauerstrichbetrieb (CW^1) sowie ein gepulster Ti:Sa-Laser (Tsunami, *Spectra Physics*). Beide Systeme werden von einem Festkörperlaser (Verdi V18, *Coherent*) bei 532 nm gepumpt. Die Laserstrahlen können über einen Strahlteiler (ST) auf die optische Achse zwischen Kryostat und Monochromator eingekoppelt und durch das Mikroskopobjektiv auf die Probenoberfläche fokussiert werden (Spotdurchmesser $\approx 3 \mu\text{m}$). Über den selben Strahlteiler kann des Weiteren die Probenoberfläche mit einer leistungsstarken, weißen LED beleuchtet werden. Sowohl das von der Probenoberfläche reflektierte, als auch das von den Mikrostrukturen emittierte Licht kann über einen Klappspiegel von der optischen Achse ausgekoppelt und auf eine CCD-Videokamera vergrößert abgebildet werden. Dies ermöglicht eine Orientierung auf der Probenoberfläche und das Anfahren einzelner Mikrostrukturen.

Für die in den folgenden Abschnitten beschriebenen zeitaufgelösten Messtechniken wird die im Monochromator spektral aufgespaltene Lumineszenz der Probe über einen Klappspiegel auf den lateralen Ausgangsspalt des Monochromators abgebildet und über zwei Linsen in eine Multimode-Glasfaser mit einem Kerndurchmesser von $50 \mu\text{m}$ eingekoppelt (siehe auch Abbildung 3.1 (b)). Durch den Ausgangsspalt des Monochromators wird dabei ein definiertes spektrales Fenster transmittiert, welches unter Berücksichtigung der Dispersion $\Delta\lambda/\text{Pixel}$ über die Breite des Ausgangsspaltens eingestellt werden kann². Da der Ausgangsspalt mittels zweier Linsen (Kollimier- und Fokussierlinse) auf den Glasfaserkern

¹ Continuous Wave

² Bei der Verwendung des Gitters mit 1200 Linien/mm und einer Ausgangsspalt-Breite von $250 \mu\text{m}$ beträgt der selektierte Spektralbereich beispielsweise $\Delta\lambda = 0,22 \text{ nm}$ bzw. $\Delta E = 0,34 \text{ meV}$ bei einer Wellenlänge von $\lambda \approx 900 \text{ nm}$.

abgebildet wird, ist bei dieser Anordnung das zugängliche spektrale Fenster nicht durch den Durchmesser der Glasfaser limitiert, wie es bei einer direkten Einkopplung in die Glasfaser am Ausgangsspalt der Fall wäre. Dies kann insbesondere bei spektral breiteren Emittlern von Nutzen sein.

3.2 Zeitaufgelöste Mikro-Lumineszenz-Spektroskopie

Um die Probenemission zeitaufgelöst untersuchen zu können, wird die durch den Monochromator spektral selektierte Lumineszenz mit einer fasergekoppelten, einzelphotonsensitiven Photodiode registriert. Als Detektor wird dabei eine Silizium- (Si-) APD¹ (Modell: id100-MMF50, *ID QUANTIQUE*) eingesetzt. Diese ist spezifiziert auf eine zeitliche Auflösung von 40 ps, eine Dunkelzählrate < 80 Counts/s und eine Photonen-Detektionseffizienz von $\approx 4\%$ bei einer Wellenlänge von 900 nm. Die APDs setzen die Detektionseignisse in Spannungspulse um, welche über Koaxialkabel an den Eingang eines TCSPC²-Moduls (Modell: SPC-130, *Becker & Hickl*) gegeben werden. Intern besteht diese Einzelphotonen-Korrelationskarte im wesentlichen aus zwei CFD³-Kanälen, gefolgt von einem Zeit-Amplituden-Wandler (TAC⁴) sowie einem Analog-Digital-Wandler (ADC⁵). Dieses Korrelations-Modul führt mit jedem detektierten Photon eine Start-Stopp-Messung durch, wobei der Start-Impuls der Zeitmessung jeweils durch das Trigger-Signal des elektrischen Pulsgenerators oder des Ti:Sa-Lasers stammt. In Messungen unter elektrischer Anregung wird hierfür der Trigger-Ausgang des elektrischen Pulsgenerators verwendet, bei optischer Anregung der des Ti:Saphir-Lasers. Das TCSPC-Modul kann wahlweise mit 1024 oder 4096 Kanälen betrieben werden, was bei einem typischen Zeitfenster der Start-Stopp-Messung von 100 ns einer Kanalbreite von 98 ps bzw. 24 ps entspricht.

3.3 Photonen-Autokorrelationsmessungen zweiter Ordnung

Ein experimenteller Zugang zur Photonenstatistik eines Emitters gelingt mit einer sogenannten *Hanbury-Brown und Twiss-* (HBT-) Messanordnung [HB56]. Bei dieser wird die Emission einer Lichtquelle durch einen 50:50-Strahlteiler aufgeteilt und an den beiden Ausgängen mittels zweier Einzelphotonen-Detektoren registriert. Bei einem Emitter einzelner, sequentiell abfolgender Photonen wird aufgrund der Quantennatur des Lichts

1 **A**valanche **P**hoto **D**iode

2 **T**ime-**C**orrelated **S**ingle **P**hoton **C**ounting

3 **C**onstant **F**raction **D**iscriminator

4 **T**ime to **A**mplitude **C**onverter

5 **A**nalog to **D**igital **C**onverter

nie gleichzeitig an beiden Ausgängen ein Detektionsereignis statt finden. Mit einer HBT-Messanordnung ist folglich eine Charakterisierung der Photonen-Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ (vgl. Abschnitt 2.3) einer Lichtquelle möglich¹.

Für die Durchführung von Photonen-Autokorrelationsexperimenten wurde in dieser Arbeit eine glasfaserbasierte HBT-Messanordnung eingesetzt (siehe Abbildung 3.1(b)) [Kim77, Mic00b, Ste12a]. Die durch den Monochromator spektral selektierte Lumineszenz der Probe wird wie im vorherigen Abschnitt in eine Multimode-Glasfaser eingekoppelt. Innerhalb der Glasfaser werden die Photonen an einem nicht-polarisierenden 50:50-Strahlteiler in zwei Teilstrahlen zerlegt und das aufgespaltene Signal an den Enden der jeweils 25 m langen² Glasfasern mit zwei Si-APDs (Modell: SPCM-AQR-16-FC, *Perkin Elmer*) detektiert. Diese sind spezifiziert auf eine zeitliche Auflösung von 700 ps, eine Dunkelzählrate < 25 Counts/s sowie einer Photonen-Detektionseffizienz von 35 % bei einer Wellenlänge von 900 nm. Diese APDs sind für Korrelationsmessungen aufgrund ihrer höheren Detektionseffizienz, im Vergleich zu den schnelleren Detektor-Modulen aus Abschnitt 3.2, deutlich besser geeignet, da die Rate der Koinzidenzen bei einer Zweiphotonen-Messung quadratisch von der Detektionsrate abhängt. Die Spannungspulse der beiden APDs werden an die beiden Eingänge des TCSPC-Moduls weitergeleitet (vgl. Abschnitt 3.2). Das Signal der einen APD dient als Start- und das der anderen APD als Stopp-Impuls für die Messung des Zeitintervalls τ zwischen zwei direkt aufeinanderfolgenden Detektionsereignissen. Um die Photonenstatistik der Lumineszenz einer Halbleiter-Mikrostruktur zu analysieren, wird ein Histogramm dieser Koinzidenzen als Funktion der Zeitdifferenz τ aufgezeichnet, welches direkt proportional zur Photonen-Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ ist [Mic00b, Yua02, San03, Ver03, Aic05, Lou05b]. Um sowohl positive als auch negative Zeitdifferenzen innerhalb einer Messung erfassen zu können, ist ein zusätzliches Koaxialkabel für eine elektrische Verzögerung ($\Delta \approx 40$ ns) vor einen der CFD-Kanäle geschaltet.

Die oben beschriebene Messanordnung wird insbesondere bei den in Kapitel 4 vorgestellten Untersuchungen an elektrisch betriebenen Quantenpunkt-Einzelphotonenquellen eingesetzt. Um aus den Detektionsraten der APDs die Einzelphotonen-Emissionsrate eines Bauteils in das Mikroskopobjektiv abschätzen zu können, erfolgte eine Kallibrierung der Messanordnung wie im Folgenden beschrieben.

-
- 1 Es ist anzumerken, dass die Quantennatur des Lichts auch mit einem einzelnen Detektor nachgewiesen werden kann, sofern die Totzeit der Detektoren deutlich kleiner ist als die strahlende Lebensdauer des betrachteten Emitters [Ste12a].
 - 2 Diese Verzögerung der Photonen ist nötig, um das optische Übersprechen der APDs durch sogenanntes *afterpulsing*, welches zu signifikanten Artefakten in der Messung führt [Uhu00, Kur01, Sto10], aus dem zu analysierenden Zeitfenster zu schieben.

Effizienz der Messanordnung

Die Kalibrierung der Messanordnung aus Abbildung 3.1 (a) und (b) erforderte zwei separate Schritte und wurde mit einem Ti:Sa-Laser im Dauerstrichbetrieb durchgeführt. Die Laseremission wurde, entsprechend der typischen Emissionswellenlänge der untersuchten Mikrostrukturen, auf $\lambda = 900$ nm eingestellt und über einen Strahlteiler auf die optische Achse zwischen Kryostat und Monochromator eingekoppelt. In einem ersten Schritt wird die Leistung des Lasers P_{Laser} zwischen Kryostat und fokussierendem Mikroskopobjektiv gemessen. In dem zweiten Schritt wird ein Goldspiegel in den Kryostaten eingebracht und die Laseremission mittels des Mikroskopobjektivs auf diesen fokussiert. Anschließend erfolgt die Messung der detektierten APD-Zählraten \dot{n}_{APD} der Laseremission am Ende der Messanordnung. Da die nötige Laserleistung die Detektoren sättigen oder sogar schädigen könnte, sind vor dem Monochromator entsprechende Filter mit einer Gesamtabschwächung von F -Größenordnungen eingebracht. Durch die Leistungsmessung des ersten Schrittes kann die „Photonenemissionsrate“ in dem Kryostaten zu $\dot{n}_{\text{Laser}} = T \cdot P_{\text{Laser}} \cdot E_{\text{Photon}}^{-1}$ berechnet werden, wobei T die Transmission des Kryostatenfensters und E_{Photon} die Energie eines Lichtquants bei $\lambda = 900$ nm ist. Nimmt man vereinfachend an, dass der Goldspiegel das Laserlicht perfekt reflektiert, so stellt \dot{n}_{Laser} die Emissionsrate eines „Referenz-Emitters“ dar, welcher aufgrund der optischen Verluste in der Messanordnung zu einer detektierten Rate \dot{n}_{APD} führt. Die Effizienz des optischen Aufbaus lässt sich nun wie folgt bestimmen:

$$\eta_{\text{Setup}} = \frac{\dot{n}_{\text{APD}} \cdot 10^F}{\dot{n}_{\text{Laser}}} = \frac{\dot{n}_{\text{APD}} \cdot 10^F \cdot E_{\text{Photon}}}{T \cdot P_{\text{Laser}}} . \quad (3.1)$$

Im Laufe einer fortwährenden Optimierung und Modernisierung der Messanordnung wurden Werte für η_{Setup} zwischen $0,6 \cdot 10^{-3}$ und $2,1 \cdot 10^{-3}$ ermittelt. Diese Werte von η_{Setup} sind in guter Übereinstimmung mit den für ähnliche optische Messanordnungen berichteten von $\eta_{\text{Setup}} = 1,2 \cdot 10^{-3}$ [Cla10] und $\eta_{\text{Setup}} = (1,1 \pm 0,5) \cdot 10^{-3}$ [Mor02]. Hervorzuheben ist, dass durch eine weitere Optimierung der Messanordnung η_{Setup} signifikant erhöht werden kann. Für die Experimente zur Quanten-Schlüsselverteilung wurde im Rahmen von Kapitel 6 eine Messanordnung mit $\eta_{\text{Setup}} \approx 3,9\%$ realisiert, unter anderem indem der Monochromator durch einen raumsparenden Interferenzfilter hoher Transmission ersetzt wurde.

3.4 Photonen-Kreuzkorrelationsmessungen zweiter Ordnung

Um die zeitliche Korrelation zweier spektral separierter Emitter (z.B. der Biexziton-Exziton-Kaskade) untersuchen zu können, werden in Kapitel 5 Messungen der Photonen-

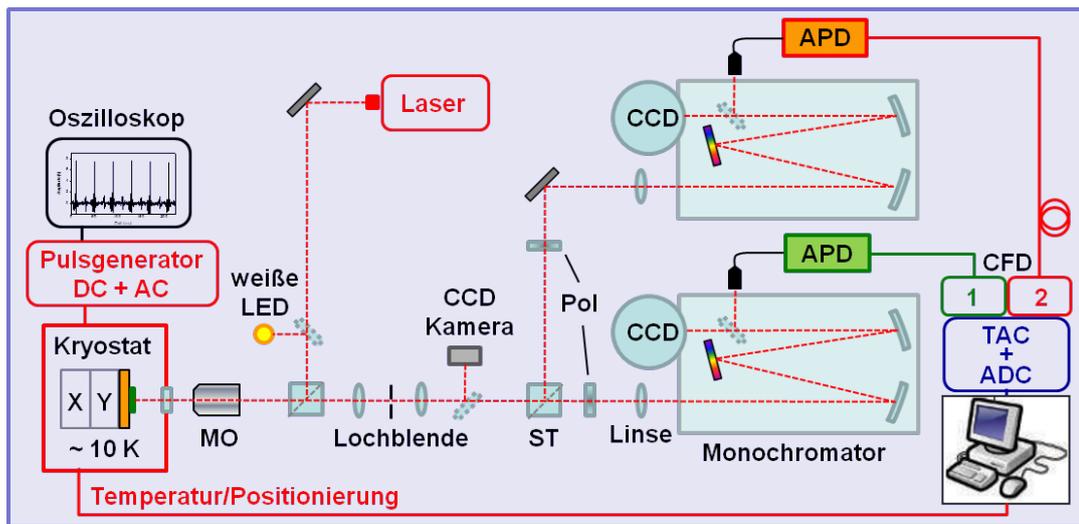


Abbildung 3.2: Messanordnung für die Analyse der Photonen-Kreuzkorrelationsfunktion $g_{A \rightarrow B}^{(2)}(\tau)$: Ein 50:50-Strahlteiler (ST) in Freistrahloptik in Kombination mit zwei Monochromatoren erlauben die zeitliche Korrelation der Emission zweier spektral separierter Emittoren. Polarisationsoptiken in den beiden Detektionspfaden ermöglichen zudem Quanten-Tomographieexperimente (siehe Text).

Kreuzkorrelationsfunktion $g_{A \rightarrow B}^{(2)}(\tau)$ eingesetzt. Die entsprechende Messanordnung ist schematisch in [Abbildung 3.2](#) dargestellt und basiert ebenfalls auf dem Konzept nach Hanbury-Brown und Twiss. Im Gegensatz zu der glasfaserbasierten Konfiguration des vorangehenden Abschnitts, befindet sich hier ein nicht-polarisierender 50:50-Strahlteilerwürfel vor dem ersten Monochromator. Der transmittierte Strahl wird wie bei den bisherigen Messkonfigurationen durch den Monochromator spektral aufgespalten und über den lateralen Ausgangsspalt mit der ersten, fasergekoppelten APD detektiert. Der an dem Strahlteilerwürfel reflektierte Strahl wird über einen Spiegel auf den Eingangsspalt eines zweiten, baugleichen Monochromators fokussiert und an dessen Ausgangsspalt mit der zweiten APD detektiert. Die zeitkorrelierte Einzelphotonenzählung zwischen den beiden APDs erfolgt mit dem in [Abschnitt 3.2](#) beschriebenen TCSPC-Modul. Um $g_{A \rightarrow B}^{(2)}(\tau)$ polarisationsaufgelöst erfassen zu können, sind vor den beiden Monochromatoren Polarisationsoptiken (Linearpolarisator, $\lambda/2$ - und $\lambda/4$ -Wellenplättchen) einsetzbar. Diese ermöglichen die als Quanten-Tomographie bezeichnete Messmethode, anhand derer der Zweiphotonen-Zustand der Biexziton-Exziton-Kaskade rekonstruiert werden kann [[Jam01](#)].

4 Elektrisch getriggerte Einzelphotonenquellen

Als essentielle Bausteine der Quanten-Informationstechnologie sind effiziente Emittier einzelner Photonen von grundlegendem Interesse [Shi07, Lad10, Buc12]. In diesem Kapitel werden detaillierte experimentelle Untersuchungen an elektrisch betriebenen Quantenpunkt-Einzelphotonenquellen (QP-EPQ) vorgestellt.

Das Kapitel gliedert sich wie folgt: Zu Beginn wird in Abschnitt 4.1 die Technologie der Einzelphotonenquellen (EPQ) vorgestellt. Darauf folgen in Abschnitt 4.2 Simulationsrechnungen des vorgestellten Resonatordesigns auf Basis der Maxwell-Gleichungen. In Abschnitt 4.3 werden einführende spektroskopische Untersuchungen vorgestellt, anhand derer die grundlegenden Eigenschaften der elektrisch betriebenen Quantenpunkt-Mikroresonatoren erläutert werden. Dabei wird insbesondere die Emission einzelner Photonen sowohl unter kontinuierlicher als auch gepulst-elektrischer Anregung demonstriert. Anschließend wird in Abschnitt 4.4 der Purcell-Effekt analysiert und dabei direkt die Auswirkung der modifizierten optischen Zustandsdichte auf das Emissionsverhalten einzelner Quantenpunkte nachgewiesen. In Abschnitt 4.5 erfolgt, aufbauend auf den zuvor gewonnenen Erkenntnissen, sowohl eine Betrachtung der Einzelphotonen-Emissionsrate als auch der Gesamteffizienz der Bauteile. Eine Zusammenfassung und Diskussion der Ergebnisse dieses Kapitels erfolgt schließlich in Abschnitt 4.6.

4.1 Technologie der Einzelphotonenquellen

Die EPQn basieren auf dem in Abschnitt 2.2 vorgestellten Konzept zylindrischer Fabry-Pérot Mikrosäulenresonatoren (vgl. auch Abbildung 2.7 (a)). Darüber hinaus verbinden sie jedoch den dreidimensionalen photonischen Einschluss innerhalb einer Kavität mit der Möglichkeit, Ladungsträger über einen p- bzw. n-Kontakt in die dotierten Bragg-Spiegel und damit in die Quantenpunktschicht zu injizieren. Abbildung 4.1 zeigt in (a) einen elektrisch kontaktierten Mikroresonator in einer schematischen Darstellung sowie in (b) ein vollständig prozessiertes Bauteil in einer Rasterelektronenmikroskop- (REM-) Aufnahme. In den folgenden Abschnitten wird der Aufbau und die Funktionalität der Mikroresonatoren sowie deren Herstellungsverfahren in kompakter Form erläutert.

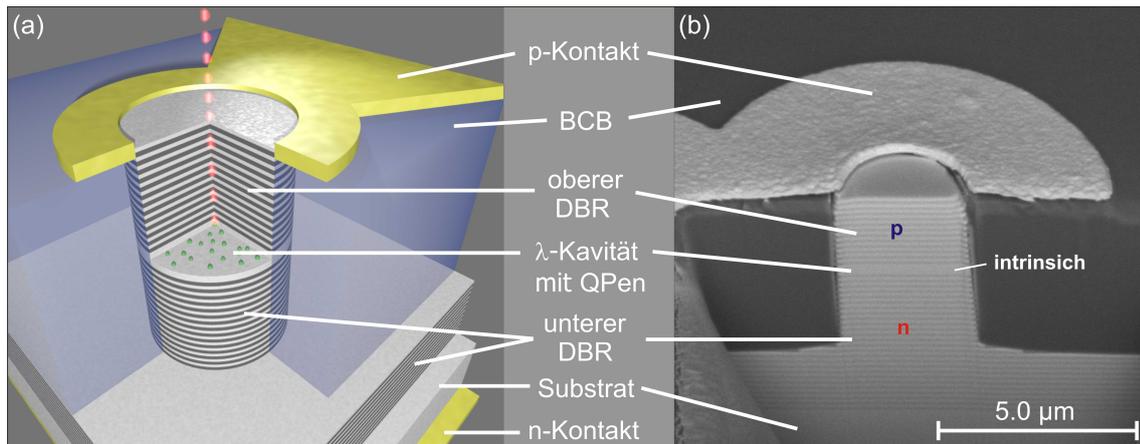


Abbildung 4.1: Aufbau der elektrisch kontaktierten Mikroresonatoren: (a) Schematische Darstellung eines Mikroresonators: Zwischen den dotierten Bragg-Spiegeln (DBR) aus AlAs/GaAs-Schichtpaaren befindet sich eine λ -dicke, intrinsische GaAs-Kavität. In deren Zentrum wiederum ist eine aktive Schicht aus InAs/GaAs-Quantenpunkten (QP) integriert. Der obere ringförmige Goldkontakt liegt auf dem umliegenden Planarisierer Benzocyclobuten (BCB) auf. (b) REM-Aufnahme eines mittels fokussierten Ionenstrahlen mittig durchtrennten Mikroresonators. Zu erkennen sind die Übergitterstrukturen der DBRs, die Kavität sowie der ringförmige p-Kontakt aus Gold.

4.1.1 Resonatordesign

Die säulenförmigen Fabry-Pérot Resonatoren bestehen aus einer Kavität, welche zwischen zwei Bragg-Spiegeln (DBR) eingebettet ist. Der untere, an das (001)-orientierte GaAs-Substrat grenzende DBR setzt sich aus 26, der obere aus 13 AlAs/GaAs-Schichtpaaren zusammen. Durch die Dicke jeder einzelnen Halbleiterschicht von $\frac{\lambda_C}{4n}$ wird die konstruktive Interferenz zweier, an aufeinanderfolgenden Grenzflächen reflektierten, Lichtstrahlen sichergestellt. Dabei steht λ_C für die Resonanzwellenlänge des Resonators und n für den Brechungsindex der jeweiligen Schicht. Die Reflektivität R des oberen beziehungsweise unteren DBRs der hier betrachteten Mikroresonatoren lässt sich nach [Sal95] zu $R_{DBR,unten} = 99,98\%$ und $R_{DBR,oben} = 99,41\%$ abschätzen. Der Wellenlängenbereich $\Delta\lambda_{Stopp}$ über den ein Resonator diese hohe Reflektivität aufrechterhalten kann wird als Stoppband bezeichnet und beträgt bei den hier untersuchten Mikroresonatoren etwa 100 nm. Durch die hochreflektierenden Spiegel ist die Modendichte im Spektralbereich des Stoppbandes stark reduziert. Lediglich in einem engen Spektralbereich $\Delta\lambda = \lambda/Q$ um die Resonanzwellenlänge des Resonators kann eine Lichtein- bzw. auskopplung erfolgen. Die Kavität selbst ist eine GaAs-Schicht der Höhe $H_C = \frac{\lambda_C}{n}$, in deren Zentrum die aktive Schicht aus selbstorganisierten Quantenpunkten platziert ist (siehe Abschnitt 4.1.2). Diese λ -Kavität stellt sicher, dass in der Ebene der aktiven Schicht ein Maximum des elektrischen Feldes vorliegt und somit eine optimale Kopplung zwischen Licht und Quantenpunkten

erfolgen kann.

Innerhalb der Kavität ist somit ein dreidimensionaler photonischer Einschluss möglich: In vertikaler Richtung durch die DBRs, in lateraler durch die Totalreflexion aufgrund des Sprunges im Brechungsindex von Halbleiter zu BCB. Ein Maß für die Güte dieses photonischen Einschlusses ist der, bereits in Abschnitt 2.2 eingeführte, als Q -Faktor bezeichnete Quotient aus spektraler Lage λ_C und Linienbreite $\Delta\lambda_C$ der Resonatormode: $Q = \frac{\lambda_C}{\Delta\lambda_C} = \frac{E_C}{\Delta E_C} = \frac{\tau_C E}{\hbar}$. Je höher die Güte Q eines Resonators, umso größer ist die mittlere Verweildauer τ_C eines Photons in der Kavität. Typische Q -Faktoren, der in diesem Kapitel untersuchten elektrisch kontaktierten Mikroresonatoren, liegen im Bereich von $Q \approx 2000$, womit sich $\tau_C \approx 1$ ps ergibt. Für Untersuchungen im Regime der starken Licht-Materie Wechselwirkung wurden an undotierten Mikroresonatoren mit einer größeren Anzahl an Spiegelpaaren bereits Rekord Q -Faktoren von bis zu 165 000 erzielt [Rei07], was einer Verweildauer von etwa 82 ps entspricht. Die Q -Faktoren realer Mikroresonatoren sind durch verschiedene Verlustmechanismen limitiert, welche eine Dämpfung des Systems und damit eine endliche spektrale Breite der Resonatormode bewirken. Die Gesamtverlustrate lässt sich als eine Summe der verschiedenen Verlustbeiträge ausdrücken [Böc08, Riv99, Eng06]:

$$Q^{-1} = Q_{2D}^{-1} + Q_{\text{Randstreuung}}^{-1} + Q_{\text{Absorption, QP}}^{-1} + Q_{\text{Absorption, DBR}}^{-1} \quad (4.1)$$

Die ersten beiden Terme, Q_{2D}^{-1} und $Q_{\text{Randstreuung}}^{-1}$, sind bereits aus Abschnitt 2.2 bekannt (siehe Gleichung 2.12), und beschreiben die Güte des planaren Resonators sowie die Verluste aufgrund der Streuung von Photonen an den Resonatorseitenwänden. Die beiden zusätzlichen Terme, $Q_{\text{Absorption, QP}}^{-1}$ und $Q_{\text{Absorption, DBR}}^{-1}$, berücksichtigen die Verluste durch die Absorption in der Quantenpunktschicht bzw. den Bragg-Spiegeln. Zur Absorption in den Spiegeln trägt bei dotierten Halbleiterstrukturen insbesondere die Absorption freier Ladungsträger bei (siehe auch Abschnitt 4.1.3), welche über $Q_{\text{Absorption, DBR}} = 4\pi n / (\lambda_C \alpha_{\text{fL}})$ mit dem entsprechenden Absorptionskoeffizient α_{fL} , der Resonanzwellenlänge λ_C sowie dem Brechungsindex n verknüpft ist.

4.1.2 Aktive Schicht

Die aktive Schicht in der Mitte der Kavität besteht aus selbstorganisierten InAs/GaAs-QPen die im Stranski-Krastanow-Wachstumsmodus entstehen (vgl. Abschnitt 2.1.1). Etwa 10 nm unterhalb der QPe ist eine Schicht Silizium-Atome integriert, deren Flächendichte um einen Faktor 8 größer ist als die QP-Dichte. Durch diese n-Typ δ -Dotierschicht sind die QPe im Mittel einfach negativ geladen, wodurch die Bildung langlebiger, dunkler Exziton-Zustände - welche die Effizienz einer EPQ reduzieren können - unterdrückt

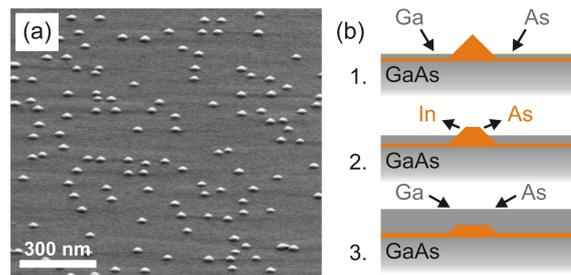


Abbildung 4.2: (a) REM-Aufnahme einer Schicht von InAs/GaAs-QPEn vor dem Überwachsen. Die QPe weisen eine Flächendichte von $\approx 3 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ auf. (b) Schema des im Text beschriebenen PCA-Prozesses: Nach dem QP-Wachstum werden die QPe mit einer dünnen ($\approx 1,5 \text{ nm}$) GaAs-Schicht überwachsen (1.). Anschließend wird während einer Wachstumspause bei leicht erhöhter Substrattemperatur die Spitze der QPe thermisch desorbiert (2.), bevor die QPe schließlich mit GaAs überwachsen werden (3.).

wird (vgl. Abschnitt 2.1.4). Größe, Form und Flächendichte der QPe lassen sich über die Wachstumsparameter, wie Substrattemperatur, absolute und relative Materialmenge und Wachstumsraten der einzelnen Halbleiterelemente in gewissen Grenzen beeinflussen. Beispielsweise führt eine höhere Substrattemperatur während des QP-Wachstums in der Regel zu einer niedrigeren QP-Flächendichte, da die Beweglichkeit bzw. die Migrationslänge der aufgedampften Adatome höher ist. Insbesondere bei der Realisierung von EPQn ist das Erzielen einer möglichst geringen QP-Flächendichte von großer Bedeutung, um die mittlere Anzahl an QPen pro Bauteil niedrig zu halten¹. Abbildung 4.2 (a) zeigt die REM-Aufnahme einer unüberwachsenen Schicht InAs/GaAs-QPe mit einer QP-Flächendichte von $n_{\text{QP}} \approx 3 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$. Die Abmessungen dieser QPe betragen vor dem Überwachsen typischerweise zwischen 25 nm und 40 nm in lateraler Richtung und etwa 5 nm in Wachstumsrichtung. Zusätzlich wurden die QPe während dem Wachstum einem sogenannten PCA²-Schritt unterzogen, der in Abbildung 4.2 (b) skizziert ist. Die QPe werden mit einer 1,5 nm dicken GaAs-Schicht partiell bedeckt und in einer anschließenden Wachstumspause thermisch ausgeheilt. Dabei desorbiert der nicht bedeckte Teil der QPe, bevor anschließend mit dem Wachstum der restlichen Struktur fortgefahren wird. Durch dieses PCA-Verfahren wird die Höhe der QPe reduziert und damit ihre Emissionswellenlänge von $\approx 1,2 \mu\text{m}$ auf $\approx 880 \text{ nm}$ blauverschoben [Wan06, Sch11].

Die Kombination der oben beschriebenen InAs/GaAs-QPe relativ niedriger Flächendichte mit dem PCA-Verfahren hat für die Anwendung der QP-Mikroresonatoren als EPQn folgende Vorteile: Zum einen wird durch die Verschiebung der QP-Emission zu

¹ Eine QP-Flächendichte von 10^9 cm^{-2} entspricht 10 QPen pro μm^2 .

² Partial Capping and Annealing

niedrigeren Wellenlängen die höhere Detektionseffizienz der eingesetzten Si-APDs ausgenutzt [Gis02, Eis11]. Zum anderen kann über den PCA-Schritt bzw. die darin verwendete *Capping*-Höhe die Emissionswellenlänge in erhöhtem Maße kontrolliert werden und so die spektrale Verstimmung zwischen der Emission des inhomogen verbreiterten QP-Ensembles und der fundamentalen optischen Mode des Mikroresonators eingestellt werden. Liegt die Resonatorgrundmode in einem spektralen Ausläufer des QP-Ensembles, so ist die spektrale Dichte der QPe im Bereich der Mode entsprechend verringert und die Struktur besser für eine Anwendung als EPQ geeignet (siehe z.B. Abbildung 4.7 oder 6.3).

4.1.3 Dotierung

Um einen elektrischen Betrieb der Mikroresonatoren zu ermöglichen, muss eine Dotierung der Bragg-Spiegel erfolgen, da die vernachlässigbar kleine intrinsische Leitfähigkeit der Halbleitermaterialien bei tiefen Temperaturen eine effiziente Strominjektion unmöglich macht. Dazu ist das Substrat sowie der untere DBR mit Silizium n-dotiert und der obere DBR mit Kohlenstoff p-dotiert. Die Kavität hingegen bleibt, mit Ausnahme der n-Dotierung der QP-Schicht (vgl. Abschnitt 4.1.2), undotiert. Hierdurch ergibt sich insgesamt die Struktur einer pin-Diode.

Im Gegensatz zu rein elektronischen Halbleiterbauelementen, muss bei der Kombination eines optischen Mikroresonators mit einer pin-Diodenstruktur auch die Auswirkung der Dotierung auf den Q -Faktor des Resonators berücksichtigt werden. Die relevante Größe ist dabei die Absorption der über die Dotierung eingebrachten freien Ladungsträger, welche in Gleichung 4.1 über den Term $Q_{\text{Absorption, DBR}}$ zu zusätzlichen Verlusten führt und den Q -Faktor eines Resonators verringert. Dementsprechend wurde die Dotierung der DBRs dahingehend optimiert, die Absorptionsverluste möglichst gering zu halten und dennoch eine hohe Leitfähigkeit der Spiegelstrukturen zu gewährleisten. Abbildung 4.3 illustriert das eingesetzte Dotierprofil (Konzentration der n- (rot) bzw. p- (blau) Dotierung) sowie die elektrische Feldintensität $|E|^2$ der optischen Mode in Wachstumsrichtung für einen Mikroresonator mit einem Durchmesser von $2,0 \mu\text{m}$. Die elektrische Feldintensität resultiert aus einer FEM¹-Simulation der Resonatorstruktur (siehe auch Abschnitt 4.2). Die Dotierkonzentration ist dem Verlauf der Einhüllenden der Feldverteilung angepasst und nimmt in Richtung der Kavität, in welcher die Feldstärkeverteilung ihr Maximum erreicht, sukzessive ab. Im unteren DBR sinkt die Dotierkonzentration stufenweise von $n = 6 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ am Substrat, auf $n = 2 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ an der Kavität und im oberen DBR von $p = 2 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, in den beiden obersten AlAs/GaAs-Schichtpaaren, auf $p = 2 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ direkt an der

¹ Finite-Elemente Methode

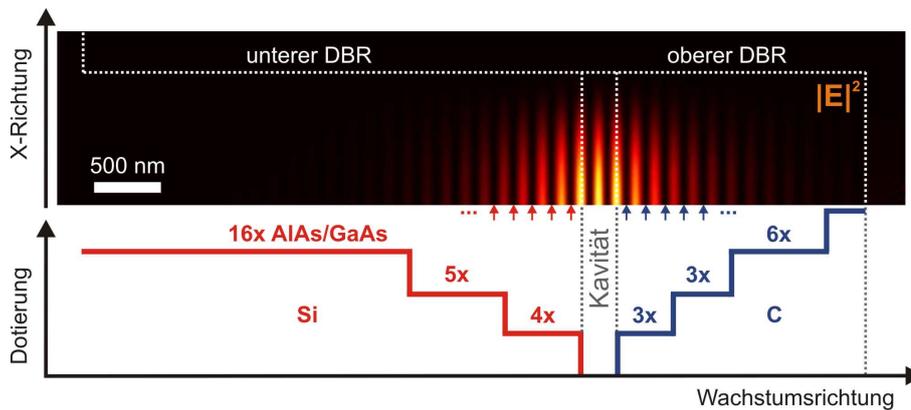


Abbildung 4.3: Schematische Darstellung des Dotierprofils der Mikroresonatoren in Wachstumsrichtung sowie der mittels FEM-Simulationen berechneten elektrischen Feldintensität $|E|^2$ der Resonatorgrundmode in einem Querschnitt durch das Zentrum des Resonators. Die Konzentration der n- (rot) und p-Dotierung (blau) in den Bragg-Spiegeln (DBR) nimmt in Richtung Kavität stufenweise ab und ist damit dem Verlauf der Einhüllenden der Feldverteilung angepasst. Des Weiteren befinden sich jeweils δ -Dotierschichten an den Knoten des elektrischen Feldes (markiert durch Pfeile).

Kavität. Des Weiteren liegen an den in Abbildung 4.3 durch Pfeile markierten Grenzfläche von GaAs zu AlAs sogenannte δ -Dotierschichten, welche einer Flächendotierung von $1 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ entsprechen. Da an diesen Stellen Knoten des elektrischen Feldes vorliegen, erhöhen diese Schichten die Leitfähigkeit ohne die Absorption signifikant zu beeinflussen. Insgesamt stellt diese spezielle Dotierung eine optimale Balance zwischen effizienter Strominjektion einerseits und geringen Resonatorverlusten andererseits dar.

4.1.4 Wachstum und Prozessierung

Die Herstellung der elektrisch kontaktierten Mikroresonatoren erfolgt auf höchstem technologischen Niveau und ist in den Dissertationen von Andreas Löffler [Löf08] und Christian Schneider [Sch11] detailliert beschrieben, weshalb in diesem Abschnitt nur die wichtigsten Punkte zusammengefasst werden. Die Probenherstellung lässt sich in drei Abschnitte unterteilen: das Wachstum der planaren Resonatorstruktur, die laterale Strukturierung der Mikroresonatoren und die elektrische Kontaktierung.

Die einzelnen Schichten des planaren Mikroresonators werden mittels Molekularstrahl-epitaxie (MBE¹) auf n-dotiertem, (001)-orientierten GaAs-Substrat abgeschieden. Die genaue Schichtabfolge sowie die Angaben zu Schichtdicken und Dotierkonzentrationen finden

¹ Molecular Beam Epitaxy

sich in Anhang [A.3](#).

Im Anschluss an das MBE-Wachstum erfolgt die laterale Strukturierung. Auf der Probenoberseite werden dazu mittels Elektronenstrahlolithographie und reaktivem Ionenätzen (ECR-RIE¹) kreisrunde Mikrosäulenresonatoren mit Durchmessern von 1,5 μm bis 3,0 μm definiert. Dabei wird bis auf etwa 10 verbleibende Spiegelpaare des unteren DBRs tief geätzt (vgl. Abbildung [4.1](#) (b)). Als Ätzmaske dient eine 450 nm dicke BaF_2/Cr -Schicht, deren Überreste nach dem Ätzprozess im Wasserbad vollständig entfernt werden können. Diese Prozessschritte wurden innerhalb des letzten Jahrzehnts fortwährend optimiert und ermöglichen die Herstellung von Resonatoren mit sehr glatten und senkrechten Seitenwänden [[Löf05](#), [Rei07](#)], wodurch der Verlustterm $Q_{\text{Randstreuung}}^{-1}$ in Gleichung [4.1](#) minimiert wird [[Riv99](#)].

Für eine Kontaktierung der Substratseite der Probe erfolgt zunächst eine Metallisierung des unteren n-Kontaktes durch das Aufdampfen von Nickel und Gold. Um die einzelnen Mikroresonatortürmchen von oben kontaktieren zu können, wird das Probenstück zunächst mit dem Isolator Benzocyclobuten (BCB, Brechungsindex $n = 1,54$) planarisiert. Anschließend erfolgt die Definition der Ringkontakte auf der Probenoberfläche mittels Elektronenstrahlolithographie. Als Lack wird dabei eine Schicht Polymethylmethacrylat (PMMA) verwendet. Das Belichtungsmuster besteht aus einer Kreisscheibe deren Innendurchmesser die Resonatoroberfläche ausspart und deren Außendurchmesser etwa 6 μm beträgt, sowie einem Kontaktfeld, das trapezförmig zur Kreisscheibe führt. Nach der Entwicklung können die vom Lack befreiten, belichteten Stellen metallisiert werden. Auf dem BCB dient dabei eine dünne Schicht Titan als Haftvermittler, bevor eine etwa 300 nm dicke Goldschicht folgt. Durch einen Abhebeschritt wird dann der restliche PMMA-Lack entfernt. Zuletzt wird das Bariumfluorid und somit die Chrommaske entfernt, wodurch die oberen Facetten der einzelnen Resonatorstrukturen frei liegen. Diese Art der Strominjektion hat, gegenüber einer flächigen Kontaktierung mit einer semitransparenten Goldschicht oder Indiumzinnoxid (ITO), den Vorteil, dass die ober Facette des Resonators frei von jeglicher absorbierenden Kontaktschicht bleibt. Abbildung [4.4](#) (a) und (b) zeigen lichtmikroskopische Aufnahmen eines vollständig prozessierten, mittels Golddrähten kontaktierten Probenstückes. Die REM-Aufnahme eines Ringkontaktes ist in Abbildung [4.4](#) (c) abgebildet.

¹ Electron Cyclotron Resonance - Reactive Ion Etching

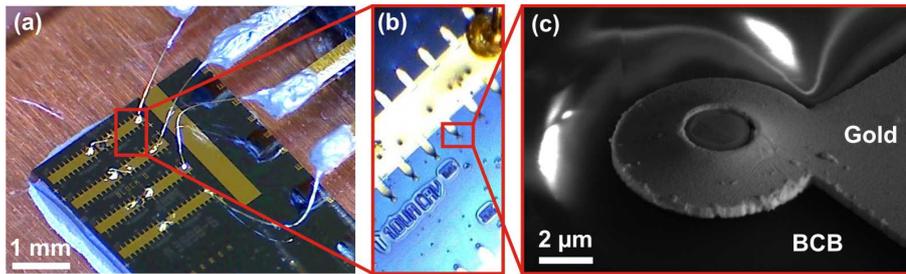


Abbildung 4.4: (a) Lichtmikroskopische Aufnahme eines vollständig prozessierten Probestückes nach der elektrischen Kontaktierung mittels Golddrähten. An jedem der acht Kontakt-Barren befinden sich 18 Mikroresonatoren unterschiedlicher Größen. (b) Vergrößerte Aufnahme eines Kontakt-Barrens. (c) REM-Aufnahme des ringförmigen p-Kontaktes eines Mikroresonators. Zu erkennen ist neben dem umliegenden Polymer (BCB) auch die freie, obere Facette des Resonators sowie das trapezförmig zulaufende Kontaktfeld.

4.2 Resonanzmoden-Simulationen der Mikroresonatoren

Mit dem Ziel die Photonen-Auskoppleffizienz η_{ph} (siehe Gleichung 2.13) des vorgestellten Resonator designs der EPQn zu bestimmen, wurden numerische Berechnungen auf Basis finiter Elemente (FEM) durchgeführt. Hierfür konnte im Rahmen einer Kooperation mit dem Zuse-Institut Berlin (ZIB) auf das Softwarepaket *JCMsuite* der *JCMwave GmbH* zugegriffen werden. Bei der verwendeten Simulationsmethode resonanter Moden wird die zeitharmonische Maxwell-Gleichung [Pom07, Kar09],

$$\epsilon^{-1} \nabla \times \mu^{-1} \nabla \times E(r) - \omega^2 E(r) = 0, \quad (4.2)$$

numerisch gelöst, wobei ϵ bzw. μ die elektrische bzw. magnetische Feldkonstante, $E(r)$ die ortsabhängige elektrische Feldstärke und ω die komplexe Frequenz der Lösung darstellt. Die gesuchten stationären Lösungen sind Paare $\{E(r), \omega\}$, welche den Eigenmoden einer vorgegebenen Resonatorgeometrie entsprechen. Aufgrund der Rotationssymmetrie der zylindrischen Mikroresonatoren kann die Berechnung vereinfachend quasi-zweidimensional durchgeführt werden, wodurch der Rechenaufwand erheblich reduziert wird. Auf dem Rand des Rechengebietes werden transparente Randbedingungen angenommen, welche durch sogenannte *perfectly matched layers* (PML) realisiert werden. Eine detailliertere Erläuterung der Simulationsmethode findet der interessierte Leser zum Beispiel in der Arbeit von Karl et al. [Kar09] sowie den darin enthaltenen Referenzen.

Für die Simulationen wurden Mikroresonatoren unterschiedlichen Durchmessers mit der im Anhang A.3 angegebenen Schichtabfolge definiert. Entsprechend den prozessierten Struk-

turen wurde dabei der Brechungsindex $n_{\text{BCB}} = 1,54$ des umliegenden Polymers BCB sowie der bis auf 10 Spiegelpaare endlich tief geätzte untere DBR berücksichtigt (vgl. Abbildung 4.1 (b)). Des Weiteren wurden die Brechungsindizes $n_{\text{GaAs}} = 3,5496$ und $n_{\text{AlAs}} = 2,9664$ verwendet [Kar09]. Die Absorption der Materialien wurde vereinfachend als vernachlässigbar angenommen. Für die Ansatz-Funktionen der finiten Elemente wurden Polynome dritten Grades gewählt und das Rechengitter in drei Schritten iterativ verfeinert.

Abbildung 4.5 (a) stellt die simulierte elektrische Feldintensität $|E(r)|^2$ der Grundmode eines Mikroresonators mit $d_C = 2,0 \mu\text{m}$ in einer zweidimensionalen Falschfarbendarstellung linearer Skalierung dar. Das Simulationsergebnis wurde zur Veranschaulichung an der Symmetrieachse (Wachstumsrichtung) gespiegelt. Es zeigt sich wie erwartet ein ausgeprägtes Maximum von $|E(r)|^2$ im Zentrum der Kavität - der Ort an dem in den realen Strukturen die QP-Schicht liegt. In den DBRs hingegen fällt die Feldintensität der stehenden Welle exponentiell ab. Für die Wellenlänge der Resonatorgrundmode ergibt sich $\lambda_C = 918,9 \text{ nm}$ bei einem Q -Faktor von $Q = 3999$, wobei die Werte aus dem Real- und Imaginärteil von ω wie folgt berechnet wurden [Spi05, Sri06, Min09]:

$$\lambda_C = \frac{2\pi c_0}{\text{Re}(\omega)} \quad \text{und} \quad Q = \frac{\text{Re}(\omega)}{2 \text{Im}(\omega)}. \quad (4.3)$$

Des Weiteren kann aus der elektrischen Feldstärkeverteilung das Modenvolumen V_M ermittelt werden, welches normiert auf die maximale Feldintensität wie folgt definiert wird [Gér98, Kip04, Ben07]:

$$V_M = \frac{\int \epsilon |E(r)|^2 dV}{\max[\epsilon |E(r)|^2]}. \quad (4.4)$$

Für den Resonatordurchmesser von $2,0 \mu\text{m}$ ergibt sich so ein Modenvolumen von $V_M = 0,41 \mu\text{m}^3 = 18,3 \cdot [(\lambda_C/n_{\text{eff}})^3]$, wobei $n_{\text{eff}} \approx (n_{\text{GaAs}} + n_{\text{AlAs}})/2$ den effektiven Brechungsindex bezeichnet. Dieser Wert ist in sehr guter Übereinstimmung mit Berechnungen des Modenvolumens von $V_M = 18,0 - 20,4 \cdot [(\lambda_C/n_{\text{eff}})^3]$ ähnlicher Strukturen in den Arbeiten [Ben07, Kar09, Gre13] ($d_C = 2,0 \mu\text{m}$) und liegt leicht unterhalb des aus [Rei04] extrapolierten¹ Wertes ($V_M = 0,53 \mu\text{m}^3$). Über Gleichung 2.10 kann aus den simulierten Werten für λ_C , Q und V_M für den betrachteten Durchmesser ($2,0 \mu\text{m}$) ein maximal zu erwartender Purcell-Faktor von $F_P^{\text{max}} = 12,8$ extrahiert werden.

Die Simulation wurde des Weiteren für unterschiedliche Durchmesser d_C der Mikroresonatoren zwischen $0,95 \mu\text{m}$ und $4,00 \mu\text{m}$ durchgeführt und die entsprechenden Parameter

¹ Hier wird von einem berechneten Modenvolumen von $0,3 \mu\text{m}^3$ bei $d_C = 1,5 \mu\text{m}$ berichtet. Nimmt man vereinfachend an, dass das Modenvolumen nur mit dem Durchmesser des Resonators skaliert, erhält man: $V_M(d_C) = 0,3 \mu\text{m}^3 \cdot (d_C[\mu\text{m}]/1,5)^2$.

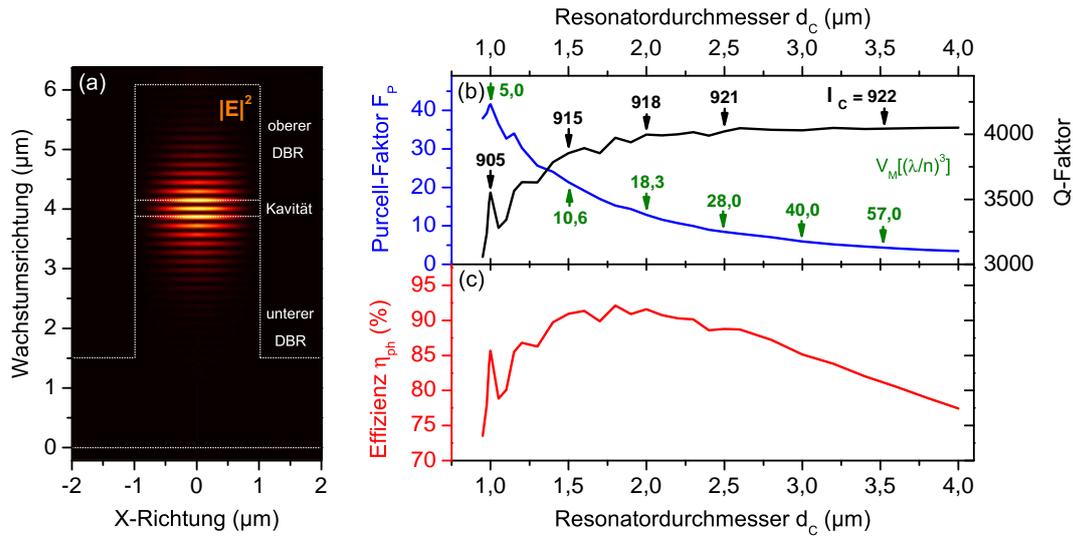


Abbildung 4.5: Simulation des Mikroresonatordesigns für EPQn mittels finiter Elemente Methoden (FEM): (a) Elektrische Feldintensität $|E|^2$ der Grundmode eines Mikroresonators mit einem Durchmesser von $d_C = 2,0 \mu\text{m}$. (b) Aus durchmesserabhängigen Simulationen extrahierte Werte für den Purcell-Faktor F_P (nach Gleichung 2.10) sowie dem Q -Faktor der Resonatorgrundmode. (c) Nach Gleichung 2.13 berechnete Photonen-Auskoppleffizienz η_{ph} .

extrahiert. Abbildung 4.5 (b) zeigt die ermittelten Werte für den Purcell-Faktor F_P und den Q -Faktor der Resonatorgrundmode. Der Q -Faktor entspricht für Durchmesser oberhalb von $3 \mu\text{m}$ näherungsweise dem Q -Faktor des planaren Resonators mit $Q_{2D} = 4050$. Unterhalb von $d_C \approx 2 \mu\text{m}$ beginnt eine Abnahme von Q bis auf einen Wert von 3057 bei $d_C = 0,95 \mu\text{m}$. Diese Abnahme ist auf die zunehmenden Verluste $Q_{\text{Randstreuung}}^{-1}$ (vgl. Gleichung 4.1) durch Streuung an den Resonatorseitenwänden zurückzuführen [Bar02]. Für den Purcell-Faktor ergibt sich hingegen das umgekehrte Verhalten: Für die simulierten Strukturen nimmt F_P mit Werten um 40,0 sein Maximum bei kleinen Resonatordurchmessern an und nimmt mit zunehmendem d_C sukzessive ab. Dieses Verhalten kann Anhand von Gleichung 2.10 mit der Abhängigkeit $F_P^{\text{max}} \propto \frac{Q}{V_M}$ erklärt werden: Während sich der Q -Faktor mit zunehmendem Durchmesser asymptotisch dem Wert Q_{2D} der planaren Struktur nähert, wächst das Modenvolumen (grün markierte Werte in Abbildung 4.5 (b)) weiterhin kontinuierlich an, wodurch der Purcell-Faktor verringert wird. Darüber hinaus weist der Verlauf von $Q(d_C)$ für Durchmesser unterhalb von $2,5 \mu\text{m}$ mitunter ausgeprägte Fluktuationen auf. Derartige Oszillationen im Q -Faktor wurden bereits in verschiedenen Arbeiten sowohl experimentell als auch anhand von Simulationsrechnungen beobachtet, und sind durch die Kopplung der Resonatorgrundmode an propagierende Bloch-Moden in den DBRs zu erklären [Lal04, Lec07, Rei09, Kar09, Ler12, Gre13].

Nach Gleichung 2.13 kann nun die Photonen-Auskoppleffizienz η_{ph} in Abhängigkeit

des Resonatordurchmessers berechnet werden (siehe Abbildung 4.5 (c)). Durch die oben erläuterten Abhängigkeiten von $F_{\mathcal{P}}$ und Q ergibt sich für die Photonen-Auskoppleffizienz ein Maximum von $\eta_{\text{ph}} = 92\%$ für einen Durchmesser im Bereich um $1,8\ \mu\text{m}$. Für Durchmesser deutlich unterhalb von $1,5\ \mu\text{m}$ dominieren die Verluste durch Streuung an den Seitenwänden. In diesem Regime ist η_{ph} durch den Faktor $Q/Q_{2\text{D}}$ limitiert, auch wenn der Kopplungsfaktor β Werte nahe eins annimmt (vgl. Gleichung 2.11). Liegt der Durchmesser hingegen deutlich oberhalb von $2,0\ \mu\text{m}$ so nimmt der Purcell-Faktor signifikant ab und η_{ph} ist durch den β -Faktor begrenzt. Dieses Verhalten von η_{ph} ist typisch für zylindrische Fabry-Pérot Mikrosäulenresonatoren und wurde auch in der Arbeit von Barnes et al. [Bar02] theoretisch modelliert. Es ist anzumerken, dass ähnlich hohe Photonen-Auskoppleffizienzen auch mit alternativen Resonatordesigns erzielt werden können. Durch eine höhere Güte der planaren Resonatorstruktur, realisiert beispielsweise über ein symmetrischeres Spiegelanzahl-Verhältnis der DBRs, verschiebt sich das Maximum der Photonen-Auskoppleffizienz zu höheren Resonatordurchmessern, ohne dass dabei $\eta_{\text{ph}}^{\text{max}}$ signifikant abnimmt [Bar02, Sch11]. Dies kann bei niedrigeren QP-Flächendichten und insbesondere bei dem Design deterministischer EPQn, bei welchen gezielt ein einzelner QP in dem Resonator platziert wird, ausgenutzt werden. Das in dieser Arbeit gewählte Resonatordesign mit moderaten Güten $Q_{2\text{D}}$ wurde hingegen für die eingesetzten, statistisch zufällig gewachsenen InAs/GaAs-QPe optimiert, für welche QP-Flächendichten von $n_{\text{QP}} \approx 3 \cdot 10^9\ \text{cm}^{-2}$ erzielt werden können.

Bei den folgenden experimentellen Untersuchungen erlaubt die Abhängigkeit $\eta_{\text{ph}}(d_{\text{C}})$ die Wahl eines optimalen Resonatordurchmessers für die Anwendung der Mikroresonatoren als effiziente, elektrisch getriggerte EPQn.

4.3 Einführende spektroskopische Untersuchungen

In diesem Abschnitt werden grundlegende elektrische und optische Eigenschaften der Mikroresonatoren vorgestellt. Dabei wird insbesondere der optimale Arbeitsbereich identifiziert, in welchem die Mikroresonatoren zur effizienten Erzeugung einzelner, getriggelter Photonen eingesetzt werden können.

Abbildung 4.6 (a) zeigt zunächst die Strom-Spannungskennlinie eines Mikroresonators mit einem Durchmesser d_{C} von $2,0\ \mu\text{m}$, aufgenommen bei einer Temperatur von $T = 10\ \text{K}$. Hierfür wird an die ringförmigen p-Kontakte eine Gleichspannung U_{DC} angelegt und die an einem seriellen Messwiderstand ($1\ \text{M}\Omega$) abfallende Spannung in eine Stromstärke umgerechnet. Der Stromstärkeverlauf zeigt aufgrund des pin-Dotierprofils ein typisches Diodenverhalten: Für negative Betriebsspannungen ($U_{\text{DC}} < 0$) ist die Diodenstruktur in Sperrich-

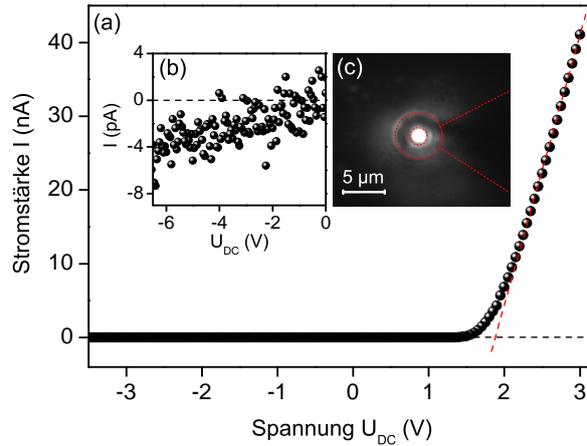


Abbildung 4.6: (a) Strom-Spannungskennlinie eines Mikroresonators mit einem Durchmesser von $2,0\ \mu\text{m}$ bei $T = 10\ \text{K}$. Aufgrund des pin-Dotierprofils der Struktur zeigt der Stromstärkeverlauf einen typischen Diodencharakter mit einer Kniespannung von $U_{\text{DC}} = 1,8\ \text{V}$. (b) Die Leckströme der Diode liegen im Bereich weniger pA. (c) Räumlich aufgelöstes CCD-Bild der Elektrolumineszenz eines Mikroresonators.

tung gepolt und es ist nahezu kein Stromfluss zu verzeichnen. Die beobachteten Leckströme liegen bis $U_{\text{DC}} = -6,5\ \text{V}$ lediglich im Bereich $\approx 4\ \text{pA}$ (vgl. eingebetteter Graph 4.6 (b)). In Durchlassrichtung ($U_{\text{DC}} > 0$) setzt ab einer Spannung von etwa $1,5\ \text{V}$ ein Stromfluss im Bereich von $0,2\ \text{nA}$ ein. Der Wert der Einsatzspannung liegt erwartungsgemäß leicht unterhalb der Bandlücke der intrinsischen GaAs-Kavität, welche bei $T = 10\ \text{K}$ etwa $1,519\ \text{eV}$ beträgt [Bla82]. Oberhalb der Kniespannung der Diodenstruktur ($U_{\text{DC}} > 1,9\ \text{V}$) fließen Ströme im Bereich $\approx 10\ \text{nA}$. Abbildung 4.6 (c) zeigt das räumlich aufgelöste CCD-Bild der Elektrolumineszenz eines Mikroresonators, welcher deutlich oberhalb der Kniespannung betrieben wurde.

Das Übersichtsspektrum der Emission eines Mikroresonators unter elektrischer Anregung bei $U_{\text{DC}} = 3,0\ \text{V}$ ist in Abbildung 4.7 (a) dargestellt ($d_{\text{C}} = 3,0\ \mu\text{m}$, $T = 45\ \text{K}$). Auf der niederenergetischen Seite des Spektrums ist die fundamentale optische Mode (C) des Mikroresonators bei einer Emissionsenergie von $E_{\text{C}} = 1,374\ \text{eV}$ zu beobachten. Die Anpassung eines Lorentzprofils an die Emissionslinie C ergibt eine spektrale Halbwertsbreite (FWHM¹) von $\Delta E_{\text{C}} = 0,62\ \text{meV}$, was einem Q -Faktor von $Q = E_{\text{C}}/\Delta E_{\text{C}} = 2200$ entspricht. Durch den dreidimensionalen photonischen Einschluss des elektromagnetischen Feldes in dem Mikroresonator bilden sich neben der Resonatorgrundmode auch Moden höherer Ordnung mit unterschiedlichen transversalen Modenprofilen aus [Ulr07]. Diese sind im Spektrum auf der hochenergetischen Seite der Resonatorgrundmode C zu

¹ Full Width at Half Maximum; Angaben zu Linienbreiten beziehen sich stets auf die FWHM;

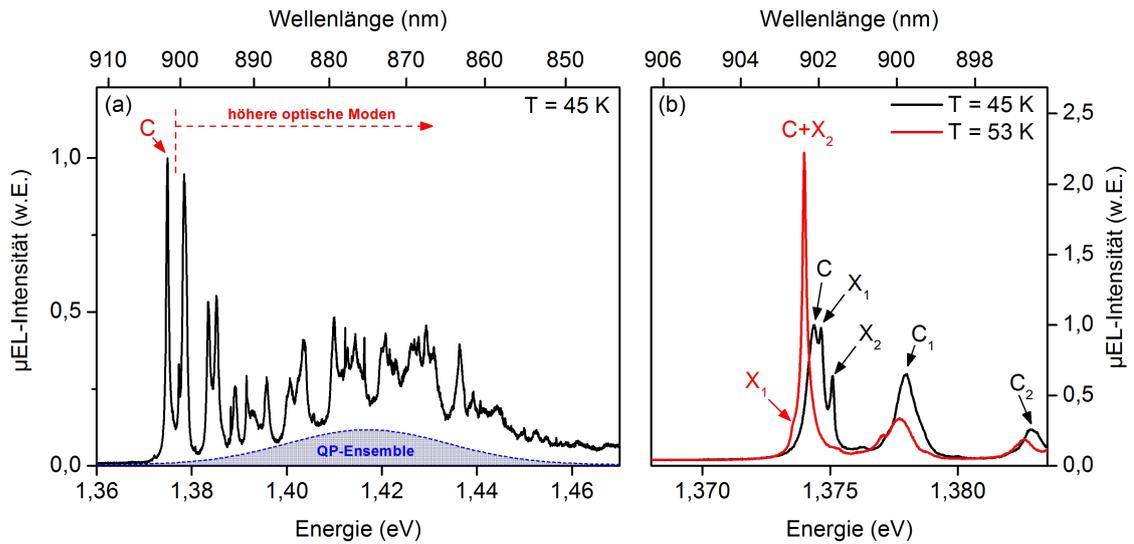


Abbildung 4.7: μ EL-Spektren der Emission eines elektrisch betriebenen Mikroresonators mit einem Durchmesser von $d_C = 3,0 \mu\text{m}$ ($U_{DC} = 3,0 \text{V}$): Im Übersichtsspektrum (a) ist auf der niederenergetischen Seite die fundamentale optische Mode (C) des Mikroresonators ($Q = 2200$) sowie eine Vielzahl weiterer transversaler Resonatormoden bei höheren Energien zu beobachten. Diese werden durch die inhomogen verbreiterte Emission des QP-Ensembles (blau unterlegt) der aktiven Schicht „gefüttert“. (b) zeigt einen kleineren Spektralbereich um die Resonatorgrundmode desselben Mikroresonators bei zwei unterschiedlichen Temperaturen: Durch eine Temperaturerhöhung von 45 K auf 53 K kann eine einzelne QP-Emissionslinie (X_2) in spektrale Resonanz mit der Resonatorgrundmode (C) geschoben werden. In Resonanz ($T = 53 \text{K}$) zeigt die QP-Emissionslinie X_2 eine Überhöhung ihrer Emissionsintensität, hervorgerufen durch den Purcell-Effekt.

beobachten, und werden ebenfalls durch die inhomogen verbreiterte Emission des QP-Ensembles beleuchtet - man spricht anthropozentrisch auch von „gefüttert“ [Gér96]. Zur Veranschaulichung ist in blau unterlegt die spektrale Lage und Breite des QP-Ensembles angedeutet ($\lambda_{QP_e} \approx 875 \text{nm}$, $\Delta\lambda_{QP_e} \approx 25 \text{nm}$), wie sie aus einem PL-Spektrum der planaren Struktur desselben Wafers mit abgeätztem oberem Bragg-Spiegel zu entnehmen ist. Die spektrale Lage der Resonatorgrundmode in dem Ausläufer der Emission des QP-Ensembles ist ein entscheidender Bestandteil des Designs der EPQn, da sich zum Beispiel in einem Mikroresonator mit einem Durchmesser von $3,0 \mu\text{m}$ bei der vorliegenden QP-Flächendichte ($n_{QP} \approx 3 \cdot 10^9 \text{cm}^{-2}$) etwa 210 QPe befinden. Da die spektrale Dichte der QP-Emissionslinien in den Ausläufern der Emission des QP-Ensembles jedoch deutlich geringer als bei dessen Zentralwellenlänge ist, kann effektiv nur eine geringe Anzahl an

QPen mit der spektral verstimzten Resonatorgrundmode wechselwirken¹.

Im Folgenden wird die Diskussion auf den niederenergetischen Bereich der Mikroresonator-Emission beschränkt, da bei den weiter unten folgenden Photonenzustand-Messungen durch den Monochromator stets ein sehr schmaler Spektralbereich der Resonatorgrundmode selektiert wird ($\Delta E_{\text{Filter}} = 0,33 \text{ meV} / \Delta \lambda_{\text{Filter}} = 0,22 \text{ nm}$). Abbildung 4.7 (b) zeigt μEL -Spektren der Emission des oben diskutierten Mikroresonators (vgl. Abbildung 4.7 (a)) in einem kleineren Spektralbereich um die Resonatorgrundmode bei zwei unterschiedlichen Temperaturen. Bei $T = 45 \text{ K}$ sind neben der fundamentalen optischen Mode C die höheren Moden C_1 und C_2 sowie zwei spektral scharfe QP-Emissionslinien (X_1, X_2) zu beobachten. Da diese spektral auf der hochenergetischen Seite der Resonatorgrundmode liegen, kann ihre Emission durch eine Erhöhung der Temperatur und der damit verbundenen Verringerung der Bandlücke des Halbleiter-Materials zu niedrigeren Energien verschoben werden [Kir01]. Bei einer Temperatur von $T = 53 \text{ K}$ befinden sich Resonatorgrundmode C und QP-Emissionslinie X_2 in spektraler Resonanz (vgl. rotes Spektrum in Abbildung 4.7 (b)). Das gekoppelte System, bestehend aus QP und Resonatormode, zeigt hier eine deutliche Überhöhung seiner Emissionsintensität, was einen Hinweis auf eine verringerte strahlende Lebensdauer des Emitters aufgrund der erhöhten optischen Modendichte in dem Mikroresonator-System liefert. Dieses unter dem Namen Purcell-Effekt bekannte Phänomen (vgl. Abschnitt 2.2.1) wird in Abschnitt 4.4 eingehend untersucht und stellt einen entscheidenden Schlüssel zur Realisierung einer effizienten, elektrisch getriggerten EPQ dar.

Die Wahl des Durchmesser eines Mikroresonators wirkt sich sowohl auf die höheren optischen Moden als auch auf die Grundmode selbst aus. Hierzu zeigt Abbildung 4.8 (a) zunächst das μEL -Spektrum eines Mikroresonators mit einem Durchmesser von $3,0 \mu\text{m}$ unter moderater Anregung. Neben der Resonatorgrundmode C bei $1,3779 \text{ eV}$ sind auch zwei höhere transversale Moden (C_1 und C_2) bei $1,3817 \text{ eV}$ und $1,3865 \text{ eV}$ zu identifizieren. Des Weiteren sind in der Umgebung der Resonatormoden jeweils einzelne, spektral scharfe QP-Emissionslinien zu beobachten. Wird der Resonatordurchmesser verringert, so nimmt sowohl die Emissionsenergie von C als auch der freie Spektralbereich zwischen den optischen Moden C, C_1 und C_2 zu. Dieses Verhalten, welches auf den stärkeren photonischen Einschluss (engl.: *photonic confinement*) bei geringeren Resonatorabmessungen zurückzuführen ist [Gér96, Rei97], kann in dem μEL -Spektrum von Abbildung 4.8 (b)

1 Im Gegensatz hierzu werden Strukturen welche für die Untersuchung von Lasing-Effekten bestimmt sind so ausgelegt, dass die Resonatorgrundmode möglichst nahe an der Zentralwellenlänge des QP-Ensembles liegt [Rei08b, Alb10].

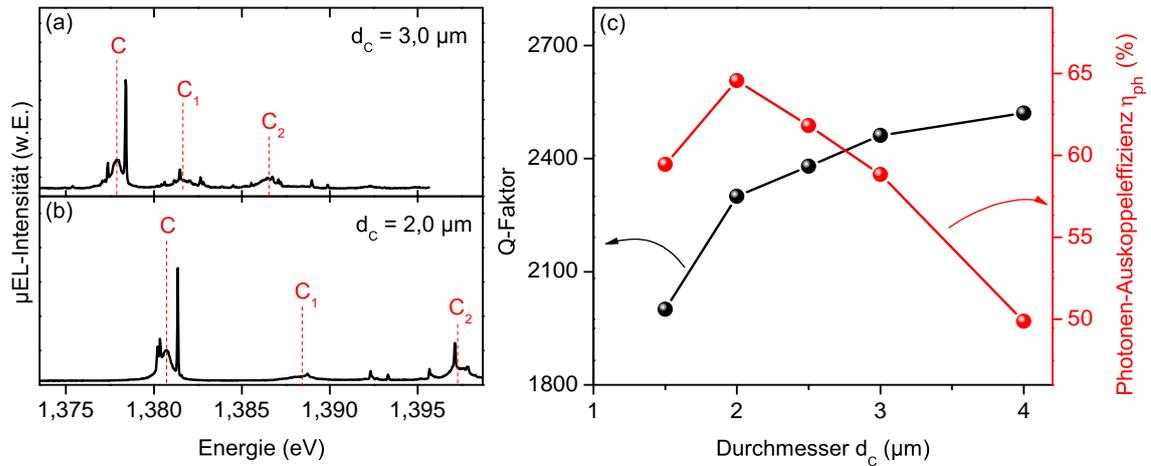


Abbildung 4.8: Einfluss des Resonatordurchmessers d_C auf das Modenspektrum (C, C_1 , C_2): Aufgrund des stärkeren optischen Einschlusses wächst der Modenabstand von (a) nach (b) stark an. Neben der Emission der optischen Moden ist auch die Elektrolumineszenz einzelner QP-Zustände zu erkennen. (c) Gemessene Q -Faktoren und Photonen-Auskoppleffizienzen η_{ph} der Resonatorgrundmode C in Abhängigkeit von d_C : Für kleine d_C nimmt der Q -Faktor aufgrund der zunehmenden Verluste durch Seitenwandstreuung ab. Für die Photonen-Auskoppleffizienzen ergibt sich daher ein ausgeprägtes Maximum von $\eta_{\text{ph}} = 65\%$ bei $d_C = 2,0 \mu\text{m}$.

exemplarisch für einen Resonator mit $d_C = 2,0 \mu\text{m}$ beobachtet werden. Die Emission der Resonatorgrundmode C ist hier mit $1,3807 \text{ eV}$ um $2,9 \text{ meV}$ zu höheren Energien verschoben und der Modenabstand zwischen C und C_1 bzw. C_1 und C_2 ist auf $7,7 \text{ meV}$ bzw. $8,8 \text{ meV}$ angewachsen (in 4.8 (a) zum Vergleich: $3,8 \text{ meV}$ bzw. $4,9 \text{ meV}$). Ein größerer Modenabstand ist auch bei dem Einsatz der EPQn in Quantenschlüsselverteilungs-Experimenten von Vorteil (siehe Kapitel 6). Bei diesen wird die Einzelphotonen-Emission nicht über einen Monochromator spektral selektiert, sondern über einen raumsparenden Bandpassfilter. Die gegenüber dem Monochromator größere Bandbreite des Interferenzfilters erfordert jedoch ein Emissionsspektrum mit möglichst geringen spektralen Hintergrundbeiträgen in der Umgebung der Resonatorgrundmode, weshalb sich ein größerer Modenabstand zwischen C und C_1 positiv auswirkt.

Wie aus den Simulationsrechnungen in Abschnitt 4.2 ersichtlich wurde, kann über die Wahl des Resonatordurchmessers eine Optimierung der photonischen Auskoppleffizienz η_{ph} erzielt werden. Um dies zu verifizieren und den für die folgenden Experimente optimalen Arbeitsbereich zu lokalisieren, wurde die μEL von Mikroresonatoren mit unterschiedlichen Durchmessern analysiert. Die entsprechenden Q -Faktoren der Resonatorgrundmode C sind in Abbildung 4.8 (c) in Abhängigkeit des Resonatordurchmessers d_C aufgetragen (in schwarz). Die Messdaten bestätigen qualitativ das in den Simulationsrechnungen be-

obachtete Verhalten: der Q -Faktor wächst mit zunehmendem d_C , aufgrund der abnehmenden Verluste durch Streuung an den Resonatorseitenwänden, kontinuierlich an und nähert sich für große Resonator Durchmesser asymptotisch dem Wert $Q_{2D} = 3000$ der planaren Struktur. Die Abweichung dieses, über Reflexionsmessungen ermittelten, planaren Q -Faktors gegenüber den Simulationsrechnungen aus Abschnitt 4.2 ($Q_{2D}^{\text{Sim}} = 4050$) ist teilweise auf Schichtdickenfluktuationen in den Bragg-Spiegeln zurückzuführen, wodurch deren Reflektivität verringert wird. Weitere Verlustbeiträge werden durch die Absorption in den Bragg-Spiegeln und insbesondere der QP-Schicht generiert [Riv99], welche den Q -Faktor ebenfalls reduzieren (vgl. Gleichung 4.1). Des Weiteren beginnt im Vergleich zu den Simulationsrechnungen eine merkliche Abnahme der Q -Faktoren in Abbildung 4.8(c) bereits bei größeren Durchmessern, für d_C unterhalb von $4,0 \mu\text{m}$ (vgl. Abbildung 4.5(b)). Verantwortlich hierfür sind stärkere Verluste durch Seitenwandstreuung aufgrund der endlichen Oberflächenrauigkeit realer Strukturen sowie Absorption an der Oberfläche. Einen weiteren Beitrag zu den Verlusten generiert eine endliche Neigung der Seitenwände relativ zur Wachstumsrichtung [Kar09], wie sie in der REM-Aufnahme in Abbildung 4.1(b) andeutungsweise zu erkennen ist. Aus den gemessenen Q -Faktoren lässt sich nach Gleichung 2.10 und 2.13 die Photonen-Auskoppeeffizienz η_{ph} berechnen, welche ebenfalls in Abbildung 4.8(c) dargestellt ist (in rot). Der Verlauf der Photonen-Auskoppeeffizienz ist in guter qualitativer Übereinstimmung mit den Simulationsrechnungen, und zeigt mit $\eta_{\text{ph}} = 65\%$ ein Maximum bei einem Resonator Durchmesser von $2,0 \mu\text{m}$. Die maximale Photonen-Auskoppeeffizienz ist damit gegenüber der Simulation zu leicht höheren Durchmessern verschoben, was aus der bei größeren Durchmessern einsetzenden Abnahme des Q -Faktors resultiert.

Anhand von Photonenstatistik-Messungen kann das Konzept, die Mikroresonatoren als elektrisch betriebene Emitter einzelner Photonen einzusetzen, getestet werden. Die Messungen der Photonen-Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ erfolgen mit der in Abschnitt 3.3 beschriebenen glasfaserbasierten HBT-Messanordnung. Hierfür wurde ein Mikroresonator mit dem optimalen Durchmesser $d_C = 2,0 \mu\text{m}$ gewählt, bei welchem eine QP-Emissionslinie über eine Temperaturänderung in spektrale Resonanz mit der fundamentalen optischen Mode C geschoben werden konnte ($T = 28 \text{ K}$). Abbildung 4.9(a) zeigt ein μEL -Spektrum des resonant gekoppelten QP-Mikroresonatorsystems (vgl. roten Pfeil bei $1,3801 \text{ eV}$ bzw. 907 nm). Die Diodenstruktur wurde mit einer Gleichspannung von $1,87 \text{ V}$ leicht oberhalb der Einsatzspannung betrieben. Für die $g^{(2)}(\tau)$ -Messung wurde die Emission der markierten QP-Emissionslinie, mit einer spektralen Breite von $\gamma_{\text{DC}} = 78 \mu\text{eV}$, über den Monochromator-Ausgang in die glasfaserbasierte HBT-Messanordnung eingekop-

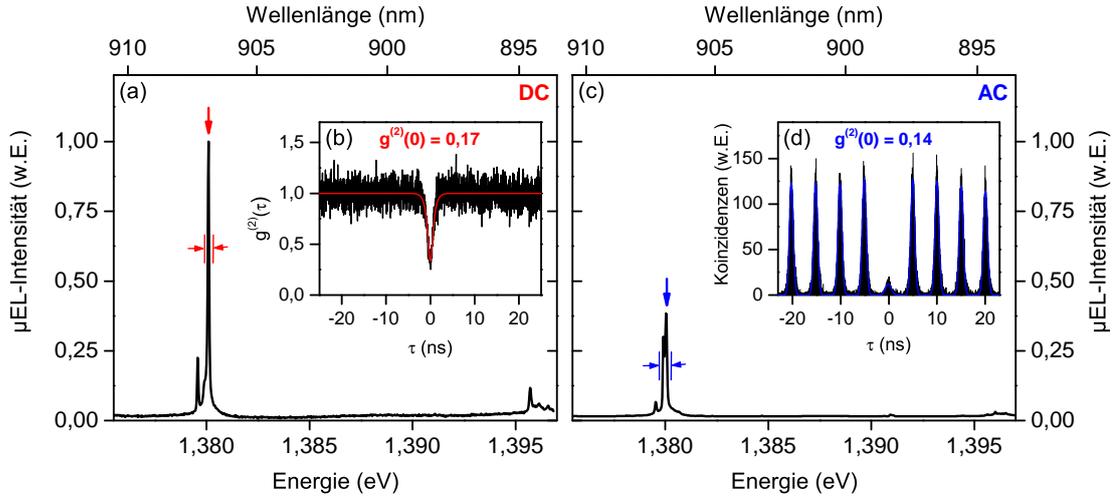


Abbildung 4.9: μ EL-Spektren sowie zugehörige Photonen-Autokorrelationsmessungen zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ eines elektrisch betriebenen Mikroresonators mit einem Durchmesser von $2,0\ \mu\text{m}$ ($T = 28\ \text{K}$): (a) und (b) unter kontinuierlicher Anregung bei $U_{\text{DC}} = 1,87\ \text{V}$ sowie (c) und (d) unter gepulster Anregung bei einer Anregungs-Repetitionsrate von $f = 199\ \text{MHz}$ ($U_{\text{DC}} = 1,50\ \text{V}$ $U_{\text{AC}} = 6,0\ \text{V}$). Die Messung von $g^{(2)}(\tau)$ erfolgte jeweils an derselben, spektral resonant an die Resonatorgrundmode gekoppelten, QP-Emissionslinie (vgl. Pfeile in (a) und (c)). In beiden $g^{(2)}(\tau)$ -Histogrammen ist ein klares Antibunching ($g^{(2)}(0) < 1$) als Ausdruck der Emission nicht-klassischen Lichts zu beobachten, wobei mit $g^{(2)}(0) = 0,17 < 0,5$ in kontinuierlicher Anregung (vgl. (b)) eindeutig die Emission einzelner Photonen nachgewiesen ist. In (d) manifestiert sich die gepulste Anregung in einer periodischen Häufung der Koinzidenzen, wobei $g^{(2)}(0) = 0,14 < 0,5$ die elektrisch getriggerte Emission einzelner Photonen bestätigt. Angegeben sind jeweils die gemessenen $g^{(2)}(0)$ -Werte (vgl. Diskussion im Text).

pelt. Die dabei durch den Monochromator-Ausgangsspalt ($250\ \mu\text{m}$) selektierte spektrale Breite beträgt $0,33\ \text{meV}$ (vgl. rote Markierungen in Abbildung 5.6 (a)). Das aus der Koinzidenzmessung erhaltene Histogramm ist in Abbildung 5.6 (b) dargestellt: Der Verlauf von $g^{(2)}(\tau)$ zeigt ein ausgeprägtes Minimum an Koinzidenzen bei Delayzeiten um $\tau = 0$, welches als Antibunching bezeichnet wird, und spiegelt den nicht-klassischen Charakter der Emission des betrachteten QP-Zustandes wider. Mit einem gemessenen Antibunching von $g^{(2)}(0) = 0,17$ wird eine starke Unterdrückung von Zwei-Photonen Emissionsereignissen beobachtet, welche den eindeutigen Nachweis der Emission einzelner, konsekutiv abfolgender Photonen erbringt ($g^{(2)}(0) < 0,5$, vgl. Abschnitt 2.3.2). Für endliche Delayzeiten relaxiert $g^{(2)}(\tau \neq 0)$ innerhalb der Lebensdauer $\tau_{\text{QP}} = 0,6\ \text{ns}$ des QP-Zustandes auf das Poisson-Niveau einer zeitlich unkorrelierten Lichtquelle ($g^{(2)}(\tau) = 1$). Der Wert des Antibunchings, der idealerweise $g^{(2)}(0) = 0$ betragen sollte, ist dabei durch die zeitliche Auflösung der Detektoren ($0,8\ \text{ns}$) limitiert. Nach [Mic00a, Bec01] erfolgte eine Anpassung der Funktion

$$g^{(2)}(\tau) = [1 - (1 - g_{\text{entf.}}^{(2)}(0))e^{-|\tau|/\tau_{\text{QP}}}] \otimes G(t, t_{\text{res}}) \quad (4.5)$$

an die Messdaten, wobei die Faltung (\otimes) der theoretischen Funktion mit einer Gaußverteilung $G(t_{\text{res}})$ die endliche Zeitaufösung berücksichtigt (siehe rote Kurve in Abbildung 5.6 (d)). Es ergibt sich ein entfalteter Antibunching-Wert von $g_{\text{entf.}}^{(2)}(0) = 0,02$. Demnach beträgt in diesem Fall der Beitrag unkorellierter Hintergrundemission anderer Emitter sowie der Dunkelzählrate der Detektoren lediglich 2 %.

Hinsichtlich der konkreten Anwendung in Quantenkryptographie-Experimenten (siehe Kapitel 6) ist eine getriggerte Emission einzelner Photonen unabdingbar: Nur wenn die einzelnen Photonen sozusagen „auf Knopfdruck“ generiert werden, kann ihre Polarisation in definierter Art und Weise präpariert bzw. moduliert werden. Im Folgenden wurde die Diodenstruktur daher mit einem elektrischen Pulsgenerator betrieben Abbildung 4.9 (c) zeigt das μEL -Spektrum des Mikroresonators unter gepulst-elektrischer Anregung bei einer Anregungs-Repetitionsrate von $f = 199 \text{ MHz}$. Um Ladungsträger möglichst effizient in die QP-Schicht injizieren zu können, wird eine Gleichspannung U_{DC} von 1,50 V an die pin-Struktur angelegt, welche knapp unterhalb des Einsetzens der Elektrolumineszenz liegt. Aufgeprägt auf diesen DC-Offset sind Spannungspulse mit einer Amplitude U_{AC} von 6,0 V und einer Breite Δt von 200 ps. Wie unter gepulster Anregung zu erwarten, ist die Emissionsintensität im Vergleich zur kontinuierlichen Anregung geringer (vgl. Abbildung 4.9 (a)). Des Weiteren ist mit $\gamma_{\text{AC}} = 219 \mu\text{eV}$ ein deutlicher Anstieg der Linienbreite zu beobachten (vgl. $\gamma_{\text{DC}} = 78 \mu\text{eV}$). Diese Linienverbreiterung wird auch bei den übrigen QP-Emissionlinien des Spektrums beobachtet und wird durch einen zeitabhängigen Stark-Shift hervorgerufen: Die kurzen Spannungspulse bewirken eine Verkippung der Bandstruktur und folglich, über den sogenannten *quantum-confined Stark-Effekt* (QCSE), eine rasche Verschiebung der Energieniveaus [Ste12b]. Diese wird in zeitintegrierten Messungen letztendlich als Linienverbreiterung detektiert. Die zugehörige Photonen-Autokorrelationsmessung der Emissionslinie bei 1,3801 eV ist in Abbildung 4.9 (d) dargestellt. Die gepulste Anregung des QPes äußert sich in einer periodischen Häufung der Koinzidenzen, wobei die beobachteten Maxima - der Anregungs-Repetitionsrate von $f = 199 \text{ MHz}$ entsprechend - jeweils einen Abstand von $\Delta\tau \approx 5 \text{ ns}$ aufweisen. Die erheblich geringere Fläche des Koinzidenz-Peaks um $\tau = 0$ spiegelt auch hier den nicht-klassischen Charakter der Photonen-Emission wider. Der Wert des *Antibunchings* ergibt sich in gepulster Anregung aus dem Verhältnis der Fläche¹ A_0 des Peaks bei $\tau = 0$ ($\tau = [-2,5 \text{ ns}, +2,5 \text{ ns}]$) zu dem Mittelwert \bar{A} der Flächen der Peaks bei $\tau \neq 0$. Somit ergibt sich bei dieser Messung ein *Antibunching* von $g^{(2)}(0) = A_0/\bar{A} = 0,14 < 0,5$ welches wiederum die Emission einzelner, elektrisch-getriggelter Photonen nachweist.

¹ Die Fläche berechnet sich als die Summe der gemessenen Koinzidenzen.

4.4 Analyse des Purcell-Effektes

Abbildung 4.10 (a) zeigt μ EL-Spektren eines Mikroresonators mit einem Durchmesser von $2,0 \mu\text{m}$ bei zwei unterschiedlichen Temperaturen. Das Bauteil wurde gepulst-elektrisch bei einer Anregungs-Repetitionsrate von 220 MHz betrieben ($U_{\text{DC}} = 1,65 \text{ V}$, $U_{\text{AC}} = 6,0 \text{ V}$, $\Delta t = 200 \text{ ps}$). Bei einer Temperatur von $23,8 \text{ K}$ ist eine einzelne QP-Exzitonlinie (X^-) bei einer Energie von $1,3812 \text{ eV}$ sowie die sehr emissionsschwache fundamentale optische Mode (C) des Mikroresonators bei $1,3806 \text{ eV}$ ($Q = 2300$) zu identifizieren. Zur Verdeutlichung zeigt der eingebettete Graph 4.10 (b) einen vergrößerten Ausschnitt des Spektrums im Bereich der Resonatorgrundmode C. Dass die QP-Exzitonlinie sehr wahrscheinlich der Emission eines Trion-Zustandes X^- entstammt, wurde dabei neben der n-Typ Hintergrunddotierung (vgl. Abschnitt 4.1.2) auch aus der verschwindenden Feinstrukturaufspaltung der Emissionslinie in polarisationsaufgelösten Messungen gefolgert (vgl. Abschnitt 2.1.4). Die entsprechende Messung ist in Abbildung 4.10 (c) dargestellt und zeigt keinerlei Korrelation zwischen der Emissionsenergie des X^- -Zustandes und der Polarisatorstellung, wie sie für einen elektrisch neutralen QP-Zustand zu erwarten wäre (vgl. auch Abschnitt 5.4). Die beobachteten, statistisch zufälligen Schwankungen sind auf spektrale Diffusion zurückzuführen [Tür00, Rod05]. Zudem ist die Anregungsleistung in diesem Fall noch deutlich unterhalb der Sättigung der QP-Emission, wodurch Beiträge von geladenen Biexziton-Zuständen im Spektrum nicht zu erwarten sind. Durch eine Erhöhung der Temperatur auf $31,5 \text{ K}$ kann die Emission der X^- -Linie zu niedrigeren Energien verschoben und so in spektrale Resonanz mit der Resonatormode C gebracht werden. Dies resultiert in einer starken Überhöhung der Emissionsintensität der X^- -Linie um etwa einen Faktor 7, hervorgerufen durch den Purcell-Effekt [Gér98]. Um den Einfluss der fundamentalen optischen Mode auf die Emission der QP-Exzitonlinie näher untersuchen zu können, werden μ EL-Spektren in einem Temperaturbereich von $23,8 \text{ K}$ bis $41,8 \text{ K}$ in $0,2 \text{ K}$ -Schritten bei unveränderter Anregungsbedingung aufgenommen. Abbildung 4.10 (d) zeigt die Messdaten in einer zweidimensionalen Falschfarbendarstellung, bei welcher Bereiche hoher Intensität rot und Bereiche niedriger Intensität blau dargestellt sind (lineare Skalierung). Eine Erhöhung der Temperatur von 24 K auf 40 K führt zu einer Verschiebung der X^- -Emission über die spektrale Resonanz mit der Resonatormode C (gestrichelte Linie) hinweg. Dabei ist bis zum Erreichen der Resonanz zunächst ein starker Anstieg und anschließend wieder eine Abnahme der Emissionsintensität zu beobachten. Bemerkenswert ist dabei zum einen der geringe Hintergrundbeitrag der optischen Mode C zur μ EL-Intensität, wodurch diese vor allem bei niedrigen Temperaturen kaum zur erkennen ist. Darüberhinaus sind auf der hochenergetischen Seite der X^- -Linie zwei weitere, sehr emissionsschwache QP-Emissionslinien zu erkennen, welche zwar ebenfalls durch die Resonanz mit der optischen

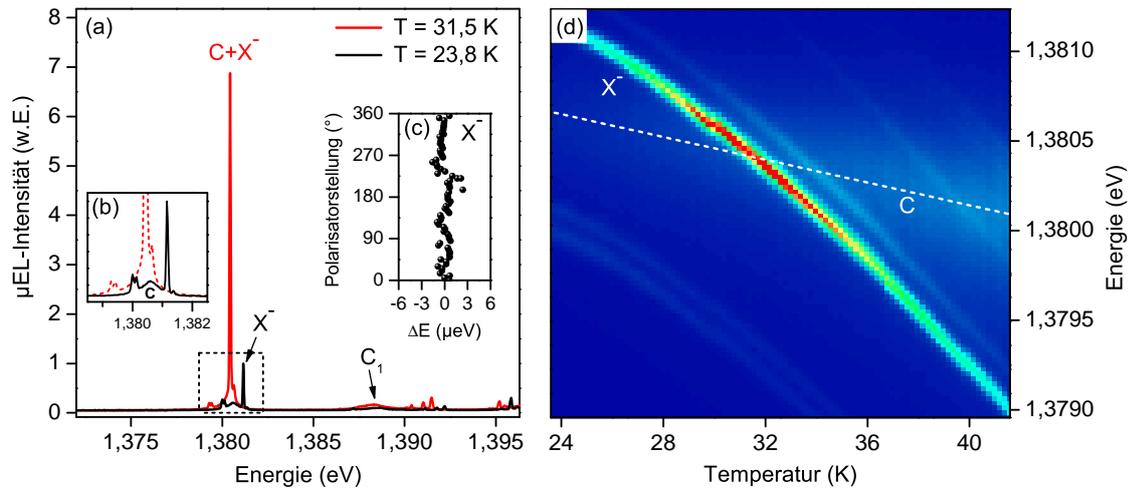


Abbildung 4.10: (a) μ EL-Spektren eines Mikroresonators mit einem Durchmesser von $2,0 \mu\text{m}$ unter gepulst-elektrischer Anregung ($f = 220 \text{ MHz}$). Bei $T = 23,8 \text{ K}$ ist eine einzelne QP-Exzitonlinie (X^-) sowie, auf deren niederenergetischen Seite, die sehr emissionschwache fundamentale optische Mode (C) des Mikroresonators zu identifizieren. Durch eine Erhöhung der Temperatur auf $31,5 \text{ K}$ wird die X^- -Linie in spektrale Resonanz mit der optischen Mode C gebracht, wobei eine starke Überhöhung der Emissionsintensität aufgrund des Purcell-Effektes zu beobachten ist. (b) Zweidimensionale Falschfarbendarstellung von μ EL-Spektren des Mikroresonators aus (a) für einen größeren Temperaturbereich. Bei einer Temperaturerhöhung von 24 K auf 40 K wird die X^- -Linie durch die spektrale Resonanz mit der optischen Mode C verstimmt. Eine starke Intensitätsüberhöhung durch den Purcell-Effekt kann hier nur für diese QP-Exzitonlinie beobachtet werden, was auf eine laterale Lage des QPes nahe des Zentrums des Mikroresonators hindeutet.

Mode verschoben werden, jedoch keine Überhöhung ihrer Intensität zeigen. Dies ist ein Hinweis darauf, dass diese beiden QP-Exzitonlinien von QPen stammen, welche im Gegensatz zu dem der X^- -Linie, eine radial weiter vom Zentrum des Mikroresonators entfernte laterale Position besitzen und daher schwächer mit dem zentralsymmetrischen elektromagnetischen Feld der fundamentalen optischen Mode wechselwirken [Kis09].

Einen direkten experimentellen Zugang zum Purcell-Effekt ermöglichen zeitaufgelöste μ EL-Messungen (vgl. Abschnitt 3.2). Diese geben darüber hinaus auch Aufschluss darüber, in wie weit die hier untersuchten Bauteile für die Injektion kurzer, elektrischer Pulse bei hohen Anregungsfrequenzen geeignet sind. Abbildung 4.11 (a) zeigt das zeitaufgelöste μ EL-Signal des resonant gekoppelten QP-Mikroresonatorsystems ($T = 31,5 \text{ K}$) unter gepulst-elektrischer Anregung bei 220 MHz , wobei die Anregungsbedingungen gegenüber den in Abbildung 4.10 vorgestellten Daten unverändert blieben. Zu beobachten ist eine periodische Abfolge schmaler Pulse mit einem mittleren, der Anregungs-Repetitionsrate entsprechenden Abstand von $4,5 \text{ ns}$. Aus der Anpassung eines exponen-

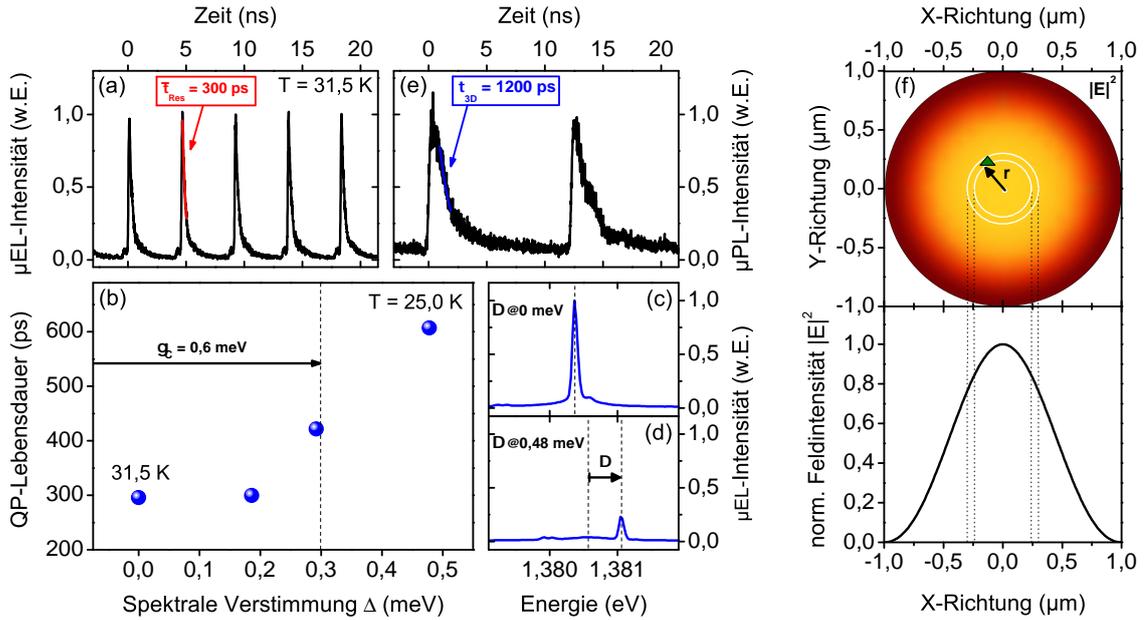


Abbildung 4.11: (a) Zeitaufgelöste μEL -Messung des resonant gekoppelten QP-Mikroresonatorsystems aus Abbildung 4.10 unter gepulst-elektrischer Anregung bei 220 MHz. Der beobachtete Pulszug zeigt eine gemittelte Lebensdauer des X^- -Zustandes von $\bar{\tau}_{Res} = 300$ ps. (b) Lebensdauer des X^- -Zustandes in Abhängigkeit der spektralen Verstimmung Δ gegenüber der Resonatorgrundmode. (c) und (d) μEL -Spektren zu den Messpunkten aus (b) bei einer Temperatur von 31,5 K und 25,0 K. (e) Zeitaufgelöste μPL -Messung an dem QP-Ensemble eines planaren Probenstückes, bei welchem der obere DBR entfernt wurde. Die QPe besitzen im Volumenhalbleiter eine Lebensdauer τ_{3D} von 1200 ps. Aus dem Verhältnis der gemessenen Lebensdauern aus (a) und (e) ergibt sich ein Purcell-Faktor von $F_P = 4,0$. (f) Zum Einfluss der lateralen Position eines QPes relativ zum Feldmaximum der Resonatorgrundmode: Dargestellt ist die normierter Intensitätsverteilung $|E|^2$ der optischen Mode in der QP-Ebene, entlang einer lateralen Achse (unten) sowie als zweidimensionale Konturdarstellung (oben) in linearer Skalierung.

tiellen Zerfalls an die abfallenden Flanken der Pulse ist eine mittlere Zeitkonstante von $\bar{\tau}_{Res} = (300 \pm 10)$ ps zu extrahieren. Die beobachtete strahlende Lebensdauer des gekoppelten QP-Mikroresonatorsystems liegt damit nahe der Auflösungsgrenze, welche durch die zeitlichen Breite der anregenden elektrischen Pulse gegeben ist ($\Delta t \approx 200$ ps). Durch diese schnelle optische Antwort des Bauteils erscheint ein Hochfrequenz-Betrieb bis in den GHz-Bereich als durchaus möglich [Loc09, Rei10a]. Anzumerken ist, dass eine Modulation der QP-Emission auf kurzen Zeitskalen auch ohne einen Purcell-Effekt, zum Beispiel durch eine Reduzierung des DC-Offsets der elektrischen Pulse deutlich unterhalb des Flachbandfalles [Ben05a, Ben08], möglich ist. In diesen Arbeiten werden die mittels elektrischer Pulse in einen QP injizierten Ladungsträger durch Tunnelprozesse wieder rasch aus dem QP-Potential abgezogen, wodurch die strahlende Lebensdauer des QP-Zustandes künstlich

verkürzt wird. In der Arbeit von Hargart et al. [Har13] wurde hierdurch die mit 2 GHz bisher höchste Anregungs-Repetitionsrate einer elektrisch betriebenen QP-EPQ realisiert. Die hohe Modulationsfrequenz geht bei dieser Methode jedoch zu lasten der Emissionsrate. Das Erzielen höchster Anregungs-Repetitionsraten bei gleichzeitig hohen Emissionsraten der einzelnen Photonen könnte daher durch eine Kombination der elektrisch betriebenen QP-Mikroresonatoren mit komplexeren Pulsformen erreicht werden.

Gegenüber dem in Abbildung 4.11 (a) betrachteten Resonanzfall ist bei einer endlichen spektralen Verstimmung Δ zwischen QP-Exzitonlinie und Resonatormode die optische Zustandsdichte für den Emitter entsprechend geringer, wodurch auch der Purcell-Effekt nach Gleichung 2.9 schwächer ausfällt. Um dies zu verifizieren, wurde die QP-Lebensdauer für Temperaturen $T < T_{\text{Res}}$ mittels zeitaufgelöster μEL -Messungen bestimmt. Abbildung 4.11 (b) zeigt die gemessene Lebensdauer $\bar{\tau}_{\text{QP}}$ des X^- -Zustandes aufgetragen über Δ : Ausgehend von $\bar{\tau}_{\text{QP}} = 300$ ps im Resonanzfall ($\Delta = 0$ meV, vgl. Abb. 4.11 (c)) ist bei einer leicht positiven spektralen Verstimmung von 0,2 meV zunächst keine merkliche Änderung der QP-Lebensdauer zu beobachten. Mit weiter anwachsendem Δ nimmt $\bar{\tau}_{\text{QP}}$ über 420 ps bei $\Delta = 0,29$ meV bis auf einen Wert von 620 ps bei maximaler spektraler Verstimmung zu ($\Delta = 0,48$ meV, vgl. Spektrum in Abb. 4.11 (e)). Berücksichtigt man den Q -Faktor der Resonatormode ($Q = 2300$), der einer spektralen Breite von $\gamma_{\text{C}} = 0,6$ meV entspricht, so ist wie zu erwarten eine signifikante Änderung der QP-Lebensdauer ab $\Delta \approx \gamma_{\text{C}}/2$ zu beobachten. Ab diesem Wert verschiebt der X^- -Zustand zunehmend in das Stoppband der DBRs, wodurch die optische Zustandsdichte abnimmt und einen reduzierten Purcell-Faktor zur Folge hat. Eine Bestimmung der QP-Lebensdauer für noch größere Δ ist aufgrund der rasch abnehmenden Intensität der X^- -Linie nicht bei praktikablen Integrationszeiten zu bewerkstelligen, zumal diese zeitaufgelösten Messungen notwendigerweise mit zeitlich hochauflösenden APDs mit einer niedrigen Quanteneffizienz durchgeführt wurden (vgl. Abschnitt 3.2).

Um den Purcell-Faktor zu bestimmen, muss die Lebensdauer $\bar{\tau}_{\text{Res}}$ in Relation zu der Lebensdauer $\tau_{3\text{D}}$ der QPe im Volumenhalbleiter gesetzt werden (siehe Abschnitt 2.2.1). Hierfür wurde an einem planaren Probenstück desselben Wafers der obere DBR mittels reaktivem Ionenätzen entfernt und die strahlende Lebensdauer des QP-Ensembles unter optischer Anregung mit einem gepulsten Ti:Sa-Laser bestimmt (siehe Abbildung 4.11 (e)). Bei der relevanten Emissionswellenlänge (898 nm) beträgt die QP-Lebensdauer $\tau_{3\text{D}} = (1200 \pm 50)$ ps, womit sich der Purcell-Faktor wie folgt ergibt:

$$F_{\text{P}} = \frac{\bar{\tau}_{3\text{D}}}{\tau_{\text{Res}}} = 4,0 \pm 0,2 . \quad (4.6)$$

Damit liegt der beobachtete Purcell-Faktor nahe dem maximal zu erwartenden Wert von

$F_{\text{P}}^{\text{max}} = 5$, welcher nach Gleichung 2.10 aus dem gemessenen Q -Faktor sowie den Parametern V_{M} , λ_{C} und n des Mikroresonators zu berechnen ist. Der bisher höchste, bei elektrisch betriebene EPQn im Experiment realisierte Purcell-Faktor wurde von Ellis et al. mit $F_{\text{P}} = 2,8$ für QP-Leuchtdioden mit Oxidaperturen berichtet [Ell08]. In elektrisch betriebenen Mikroresonatoren - ähnlich den in dieser Arbeit untersuchten - wurde bei einem Resonatordurchmesser von $2,5 \mu\text{m}$ ein Purcell-Faktor 10 beobachtet [Böc08], wenn auch ohne einen Nachweis der Einzelphotonen-Emission.

Die Abweichung des experimentell bestimmten Purcell-Faktors von dem zu erwartenden Wert $F_{\text{P}}^{\text{max}} = 5$ ist durch eine Abweichung der lateralen Position r des untersuchten QPes vom Zentrum des Mikroresonators zu erklären. Um dies quantitativ zu erfassen, kann die Verteilung der transversalen, elektrischen Feldstärke $E(r)$ der Resonatorgrundmode in der QP-Schicht ($r \leq r_{\text{C}}$) näherungsweise als proportional der Bessel-Funktion $J_{\nu}(qr)$ nullter Ordnung ($\nu = 0$) angenommen werden [Riv99], wobei die Randbedingung $J_0(r_{\text{C}}) = 0$ verwendet wird¹. Die normierte Intensitätsverteilung ergibt sich folglich proportional dem Betragsquadrat der Feldstärke: $|E(r)|^2 \propto |J_0(qr)|^2$. Abbildung 4.11 (f) zeigt die so berechnete Intensitätsverteilung $|E(r)|^2$ der Resonatorgrundmode entlang einer lateralen Achse (untere Abbildung) sowie als zweidimensionale Konturdarstellung (obere Abbildung) innerhalb der QP-Ebene. Nach Gleichung 2.9 hängt der Purcell-Faktor im Falle spektraler Resonanz ($\Delta = 0$) über $F_{\text{P}}(r) = F_{\text{P}}^{\text{max}} \cdot \frac{|E(r)|^2}{|E_{\text{max}}|^2}$ lediglich von der Position des QPes relativ zum Intensitätsmaximum $|E_{\text{max}}|^2$ ab. Über die Fehlergrenzen des experimentell bestimmten Wertes für $F_{\text{P}}(r)$ aus 4.6 sowie $F_{\text{P}}^{\text{max}} = 5$ ergibt sich für die obere bzw. untere Grenze von $\frac{|E(r)|^2}{|E_{\text{max}}|^2}$ ein Wert von 0,84 bzw. 0,76. Dies entspricht in Abbildung 4.11 (f) einem radialen Abstand des QPes zwischen 240 nm und 300 nm vom Zentrum des Mikroresonators. Diese Unsicherheit bezüglich der räumlichen Position eines QPes innerhalb einer Struktur ist bei der Verwendung von statistisch zufällig wachsenden QPen in gängigen Technologieansätzen unumgänglich. Um so interessanter sind technologische Konzepte zur deterministischen Positionierung von QPen, wie sie von Schneider et al. in [Sch09b] im Falle optisch gepumpter Einzel-QP Mikroresonatoren oder in den Arbeiten [Sch12] und [Unr12] an elektrisch betriebenen Einzel-QP LEDs berichtet wurden. Gerade die andauernden Fortschritte bei der Herstellung räumlich, deterministischer QP-Strukturen heben jedoch auch die Notwendigkeit hervor, die spektrale Lage einzelner QPe in höherem Maße zu kontrollieren. Erste Ansätze, welche In-situ-Methoden mittels optischer Lithographie [Dou08] oder seit kurzem auch Elektronenstrahl-Lithographie [Gsc13] einsetzen sind dies-

¹ Dies entspricht der Bedingung $q = \chi_{0,1}/r_{\text{C}}$, mit der ersten Nullstelle $\chi_{0,1} = 2,40483\dots$ der Bessel-Funktion $J_0(x)$ erster Ordnung.

bezüglich äußerst vielversprechend und vereinen sowohl die räumlich als auch spektral deterministische Herstellung von QP-Mikro- und QP-Nanostrukturen.

4.5 Getriggerte Einzelphotonen-Emission und Effizienz der Mikroresonatoren

Im Folgenden wird die Photonenstatistik der Emission des, im vorangehenden Abschnitt vorgestellten, resonant gekoppelten QP-Mikroresonatorsystems mittels Photonen-Autokorrelationsmessungen untersucht. Die Anregungsbedingungen blieben gegenüber Abbildung 4.10 zunächst unverändert ($U_{\text{DC}} = 1,65 \text{ V}$, $U_{\text{AC}} = 6,0 \text{ V}$, $f = 220 \text{ MHz}$). Abbildung 4.12 (a) zeigt das $g^{(2)}(\tau)$ -Histogramm bei spektraler Resonanz zwischen X⁻-Linie und optischer Mode C ($T = 31,5 \text{ K}$). Die periodische Abfolge von Koinzidenz-Maximas für Zeitdifferenzen $\tau \neq 0$ spiegelt auch hier den gepulsten Charakter der Photonenemission des Mikroresonators wider. Die starke Unterdrückung des Maximums bei $\tau = 0$ zeigt des Weiteren, dass die Wahrscheinlichkeit von Zweiphotonen-Emissionsereignissen gegenüber einer Lichtquelle mit poissonverteilter Photonenstatistik ($g^{(2)}(\tau = 0) = 1$) signifikant reduziert ist - die Emission besitzt nicht-klassischen Charakter. Eine quantitative Analyse¹ der Messdaten ergibt einen $g^{(2)}(0)$ -Wert von $0,13 \pm 0,05$, welcher deutlich unter dem Grenzwert von 0,5 liegt (vgl. Abschnitt 2.3.2). Somit ist demonstriert, dass der resonant gekoppelte QP-Mikroresonator bei einer Anregungs-Repetitionsrate von 220 MHz elektrisch getriggert einzelne Photonen generieren kann. Die Abweichung von dem idealen Wert $g^{(2)}(0) = 0$ ist, wie im Folgenden näher betrachtet wird, teilweise auf einen unkorrelierten Hintergrundbeitrag der fundamentalen optischen Mode zu erklären [Pel02, Str07, Ell08]. Die gemessene Korrelationsfunktion $g_B^{(2)}(0)$ hängt über

$$g_B^{(2)}(0) = 1 - \rho^2(1 - g^{(2)}(0)) \quad (4.7)$$

mit dem idealen $g^{(2)}(0)$ zusammen, wobei $\rho = \frac{S}{S+B}$ das Verhältnis aus reinem Signal S und dem durch den Hintergrund B maskierten Signal $S + B$ bezeichnet [Bec01, Bro00]. Aus der Analyse des μEL -Spektrums im Resonanzfall aus Abbildung 4.10 (a) ergibt sich $\rho = 0,97$. Unter der Annahme $g^{(2)}(0) = 0$ führt dies zu einem, rein durch den unkorrelierten Hintergrund verrauchten, Wert von $g_B^{(2)}(0) = 0,06$. Die verbleibende Diskrepanz zum idealen $g^{(2)}(0)$ -Wert ist durch erneute Anregung des QP-Zustandes innerhalb eines Anre-

1 Die Fläche A_0 des Peaks bei $\tau = 0$ und der Mittelwert \bar{A} der Flächen der Peaks bei $\tau \neq 0$ wurden durch die Anpassung von Lorentzprofilen bestimmt und das *Antibunching* über $g^{(2)}(0) = A_0/\bar{A}$ berechnet [Far08, Rei10a].

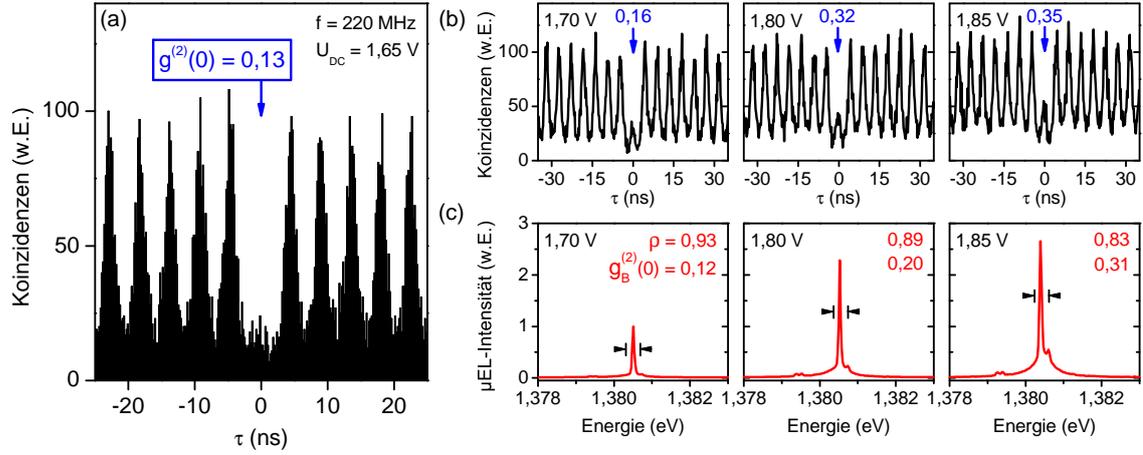


Abbildung 4.12: Messungen zur Photonstatistik der resonant an die Grundmode des Mikroresonators gekoppelten X^- -Emission aus Abbildung 4.10 ($T = 31,5$ K): (a) Bei einer Anregungs-Repetitionsrate von 220 MHz ist elektrisch getriggerte Einzelphotonenemission mit $g^{(2)}(0) = 0,13 \pm 0,05 < 0,5$ zu beobachten. (b) Mit zunehmendem Gleichspannungsanteil U_{DC} der elektrischen Pulse bleibt der Einzelphotonen-Charakter der Emission erhalten $g^{(2)}(0) < 0,5$, der $g^{(2)}(0)$ -Wert nimmt jedoch aufgrund einer anwachsenden Hintergrundemission zu. Dies ist in Abbildung (c) anhand der korrespondierenden μ EL-Spektren zu beobachten. Aus den ermittelten Parametern ρ lässt sich der zu erwartende Wert für $g_B^{(2)}(0)$ bestimmen (siehe Diskussion im Text).

gungspulses und den damit verbundenen Zweiphotonen-Emissionsereignissen zu erklären.

Um den Einfluss der Anregungsstärke auf die Emission des QP-Mikroresonatorsystems zu analysieren, wird im Folgenden der Parameter U_{DC} systematisch variiert. Dabei soll zunächst der Einfluss auf den $g^{(2)}(0)$ -Wert betrachtet werden. Ausgehend von dem Wert $U_{DC} = 1,65$ V in Abbildung 4.12 (a) wurde der Gleichspannungsanteil der elektrischen Pulse in Abbildung 4.12 (b) von 1,70 V bis auf 1,85 V gesteigert. Die Histogramme der Photonen-Autokorrelationsmessungen zeigen auch mit zunehmendem DC-Offset ein starkes Antibunching sowie den gepulsten Charakter der Emission. Die zunehmende Emissionsrate mit wachsendem U_{DC} ist durch einen Anstieg der Ladungsträgeranzahl in der aktiven Schicht zu erklären, wodurch auch die Rate, mit der Elektron-Loch-Paare von dem QP-Potential eingefangen werden, zunimmt (vgl. quantitative Analyse in Abbildung 4.13). Der beobachtete $g^{(2)}(0)$ -Wert nimmt von 0,16 bis auf einen Wert von 0,35 zu. Dieses Verhalten kann anhand der korrespondierenden μ EL-Spektren des Mikroresonators verstanden werden (siehe Abbildung 4.12 (c)): Zum einen nimmt mit steigendem U_{DC} die Emissionsrate des X^- -Zustandes erheblich zu, zum anderen wächst jedoch auch der spektrale Hintergrund der Resonatorgrundmode C an. Letzteres ist auf eine Kopplung der Emission weiterer, spektral nichtresonanter QPe zurückzuführen [Hen07, Pre07, Ate09].

Diese Überlagerung der Emission vieler unkorrelierter Emittierer resultiert in einem Hintergrundbeitrag B , welcher Poisson-Charakter¹ aufweist ($g^{(2)}(0) = 1$) und so - wie bereits weiter oben erläutert - den $g^{(2)}(0)$ -Wert des X^- -Zustandes verwäscht (vgl. 4.7). Die aus den Spektren extrahierten Werte für den Anteil ρ der Emission des X^- -Zustandes an der Gesamtemission sind in Abbildung 4.12 (c) zusammen mit den zu erwartenden $g_B^{(2)}(0)$ -Werten notiert. Es ergibt sich eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen $g^{(2)}(0)$ -Werten, wobei die verbleibende Diskrepanz durch Mehrfachanregungen innerhalb eines elektrischen Pulses zu erklären ist.

Insbesondere für die Anwendung einer EPQ in der Quantenkryptographie ist die erzielbare Einzelphotonen-Emissionsrate \dot{n}_{EPQ} sowie die Bauteileffizienz η_{EPQ} von großer Bedeutung. Um diese Kenngrößen experimentell bestimmen zu können, wurde eine Kalibrierung der Messanordnung, wie in Abschnitt 3.3 beschrieben, durchgeführt. Diese erlaubt es, von den gemessenen Detektionsraten der APDs \dot{n}_{APD} auf die tatsächlich von dem Bauteil in das Mikroskopobjektiv emittierte Photonenerate \dot{n} zurück zu rechnen. Aufgrund des endlichen $g^{(2)}(0)$ -Wertes muss mit dem Faktor $\dot{n}_{\text{EPQ}} = \dot{n} \cdot \sqrt{1 - g^{(2)}(0)}$ bezüglich Mehrphotonen-Emissionsereignissen korrigiert werden [Pel02], sodass die erzielte Einzelphotonen-Emissionsrate \dot{n}_{EPQ} wie folgt zu berechnen ist:

$$\dot{n}_{\text{EPQ}} = \dot{n} \cdot \sqrt{1 - g^{(2)}(0)} = \frac{\dot{n}_{\text{APD}}}{\eta_{\text{Setup}}} \cdot \sqrt{1 - g^{(2)}(0)} . \quad (4.8)$$

Für die in Abbildung 4.12 (a) gezeigte Messung ($U_{\text{DC}} = 1,65 \text{ V}$) ergibt sich so eine Einzelphotonen-Emissionsrate von $\dot{n}_{\text{EPQ}} = 8,5 \text{ MHz}$. Wie bereits in Abbildung 4.12 (c) beobachtet, kann die Emissionsrate durch eine Erhöhung des Gleichspannungsanteils gesteigert werden. Abbildung 4.13 (a) und (b) zeigt die aus den Detektionsraten der APDs berechneten Werte für die in das Mikroskopobjektiv emittierte Photonenerate \dot{n} , die korrigierte Einzelphotonen-Emissionsrate \dot{n}_{EPQ} sowie die korrespondierenden $g^{(2)}(0)$ -Werte² in Abhängigkeit des Gleichspannungsanteils U_{DC} ($U_{\text{AC}} = 6,0 \text{ V}$ und $f = 220 \text{ MHz}$). Bei einer Erhöhung des Parameters U_{DC} von $1,65 \text{ V}$ auf $2,00 \text{ V}$ steigt die Einzelphotonen-Emissionsrate kontinuierlich von $8,5 \text{ MHz}$ auf $43,3 \text{ MHz}$ an. Bei einer weiteren Steigerung des Gleichspannungsanteils auf $U_{\text{DC}} = 2,10 \text{ V}$ ist schließlich eine Stagnation von \dot{n}_{EPQ} bis zu einer maximalen Rate von $47,9 \text{ MHz}$ zu beobachten. Diese ist auf die Sättigung der X^- -Emission zurückzuführen, welche auftritt sobald die Pumprate eines QP-Zustandes

1 Dies wurde experimentell durch eine $g^{(2)}(\tau)$ -Messung an der Resonatorgrundmode bei großer spektraler Verstimmung zur Emission des X^- -Zustandes verifiziert.

2 Bei den $g^{(2)}(\tau)$ -Messungen betragen die addierten Detektionsraten \dot{n}_{APD} je nach U_{DC} zwischen $1,9 \cdot 10^4 \text{ Hz}$ und $1,5 \cdot 10^5 \text{ Hz}$ und die Integrationszeiten zwischen $1,5 \text{ h}$ und 7 min .

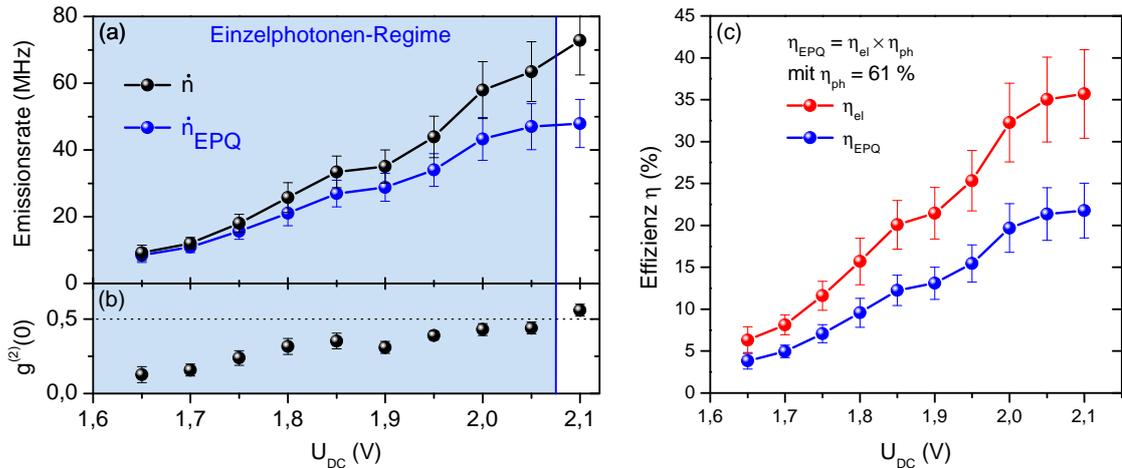


Abbildung 4.13: Betrachtungen zur Effizienz des Mikroresonators aus Abbildung 4.10 unter gepulst-elektrischer Anregung bei $f = 220$ MHz: (a) Aus den Detektionsraten extrapolierte Photonen-Emissionsrate \dot{n} des resonant gekoppelten QP-Mikroresonatorsystems sowie die nach Gleichung 4.8 korrigierte Einzelphotonen-Emissionsrate \dot{n}_{EPQ} des X^- -Zustandes in Abhängigkeit des Gleichspannungsanteils U_{DC} . (b) Aus Photonen-Autokorrelationsmessungen extrahierte $g^{(2)}(0)$ -Werte. Einzelphotonenemission charakterisiert durch $g^{(2)}(0) < 0,5$ kann bis $U_{DC} = 2,05$ V nachgewiesen werden. (c) Nach Gleichung 4.9 bestimmte Gesamteffizienz η_{EPQ} und elektrische Injektionseffizienz η_{el} des Mikroresonators für den selben Wertebereich von U_{DC} : Über den DC-Offset kann η_{el} und damit auch die Rate gesteuert werden, mit welcher der QP Elektron-Loch Paare einfängt. Es wird eine Gesamteffizienz von $\eta_{EPQ} = (21,4 \pm 3,1)$ bei $\eta_{el} = 35\%$ erreicht ($U_{DC} = 2,05$ V).

dessen spontane Emissionsrate übersteigt [Gér01, Ben05b, Ell08]. Der $g^{(2)}(0)$ -Wert wächst dagegen über den gesamten Wertebereich von U_{DC} näherungsweise linear von 0,09 auf 0,56 an. Die Zunahme an Zweiphotonen-Emissionsereignissen ist auf den steigenden Beitrag an unkorrelierter Hintergrundemission der Resonatorgrundmode zurückzuführen (vgl. Abbildung 4.12 (b) und (c)). Die höchste Einzelphotonen-Emissionsrate innerhalb des Einzelphotonen-Regimes ($g^{(2)}(0) < 0,5$) wird bei $U_{DC} = 2,05$ V erreicht und beträgt $(47,0 \pm 6,9)$ MHz bei einem $g^{(2)}(0)$ -Wert von $(0,44 \pm 0,04) < 0,5$. Dies ist der höchste bis dato berichtete Wert der Emissionsrate einer elektrisch getriggerten EPQ und liegt signifikant über dem bisherigen Bestwert von 11,2 MHz ($\dot{n}_{EPQ} = \eta_{EPQ} \cdot f = 0,14 \cdot 80$ MHz), welcher von Ellis et al. berichtet wurde [Ell08]. Darüber hinaus liegt der in der vorliegenden Arbeit erzielte Wert nahe dem aktuellen Bestwert getriggert EPQn von 65 MHz ($\dot{n}_{EPQ} = \eta_{EPQ} \cdot f = 0,79 \cdot 82$ MHz), welche von Gazzano et al. an optisch gepumpten deterministisch positionierten QP-Mikrosäulenresonatoren beobachtet wurde [Gaz13].

Über die ermittelten Einzelphotonen-Emissionsraten \dot{n}_{EPQ} kann nun die Effizienz der EPQ abgeschätzt werden. Die Gesamteffizienz η_{EPQ} , welche die Wahrscheinlichkeit angibt, dass ein einzelnes Photon in das Objektiv emittiert wird nachdem ein Spannungspuls inji-

ziert wurde, ist mit der Anregungs-Repetitionsrate f durch $\eta_{\text{EPQ}} = \dot{n}_{\text{EPQ}}/f$ gegeben. Andererseits lässt sich die Gesamteffizienz in einen Anteil der elektrischen Injektionseffizienz η_{el} sowie der Photonen-Auskoppeleffizienz η_{ph} faktorisieren. Letztere wurde bereits in Gleichung 2.13 eingeführt und erläutert (vg. Abschnitt 2.2.2). Zusammengefasst ergibt sich für die Gesamteffizienz einer EPQ demnach:

$$\underbrace{\eta_{\text{EPQ}}}_{\frac{\dot{n}_{\text{EPQ}}}{f}} = \eta_{\text{el}} \cdot \underbrace{\eta_{\text{ph}}}_{\frac{Q}{Q_{2\text{D}}} \cdot \frac{F_{\text{P}}}{F_{\text{P}}+1}} \quad . \quad (4.9)$$

Mit den zuvor experimentell bestimmten Werten $Q = 2300$, $F_{\text{P}} = 4$ und dem Wert $Q_{2\text{D}} = 3000$, welcher über Reflexionsmessungen bestimmt wurde, ergibt sich für den betrachteten Mikroresonator eine Photonen-Auskoppeleffizienz von $\eta_{\text{ph}} = 61\%$. Dieser Wert liegt nahe an dem von Barnes et al. [Bar02], für den damaligen Stand der Technologie zylindrischer Fabry-Pérot Mikrosäulenresonatoren vorausgesagten, maximal möglichen Wert von 70%. Der zur Zeit höchste erzielte Wert der Photonen-Auskoppeleffizienz liegt bei $(79 \pm 8)\%$ unter optischer Anregung und wurde kürzlich von Gazzano et al. an deterministisch positionierte QPe in Mikrosäulenresonatoren beobachtet [Gaz13]. Große Fortschritte bezüglich der Photonen-Auskoppeleffizienz wurden in den letzten Jahren auch bei optisch gepumpten QPen welche in speziell geformte Nanodrähte integriert sind erreicht. So berichteten Claudon et al. einen Wert von $\eta_{\text{ph}} = (72 \pm 9)\%$ für eine optisch gepumpte Einzelphotonenquelle basierend auf konisch verjüngten Nanodrähten [Cla10]. Eine elektrische Kontaktierung und damit auch ein elektrischer Betrieb solcher Strukturen bleibt aufgrund der Geometrie und den geringen lateralen Abmessungen bis jetzt jedoch eine große Herausforderung. Kürzlich veröffentlichten Munsch et al. eine alternative Geometrie von Nanodrähten, *photonische Trompeten* genannt, mit Photonen-Auskoppeleffizienzen von $\eta_{\text{ph}} = (75 \pm 10)\%$ [Mun13]. Diese zeigen, aufgrund der sich in Wachstumsrichtung aufweitenden oberen Facette des Nanodrahtes, günstigere Voraussetzungen für eine zukünftige elektrische Kontaktierung [Gre13].

Abbildung 4.13 (c) zeigt die nach Gleichung 4.9 aus den Einzelphotonen-Emissionsraten in (a) berechneten Werte der Gesamteffizienz η_{EPQ} sowie der elektrischen Injektionseffizienz η_{el} des untersuchten Mikroresonators ($d_{\text{C}} = 2,0 \mu\text{m}$) in Abhängigkeit des Gleichspannungsanteils U_{DC} . Die Gesamteffizienz der EPQ nimmt ausgehend von einem Wert von 3,8% bei $U_{\text{DC}} = 1,65 \text{ V}$ kontinuierlich zu und erreicht innerhalb des Einzelphotonen-Regimes bei $U_{\text{DC}} = 2,05 \text{ V}$ einen Maximalwert von

$$\eta_{\text{EPQ}}(2,0 \mu\text{m}) = \frac{\dot{n}_{\text{EPQ}}}{f} = (21,4 \pm 3,1)\% \quad . \quad (4.10)$$

Die elektrische Injektionseffizienz η_{el} wächst dementsprechend von 6,3 % bei $U_{DC} = 1,65$ V auf einen Wert von $\eta_{el} = 35$ % an. Für höhere Werte von U_{DC} stagniert sowohl η_{el} als auch η_{EPQ} aufgrund der Sättigung der Emission des X^- -Zustandes (vgl. Abbildung 4.13 (a)).

Diese Betrachtungen zeigen, dass für die Gesamteffizienz der betrachteten EPQ die elektrischen Verluste auf der Strecke von Pulsgenerator zu QP von großer Bedeutung sind. Hierfür verantwortlich sind neben den Verlusten in den DBRs sowie der Impedanzanpassung insbesondere auch Ladungsträgerverluste durch nichtstrahlende Rekombination von Elektron-Loch-Paaren an den Seitenwänden des Mikroresonators [Eng07, Rei08b]. Mit zunehmendem Durchmesser d_C ist jedoch ein verringerter Einfluss dieses Verlustkanals auf η_{el} zu erwarten, weshalb im Folgenden ein Mikroresonator mit einem größeren Durchmesser untersucht wird.

Abbildung 4.14 zeigt temperaturabhängige μ EL-Spektren eines Mikroresonators mit einem Durchmesser von $3,0$ μm . Die gepulst-elektrische Anregung erfolgte zunächst bei einer Anregungs-Repetitionsrate von 66 MHz, wobei das beste Signal-zu-Hintergrund Verhältnis bei $U_{DC} = 1,38$ V, $U_{AC} = 3,6$ V sowie $\Delta t_{Pulse} = 200$ ps erreicht wurde. Im μ EL-Spektrum bei $T = 50$ K ist bei $1,3792$ eV die Emission eines Trion-Zustandes (X^-) zu beobachten (vgl. Abbildung 4.14 (a)), welche spektral bereits teilweise mit der Resonatorgrundmode ($E_C = 1,3789$ eV, $Q = 2100$) überlappt. Oberhalb von $1,3825$ eV folgen die höheren optischen Moden. Durch eine Temperaturerhöhung auf $T = 56$ K kann auch hier die X^- -Linie in Resonanz mit der optischen Mode C gebracht werden, wobei eine Überhöhung der Emissionsintensität aufgrund des Purcell-Effektes zu beobachten ist (vgl. Abbildung 4.14 (a) und (b)). Gegenüber der EPQ des vorhergehenden Abschnittes mit $d_C = 2,0$ μm ist trotz der niedrigeren Anregung eine merkliche Zunahme des spektralen Beitrages der Grundmode sowie der höheren Moden zu verzeichnen (vgl. hierzu Abb. 4.10 (a)). Aufgrund des größeren Resonatordurchmessers tragen mehr QPe zur Emission bei, wodurch auch die nichtresonanten Beiträge der optischen Moden zunehmen. Dies spiegelt sich in einem moderaten $g^{(2)}(0)$ -Wert von $0,40$ wider (nicht abgebildet), welcher an dem resonant gekoppelten QP-Mikroresonatorsystem aus Abbildung 4.14 (a) beobachtet wurde.

Um höhere Emissionsraten zu erzielen, wurde in spektraler Resonanz ($T = 56$ K) die Anregungs-Repetitionsrate auf 102 MHz gesteigert ($U_{DC} = 1,45$ V, $U_{AC} = 4,2$ V, $\Delta t_{Pulse} = 200$ ps). Abbildung 4.15 (a) und (b) zeigt das μ EL-Spektrum sowie die zugehörige Photonen-Autokorrelationsmessung: Mit $g^{(2)}(0) = 0,44 \pm 0,02 < 0,5$ konnte auch bei diesen Anregungsbedingungen Einzelphotonenemission nachgewiesen werden. Die gegenüber der Messung bei 66 MHz etwas stärkere Anregung des Mikroresonators resultiert dabei in einem leicht höheren $g^{(2)}(0)$ -Wert. Aus der Anpassung zweier Lorentzprofile für QP-Exzitonlinie

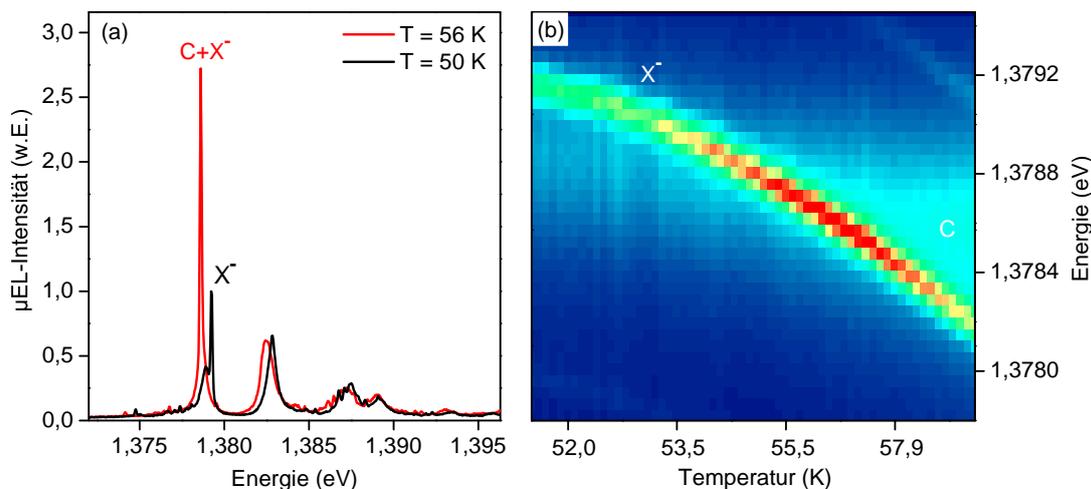


Abbildung 4.14: (a) μ EL-Spektren eines Mikroresonators mit einem Durchmesser von $3,0 \mu\text{m}$ unter gepulst-elektrischer Anregung ($f = 66 \text{ MHz}$). Bei $T = 50 \text{ K}$ ist eine einzelne QP-Exzitonzlinie (X^-) sowie, auf deren niederenergetischen Seite, die sehr emissionschwache fundamentale optische Mode (C) des Mikroresonators zu identifizieren. Durch eine Erhöhung der Temperatur auf 56 K wird die X^- -Linie in spektrale Resonanz mit der optischen Mode C gebracht, wobei eine Überhöhung der Emissionsintensität aufgrund des Purcell-Effektes zu beobachten ist. (b) Zweidimensionale Falschfarbendarstellung von μ EL-Spektren des Mikroresonators aus (a) für einen größeren Temperaturbereich. Bei einer Temperaturerhöhung von 52 K auf 60 K wird die X^- -Linie durch die spektrale Resonanz mit der optischen Mode C verstimmt.

und Resonatorgrundmode an das Spektrum ($\rho = 0,86$) ist nach Gleichung 4.7 auf einen Hintergrundbeitrag der optischen Mode von $g_B^{(2)}(0) = 0,26$ zu schließen. Die erzielte Einzelphotonen-Emissionsrate ergibt sich, analog zu der oben diskutierten EPQ, aus den gemessenen Detektionsraten sowie dem $g^{(2)}(0)$ -Wert zu $\dot{n}_{\text{EPQ}} = (35 \pm 7) \text{ MHz}$. Für die Gesamteffizienz η_{EPQ} folgt daraus:

$$\eta_{\text{EPQ}}(3,0 \mu\text{m}) = \frac{\dot{n}_{\text{EPQ}}}{f} = (34 \pm 7) \% . \quad (4.11)$$

Des Weiteren kann mit den Werten $Q = 2100$, $F_P = 2$ und $Q_{2D} = 3000$ für die Photonen-Auskoppeeffizienz (vgl. Gleichung 2.13) dieser EPQ ein Wert von $\eta_{\text{ph}} = 47\%$ extrahiert werden, womit die elektrische Injektionseffizienz zu $\eta_{\text{el}} = 72\%$ abgeschätzt werden kann. Entsprechend der Erwartung ist also, aufgrund des geringeren Einflusses der nichtstrahlenden Rekombination an den Resonatorseitenwänden, eine Verringerung der elektrischen Verluste mit zunehmendem Resonatordurchmesser zu beobachten (vgl. $\eta_{\text{el}} = 35\%$ bei $d_C = 2,0 \mu\text{m}$). Für diese EPQ kann daher trotz der niedrigeren Photonen-Auskoppeeffizienz eine höhere Gesamteffizienz erzielt werden.

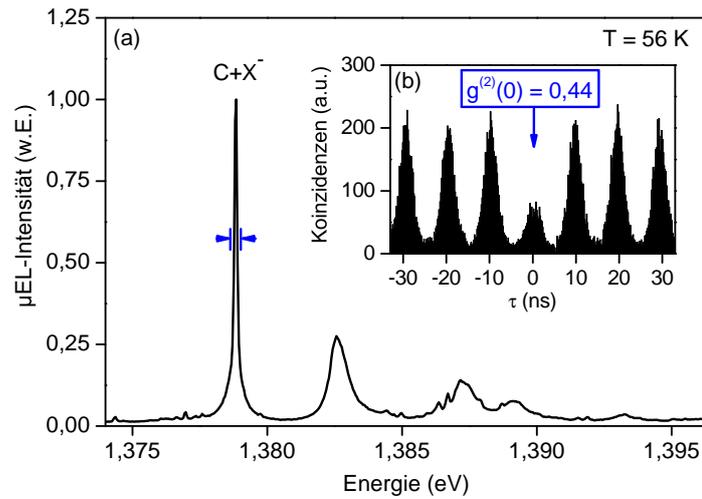


Abbildung 4.15: (a) μ EL-Spektrum des Mikroresonators aus Abbildung 4.14 ($d_C = 3,0 \mu\text{m}$) unter gepulst-elektrischer Anregung bei $f = 102 \text{ MHz}$. Bei $T = 56 \text{ K}$ ist eine einzelne QP-Exzitonlinie (X^-) in spektraler Resonanz mit der optischen Mode C. (b) Photonen-Autokorrelationsmessung des EPQ-Signals aus (a): Der $g^{(2)}(0)$ -Wert von $0,44 < 0,5$ weist die Emission einzelner Photonen nach.

4.6 Zusammenfassung des Kapitels

In diesem Kapitel wurden experimentelle Untersuchungen an effizienten, elektrisch betriebenen Quantenpunkt-Einzelphotonenquellen vorgestellt. Basierend auf einem optimierten Design der eingesetzten zylindrischen Fabry-Pérot Mikrosäulenresonatoren konnten sowohl bezüglich der Emissionsrate der einzelnen Photonen als auch der Gesamteffizienz der Bauteile Ergebnisse erzielt werden, welche den aktuellen Stand der Technologie widergeben.

Anhand von Simulationsrechnungen auf Basis der Maxwell-Gleichungen mittels der Methode der finiten Elemente wurde zunächst die Photonen-Auskoppeleffizienz η_{ph} der Mikroresonatoren untersucht. Dabei wurde deutlich, dass η_{ph} durch die Wahl des Resonatordurchmessers maximiert werden kann. Der optimale Arbeitsbereich konnte experimentell bei Resonatordurchmessern im Bereich um $2 \mu\text{m}$ lokalisiert werden. Quantenpunkt-Zustände, welche über die Proben temperatur gezielt in spektrale Resonanz mit der optischen Mode der Mikroresonatoren verstimmt wurden, fungierten im Folgenden als effiziente Einzelphotonen-Emitter. Anhand von Photonen-Autokorrelationsmessungen zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ wurde sowohl unter kontinuierlicher- als auch gepulst-elektrischer Anregung Einzelphotonen-Emission ($g^{(2)}(0) < 0,5$), mit gemessenen Werten von $g_{\text{CW}}^{(2)}(0) = 0,17$ bzw. $g_{\text{AC}}^{(2)}(0) = 0,14$, nachgewiesen. Unter gepulst-elektrischer Anregung bei einer Anregungs-Repetitionsrate von 220 MHz konnte des Weiteren ein Purcell-Faktor von $F_P = (4,0 \pm 0,2)$

nachgewiesen werden. Der Purcell-Effekt führte zu einer Verkürzung der strahlenden Lebensdauer des Quantenpunkt-Zustandes auf 300 ps, womit ein Hochfrequenz-Betrieb der EPQ bis in den GHz-Bereich möglich sein sollte [Loc09, Rei10a].

Durch den ausgeprägten Purcell-Effekt wurde für Mikroresonatoren mit einem Durchmesser von $2,0 \mu\text{m}$ eine Einzelphotonen-Emissionsrate \dot{n}_{EPQ} von bis zu $(47,0 \pm 6,9)$ MHz bei einer Anregungs-Repetitionsrate von 220 MHz erzielt werden ($g^{(2)}(0) = (0,44 \pm 0,04)$). Dies ist der höchste bis dato berichtete Wert der Emissionsrate einer elektrisch getriggerten EPQ und liegt signifikant über dem bisherigen Bestwert von 11,2 MHz, welcher von Ellis et al. berichtet wurde [Eli08]. Aus der in der vorliegenden Arbeit erzielten Einzelphotonen-Emissionsrate konnte für die EPQ mit einem Durchmesser von $2,0 \mu\text{m}$ eine Gesamteffizienz $\eta_{\text{EPQ}} = \frac{\dot{n}_{\text{EPQ}}}{f}$ von $(21,4 \pm 3,1)$ % abgeschätzt werden.

Bei einem größeren Resonatordurchmesser ($3,0 \mu\text{m}$) wurde, aufgrund geringerer Ladungsträgerverluste durch nicht-strahlende Rekombination an den Resonatorseitenwänden, eine nochmals höhere Gesamteffizienz von (34 ± 7) % beobachtet. Dieser Wert verbessert den bisherigen Bestwert für elektrisch getriggerte Quantenpunkt-EPQn von (14 ± 1) % [Eli08] um mehr als einen Faktor zwei.

5 Korrelierte Photonenpaare elektrisch gepumpter Quantenpunkte

Die Vision eines optischen Quanten-Computers erfordert die Erzeugung und Kontrolle quantenmechanisch verschränkter Photonen [Kni01, Kok07, Lad10]. Benson et al. schlugen im Jahre 2000 erstmals vor, dass auch Halbleiter-Quantenpunkte in der Lage sind über die Biexziton-Exziton- (XX-X-) Kaskade polarisationsverschränkte Photonenpaare zu emittieren [Ben00]. Die erste experimentelle Bestätigung folgte im Jahre 2006 von Akopian et al. [Ako06] und die Fortschritte in jüngster Zeit reichen von dem ersten elektrischen Betrieb einer sogenannten *Entangled-LED* [Sal10] bis zur Teleportation einzelner, photonischer Quanten-Bits [Nil13].

In diesem Kapitel erfolgt auf der Basis innovativer, elektrisch betriebener Einzel-Quantenpunktstrukturen eine Analyse des Zweiphotonen-Zustandes der XX-X-Kaskade mittels Photonen-Kreuzkorrelationsexperimenten. Abschnitt 4.1 beginnt mit einer Vorstellung der Technologie der Einzel-Quantenpunktstrukturen und diskutiert zwei unterschiedliche Ansätze zur räumlichen Selektion der Quantenpunkte. Diese beiden Ansätze werden in Abschnitt 5.2 im Rahmen einführender spektroskopischer Untersuchungen vergleichend gegenübergestellt. In Abschnitt 5.3 wird die Photonen-Kreuzkorrelation der XX-X-Kaskade elektrisch betriebener Quantenpunkte untersucht, bevor in Abschnitt 5.4 anhand polarisationsaufgelöster Korrelationsmessungen eine Quantentomographie des Zweiphotonen-Zustandes erfolgt. Abschnitt 5.5 behandelt anschließend eine Methode zur Manipulation der Feinstrukturaufspaltung mittels thermischen Ausheilens, bevor das Kapitel mit einer Zusammenfassung und Diskussion der Ergebnisse in Abschnitt 5.6 schließt.

5.1 Technologie der Einzelquantenpunkt-Leuchtdioden

5.1.1 Resonatordesign

Der Aufbau der Quantenpunkt-Leuchtdioden (QP-LEDs) ist in Abbildung 5.1 zusammengefasst. Die planare Struktur basiert, im Gegensatz zu dem Design der Einzelphotonenquellen des vorherigen Kapitels, auf einem stark asymmetrischen Mikroresonator

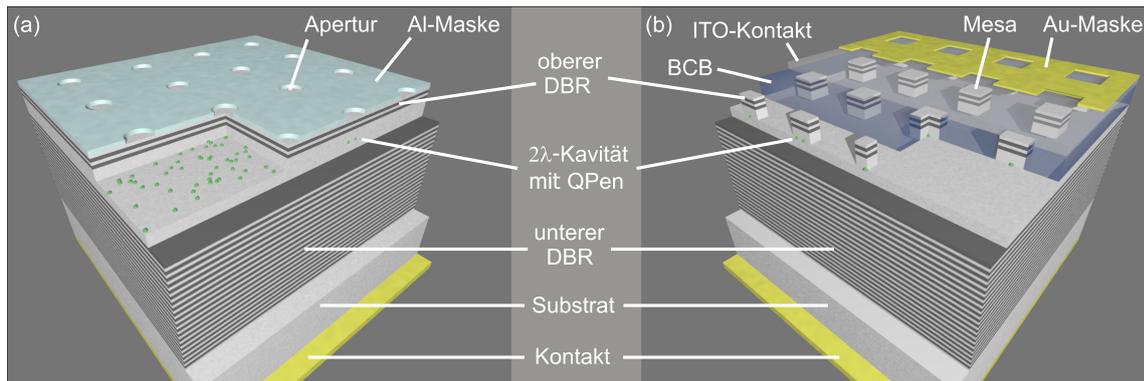


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung der Quantenpunkt-Leuchtdioden (QP-LED) basierend auf einem pin-dotierten, planaren Mikroresonator mit 20 (2) AlAs/GaAs-Schichtpaaren im unteren (oberen) Bragg-Spiegel (DBR) sowie einer 2λ -dicken Kavität mit InAs-QPen als aktive Schicht. Gezeigt sind zwei unterschiedliche Ansätze zur Kontaktierung und räumlichen Selektion der Emission einzelner QPe: in (a) mit einer Lochmaske aus Aluminium und in (b) mit geätzten Mesen. In (b) liegt der obere Kontakt aus transparentem, elektrisch leitfähigem Indiumzinnoxid (ITO) flächig auf den Mesen und dem umgebenden Planarisierer Benzocyclobuten (BCB) auf. Details der Kontaktierung sind Abbildung 5.3 zu entnehmen.

mit geringerem Q -Faktor ($Q \approx 80$): Eine 2λ -dicke, intrinsische GaAs-Kavität ist zwischen einem unteren, n-dotierten DBR mit 20 AlAs/GaAs-Schichtpaaren und einem oberen, p-dotierten DBR mit 2 AlAs/GaAs-Schichtpaaren eingebettet. Als aktives Medium kommt bei den QP-LEDs ebenfalls eine Schicht selbstorganisierter, mittels dem PCA-Verfahren behandelter InAs-QPe zum Einsatz (vgl. hierzu Abschnitt 4.1.2), welche im Zentrum der Kavität platziert ist. Eine REM-Aufnahme der Spaltkante einer solchen, mittels MBE auf n-dotiertem GaAs-Substrat gewachsenen Struktur ist in Abbildung 5.2 (a) gezeigt. Die Wahl dieses Resonatordesigns ist auf die Anwendung der QP-LEDs zugeschnitten, als Emittler „zweifarbiger“, korrelierter Photonenpaare der XX-X-Kaskade zu fungieren. Ein Resonatordesign mit höherem Q -Faktor, wie es bei Einzelphotonenquellen eingesetzt wird, wäre hinderlich für eine simultan effiziente Auskopplung von Photonen signifikant unterschiedlicher Energie [Dou10]. Typische Biexzitonbindungsenergien liegen im Bereich einiger meV (siehe Abschnitt 2.1.3), so dass beispielsweise bei spektraler Resonanz von Exziton-Emission und Resonatorgrundmode ($\Delta E_C \approx 0,7$ meV bei $Q = 2000$) die Emission des Biexziton-Zustandes im Stoppband des Resonators liegen würde. Daher wird bei dem Resonatordesign dieses Kapitels eine breitbandige Auskopplung des Lichtes angestrebt ($\Delta E_C \approx 17$ meV). Ein weiteres Charakteristikum der planaren Struktur ist die verhältnismäßig dicke intrinsische GaAs-Kavität ($H_C = 2\lambda$). Diese unterdrückt durch den großen Abstand zwischen aktiver QP-Schicht und dotierten DBRs die Bildung elektrisch geladener QP-Zustände, welche durch das Tunneln von Elektronen entstehen können

[Sal10], was zu einer verringerten Besetzung der elektrisch neutralen QP-Zustände führen würde.

Das Wachstum der planaren Struktur der QP-LEDs mittels MBE erfolgt analog zu dem der Einzelphotonenquellen, weshalb hierfür auf Abschnitt 4.1.4 verwiesen wird. Die Angaben zu Schichtdicken und Dotierkonzentrationen finden sich in Anhang A.4.

Abbildung 5.2 (b) zeigt das Reflexionsspektrum (rote Kurve) sowie das PL-Spektrum (schwarze Kurve) eines planaren Mikroresonators nach dem MBE-Wachstum. Im Reflexionsspektrum, welches bei Raumtemperatur (RT) aufgenommen wurde, führt die Resonanz der planaren Kavität zu einer verringerten Reflexion von $R = 77\%$ bei einer Wellenlänge von $\lambda_C^{\text{RT}} = 904\text{ nm}$. Auf der langwelligen Seite dieses „Resonator-Dips“ erstreckt sich das Stoppband ($R \approx 98\%$) bis ca. 960 nm , wohingegen auf der kurzwelligen Seite deutlich die Absorption von GaAs zu erkennen ist. Das PL-Spektrum der Struktur bei Tieftemperatur ($T = 10\text{ K}$) zeigt die Emission der Resonatormode bei $\lambda_C^{10\text{K}} = 885\text{ nm}$ mit einer spektralen Breite von $\Delta\lambda_C = 11\text{ nm}$, was einem Q-Faktor von $Q = 80$ entspricht.

5.1.2 Räumliche Selektion und elektrische Kontaktierung

Für Experimente im Einzelemitter-Regime ohne ausgeprägten Resonatoreffekt muss, im Gegensatz zu den Mikroresonatortürmchen in Kapitel 4, eine stärkere Vereinzelung der QPe durch räumliche Selektion erfolgen. Bei QP-Flächendichten im Bereich 10^9 cm^{-2} erfordert dies laterale Strukturgrößen unterhalb von $1\text{ }\mu\text{m}$. Zudem ist für den elektrischen Betrieb eine elektrische Kontaktierung mit hoher Bauteilausbeute erwünscht. Ein Einsatz von Ringkontakten wie in Kapitel 4, welche eine sehr hohe Positioniergenauigkeit während des Herstellungsprozesses erfordern, ist bei derart kleinen Strukturen mit einer geringeren Bauteilausbeute verbunden. Für die elektrische Kontaktierung der Strukturen dieses Kapitels wurden daher zwei alternative Ansätze gewählt, welche im Folgenden vorgestellt werden.

Lochmasken

Bei diesem Ansatz zur räumlichen Selektion wurde eine 100 nm dicke Aluminium- (Al-) Lochmaske auf die Oberseite des unstrukturierten, planaren Mikroresonators aufgebracht in welcher mittels Elektronenstrahlolithographie Aperturen definiert wurden [Gam96]. Der Durchmesser der Aperturen wurde von 100 nm bis 900 nm variiert¹. Der Abstand der Aperturen in lateraler Richtung beträgt $\Delta_{X/Y} = 30\text{ }\mu\text{m}$. Die Al-Lochmaske dient dabei einerseits der räumlichen Selektion des Detektionsbereichs, andererseits als p-Kontakt. Wird

¹ Zur Justage wurden des Weiteren auch Aperturen mit einem Durchmesser von $8\text{ }\mu\text{m}$ eingesetzt.

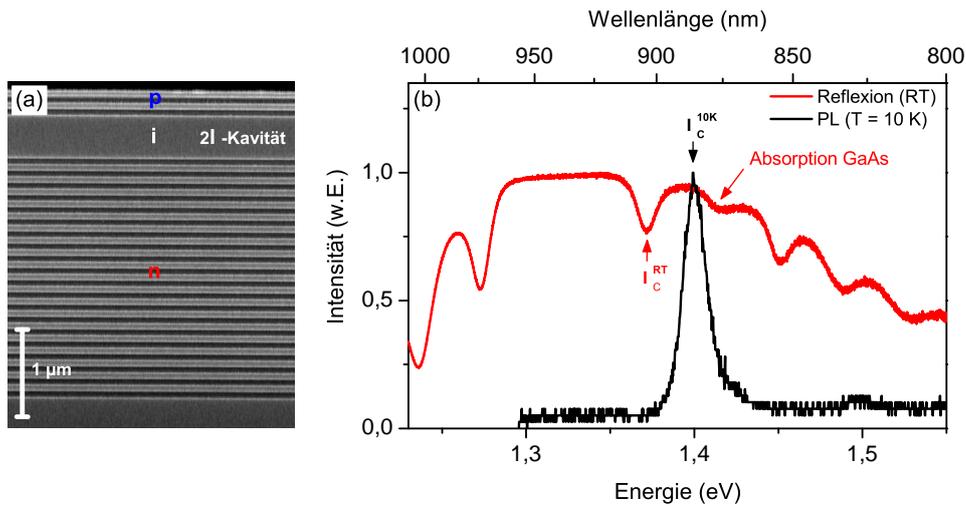


Abbildung 5.2: (a) REM-Aufnahme des planaren Mikroresonators einer Quantenpunkt-Leuchtdiode (QP-LED). (b) Grundcharakterisierung der planaren QP-LED Struktur nach dem MBE-Wachstum: Reflexionsspektrum in rot, gemessen bei Raumtemperatur (RT), sowie Photolumineszenz- (PL-) Spektrum in schwarz bei $T = 10$ K.

eine elektrische Spannung in Durchlassrichtung der pin-Diode an die Struktur angelegt, so werden Ladungsträger in die gesamte aktive Schicht des planaren Probenstückes injiziert. QPe welche geometrisch unterhalb einer Apertur liegen werden dabei durch Diffusion der Ladungsträger in laterale Richtungen erreicht, welche dort strahlend rekombinieren können. Die Aperturen selektieren räumlich aus der Emission der gesamten QP-Schicht die Elektrolumineszenz einer geringeren Anzahl an QPen, welche anschließend durch ein Mikroskopobjektiv detektiert werden kann.

Mesen

Im Rahmen dieser Methode zur räumlichen Selektion der QPe wird, ausgehend von dem planaren Probenstück, der obere DBR sowie die Hälfte der intrinsischen Kavität einschließlich der aktiven Schicht mittels Plasmaätzen entfernt. Lediglich an den zuvor mittels Elektronenstrahlolithographie definierten Stellen, verbleiben sogenannte Mesen¹ als optisch aktive QP-Strukturen mit einer Höhe von etwa 600 nm. Die Prozessschritte verlaufen, abgesehen von einer deutlich geringeren Ätztiefe, weitestgehend analog zu dem technologischen Ansatz bei den Einzelphotonenquellen, weshalb hierfür auf Abschnitt 4.1 verwiesen wird. Die Mesen besitzen eine quadratische Grundfläche mit Kantenlängen zwischen 400 nm und 5 µm bei einem lateralen Abstand von ebenfalls $\Delta_{X/Y} = 30$ µm. Für

¹ Nach dem spanischen Wort *Mesa*, zu deutsch *Tafelberg*.

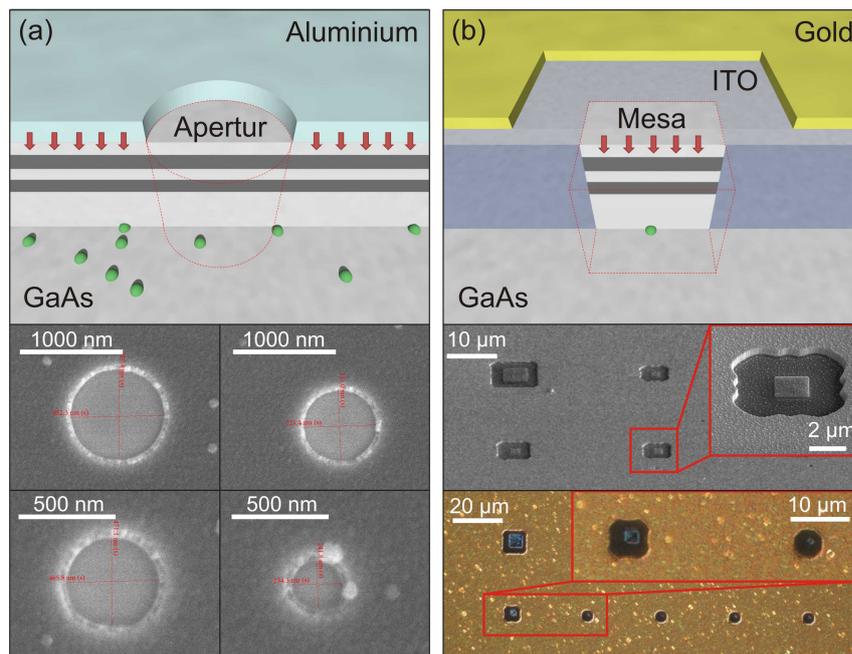


Abbildung 5.3: Detailansicht der eingesetzten Methoden zur elektrischen Kontaktierung und räumlichen Selektion der Emission einzelner Quantenpunkte (QPe). Rote Pfeile symbolisieren die Ladungsträgerinjektion. In (a) werden Ladungsträger über eine Aluminium-Lochmaske in die aktive Schicht injiziert und die Emission einzelner QPe durch Aperturen räumlich selektiert. In (b) hingegen werden Mesen strukturiert und dabei der umliegende obere DBR sowie die Hälfte der GaAs-Kavität einschließlich der aktiven QP-Schicht durch einen Ätzprozess entfernt. Die Kontaktierung erfolgt hier über eine transparente, elektrisch leitfähige Schicht aus Indiumzinnoxid (ITO), welche flächig auf den Mesen und dem umliegenden Planarisierer Benzocyclobuten (BCB) aufliegt. REM- sowie lichtmikroskopische-Aufnahmen vollständig prozessierter Strukturen sind im unteren Teil der jeweiligen Abbildung gezeigt.

die Isolierung des freiliegenden, undotierten GaAs und als Auflagefläche für den oberen p-Kontakt sind die Mesen von dem Polymer BCB umgeben. Die elektrische Kontaktierung der Mesen-Strukturen erfolgt durch eine 60 nm bis 120 nm dicke Schicht aus Indiumzinnoxid (ITO¹), einem transparenten und zugleich elektrisch leitfähigen Material². Auf das ITO folgt eine Goldmaske mit Aussparungen über den Mesen, welche die Orientierung auf der Probe erleichtert und das Kontaktieren des Probenstückes mittels einem dünnen Golddraht (*wire bonding*) ermöglicht.

Dieser Ansatz zur räumlichen Selektion durch Mesen ist als komplementär zu der Methode mit einer Lochmaske anzusehen, und - wenn auch technologisch anspruchsvoller - der vielversprechendere: Eine Injektion von Ladungsträgern erfolgt nur in die QP-Strukturen,

1 Indium Tin Oxide

2 Aufgrund dieser Eigenschaften wird ITO insbesondere bei der Herstellung von organischen Leuchtdioden (OLEDs) eingesetzt.

von welchen auch Elektrolumineszenz detektiert werden soll. Folglich ist auch ein Betrieb bei geringeren Stromstärken möglich. Gegenüber einer Kontaktierung mittels Ringkontakten birgt diese Methode des Weiteren den Vorteil, nicht von einer exakten Positionierung des Kontaktes abhängig zu sein. Dies führt zu einer hohen Ausbeute an sowohl elektrisch als auch optisch funktionsfähigen QP-Strukturen.

5.2 Einführende spektroskopische Untersuchungen

In diesem Abschnitt werden die grundlegenden Eigenschaften von QP-Mikrostrukturen mit Lochmasken oder Mesen untersucht. Dabei erfolgt insbesondere eine vergleichende Gegeüberstellung der beiden Ansätze zur räumlichen Selektion der QP-Elektrolumineszenz.

Abbildung 5.4 (a) zeigt die Strom-Spannungskennlinie eines Probenstückes mit Mesen, aufgenommen bei einer Temperatur von $T = 20$ K (Messwiderstand: $1 \text{ k}\Omega$). In Sperrrichtung ($U_{\text{DC}} < 0$ V) fließen durch die pin-Diodenstruktur geringe Leckströme im Bereich von $10 \mu\text{A}$. In Durchlassrichtung ($U_{\text{DC}} > 0$) setzt ab einer Gleichspannung von etwa $1,5$ V ein Stromfluss im Bereich von $100 \mu\text{A}$ ein. Oberhalb der Kniespannung $U_{\text{DC}} = 1,8$ V fließen durch den seriellen Messwiderstand limitierte Ströme im mA-Bereich.

Ein μEL -Spektrum einer Mesa mit einer nominellen Kantenlänge von $L = 1,8 \mu\text{m}$ ist in Abbildung 5.4 (b) exemplarisch dargestellt, wobei die Diodenstruktur bei einer Gleichspannung von $2,50$ V betrieben wurde ($T = 20$ K). Die Unterabbildung zeigt des Weiteren ein räumlich aufgelöstes Bild der Emission dieser Mesa, aufgenommen mit einer CCD-Kamera (die Aussparung der Gold-Schattenmaske ist rot markiert). Das μEL -Spektrum der Mesa zeigt eine Vielzahl spektral scharfer Emissionslinien einzelner QPe. Gegenüber Messungen an QP-Ensembles tritt der räumlich selektierende Einfluss der Mesa bereits deutlich hervor. Da das Spektrum bei verhältnismäßig niedriger Anregung aufgenommen wurde und keine nennenswerte Hintergrunddotierung der intrinsischen GaAs-Kavität vorliegt, kann näherungsweise angenommen werden, dass die Emissionslinien jeweils von der Rekombination elektrisch neutraler QP-Exzitonzustände (X) unterschiedlicher QPe stammen. Über die Anzahl der beobachteten Emissionslinien ($N \approx 45$) sowie die nominelle Kantenlänge der Mesa kann eine Flächendichte der QPe von $n_{\text{QP}} \approx 1 - 2 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ für diese Diodenstruktur abgeschätzt werden. Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit der an Kalibrationswafern beobachteten QP-Flächendichte im unteren 10^9 cm^{-2} -Bereich. Für die angestrebten spektroskopischen Untersuchungen im Einzelquantenpunkt-Regime, bei dem sich im Idealfall ein einzelner, optisch aktiver QP in einer Mesa befindet, müssen im Folgenden Strukturen mit geringeren lateralen Abmessungen betrachtet werden.

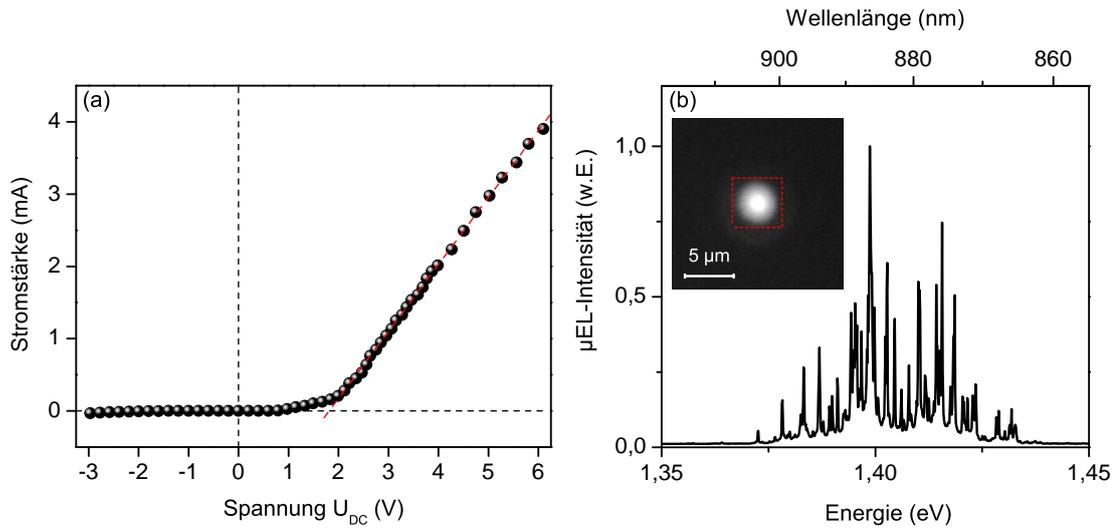


Abbildung 5.4: (a) Strom-Spannungskennlinie eines mit Mesen prozessierten Probenstückes bei $T = 20$ K. Der Stromfluss durch die pin-Diodenstruktur setzt ab einer Gleichspannung U_{DC} von etwa 1,5 V ein. (b) Exemplarisches μ EL-Spektrum einer elektrisch betriebenen Mesa mit einer nominellen Kantenlänge von $L = 1,8 \mu\text{m}$ ($U_{DC} = 2,5$ V, $T = 20$ K). Aufgrund der räumlichen Selektion durch die Mesa sind einzelne Quantenpunkt- (QP-) Emissionslinien zu beobachten. Unterabbildung: Räumlich aufgelöstes CCD-Bild der Elektrolumineszenz dieser Mesa (die Aussparung der Gold-Schattenmaske ist rot markiert).

Abbildung 5.5 zeigt μ EL-Spektren von Diodenstrukturen mit Aperturen (a) und mit Mesen (b) bei $T = 20$ K. Im Falle der Aperturen wurde dabei mit einer Lochblenden-Anordnung (*Pinhole*) im Strahlengang gemessen (vgl. Messanordnung in Abbildung 3.2), um den Detektionsbereich räumlich weiter einzuschränken (vgl. Diskussion im Folgenden). In der Wasserfalldarstellung nimmt die Strukturgröße von oben nach unten ab. Des Weiteren wurden alle Spektren zugunsten der Darstellung auf ihr jeweiliges Intensitätsmaximum normiert. Sowohl bei den Aperturen als auch bei den Mesen ist klar der räumlich selektive Charakter der Strukturen zu erkennen: In beiden Fällen bewirkt eine Abnahme der Strukturgröße eine Verringerung der Anzahl der beobachteten QP-Emissionslinien, welche jeweils im Wellenlängenbereich um 885 nm liegen. Bei den Aperturen wird das Regime in welchem sich nur einige wenige QP-Emissionslinien im Spektrum befinden, erst bei deutlich kleineren Strukturen erreicht, als im Falle der Mesen. Beispielsweise entspricht die spektrale QP-Dichte¹ bei einer Apertur mit einem nominellen Durchmesser von $D = 0,6 \mu\text{m}$, was einer Fläche von $0,3 \mu\text{m}^2$ entspricht, der bei einer Mesa mit einer nominellen Kantenlänge von $1,4 \mu\text{m}$ und einer Fläche von $2,0 \mu\text{m}^2$. Zwar stammen die Probenstücke von ein und demselben Wafer, der Einfluss einer leicht inhomogenen Verteilung der QP-Flächendichte

¹ Diese wurde aus der Anzahl an QP-Emissionslinien in dem jeweiligen Spektrum abgeschätzt.

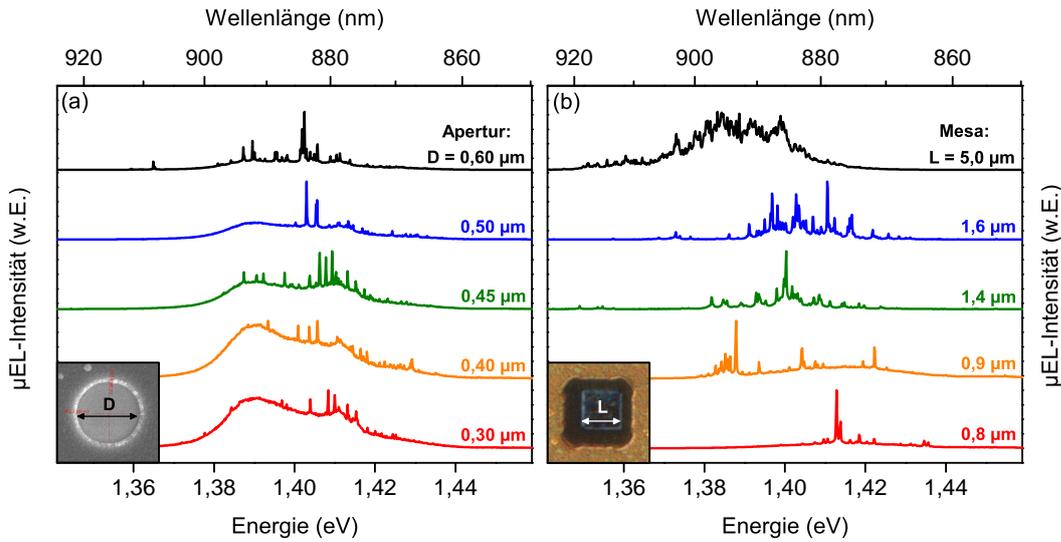


Abbildung 5.5: Normierte μ EL-Spektren von Diodenstrukturen mit Aperturen (a) und mit Mesen (b) ($T = 20$ K). Bei beiden Kontaktierungsansätzen ist mit abnehmender Strukturgröße deutlich der räumlich selektierende Charakter zu beobachten. In (a) ist eine merkliche Verschlechterung des Signal-zu-Hintergrund Verhältnisses bei kleinen Apertur-Durchmessern D zu beobachten, welche auf eine endliche Transmission der Aluminium-Lochmaske zurück zu führen ist. Der beste Arbeitsbereich für Experimente im Einzelquantenpunkt-Regime ergibt sich in (b) für Mesen-Kantenlängen L von $0,8 \mu\text{m}$ bis $0,9 \mu\text{m}$.

ist dennoch nicht vollkommen auszuschließen. Des Weiteren ist bei den Aperturen, insbesondere bei kleinen Durchmessern, ein schlechteres Signal-zu-Hintergrund Verhältnis als bei den Mesen zu beobachten. Wie im Folgenden diskutiert, können beide Beobachtungen dadurch erklärt werden, dass mit dem Mikroskopobjektiv bei den Aperturen die QP-Emission von einer effektiv größeren Fläche detektiert wird.

Bei der Ladungsträgerinjektion durch eine Lochmaske wird, anders als bei der lokalen optischen Anregung durch einen Laser, die gesamte aktive Schicht des planaren Probenstückes elektrisch gepumpt und erst nachträglich mit der Schattenmaske die Emission selektiert. Daher kann auch die Emission von QPn, welche rein geometrisch bereits in dem abgeschatteten Bereich der Maske liegen in die numerische Apertur des Mikroskopobjektives gelangen. Eine einfache geometrische Überlegung¹ ergibt unter Berücksichtigung des Grenzwinkels der inneren Totalreflexion am Übergang von GaAs zum Vakuum ($\approx 16,3^\circ$) sowie der Entfernung der QP-Schicht zur Oberfläche (550 nm), dass die effektive Fläche von welcher QP-Emission durch die Apertur gelangen kann etwa 2,4 bis 4,3 mal so groß ist wie die eigentliche Fläche einer Apertur mit einem Durchmesser zwischen

1 Für den effektiven Radius in der QP-Schicht ergibt sich $R_{\text{effektiv}} = D/2 + \tan(\theta_C) \cdot t$, mit dem Grenzwinkel θ_C und der Tiefe der QP-Schicht t .

0,6 μm und 0,3 μm . Die bei den Spektren der Aperturen beobachtete, kontinuierliche Hintergrundemission im Spektralbereich zwischen 870 nm und 900 nm, wird darüber hinaus auch an Positionen direkt über dem Aluminium ohne eine Apertur detektiert und ist daher durch eine endliche Transmission der Aluminium-Lochmaske in diesem Spektralbereich zu erklären, welche durch Variationen in der Schichtdicke hervorgerufen werden kann. Die im Detektionsbereich des Mikroskopobjektives ($D_{\text{Detektion}} \approx 3 \mu\text{m}$) durch die Lochmaske transmittierte Emission des QP-Ensembles ist gegenüber der Emission einzelner QPe unterhalb der Apertur auch bei einer sehr geringen Transmission des Aluminiums nicht mehr zu vernachlässigen, und führt zu der beobachteten Verschlechterung des Signal-zu-Hintergrund Verhältnisses mit abnehmender Aperturgröße.

Bei dem Mesen-Ansatz hingegen wird die umliegende aktive Schicht des planaren Probenstückes entfernt, so dass nur QPe innerhalb der Mesen elektrisch gepumpt werden. Die Fläche optisch aktiver QPe ist dabei noch etwas geringer als die geometrische Fläche, da QPe welche nahe ($\approx 20 \text{ nm}$) an der geätzten Mesen-Seitenwand liegen aufgrund der dominierenden nichtstrahlenden Rekombination von Ladungsträgern an der Halbleiteroberfläche optisch inaktiv sind [Cla89, Mai89]. Dementsprechend ist in Abbildung 5.5 (b) im Gegensatz zu den Aperturen keine signifikante Hintergrundemission zu verzeichnen, wodurch auf den Einsatz eines *Pinholes* im Strahlengang verzichtet werden kann. Interessanterweise ist bei den Mesa-Strukturen, anders als bei den Aperturen, mit abnehmender Strukturgröße ein systematischer Shift der QP-Emission zu höheren Energien zu beobachten. Diese Blauverschiebung ist auf den zunehmenden photonischen Einschluss der optischen Mode in den Mesa-Strukturen zurück zu führen (vgl. auch Abbildung 4.8 (a) und (b)). Der spektrale Shift von $\approx 10 \text{ meV}$ bzw. $\approx 29 \text{ meV}$ bei einer Verringerung der Mesa-Kantenlänge von 5,0 μm auf 1,6 μm bzw. 0,9 μm ist dabei in sehr guter quantitativer Übereinstimmung mit den Arbeiten [Rei97] und [Rei10b], welche an quaderförmigen bzw. zylindrischen Mikroresonatoren mit höheren Q-Faktoren durchgeführt wurden.

Entsprechend dem oben diskutierten eignen sich insbesondere die Mesa-Strukturen aufgrund des geringeren spektralen Hintergrundes im Einzelquantenpunkt-Regime für Untersuchungen der Photonen-Korrelation unterschiedlicher QP-Zustände. Dennoch werden die folgenden Photonenstatistik-Messungen an einer Apertur durchgeführt, um die prinzipielle Eignung der QP-Leuchtdioden für die elektrische Erzeugung nicht-klassischen Lichts unter Beweis zu stellen.

Die Photonen-Autokorrelationsmessungen zweiter Ordnung (vgl. Messanordnung in Abschnitt 3.3) werden an einer Apertur ($D = 0,5 \mu\text{m}$) mit einer emissionsstarken QP-Emissionslinie durchgeführt, wobei die Diodenstruktur zunächst mit einer Gleichspannung von

3,0 V betrieben wird. Abbildung 5.6 (a) zeigt das entsprechend μEL -Spektrum ($T = 20\text{ K}$), wobei die betrachtete QP-Emissionslinie mit einer Linienbreite von $\gamma_{\text{DC}} = 60\ \mu\text{eV}$ durch einen roten Pfeil bei 1,3947 eV (889 nm) markiert ist. Für die $g^{(2)}(\tau)$ -Messung wird diese QP-Emissionslinie durch den Monochromator in einem 0,33 meV breiten Spektralbereich selektiert (vgl. rote Markierungen in Abbildung 5.6 (a)). Das Histogramm der Koinzidenzmessung ist in Abbildung 5.6 (b) dargestellt: Der Verlauf von $g^{(2)}(\tau)$ zeigt ein ausgeprägtes Antibunching um $\tau = 0$ und weist mit einem gemessenen Antibunching von $g^{(2)}(0) = 0,13 < 0,5$ eindeutig die Emission einzelner Photonen nach. Unter Berücksichtigung der zeitlichen Auflösung (0,8 ns) der APDs (vgl. Gleichung 4.5) ergibt sich ein entfalteter Wert von $g_{\text{entf.}}^{(2)}(0) = 0,11$ und eine Lebensdauer des QP-Zustandes von $\tau_{\text{QP}} = 2,5\text{ ns}$, wobei die korrespondierende, gefaltete Fitfunktion in rot dargestellt ist. Der entfaltete $g^{(2)}$ -Wert ist konsistent mit der im Spektrum beobachteten Hintergrundemission ($\rho = 0,95$) anderer Emitter (vgl. Gleichung 4.7). Für die Realisierung einer getriggerten Emission wird die Diodenstruktur im Folgenden mit einem elektrischen Pulsgenerator betrieben.

Abbildung 5.6 (c) zeigt das μEL -Spektrum der oben diskutierten Apertur unter gepulst-elektrischer Anregung bei einer Anregungs-Repetitionsrate von $f = 36\text{ MHz}$. Der Gleichspannungsanteil ist dabei auf $U_{\text{DC}} = 2,2\text{ V}$ verringert, ein Arbeitspunkt an welchem die Apertur gerade keine Emission mehr zeigt, und es sind elektrische Pulse mit einer Amplitude $U_{\text{AC}} = 6,0\text{ V}$ und einer Breite $\Delta t = 1\text{ ns}$ addiert. Die Wahl dieser Parameter erfolgte anhand einer Optimierung des Signal-zu-Hintergrund Verhältnisses. Wie unter gepulster Anregung zu erwarten, ist die Emissionsintensität im Vergleich zur kontinuierlichen Anregung geringer und die Linienbreite mit $\gamma_{\text{AC}} = 77\ \mu\text{eV}$ etwas größer. Die Linienverbreiterung ist dabei, wie in Abschnitt 4.3 erläutert (vgl. Diskussion zu Abbildung 4.9 (c) und (d)), auf den zeitabhängigen Stark-Shift zurückzuführen [Ste12b]. Die zugehörige Photonen-Autokorrelationsmessung der Emissionslinie bei 1,3947 eV ist in Abbildung 5.6 (d) dargestellt. Als Folge der gepulsten Anregung des QPes wird eine zeitlich periodische Häufung der Koinzidenzen beobachtet, wobei die Maxima der Anregungs-Repetitionsrate entsprechend einen Abstand von $\Delta\tau = 27,8\text{ ns}$ aufweisen. Die signifikant geringere Fläche des Koinzidenz-Peaks um $\tau = 0$ spiegelt den nicht-klassischen Charakter der getriggerten Photonen-Emission mit einem Antibunching von $g^{(2)}(0) = 0,60$ wider. Auffällig ist jedoch ein Antibunching-Minimum innerhalb des Peaks bei $\tau = 0$. Bei verschwindenden Delayzeiten sind nahezu keine Koinzidenzen zu beobachten - die QP-Emissionslinie emittiert folglich einzelne, konsekutiv abfolgende Photonen. Bei endlichen Delayzeiten von $\pm 1\text{ ns}$ - lange bevor der nächste Anregungspuls folgt - nehmen jedoch die Koinzidenzen merklich zu und zerfallen anschließend exponentiell auf einer Zeitskala von $\approx 3\text{ ns}$. Verantwort-

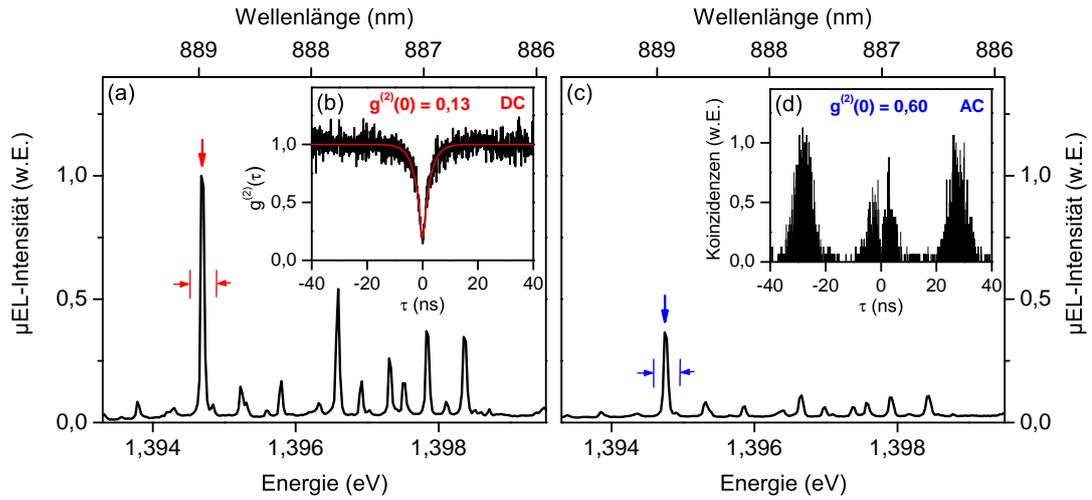


Abbildung 5.6: μ EL-Spektren sowie zugehörige Photonen-Autokorrelationsmessungen von $g^{(2)}(\tau)$ einer elektrisch betriebenen Apertur mit einem Durchmesser von $0,5 \mu\text{m}$ ($T = 20 \text{ K}$): (a) und (b) unter kontinuierlicher Anregung bei $U_{\text{DC}} = 3,0 \text{ V}$ sowie (c) und (d) unter gepulst-elektrischer Anregung bei einer Anregungs-Repetitionsrate von 36 MHz ($U_{\text{DC}} = 2,2 \text{ V}$, $U_{\text{AC}} = 6,0 \text{ V}$). Die Spektren sind auf das Intensitätsmaximum in (a) normiert. Die $g^{(2)}(\tau)$ -Messungen erfolgten jeweils an derselben, markierten QP-Emissionslinie (vgl. (a) und (c)). In beiden $g^{(2)}(\tau)$ -Histogrammen ist ein klares Antibunching ($g^{(2)}(0) < 1$) als Ausdruck der Emission nicht-klassischen Lichts zu beobachten. Angegeben sind jeweils die gemessenen $g^{(2)}(0)$ -Werte. In (d) ist dieser durch sogenannte *recapture*-Prozesse, auf welche das Antibunching-Minimum innerhalb des Peaks bei $\tau = 0$ hindeutet, limitiert (vgl. Diskussion im Text).

lich für diese erneute Anregung des QP-Zustandes innerhalb eines Anregungszyklus sind möglicherweise sogenannte *recapture*-Prozesse, welche beispielsweise auch in den Arbeiten [Aic04] und [Dal08] an nichtresonant, optisch gepumpten QPen berichtet werden. Während eines Anregungspulses wird eine große Anzahl an Ladungsträgern in der Struktur generiert. Diese können zum einen in den QP relaxieren und dort strahlend rekombinieren, zum anderen jedoch auch im QP-nahen Barrierenmaterial in lokalisierten Zuständen (engl. *charge traps*) für eine gewisse Zeit gefangen werden. Nach der Rekombination eines QP-Zustandes können diese „gespeicherten“ Ladungsträger durch Diffusions- oder Tunnel-Prozesse ebenfalls in den QP gelangen und strahlend rekombinieren. Dieser Mechanismus hängt stark von der lokalen Potentiallandschaft in der Umgebung eines QPes ab, was erklären würde, dass dieser Effekt nicht bei den zylindrischen Mikroresonatortürmchen in Kapitel 4 beobachtet wurde.

Wie im Rahmen dieses Abschnittes diskutiert, eignen sich die Mesa-Strukturen, insbesondere im Bereich von Kantenlängen zwischen $0,8 \mu\text{m}$ und $0,9 \mu\text{m}$, für Untersuchungen der Photonen-Korrelation unterschiedlicher QP-Zustände. Die in Abbildung 5.6 untersuchte

Apertur hingegen zeigte Elektrolumineszenz einer Vielzahl von QPen, wodurch die Zuordnung einzelner Emissionslinien zu bestimmten QP-Zuständen erheblich erschwert wäre. Im Rahmen des folgenden Abschnittes werden daher Photonen-Korrelationsexperimente an Mesa-Strukturen unter kontinuierlich-elektrischer Anregung durchgeführt.

5.3 Korrelierte Photonenpaare der Biexziton-Exziton-Kaskade

In diesem Abschnitt erfolgen anhand von Photonen-Korrelationsmessungen detaillierte Untersuchungen an elektrisch betriebenen Mesen. Die erste untersuchte Mesa mit einer Kantenlänge von $0,9\ \mu\text{m}$, im Folgenden als **Mesa A** bezeichnet, zeigt Elektrolumineszenz von zwei bis drei QPen. Anhand Kreuzkorrelationsmessungen kann dabei eine eindeutige Zuordnung der Emissionslinien zu den exzitonischen Mehrteilchenkomplexen X, XX und X^+ eines QPes erfolgen sowie die Emission eines weiteren QPes identifiziert werden.

Abbildung 5.7 (a) zeigt das μEL -Spektrum von **Mesa A** unter elektrischer Anregung bei einer Gleichspannung von $U_{\text{DC}} = 5,94\ \text{V}$ ($T = 21\ \text{K}$). Es sind zwei Gruppen spektral scharfer QP-Emissionslinien zu beobachten, welche von zwei bis drei unterschiedlichen QPen stammen. Die erste Gruppe bei einer Emissionsenergie um $1,400\ \text{eV}$ und die zweite, deutlich emissionsstärkere bei $1,418\ \text{eV}$. Letztere wird aufgrund der höheren Emissionsintensitäten im Folgenden genauer analysiert (siehe Abbildung 5.7 (b)). Auf der niederenergetischen Seite dieses spektralen Ausschnittes ist, wie anhand von Kreuzkorrelations-Messungen weiter unten gezeigt werden wird, die Emission einer XX-X-Kaskade zu identifizieren. Die Emission des Exziton-Zustandes liegt energetisch höher als die Biexziton-Emission, was einem bindenden Biexziton-Zustand mit einer Bindungsenergie¹ von $\Delta E_{\text{Bin}}^{\text{XX}} = +1,8\ \text{meV}$ entspricht. Der mit $\Delta E_{\text{Bin}}^{X^+} = -1,1\ \text{meV}$ antibindende Zustand der als X^+ bezeichneten Emissionslinie deutet des Weiteren auf eine positive elektrische Ladung des Trions hin, da bei Löchern aufgrund ihrer höheren effektiven Masse die repulsive Coulombwechselwirkung dominiert (vgl. auch Abschnitt 2.1.3). Die mit XX, X, X^+ und A gekennzeichneten Emissionslinien zeigen, wie für hochqualitative InAs/GaAs-QPe erwartet, geringe Linienbreiten von $\gamma_{\text{XX}} = 67\ \mu\text{eV}$, $\gamma_{\text{X}} = 70\ \mu\text{eV}$, $\gamma_{\text{X}^+} = 64\ \mu\text{eV}$ und $\gamma_{\text{A}} = 70\ \mu\text{eV}$. Dass diese dennoch nicht durch das spektrale Auflösungsvermögen des Monochromators ($35\ \mu\text{eV}$) limitiert sind, ist auf die verhältnismäßig starke Anregung und die daraus resultierende erhöhte spektrale Diffusion zurückzuführen [Ber06, Hug11] (siehe auch Diskussion zu Abbildung 5.8 (c)). Darüber hinaus ist am Fuß der QP-Emissionslinien eine leichte Verbreiterung durch die

¹ Definiert relativ zum Exziton: $\Delta E_{\text{Bin}}^{\text{Zustand}} = E_{\text{X}} - E_{\text{Zustand}}$ (vgl. Abschnitt 2.1.3).

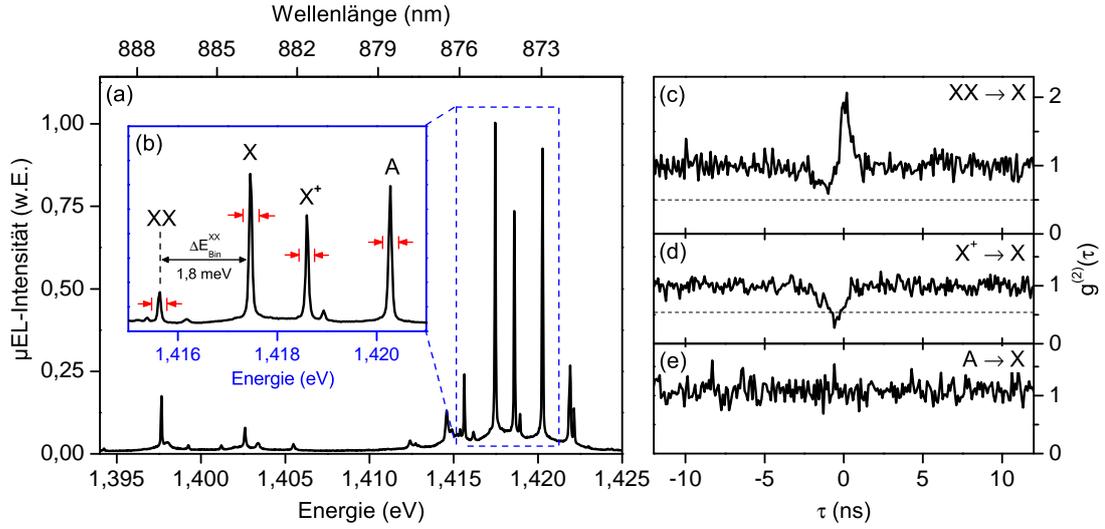


Abbildung 5.7: (a) μ EL-Spektrum der elektrisch betriebenen **Mesa A** mit einer nominalen Kantenlänge von $0,9 \mu\text{m}$ ($U_{\text{DC}} = 5,94 \text{ V}$, $T = 21 \text{ K}$). Auf der hochenergetischen Seite des Spektrums ist die Emission der XX-X-Kaskade mit einem bindenden Biexziton-Zustand ($\Delta E_{\text{Bin}}^{\text{XX}} = +1,8 \text{ meV}$), die Trion-Emission (X^+) desselben QPes sowie die Emissionslinie A eines weiteren QPes zu beobachten (vgl. (b)). (c) Messung der Photonen-Kreuzkorrelationsfunktion $g_{\text{XX} \rightarrow \text{X}}^{(2)}(\tau)$: Das beobachtete, ausgeprägte *Antibunching-Bunching*-Verhalten beruht auf der kaskadierten Emission der Photonen. (d) Messung der Kreuzkorrelation $g_{\text{X}^+ \rightarrow \text{X}}^{(2)}(\tau)$ zwischen Trion- und Exziton-Zustand desselben QPes. (e) Messung der Kreuzkorrelation $g_{\text{A} \rightarrow \text{X}}^{(2)}(\tau)$ zwischen den beiden Emissionslinien unterschiedlicher QPe.

Kopplung an akustische Phononen zu erkennen, welche auf ein pumpstrom-induziertes Aufheizen der Probe hindeutet [Bes01] (siehe auch energetische Verschiebung bei **Mesa B** in Abbildung 5.8 (a)).

Um den Ursprung der oben diskutierten QP-Emissionslinien zu verifizieren und einen Einblick in die zeitliche Dynamik des Systems zu erhalten, wird im Folgenden die Photonen-Kreuzkorrelation zwischen den QP-Zuständen mit der in Abschnitt 3.4 beschriebenen Messanordnung untersucht. Durch die Monochromatoren wird hierfür jeweils ein Spektralbereich von $0,33 \text{ meV}$ selektiert (vgl. rote Markierungen in Abbildung 5.7 (b)). Abbildung 5.7 (c) zeigt das Histogramm der gemessenen Kreuzkorrelationsfunktion $g_{\text{XX} \rightarrow \text{X}}^{(2)}(\tau)$ nach einer Integrationszeit von $2,25 \text{ h}^1$, wobei die spektral selektierte XX-Linie als „Start“-Impuls, die X-Linie als „Stopp“-Impuls für die Koinzidenzmessung gewählt wurde. Im Gegensatz zu den bisher durchgeführten Autokorrelationsmessungen ist eine ausgeprägte Asymmetrie bezüglich $\tau = 0$ zu beobachten. Für positive Delayzeiten bei $\tau \approx 0,2 \text{ ns}$ ist ein starkes *Bunching* mit $g_{\text{XX} \rightarrow \text{X}}^{(2)}(+0,2 \text{ ns}) \approx 2,07$, für negative Delayzeiten bei $\tau \approx -1,0 \text{ ns}$

¹ APD-Zählraten: $\dot{n}_{\text{APD}}^{\text{XX}} \approx 6 \cdot 10^3 \text{ Hz}$, $\dot{n}_{\text{APD}}^{\text{X}} \approx 1,7 \cdot 10^4 \text{ Hz}$;

hingegen ein Antibunching von $g_{XX \rightarrow X}^{(2)}(-1,0 \text{ ns}) \approx 0,59$ zu beobachten. Dieser Verlauf der Photonen-Kreuzkorrelationsfunktion ist ein charakteristisches Merkmal für ein Drei-Niveau-System, in welchem ein kaskadierter, strahlender Zerfall zwischen zwei angeregten Zuständen und dem Grundzustand statt findet. Aus der Atomphysik sind Zerfallskaskaden wohl bekannt, und wurden in zeitaufgelösten Messungen beispielsweise bei Strontium-Atomen beobachtet [Asp80] und genutzt, um die Gültigkeit der Quantenmechanik über eine Verletzung der Bell'schen Ungleichungen zu überprüfen [Asp81, Asp82]. Aber auch in jüngerer Zeit wurden ähnliche Untersuchungen an Rubidium-Atomen mit möglichen Anwendungen auf dem Weg zum Quantenrepeater durchgeführt [Wil10]. In QPen wurde die Photonen-Kreuzkorrelation der XX-X-Kaskade erstmals im Jahre 2001 von Moreau et al. [Mor01] und Regelman et al. [Reg01] beobachtet und ist wie folgt zu erklären:

Wird zur Zeit 0 ein XX-Photon emittiert, so ist die Besetzungswahrscheinlichkeit des X-Zustandes 1 und damit die bedingte Wahrscheinlichkeit der Emission eines X-Photons auf der Zeitskala der Exziton-Lebensdauer τ_X stark erhöht. Hieraus folgt eine erhöhte Wahrscheinlichkeit der Detektion eines X-Photons („Stopp“) nachdem zuvor bereits ein XX-Photon („Start“) detektiert wurde. In der Kreuzkorrelations-Messung führt dies zu einem Bunching bei positiven Delayzeiten, welches exponentiell auf der Zeitskala τ_X hin zum Poisson-Niveau abklingt. Wird hingegen bei negativen Zeiten ein X-Photon emittiert, so befindet sich das System im Grundzustand - dem unbesetzten QP-Potential. Erst nach der Relaxation zweier Elektronen und zweier Löcher in den QP, kann erneut ein XX-Photon emittiert werden. Die bedingte Wahrscheinlichkeit, ein XX-Photon nach dem eines X-Photons zu detektieren, ist damit stark reduziert und führt in dem Histogramm zu einem Antibunching bei negativen Delayzeiten.

Die obige Kreuzkorrelationmessung bestätigt wie zu erwarten eine starke Korrelation der XX-X-Photonenpaare. Im Hinblick auf eine potentielle quantenmechanische Verschränkung der Photonenpaare ist es des Weiteren interessant die Feinstrukturaufspaltung mit der homogenen Linienbreite γ_X^{hom} des Exziton-Zustandes zu vergleichen (vgl. Abschnitt 2.1.5). Aus polarisationsaufgelösten Spektren (nicht abgebildet; für Details wird auf Abbildung 5.10 verwiesen) wurde eine Feinstrukturaufspaltung des betrachteten X-Zustandes von $\Delta E_{\text{FSS}} = (10,0 \pm 0,5) \mu\text{eV}$ ermittelt. Andererseits ergibt sich aus der abfallenden Flanke des *Bunchings* in Abbildung 5.7(c) durch die Anpassung einer Exponentialfunktion eine strahlende Lebensdauer des Exziton-Zustandes von $\tau_X = 0,45 \text{ ns}$, was einer homogenen Linienbreite von $\gamma_X^{\text{hom}} = \hbar/\tau_X = 1,5 \mu\text{eV}$ entspricht. Die Feinstrukturaufspaltung des betrachteten Exziton-Zustandes liegt damit deutlich oberhalb seiner homogenen Linienbreite, weshalb in diesem Fall keine Effekte einer quantenmechanischen Verschränkung zu erwarten sind [You06, Hud07].

Darüber hinaus wurden Kreuzkorrelationsmessungen an den mit X^+ bzw. A gekennzeichneten Emissionslinien durchgeführt, wobei die Koinzidenzmessung jeweils durch die X-Emission gestoppt wurde. Die Kreuzkorrelationsfunktion $g_{X^+ \rightarrow X}^{(2)}(\tau)$, dargestellt in Abbildung 5.7 (d), zeigt ein deutliches Antibunching von 0,28. Die Emission des X^+ -Zustandes stammt folglich von dem selben QP wie die X- bzw. XX-Emission. Wie für einen Trion-Zustand zu erwarten [Ben06, Abb09], ist kein Bunching-Verhalten und damit keine kaskadierte Emission der Photonen beider Zustände nachzuweisen. Jedoch ist eine signifikante Asymmetrie des Verlaufs der Koinzidenzen bezüglich $\tau = 0$ zu beobachten. Die Relaxation von $g_{X^+ \rightarrow X}^{(2)}(\tau)$ hin zum Poisson-Level verläuft für positive Delayzeiten, mit einer Zeitkonstanten von $t_+ \approx 0,39$ ns, deutlich schneller als für negative Delayzeiten mit $t_- \approx 0,70$ ns. Dieses Verhalten bestätigt, dass es sich bei der X^+ -Linie um die Emission eines Trion-Zustand des QPes handelt [Kir02]. Startet ein X^+ -Photon die Koinzidenzmessung ($\tau > 0$), so verbleibt ein Loch im QP-Potential. Das entsprechende „Stopp“-Photon der X-Linie kann bereits nach dem Einfang eines einzelnen Elektrons emittiert und schließlich detektiert werden. Wird die Koinzidenzmessung dagegen von einem X-Photon gestartet ($\tau < 0$), so befindet sich der QP im Grundzustand und es müssen drei Ladungsträger (ein Elektron und zwei Löcher) in das QP-Potential relaxieren, bevor das „Stopp“-Photon der X^+ -Linie emittiert werden kann. Da die Wahrscheinlichkeit für die Relaxation von drei Ladungsträgern in das QP-Potential in einer gegebenen Zeitspanne deutlich geringer ist als der Einfang von nur einem Ladungsträger, ergibt sich in dieser Zustands-Konfiguration die beobachtete langsamere Zeitkonstante bei negativen τ . Die Beobachtung der Signatur eines Trion-Zustandes in der Kreuzkorrelationsmessung ist darüber hinaus konsistent mit einer verschwindenden Polarisationsaufspaltung der X^+ -Emissionslinie (nicht abgebildet).

Im Gegensatz zu dem oben diskutierten, ergibt sich bei der Kreuzkorrelationsmessung $g_{A \rightarrow X}^{(2)}(\tau)$ zwischen der Emission von Linie A und der Exziton-Emission (X) keinerlei Korrelation (vgl. Abbildung 5.7 (e)). Die Emission des Zustandes A ist damit eindeutig einem anderen QP zuzuordnen als X, XX, und X^+ . Eine endliche Polarisationsaufspaltung (nicht abgebildet) dieser Emissionslinie von $\Delta E_{\text{pol}}^A \approx 24 \mu\text{eV}$ deutet zudem auf einen elektrisch neutralen QP-Zustand hin.

In dem Spektrum der oben analysierten XX-X-Kaskade fällt des Weiteren auf, dass die Besetzung des Biexziton-Zustandes trotz einer bereits relativ hohen Anregung verhältnismäßig gering ist (vgl. Spektrum in Abbildung 5.7 (b)). Dabei konnte das Intensitätsverhältnis von XX- zu X-Emission ($I_{XX}/I_X \approx 1/4$) auch bei einer weiteren Steigerung der Anregung der Mesa nicht signifikant erhöht werden, was insbesondere bei polarisationsaufgelösten Photonen-Kreuzkorrelationsmessungen zu langen Integrationszeiten führt. Eine mögliche Ursache der schwachen Biexziton-Besetzung ist der Wettbewerb der unterschied-

lichen QPe in **Mesa A** um den Einfang der injizierten Ladungsträger. Im Folgenden wird daher eine weitere Mesa (**Mesa B**) mit einer Kantenlänge von $0,8\ \mu\text{m}$ analysiert, deren Elektrolumineszenz von einem einzigen QP dominiert wird.

Abbildung 5.8 (a) zeigt μEL -Spektren von **Mesa B** in Abhängigkeit der Anregungsstärke ($T = 20\ \text{K}$). Die Spektren wurden für Gleichspannungen U_{DC} von $2,40\ \text{V}$ bis $4,80\ \text{V}$ in $0,05\ \text{V}$ -Schritten aufgenommen und die Messdaten in einer zweidimensionalen Falschfarbendarstellung dargestellt (blau entspricht niedriger, rot hoher Intensität). Die Y-Achse rechts gibt zusätzlich die entsprechende Stromstärke¹ an. Bei geringer Anregung im Bereich $U_{\text{DC}} < 2,75\ \text{V}$ ist zunächst eine Emissionslinie bei $1,4020\ \text{eV}$ (X) zu identifizieren, deren Ursprung anhand der Diskussion weiter unten dem elektrisch neutralen Exziton-Zustand zuzuordnen ist. Mit zunehmender Anregung sind bei Spannungen oberhalb von $3,00\ \text{V}$ weitere QP-Emissionslinien, insbesondere bei $1,3962\ \text{eV}$ (X^-), $1,4005\ \text{eV}$ (XX) sowie $1,4044\ \text{eV}$ (X^+), zu beobachten. Die Emission des Biexziton-Zustandes (XX) zeigt wie zu erwarten mit zunehmender Anregung einen deutlich rascheren Anstieg ihrer integrierten Intensität relativ zu der X-, X^- - und X^+ -Linie [Kam98, Sar06]. Die XX-Linie ist um die Bindungsenergie $\Delta E_{\text{Bin}}^{\text{XX}} = +1,4\ \text{meV}$ gegenüber der X-Linie rotverschoben, was wiederum einem bindenden Biexziton-Zustand entspricht (vgl. auch **Mesa A** in Abbildung 5.7 (b)). Die Bindungsenergien der beiden Trion-Zustände bezüglich der X-Emission betragen $\Delta E_{\text{Bin}}^{X^-} = +5,8\ \text{meV}$ bzw. $\Delta E_{\text{Bin}}^{X^+} = -2,4\ \text{meV}$ und spiegeln den stark unterschiedlichen Ladungsträgereinschluss von Elektronen und Löchern wieder [Rod05] (vgl. auch Abschnitt 2.1.3). Dieser spektrale „Fingerabdruck“ wird häufig bei InAs/GaAs-QPen beobachtet [Rod05, Seg06, Mli09, Yam12] und auch im Rahmen des nächsten Abschnittes 5.4 durch polarisationsaufgelöste Messungen bestätigt (siehe Abbildung 5.10). Des Weiteren ist bei allen QP-Linien mit zunehmender Anregung eine Verschiebung ihrer spektralen Lage zu niedrigeren Energien zu beobachten ($\Delta E = -0,6\ \text{meV}$). Ein Einfluss des *quantum-confined Stark-Effektes* kann in diesem Fall ausgeschlossen werden, da die Spektren bei abrupten Spannungsänderungen auf einer verhältnismäßig langsamen Zeitskala im Sekunden-Bereich relaxierten (nicht abgebildet). Dieser spektrale Shift wird vielmehr durch pumpstrom-induziertes Aufheizen der Mesa hervorgerufen und entspricht einer Temperaturerhöhung von $\Delta T \approx 9\ \text{K}$, wobei $\delta = -0,066\ \text{meV/K}$ aus der temperaturabhängigen Messung in Abbildung 4.10 (b) verwendet wurde. Weitere Emissionslinien des Spektrum neben den oben diskutierten resultieren möglicherweise aus der Emission zweifach gelade-

¹ Es ist anzumerken, dass der angegebene Pumpstrom nicht direkt die in diese Mesa injizierten Ladungsträger pro Zeit, sondern die Stromstärke durch das gesamte Probenstück mit einer Vielzahl von Mesen unterschiedlicher Größen angibt.

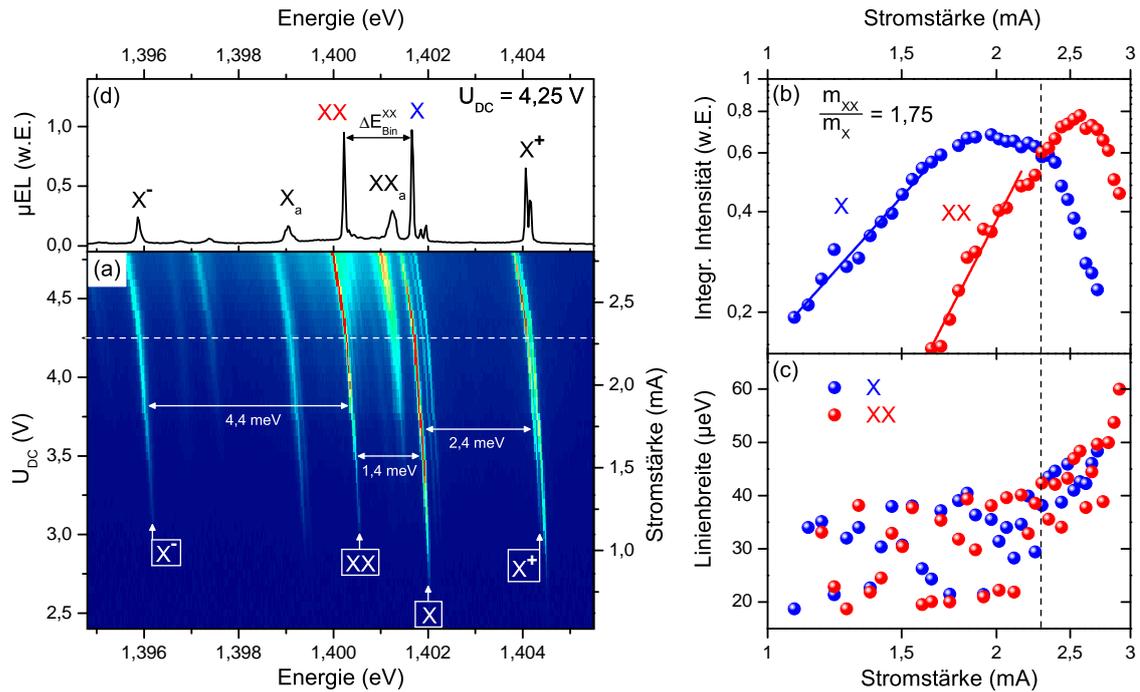


Abbildung 5.8: Pumpstrom-Abhängigkeit der Emission der elektrisch betriebenen **Mesa B** mit einer nominellen Kantenlänge von $0,8 \mu\text{m}$ ($T = 20 \text{ K}$): (a) Zweidimensionale Falschfarbendarstellung von μEL -Spektren in Abhängigkeit der an die Probe angelagerten Spannung U_{DC} bzw. der Stromstärke (linke bzw. rechte Y-Achse). Es sind die Emissionslinien des Exziton- (X) und Biexziton-Zustandes (XX) sowie der geladenen Trion-Zustände (X^- , X^+) eines QPes zu identifizieren. (b) Doppelt-logarithmische Darstellung der integrierten Intensitäten von X - und XX -Emission aus (a) in Abhängigkeit des Pumpstromes: Das Verhältnis der Steigungen von $\frac{m_{XX}}{m_X} = 1,75$ liegt nahe dem erwarteten Wert von 2. (c) Linienbreite der X - und XX -Emission: oberhalb von $2,25 \text{ mA}$ ist ein Anwachsen der Linienbreite aufgrund verstärkter spektraler Diffusion zu verzeichnen. (d) μEL -Spektrum bei $2,28 \text{ mA}$ bzw. $U_{\text{DC}} = 4,25 \text{ V}$ (gestrichelte, horizontale bzw. vertikale Linie in Abbildung (a) bzw. (b) und (c)): dieser Arbeitspunkt wurde für alle folgenden Messungen an **Mesa B** verwendet.

ner Exziton- und einfach geladener Biexziton-Zustände desselben QPes, wenn auch eine zweifelsfreie Zuordnung nicht getroffen werden konnte.

Die quantitative Analyse der integrierten Intensitäten von X - und XX -Linie in Abhängigkeit des Pumpstromes ist in Abbildung 5.8 (b) in doppelt-logarithmischer Auftragung dargestellt. Die Biexziton-Emission setzt im Vergleich zur Exziton-Emission erst bei höheren Stromstärken ein und weist einen schnelleren Zuwachs auf. Die Anpassung zweier Geraden an die Datenpunkte bei moderaten Pumpströmen ergibt ein Verhältnis der Steigungen von $\frac{m_{XX}}{m_X} = 1,75$ nahe dem erwarteten Wert von 2. Jedoch ist eine Abweichung der absoluten Werte der Steigungen ($m_X = 2,5$ und $m_{XX} = 4,5$) von der Erwartung $I_X \propto P^1$ bzw. $I_{XX} \propto P^2$, nach welcher Exziton- und Biexziton-Emission linear bzw. quadratisch mit der Anregungsleistung anwachsen sollten [Kam98, Sar06], festzustellen. Dies ist dar-

auf zurückzuführen, dass die Stromstärke durch das gesamte Bauteil gemessen wird, wobei Mesen mit unterschiedlichen Größen zu dem Stromfluss beitragen. Dies führt dazu, dass die gemessene I-U-Kennlinie nicht die in den betrachteten QP injizierten Ladungsträger pro Zeit widerspiegelt. Letzteres ist bei leistungsabhängigen Messungen unter lokaler, optischer Anregung mit einem Laser deutlich besser gegeben. Bei einer Stromstärke von etwa 1,9 mA sättigt die Exziton-Emission limitiert durch die spontane Emissionsrate des Zustandes [Gér01, Ben05b, Ell08] und fällt oberhalb von 2,3 mA wieder rasch ab. Die Biexziton-Emission hingegen erreicht ihre maximale Intensität erst bei einer Stromstärke von 2,6 mA, bevor auch sie wieder abnimmt. Die Abnahme der Emissionsintensitäten bei hoher Anregung ist dabei sowohl auf die zunehmende Besetzung weiterer QP-Zustände [Yua02], als auch auf das pumpstrom-induzierte Aufheizen der Mesa zurückzuführen.

Des Weiteren erfolgt eine Analyse der Linienbreiten der X- bzw. XX-Emission in Abhängigkeit des Pumpstromes (siehe Abbildung 5.8 (c)). Für Stromstärken unterhalb von etwa 2,25 mA sind die Linienbreiten beider QP-Zustände limitiert durch die spektrale Auflösung des Monochromators. Erst oberhalb von 2,25 mA ist ein signifikanter Anstieg der Linienbreiten zu verzeichnen. Dieser ist auf die mit dem Pumpstrom anwachsende Ladungsträgerdichte in der aktiven Schicht zurückzuführen [Ber06, Hug11], welche über den *quantum-confined Stark-Effekt* eine zunehmende spektrale Diffusion bewirkt und damit zu einer inhomogenen Verbreiterung der Emissionslinien führt.

Das μ EL-Spektrum des Arbeitspunktes bei einem Pumpstrom von 2,28 mA ($U_{DC} = 4,25$ V) ist in Abbildung 5.8 (d) abgebildet (auch markiert durch gestrichelte Linien in Abbildung 5.8 (a) bzw. (b) und (c)). Exziton- und Biexziton-Zustand weisen bei nahezu gleicher Emissionsintensität ein hohes Signal-zu-Hintergrund Verhältnis auf, wobei die entsprechenden Linienbreiten $\gamma_X = 38 \mu\text{eV}$ und $\gamma_{XX} = 42 \mu\text{eV}$ betragen. Alle folgenden Experimente, welche sich auf die Photonen-Korrelation der XX-X-Kaskade fokussieren, werden an diesem Arbeitspunkt von **Mesa B** durchgeführt.

Um die Dynamik der XX-X-Kaskade des QPes aus **Mesa B** zu analysieren, werden an dem oben beschriebenen Arbeitspunkt ($U_{DC} = 4,25$ V) sowohl Auto- als auch Kreuzkorrelationsmessungen an den beiden Emissionslinien durchgeführt (siehe μ EL-Spektrum in Abbildung 5.9 (a)). Durch die Monochromatoren wird auch hier jeweils ein Spektralbereich von 0,33 meV selektiert (vgl. rote Markierungen in Abbildung 5.9 (b)). Für jede der drei Korrelationsmessungen, dargestellt in Abbildung 5.9 (c), (d) und (e), wird eine Statistik des Poisson-Niveaus von etwa 100 Koinzidenzen pro Kanal akkumuliert (Integrationszeiten: $t_{\text{int}}^X = 3,5$ h, $t_{\text{int}}^{XX} = 4,5$ h, $t_{\text{int}}^{XX \rightarrow X} = 6,5$ h). Die Autokorrelationsmessungen der Exziton- und Biexziton-Emission, für welche jeweils beide Monochromatoren auf dieselbe

Emissionslinie eingestellt sind, zeigt Abbildung 5.9 (c) und (d). Der Verlauf beider Autokorrelationsfunktionen zeigt ein starkes Antibunching um $\tau = 0$, welches mit gemessenen Werten von $g_{X \leftrightarrow X}^{(2)}(0) = 0,46$ und $g_{XX \leftrightarrow XX}^{(2)}(0) = 0,42$ bestätigt, dass die Emission jeweils von einem Einzelphotonen-Emitter stammt ($g^{(2)}(0) < 0,5$). Unter Berücksichtigung der zeitlichen Auflösung der APDs von 0,8 ns (vgl. Gleichung 4.5) ergeben sich entfaltete Werte von $g_{X,\text{entf.}}^{(2)}(0) = 0,10$ bzw. $g_{XX,\text{entf.}}^{(2)}(0) = 0,15$, welche durch die Detektion von Hintergrundemission anderer Emitter limitiert sind. Die aufgrund des spektralen Hintergrundes ($\rho_X = 0,93$, $\rho_{XX} = 0,91$) zu erwartenden Antibunching-Werte liegen mit $g_{B,X}^{(2)}(0) = 0,14$ und $g_{B,XX}^{(2)}(0) = 0,17$ in beiden Fällen leicht über den entfaltenen Werten. Dies ist darauf zurückzuführen, dass der geringe Beitrag weiterer Emissionslinien bei diesem QP tatsächlich nicht mehr als unkorrelierte (poissonartige) Lichtquelle betrachtet werden kann. Des Weiteren können die strahlenden Lebensdauern der beiden QP-Zustände zu $\tau_X = 0,45$ ns und $\tau_{XX} = 0,60$ ns extrahiert werden. Die entsprechenden, gefalteten Fitfunktionen sind ebenfalls in den Abbildungen 5.9 (c) und (d) dargestellt (vgl. blaue Kurven).

Das extrahierte Verhältnis von Exziton- zu Biexziton-Lebensdauer weicht mit 0,75 deutlich von der einfachen statistischen Überlegung $\tau_X/\tau_{XX} = 2$ ab [Feu08]. Ein möglicher Grund hierfür ist die erhöhte Wahrscheinlichkeit der Besetzung des Biexziton-Zustandes aufgrund der hohen Anregung: Die Wahrscheinlichkeit, dass ein Exziton noch innerhalb seiner strahlenden Lebensdauer in den Biexziton-Zustand angeregt wird ist somit gegenüber einer schwächeren Anregung erhöht. Hierdurch wird die Detektionswahrscheinlichkeit eines Photons, welches aus einem „langlebigen“ Exziton-Zerfall resultiert unterdrückt, und damit die gemessene Exziton-Lebensdauer effektiv verringert. Eine weitere Rolle spielt möglicherweise der mit der QP-Größe variierende Einfluss der *dunklen Exziton-Zustände* [Bac99], wodurch zum Beispiel auch in den Arbeiten [Bai06] ($\tau_X/\tau_{XX} \approx 7,5$) und [Rei08a] ($\tau_X/\tau_{XX} \approx 0,67$) Abweichungen von der Erwartung $\tau_X/\tau_{XX} = 2$ berichtet wurden.

Auffällig ist darüber hinaus, dass bei der Autokorrelationsmessung der Exziton-Emission ein signifikanter Bunching-Effekt bei endlichen Delayzeiten um $\tau = \pm 2$ ns beobachtet wird. Im Gegensatz zu dem häufig berichteten Bunching-Verhalten bei Messungen an schwach angeregten Biexziton-Zuständen [Kir02, Ben05b, Jar12], ist in diesem Fall wiederum die starke Anregung des Exziton-Zustandes hierfür verantwortlich [Reg01, Shi02]: Wie im vorherigen Absatz diskutiert ist hierdurch die Anregung des Biexziton-Zustandes aus der Besetzung des Exziton-Zustandes wahrscheinlicher als bei niedriger Anregung. Startet ein Exziton-Photon die Koinzidenzmessung, so kann das folgende „Stopp“-Photon des Exziton-Zustandes mit einer gegenüber dem zeitlichen Mittel erhöhten Wahrscheinlichkeit durch die vorherige strahlende Rekombination eines Biexzitons präpariert werden, woraus der beobachtete Bunching-Effekt bei endlichen Delayzeiten resultiert.

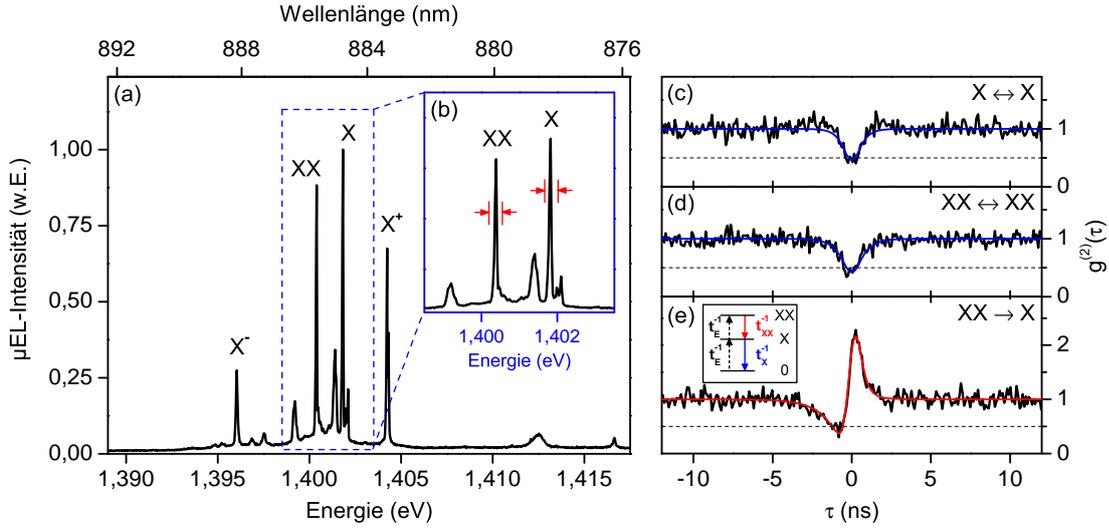


Abbildung 5.9: μ EL-Übersichts- (a) und Detail- (b) Spektrum der elektrisch betriebenen **Mesa B** aus Abbildung 5.8 ($U_{DC}=4,25$ V, $T=20$ K). Die XX-X-Kaskade zeigt einen bindenden Biexziton-Zustand ($\Delta E_{Bin}^{XX} = +1,4$ meV). (c) und (d): Photonen-Autokorrelationsmessungen (Daten in schwarz) des Exziton- und Biexziton-Zustandes bestätigen den Einzelphotonen-Charakter der Emission ($g^{(2)}(0) < 0,5$) an dem gewählten Arbeitspunkt. Unter Berücksichtigung der endlichen zeitlichen Auflösung der Detektoren werden entfaltete Antibunching-Werte von $g_{X,entf.}^{(2)}(0) = 0,10$ bzw. $g_{XX,entf.}^{(2)}(0) = 0,15$ extrahiert werden. Die jeweilige Fitfunktion nach Gleichung 4.5 ist in blau dargestellt. Das Bunching der X-Emission bei $\tau = \pm 2$ ns ist auf den Einfluss des XX-Zustandes aufgrund der hohen Anregung zurückzuführen (siehe Text). (e) Photonen-Kreuzkorrelationsfunktion $g_{XX \rightarrow X}^{(2)}(\tau)$: Die Messdaten (schwarz) zeigen das typische Antibunching-Bunching-Verhalten einer kaskadierten Emission von XX-X-Photonenpaaren. Die Messdaten sind in sehr guter Übereinstimmung mit Berechnungen (rot) auf Basis eines idealen 3-Zustands-Systems (siehe Termschema und Diskussion im Text).

Das Histogramm der Kreuzkorrelationsmessung von $g_{XX \rightarrow X}^{(2)}(\tau)$ ist in Abbildung 5.9(e) dargestellt (APD-Zählraten: $\dot{n}_{APD}^{XX} \approx \dot{n}_{APD}^X \approx 7 \cdot 10^3$ Hz). Der Verlauf von $g_{XX \rightarrow X}^{(2)}(\tau)$ zeigt das erwartete Antibunching-Bunching-Verhalten der XX-X-Kaskade und bestätigt zweifelsfrei die Zuordnung der beiden Emissionslinien. Mit einem Antibunching $g_{XX \rightarrow X}^{(2)}(-0,8$ ns) von 0,30 und Bunching $g_{XX \rightarrow X}^{(2)}(+0,2$ ns) von 2,28 sind die Amplituden der Kaskaden-Signatur stärker ausgeprägt als bei **Mesa A**, was den reduzierten Beitrag an unkorrelierter Hintergrundemission widerspiegelt. Die Messdaten wurden mit Berechnungen basierend auf einem Ratengleichungs-Modell für ein ideales 3-Zustands-System verglichen [Mor01, Aic05] (siehe auch Anhang A.1). Auch hier wurde die endliche zeitliche Auflösung der APDs berücksichtigt. Eine sehr gute Übereinstimmung der Berechnungen mit den experimentellen Daten ergibt sich für Lebensdauern von Exziton- und Biexziton-Zustand von $\tau_X = 0,5$ ns bzw. $\tau_{XX} = 0,9$ ns bei einer Anregungsrate von $\tau_E^{-1} = 0,5$ ns $^{-1}$ (vgl. rote Kurve in Abbildung 5.9(e)). Insbesondere die extrahierte Lebensdauer des Exziton-Zustandes,

welche den exponentiellen Abfall des Bunchings bei positiven Delayzeiten beschreibt, ist in guter Übereinstimmung mit dem aus der Autokorrelationsmessung $g_{X \leftrightarrow X}^{(2)}(\tau)$ extrahierten Wert. Da der Biexziton-Zerfall direkt den Ausgangszustand des Exziton-Zerfalls präpariert, können hier kaum störende Einflüsse einwirken. Die extrahierte Biexziton-Lebensdauer ist hingegen verhältnismäßig groß und liegt deutlich über dem Wert, welcher aus der Autokorrelationsmessung $g_{XX \leftrightarrow XX}^{(2)}(\tau)$ extrahiert wurde. Die Abweichungen sind darauf zurückzuführen, dass die idealisierte Betrachtung eines 3-Zustands-Systems keinem der in den Spektren beobachteten geladenen QP-Zuständen Rechnung trägt. Eine entsprechende Modellierung wird beispielsweise in [Bai06] behandelt.

Im Laufe des Folgenden Abschnitts werden insbesondere polarisationsaufgelöste Kreuzkorrelations-Messungen an der XX-X-Kaskade von **Mesa B** vorgestellt, welche eine detaillierte Beschreibung der beobachteten Zweiphotonen-Zustände ermöglichen.

5.4 Quantentomographie von Zweiphotonen-Zuständen

In diesem Abschnitt erfolgen polarisationsaufgelöste Messungen zur Photonen-Kreuzkorrelation der elektrisch gepumpten XX-X-Kaskade des QPes aus **Mesa B** an demselben Arbeitspunkt wie in Abbildung 5.9 ($U_{DC} = 4,25$ V, $T = 20$ K). Dabei erfolgt insbesondere eine Quantentomographie des emittierten Zwei-Photonenzustandes in der rektilinearen (HV), diagonalen (DA) und zirkularen (RL) Polarisations-Basis [Sal10]. Hierfür wird im Folgenden zunächst die Polarisations-Basis des QPes relativ zum Laborsystem bestimmt.

Hierfür werden mit einem Linearpolarisator im Detektionspfad μ EL-Spektren automatisiert mit einer Integrationszeit von 1 s für Polarisatorstellungen von 0° bis 350° in 5° -Schritten aufgenommen und Lorentzkurven an die Spektren der Emissionslinien angepasst. Abbildung 5.10 (a) zeigt ein exemplarisches μ EL-Spektrum (untere Abbildung) sowie die extrahierten Werte der relativen Emissionsenergien (obere Abbildung) des X^- , X^- , XX - und X^+ -Zustandes in Abhängigkeit der Polarisatorstellung. Wie zu erwarten, zeigen die Trion-Zustände (X^- , X^+) keinerlei Abhängigkeit von der Stellung des Linearpolarisators. Aufgrund der gepaarten Elektron- bzw. Loch-Spins im Leitungs- oder Valenzband besitzen diese geladenen Zustände keine Feinstrukturaufspaltung (siehe Abschnitt 2.1.4). Beide Emissionslinien zeigen jeweils für sich betrachtet lediglich eine statistisch zufällige¹ Verschiebung ihrer Emissionsenergien aufgrund spektraler Diffusion. Die Trion-Zustände driften spektral jedoch nahezu parallel, was aufgrund der starken Ortsabhängigkeit der ursprünglichen Ladungsträgerfluktuationen bestätigt, dass beide Zustände ein und demselben

¹ Diese statistische Zufälligkeit ist nicht immer zwingend gegeben. So wurde in [Seu00] ein quasiperiodisches Verhalten experimentell beobachtet, dessen Ursprung jedoch noch ungeklärt ist.

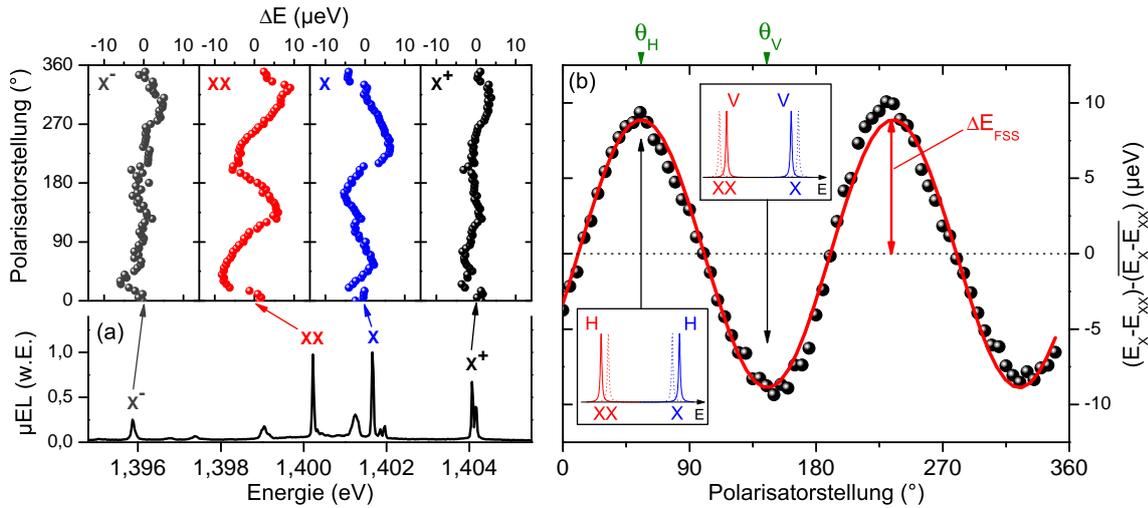


Abbildung 5.10: Polarisationsabhängige Messungen an dem Quantenpunkt aus **Mesa B** (vgl. Abbildung 5.8 (c)): (a) Exemplarisches μEL -Spektrum sowie extrahierte, relative Emissionsenergien der Zustände X^- , X , XX und X^+ in Abhängigkeit der Polarisatorstellung. Die Trion-Zustände (X^- , X^+) zeigen lediglich Anzeichen spektraler Diffusion, während Exziton- (X) und Biexziton- (XX) Emission eindeutig eine Polarisationsaufspaltung aufweisen. (b) Anhand dieser Art der Auftragung der Emissionsenergien von X und XX erfolgt eine genauere Bestimmung der Feinstrukturaufspaltung ΔE_{FSS} des Exziton-Zustandes: Die angepasste Sinuskurve (rot) entspricht $\Delta E_{\text{FSS}} = (8,9 \pm 0,5) \mu\text{eV}$. Unterabbildungen: Schematische Darstellung des XX - X -Spektrums bei den Polarisatorstellungen θ_H und θ_V für H- bzw. V-Polarisation.

QP-Potential zuzuordnen sind [Tür00, Rod05, Sar06]. Interessanterweise ist auch zu erkennen, dass die „Zitterbewegung“ des X^- -Zustandes ausgeprägter als die des X^+ -Zustandes verläuft, was auf die geringere effektive Masse der Elektronen gegenüber Löchern zurückzuführen ist [Rod06]. Im Falle der X - und XX -Emission ist hingegen eindeutig eine Abhängigkeit von der Polarisatorstellung zu beobachten. Beide Emissionslinien zeigen eine periodische Verschiebung ihrer spektralen Lage mit einer Periodizität von näherungsweise 180° , wobei beide Kurven mit einer Phasenverschiebung von etwa 90° gegeneinander laufen - beides sind typische Merkmale einer XX - X -Kaskade mit einer endlichen, aber kleinen¹ Feinstrukturaufspaltung des Exziton-Zustandes [Sar06]. Aus den Kurven ergibt sich eine Polarisationsaufspaltung ΔE_{pol} zwischen H- und V-Polarisation im Bereich $8 \mu\text{eV}$ bis $14 \mu\text{eV}$. Bei beiden Emissionslinien ist - wie bereits bei den Trion-Zuständen - der Einfluss spektraler Diffusion zu beobachten. Eine weitere Rolle spielen möglicherweise geringe spektrale Drifts aufgrund von minimalen Schwankungen der Proben temperatur oder einer mechanischen Drift der Messanordnung. Da diese Effekte die Zustände eines QPes jedoch jeweils in gleichem Maße betreffen, wird eine deutlich genauere Bestimmung der Fein-

¹ Bezogen auf die spektrale Auflösung des Monochromators ($35 \mu\text{eV}$).

strukturaufspaltung ΔE_{FSS} durch die Auftragung der Größe $(E_X - E_{XX}) - \overline{(E_X - E_{XX})}$ in Abhängigkeit der Polarisatorstellung erreicht (siehe Abbildung 5.10 (b)) [You09]. Es ergibt sich ein nahezu perfekt symmetrischer Kurvenverlauf, welcher erwartungsgemäß sehr gut durch eine Sinuskurve beschrieben werden kann. Die Amplitude entspricht dabei einer Feinstrukturaufspaltung von $\Delta E_{\text{FSS}} = (8,9 \pm 0,5) \mu\text{eV}$. Damit ist die Feinstrukturaufspaltung dieses QPes nochmals etwas geringer als bei dem QP aus **Mesa A** ($10 \mu\text{eV}$), liegt jedoch noch etwa um einen Faktor 7 über der homogenen Linienbreite des Exziton-Zustandes ($\gamma_X^{\text{hom}} = \hbar/\tau_X = 1,3 \mu\text{eV}$ mit $\tau_X = 0,5 \text{ ns}$). Daher ist in den folgenden Messungen die Beobachtung einer klassischen Polarisationskorrelation zu erwarten (vgl. Abschnitt 2.1.5).

Anhand der Messung der Feinstrukturaufspaltung ist es nun möglich, jeweils gezielt eine der Polarisationskomponenten der Exziton- bzw. Biexziton-Emission für ein Kreuzkorrelations-Experiment zu selektieren. Dabei definieren die Maxima bzw. Minima des Kurvenverlaufs in Abbildung 5.10 (b) die Polarisatorstellungen θ_H bzw. θ_V , welche der horizontalen und vertikalen Komponente der QP-Basis entsprechen. Die Zuordnung von H und V kann hierbei willkürlich gewählt werden. Bei den folgenden polarisationsaufgelösten Kreuzkorrelations-Messungen erfolgt die Selektion der jeweiligen Polarisationskomponente für jeden der beiden Monochromatoren separat, indem je drei Polarisationsoptiken (Linearpolarisator, $\lambda/2$ - und $\lambda/4$ -Plättchen) zwischen 50:50-Strahlteiler und jeweiligem Monochromator platziert werden (vgl. Messanordnung in Abbildung 3.2). Für die Polarisations-Selektion der Photonen in der diagonalen Messbasis wird zwischen Strahlteiler und Linearpolarisator (θ_H) ein $\lambda/2$ -Wellenplättchen mit seiner schnellen Achse auf $\theta_H \pm 22,5^\circ$ eingestellt. In der zirkularen Messbasis wird das $\lambda/2$ - durch ein $\lambda/4$ -Plättchen ersetzt und auf $\theta_H \pm 45^\circ$ justiert.

Zunächst erfolgen an dem QP aus **Mesa B** die beiden komplementären Messungen von $g_{\text{HH}}^{(2)}(\tau)$ ¹ und $g_{\text{HV}}^{(2)}(\tau)$ in der rektilinearen Basis an dem Arbeitspunkt aus Abbildung 5.9 (b) ($U_{\text{DC}} = 4,25 \text{ V}$, $T = 20 \text{ K}$). Dabei wird jeweils eine Statistik des Poisson-Niveaus von etwa 50 Koinzidenzen pro Kanal akkumuliert. Die resultierenden Histogramme sind in Abbildung 5.11 (a) dargestellt. Der Verlauf von $g_{\text{HH}}^{(2)}(\tau)$ (grüne Kurve) zeigt das erwartete Antibunching-Bunching-Verhalten einer kaskadierten Emission von Photonen. Durch die Linearpolarisatoren in HH-Konfiguration wird die Koinzidenzmessung jeweils durch ein H-polarisiertes Photon der Biexziton- und Exziton-Emission getriggert, sodass die Messung innerhalb desselben Zerfallskanals erfolgt (vgl. Termschema in Abbildung 5.11 (a)). Bei der Messung von $g_{\text{HV}}^{(2)}(\tau)$ (schwarze Kurve) hingegen, bei welcher die Koinzidenzmessung

¹ Im Folgenden abkürzend für $g_{\text{H}_{\text{XX}} \rightarrow \text{H}_{\text{X}}}^{(2)}(\tau)$ verwendet.

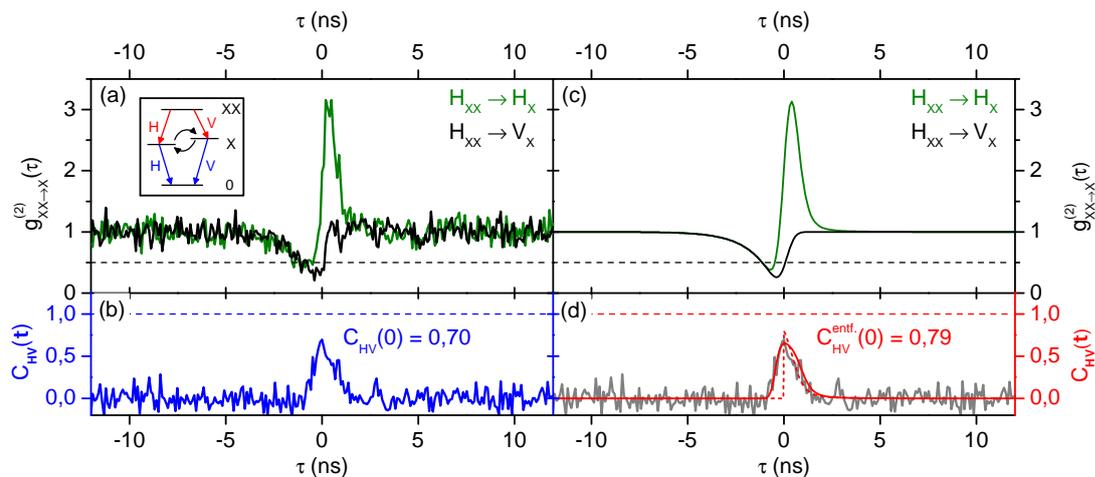


Abbildung 5.11: (a) Polarisationsaufgelöste Kreuzkorrelationsmessungen an der XX-X-Kaskade des Quantenpunktes aus **Mesa B** (vgl. Abbildung 5.9) unter elektrischer Anregung ($U_{DC} = 4,25$ V, $T = 20$ K): Bei der Messung innerhalb desselben Zerfallskanals (grüne Kurve, HH) ist ein ausgeprägtes Antibunching-Bunching-Verhalten zu beobachten. Stammen Biexziton- und Exziton-Photon jedoch aus unterschiedlich polarisierten Zerfallskanälen (schwarze Kurve, HV) verbleibt lediglich das Antibunching bei negativen Delayzeiten. (b) Aus den beiden Messungen in (a) nach Gleichung 5.1 berechnete Korrelationsfunktion $C_{HV}(\tau)$: 70 % aller gemessenen Photonenpaare weisen dieselbe horizontale Linearpolarisation auf. Die gestrichelte Linie markiert die maximal mögliche Korrelation $C_{HV} = 1$. (c) und (d) Berechnungen zu den experimentellen Daten aus (a) auf Basis eines 3-Zustands-Systems (vgl. Text). In (d) sind die Daten aus (b) zum Vergleich reproduziert (graue Kurve). Aus dem Modell ist unter Berücksichtigung der zeitlichen Auflösung der Detektoren auf eine Polarisationskorrelation von $C_{HV}^{entf.}(0) = 0,79$ zu schließen (gestrichelte Kurve). Hierdurch kann die Relaxationszeit T_{Relax} zwischen den beiden *hellen* Exziton-Zuständen (symbolisiert durch Pfeile im Termschema in (a)) zu 3 ns abgeschätzt werden (siehe Text).

durch H-polarisierte Biexziton-Photonen gestartet aber V-polarisierte Exziton-Photonen gestoppt wird, ist lediglich ein Antibunching bei negativen Delayzeiten zu beobachten. Die bedingte Wahrscheinlichkeit der Detektion eines Exziton-Photons des V-Kanals nach vorheriger Detektion eines Biexziton-Photons des H-Kanals ($\tau > 0$) ist gleichverteilt, weshalb kein Bunching zu erwarten ist. Das Antibunching für $\tau < 0$ jedoch bleibt bestehen, da nach der strahlenden Rekombination des Exzitons zunächst wieder zwei Elektron-Loch Paare in das QP-Potential relaxieren müssen, bevor erneut ein Zerfall des Biexziton-Zustandes registriert werden kann. Das Bunching der Kaskaden-Signatur ist mit $g_{HH}^{(2)}(+0,2 \text{ ns}) \approx 3,16$ deutlich stärker ausgeprägt als bei einer entsprechenden Messung ohne Polarisationsfilterung (vgl. Abbildung 5.11(e)), da letztere einer Mischung der beiden Histogramme $g_{HH}^{(2)}(\tau)$ und $g_{HV}^{(2)}(\tau)$ entspricht. Das hier beobachtete Verhalten der XX-X-Kaskade bei polarisationsaufgelösten Kreuzkorrelationsmessungen wurde erstmals in den Arbeiten [Ste02, San02c] an QPen unter optisch-gepulster Anregung berichtet.

Aus den beiden komplementären Messungen $g_{\text{HH}}^{(2)}(\tau)$ und $g_{\text{HV}}^{(2)}(\tau)$ lässt sich die Polarisationskorrelation $C_{\text{HV}}(\tau)$ in der rektilinearen Basis bestimmen [Hud07, Sal10]:

$$C_{\text{HV}}(\tau) = \frac{g_{\text{HH}}^{(2)}(\tau) - g_{\text{HV}}^{(2)}(\tau)}{g_{\text{HH}}^{(2)}(\tau) + g_{\text{HV}}^{(2)}(\tau)}. \quad (5.1)$$

Dabei wird angenommen, dass die beiden H- und V-polarisierten Zerfallskanäle gleichwahrscheinlich sind - der QP also unpolarisiert emittiert. Abbildung 5.11 (b) zeigt die aus den beiden Kreuzkorrelations-Messungen von Abbildung 5.11 (a) resultierende Polarisationskorrelation $C_{\text{HV}}(\tau)$: Es ist ein ausgeprägtes Maximum bei $\tau \approx 0$ mit einer Halbwertsbreite von etwa 1,2 ns zu beobachten, wobei die maximale Polarisationskorrelation $C_{\text{HV}}(0) = 0,70 \pm 0,05$ beträgt. In 70 % aller Koinzidenzen folgt auf ein H-polarisiertes Biexziton-Photon also tatsächlich auch ein H-polarisiertes Exziton-Photon. Die beobachtete Polarisationskorrelation von $C_{\text{HV}}(0) = 0,70$ ist in sehr guter Übereinstimmung mit den in [San02c] und [Ulr03] berichteten Wert von 0,684 bzw. 0,745 an optisch gepumpten InAs- und CdSe-QPn mit endlichen Feinstrukturaufspaltungen. Die Abweichung von der erwarteten, perfekten Polarisationskorrelation in rektilinearer Basis ($C_{\text{HV}}(\tau = 0) = 1$) ist teilweise auf die endliche zeitliche Auflösung der APDs zurückzuführen, welche den Antibunching-Bunching Kontrast reduziert und somit auch die Polarisationskorrelation $C_{\text{HV}}(\tau)$ dämpft. Des Weiteren haben auch Spinflip-Prozesse eine Verringerung der Polarisationskorrelation zur Folge [San02c, Ulr03]. Nach dem strahlenden Zerfall des Biexzitons kann der Exziton-Zustand innerhalb seiner Lebensdauer durch Spinflips sowohl in einen *dunklen Exziton-Zustand*, oder aber in den komplementären *hellen* Zustand gestreut werden (vgl. Termschema in Abbildung 5.11 (a)), wodurch der HH-Zerfallskanal gestört wird.

Um den Einfluss der Spinflip-Prozesse unabhängig von der endlichen zeitlichen Auflösung der APDs betrachten zu können, werden die Messdaten mit einem 3-Zustands-System modelliert [Mor01, Aic05] (vgl. auch Abbildung 5.9 (e)). Die Polarisationsabhängigkeit der beiden Kreuzkorrelationsfunktionen $g_{\text{HH}}^{(2)}(\tau)$ und $g_{\text{HV}}^{(2)}(\tau)$ wird dabei empirisch berücksichtigt, indem bei der HV-Konfiguration für positive Delayzeiten von $g_{\text{HV}}^{(2)}(\tau > 0) = 1$ ausgegangen wird (vgl. Anhang A.1). Sowohl die berechneten Kreuzkorrelationsfunktionen als auch die über Gleichung 5.1 ermittelte Polarisationskorrelation sind in guter Übereinstimmung mit den Messdaten (siehe Abbildung 5.11 (c) und (d)). Die Berechnungen sind dabei mit demselben Parametersatz für die Lebensdauern von Exziton- und Biexziton-Zustand sowie der Anregungsrate durchgeführt worden ($\tau_{\text{X}} = 0,4 \text{ ns}$, $\tau_{\text{XX}} = 1,1 \text{ ns}$, $\tau_{\text{E}}^{-1} = 0,3 \text{ ns}^{-1}$). Die modellierte Polarisationskorrelation entspricht einem zeitlich entfalteten Wert von $C_{\text{HV}}^{\text{entf.}}(0) = 0,79$ (gestrichelt). Die Wahrscheinlichkeit ϵ eines Polarisations-Flips von dem H- in den V-Zerfallskanal beträgt damit $\epsilon = \frac{1}{2}(1 - C_{\text{HV}}^{\text{entf.}}(0)) = 0,105$. Nach Referenz

[San02b] kann damit für die Zeitkonstante T_{Relax} der Relaxation zwischen den beiden hellen Exziton-Zuständen eine untere Grenze zu $T_{\text{Relax}} = \tau_X(1 - 2\epsilon)/\epsilon$ abgeschätzt werden. Mit der Lebensdauer $\tau_X = 0,4\text{ ns}$ wird eine Relaxationszeit $T_{\text{Relax}} = 3,0\text{ ns}$ ermittelt. Diese ist guter Übereinstimmung mit einem Wert von $2,2\text{ ns}$ für InAs-QPe aus [San02b] und deutlich größer als der für CdSe-QPen berichtete Wert von $0,48\text{ ns}$ [Ulr03].

Aufgrund der endlichen Feinstrukturaufspaltung des Exziton-Zustandes ist, wie weiter oben bereits erläutert, eine klassische Polarisationskorrelation der emittierten Zweiphotonen-Zustände zu erwarten. Falls vorhanden, wäre der Einfluss einer quantenmechanischen Korrelation jedoch erst in der diagonalen (DA) und zirkularen (RL) Polarisations-Basis zu detektieren [You06, Hud07]. Daher werden an dem QP aus **Mesa B** (vgl. Abbildung 5.9 (b)) neben den Messungen in rektilineareren Basis auch die entsprechenden komplementären Kreuzkorrelations-Messungen in DA- und RL-Basis durchgeführt. Die Statistik des Poisson-Niveaus beträgt in diesen vier Messungen jeweils etwa 25 Koinzidenzen pro Kanal. Eine Zusammenfassung aller polarisationsaufgelösten Kreuzkorrelations-Messungen sowie die resultierenden Korrelationsfunktionen zeigt Abbildung 5.12. Bei den beiden Messungen $g_{\text{DD}}^{(2)}(\tau)$ und $g_{\text{DA}}^{(2)}(\tau)$ in diagonalen Basis (siehe Abbildung 5.12 (c)) ist sowohl für parallele als auch orthogonale Filtereinstellungen das Antibunching-Bunching-Verhalten der kaskadierten Emission von Photonen zu beobachten. Die analog zu Gleichung 5.1 berechnete Polarisationskorrelation $C_{\text{DA}}(\tau)$ ist in Abbildung 5.12 (d) gezeigt, und bestätigt, dass keine signifikante Korrelation in der diagonalen Messbasis vorliegt. Im Falle polarisationsverschränkter Photonenpaare wäre hingegen eine positive Polarisationskorrelation $C_{\text{DA}}(0) \gg 0$ der DA-Basis zu erwarten [You06, Hud07]. Die Beobachtung einer fehlenden Polarisationskorrelation in der DA-Basis unterstreicht damit die klassische Korrelation der untersuchten XX-X-Kaskade. Die in beiden Kreuzkorrelationsmessungen $g_{\text{DD}}^{(2)}(\tau)$ und $g_{\text{DA}}^{(2)}(\tau)$ auftretende Signatur des kaskadierten XX-X-Zerfalls resultiert dabei aus der Projektion der horizontal- bzw. vertikal-linearpolarisierten Emission auf die diagonale Messbasis. Da diese Projektion statistisch zufällig für H und V verläuft ist das Bunching-Verhalten gegenüber der Messung in der rektilinearen Basis gedämpft (vgl. Abbildung 5.12 (a)).

Die beiden komplementären Messungen $g_{\text{RR}}^{(2)}(\tau)$ und $g_{\text{RL}}^{(2)}(\tau)$ in der zirkularen Messbasis sind in Abbildung 5.12 (e) dargestellt und zeigen ein sehr ähnliches Verhalten. Sowohl für parallele als auch orthogonale Filtereinstellungen ist ein Antibunching-Bunching-Verhalten aufgrund der oben erläuterten Projektion der H- bzw. V-Emission auf die zirkulare Messbasis zu beobachten. Im Falle einer quantenmechanischen Korrelation ist hier eine negative Polarisationskorrelation $C_{\text{RL}}(0) \ll 0$ zu erwarten [You06, Hud07]. Diese wird nicht in der aus den Messdaten berechnete Polarisationskorrelation $C_{\text{RL}}(\tau)$ beobachtet (sie-

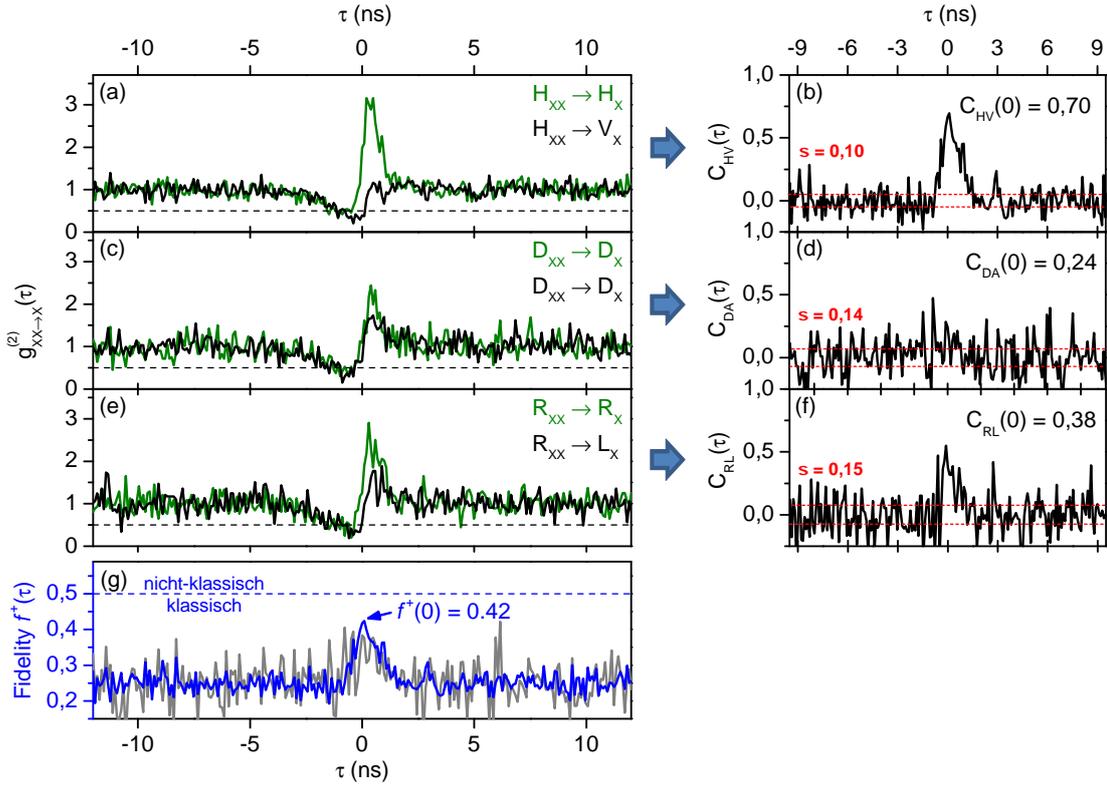


Abbildung 5.12: Quantentomographie des Zweiphotonen-Zustandes der XX-X-Kaskade aus **Mesa B** anhand polarisationsaufgelöster Kreuzkorrelationsmessungen $g_{XX \rightarrow X}^{(2)}(\tau)$: (a), (c) und (e) zeigen die Messresultate in rektilinearer- (HV-), diagonaler- (DA-) und zirkularer- (RL) Basis. (b), (d) und (f) stellen die ermittelte Polarisationskorrelation $C_{PP}(\tau)$ in den drei Messbasen dar ($\sigma \hat{=}$ Standardabweichung des Rauschens). (g) Fidelity $f^+(\tau)$ des gemessenen Zweiphotonen-Zustandes, berechnet nach Gleichung 5.2 aus den Messdaten aller drei Polarisationsbasen (grau) bzw. unter der Annahme $C_{DA} = C_{RL} = 0$ (blau). Mit $f^+ < 0,5$ wird aufgrund der endlichen Feinstrukturaufspaltung des Exziton-Zustandes eine klassischen Polarisationskorrelation beobachtet.

he Abbildung 5.12(f)). Statt dessen wird eine geringe, positive Polarisationskorrelation $C_{RL}(0) = 0,38$ detektiert, welche auf einen nicht korrekt eingestellten Winkel der $\lambda/4$ -Wellenplättchen zurückzuführen ist.

Wie in Abschnitt 2.1.5 beschrieben wird der Zweiphotonen-Zustand $|\Psi\rangle$ der XX-X-Kaskade durch die Fidelity f^+ charakterisiert, welche den Überlapp des Zustandes $|\Psi\rangle$ mit dem maximal verschränkten Bell-Zustand $|\Psi^+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|RL\rangle + |LR\rangle)$ angibt. Im Falle einer idealen, klassischen Polarisationskorrelation gilt $f^+ \leq 0,5$. Nach Hudson et al. [Hud07] ist die Fidelity f^+ aus den Korrelationskoeffizienten der drei Polarisations-Basen wie folgt zu bestimmen:

$$f^+ = \frac{1}{4}(1 + C_{HV} + C_{DA} - C_{RL}) . \quad (5.2)$$

Abbildung 5.12 (g) zeigt die nach Gleichung 5.2 aus den experimentellen Daten der Kreuzkorrelationsmessungen berechnete Fidelity $f^+(\tau)$ (graue Kurve). Um $\tau = 0$ zeigt die Fidelity im Mittel signifikant höhere Werte als bei endlichen Delayzeiten. Der Verlauf von $f^+(\tau)$ ist jedoch insbesondere durch die endliche, positive Polarisationskorrelation in zirkularer Messbasis maskiert. Unter der Annahme $C_{DA} = C_{RL} = 0$, welche durch die Beobachtung einer endlichen Feinstrukturaufspaltung gerechtfertigt ist, zeigt die Fidelity (blaue Kurve) ein ausgeprägtes Maximum im Bereich verschwindender Delayzeiten mit $f^+(0) = 0,42$. Unter Verwendung des anhand der Berechnungen aus Abbildung 5.11 extrahierten, entfalteten Wertes der Polarisationskorrelation ergibt sich $f_{\text{entf.}}^+(0) = 0,45$, in sehr guter Übereinstimmung mit Referenz [Hud07] im Falle einer Feinstrukturaufspaltung von $\approx 10 \mu\text{eV}$.

5.5 Thermische Manipulation der Feinstrukturaufspaltung

Um quantenmechanisch polarisationsverschränkte Photonenpaare über die Emission der Biexziton-Exziton-Kaskade zu erzeugen, muss wie bereits diskutiert, die Feinstrukturaufspaltung des Exziton-Zustandes im Bereich seiner homogenen, durch die strahlende Lebensdauer limitierten, Linienbreite liegen ($\gamma_X^{\text{hom}} \approx 1 - 3 \mu\text{eV}$ bei Tieftemperatur [Bor01, Bir01, Bay02]). In den Arbeiten [Ako06, You06, You09, Haf07, Dou10, Sal10] konnte die Emission polarisationsverschränkter Photonenpaare von InAs/GaAs-QPen auf (001)-orientiertem Substrat nachgewiesen werden. Die Wahrscheinlichkeit einen QP mit entsprechend geringer Feinstrukturaufspaltung zu identifizieren, ist jedoch verhältnismäßig gering. So berichteten Salter et al. in [Sal10] eine Trefferquote von etwa 1 %.

In diesem Abschnitt wird eine thermischen Behandlung der InAs/GaAs-QPe im Anschluss an das Wachstum durchgeführt und die Auswirkung sowohl auf die Emission des QP-Ensembles als auch auf die Feinstrukturaufspaltung einzelner QP-Emissionslinien systematisch untersucht. Bei dem angewandten RTA¹-Prozess wird die Probe nach dem Wachstum auf einer Zeitskala von einigen Minuten einer hohen Temperatur (typischerweise 600°C bis 900°C) ausgesetzt [You05, Seg06, Ell07, Dou10] und die QPe so, ähnlich dem PCA Schritt während des Wachstums (vgl. Abschnitt 4.1.2), ausgeheizt. Da die bereits mit elektrischen Kontakten prozessierten QP-LEDs, welche bisher im Rahmen dieses Kapitels untersucht wurden, die hohen Temperaturen des RTA-Prozesses nicht unbeschadet überstehen würden, wird für die Durchführung der im Folgenden beschriebenen Messreihe ein sogenannter Kalibrations-Wafer verwendet. Dieser wird vor dem Wachstum der eigentlichen QP-LEDs hergestellt und dient der Parametereinstellung für das QP-Wachstum.

¹ **R**apide **T**hermal **A**nnealing

Um die Analyse einzelner QP-Emissionslinien zu ermöglichen, werden vor dem thermischen Ausheilen Mesa-Strukturen auf vier präparierten Probenstücken prozessiert. Von diesen Proben werden drei jeweils einem 5-, 10- bzw. 15-minütigen RTA-Schritt bei einer Temperatur von 675 °C ausgesetzt [Eli07], während die verbleibende vierte Probe als Referenz unbehandelt bleibt. Die optische Charakterisierung mittels Mikrophotolumineszenz (μ PL-) Spektroskopie wird an der Messanordnung aus Abschnitt 3.1 durchgeführt, wobei die Anregung der QPe durch einen frequenzverdoppelten Festkörperlaser ($\lambda = 532$ nm) erfolgt.

5.5.1 Einfluss auf die Emission des Quantenpunkt-Ensembles

Um den Einfluss des thermischen Ausheilens auf die Emission des QP-Ensembles zu untersuchen, werden bei jedem der vier Probenstücke μ PL-Spektren an großen Justagemesen (5 μ m Kantenlänge) aufgenommen. Abbildung 5.13 (a) zeigt exemplarisch zwei der Spektren, welche zu Gunsten der Darstellung bezüglich ihrer Intensität normiert wurden. Beide Spektren zeigen eine für selbstorganisierte Stranski-Krastanow-QPe typische inhomogen verbreiterte QP-Emission, aufgrund von Fluktuationen in der QP-Morphologie und chemischen Komposition [Ebi98, Per00]. Die Anpassung einer Gaußkurve (grau) an das Spektrum der unbehandelten Referenz-Probe (blau) ergibt eine zentrale Emissionswellenlänge von 925 nm und eine Halbwertsbreite (FWHM) von 41 nm. Bei dem Probenstück welches 15 Minuten ausgeheizt wurde (rot) ist eine Verschiebung der Emission des QP-Ensembles zu kürzeren Wellenlängen (910 nm) sowie eine Verringerung der Halbwertsbreite (32 nm) zu beobachten. Dieser Trend bestätigt sich in Abbildung 5.13 (b) bei einer Auftragung der Zentralwellenlänge des QP-Ensembles in Abhängigkeit von der Zeitdauer des RTA-Prozesses. Dabei wurde für jedes Probenstück über sechs μ PL-Spektren von unterschiedlichen Orten auf der Probe gemittelt, um einen Einfluss lokaler Fluktuationen der QP-Morphologie ausschließen zu können. Die Emission des QP-Ensembles verschiebt sich mit zunehmender RTA-Zeit sukzessive zu niedrigeren Wellenlängen, bis hin zu einer Blauverschiebung von 18,2 nm gegenüber der Referenz-Probe. Damit einher geht eine ebenfalls monoton verlaufende Verringerung der Halbwertsbreite (vgl. Abbildung 5.13 (c)). Die Blauverschiebung der QP-Emission ist auf eine zunehmende Interdiffusion von Indium-Atomen der QPe und Gallium-Atomen der umgebenden GaAs-Matrix zurückzuführen [Mal97, Ras04, Seg06, Kei12]. Hierdurch verringert sich die effektive Breite des QP-Potentialtopfes in allen drei Raumrichtungen, wodurch die Energieniveaus der Elektronen zu höheren bzw. die der Löcher zu niedrigeren Energien verschieben - die Emissionswellenlänge nimmt folglich ab. Die beobachtete Verringerung der Halbwertsbreite mit zunehmender RTA-Zeit hingegen ist durch eine Homogenisierung der Morphologie des QP-

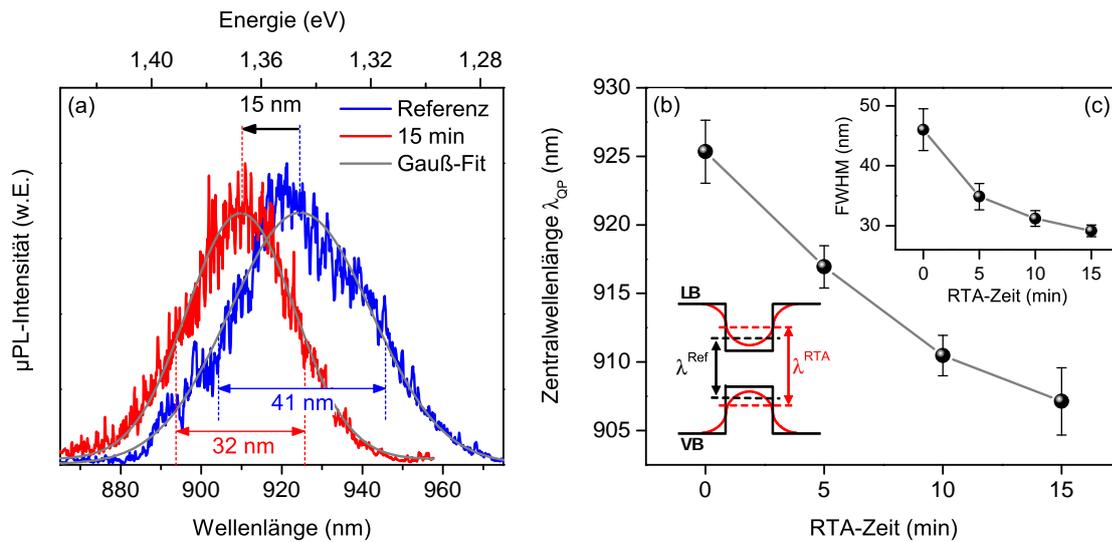


Abbildung 5.13: (a) Normierte Mikrophotolumineszenz- (μ PL-) Spektren des Quantenpunkt- (QP-) Ensembles einer unbehandelten Referenz-Probe (blau) sowie eines Probenstückes welches für 15 Minuten thermisch bei 675°C ausgeheizt wurde (rot). Dieser sogenannte *RTA*-Prozess führt zu einer spektralen Verschiebung zu niedrigeren Wellenlängen sowie einer Verringerung der inhomogenen Verbreiterung des QP-Ensembles. (b) und (c) Zentrale Emissionswellenlänge $\lambda_{\text{QP-Ensemble}}$ und Halbwertsbreite (FWHM) der Emission des QP-Ensembles als Funktion der Zeitdauer des RTA-Prozesses (Hilfslinien in grau). Die Blauverschiebung mit wachsender RTA-Zeit ist durch die zunehmende Interdiffusion von QP- und Barrieren-Atomen zu erklären, welche zu einem schmaleren QP-Potential führt (vgl. Skizze).

Ensembles zu erklären. Inwieweit die Änderung der Morphologie auch die Symmetrie der einzelnen QPe - insbesondere die für die Feinstrukturaufspaltung maßgebliche Asymmetrie in der Wachstumsebene - betrifft wird im Folgenden Abschnitt untersucht.

5.5.2 Einfluss auf die Feinstrukturaufspaltung einzelner Quantenpunkte

Der Einfluss des thermischen Ausheilens auf die Feinstrukturaufspaltung einzelner QP-Emissionslinien wird mittels polarisationsaufgelöster μ PL-Messungen untersucht. Um eine statistische Aussage treffen zu können, werden von etwa 150 QP-Emissionslinien eines jeden Probenstückes die Feinstrukturaufspaltung ermittelt, wobei Messen mit Kantenlängen von 300 nm bis 700 nm untersucht werden. Wie in Abbildung 5.10 (a) werden hierfür Spektren für Polarisatorstellungen von 0° bis 360° aufgenommen, die spektrale Lage der QP-Emissionslinien durch eine Lorentzkurve bestimmt und die extrahierten Werte mit einer Sinusfunktion angepasst. Auf eine Identifizierung von Linienpaaren der XX-X-Kaskade wird aufgrund der großen Anzahl an untersuchten QP-Emissionslinien verzichtet. Eine ungewollte Doppelzählung der Feinstrukturaufspaltungen ist daher nicht prinzipiell

auszuschließen, da zu jedem Exziton-Zustand auch ein zugehöriger Biexziton-Zustand mit der gleichen Polarisationsaufspaltung existiert. Die Wahrscheinlichkeit der Doppelzählung wurde jedoch durch die Verwendung verhältnismäßig geringer Anregungsleistungen möglichst gering gehalten. QP-Emissionslinien bei welchen keine messbare Feinstrukturaufspaltung beobachtet wird, sind zu verwerfen, da diese auch aus der Rekombination eines einfach geladenen QP-Zustandes resultieren könnten. Die spektrale Auflösung, mit welcher die Feinstrukturaufspaltung bei dieser Methode detektiert werden kann, beträgt etwa $1 \mu\text{eV}$. Abbildung 5.14 (a) stellt die resultierende Häufigkeitsverteilung für 110 QP-Emissionslinien der Referenz-Probe in Abhängigkeit der Feinstrukturaufspaltung dar. Die Binbreite des Histogramms beträgt $2 \mu\text{eV}$. Die Verteilung ist durch einen Mittelwert von $\Delta \bar{E}_{\text{FSS}}^{\text{Ref}} = 19,2 \mu\text{eV}$ und eine Standardabweichung von $\sigma_{\text{FSS}}^{\text{Ref}} = 17,4 \mu\text{eV}$ charakterisiert. Dabei haben 32 % aller dargestellten QP-Emissionslinien eine Feinstrukturaufspaltung welche über dem Mittelwert der Verteilung liegt. Zum Vergleich wurde in Referenz [Tre12] an ähnlichen QP eine mittlere Feinstrukturaufspaltung von $14 \mu\text{eV}$ bestimmt. Die Statistik des Probenstückes welches dem RTA-Prozess für 10 Minuten ausgesetzt war ist in Abbildung 5.14 (b) gezeigt und basiert auf der Auswertung von 125 QP-Emissionslinien. Der Mittelwert der Verteilung liegt mit $\Delta \bar{E}_{\text{FSS}}^{10\text{min}} = 10,3 \mu\text{eV}$ deutlich unter dem der Referenz-Probe und auch die Standardabweichung zeigt mit $\sigma_{\text{FSS}}^{10\text{min}} = 9,0 \mu\text{eV}$ eine signifikante Verringerung. Beide Beobachtungen deuten sowohl auf eine RTA-induzierte Erhöhung der Symmetrie des QP-Potentials in der Wachstumsebene als auch auf eine Homogenisierung der Asymmetrie innerhalb des QP-Ensembles hin. Die Auswertung der Häufigkeitsverteilungen aller vier Probenstücke ist in Abbildung 5.14 (c) und (d) zusammengefasst und über der Zeitdauer des RTA-Prozesses aufgetragen. Bei allen drei ausgeheizten Probenstücken wird eine ähnlich starke Verringerung der mittleren Feinstrukturaufspaltung und Standardabweichung gegenüber der Referenz-Probe beobachtet. Die Anwendung eines RTA-Prozesses auf die QP-LEDs sollte also im Mittel zu einer geringeren Feinstrukturaufspaltung der Exziton-Zustände führen, und damit die Wahrscheinlichkeit erhöhen, einen QP zu identifizieren der polarisationsverschränkte Photonenpaare emittiert. Da die mittlere Feinstrukturaufspaltung jedoch bei den RTA-behandelte Proben bei einem Wert sättigt, der etwa einen Faktor 10 über der Auflösung ($\approx 1 \mu\text{eV}$) der eingesetzten Messmethode liegt, kann von einer intrinsischen Limitierung der untersuchten QPe ausgegangen werden. Diese Vermutung wird unterstützt durch die Beobachtung, dass die Emission des QP-Ensembles mit zunehmender RTA-Zeit monoton zu niedrigeren Wellenlängen verschiebt (vgl. Abbildung 5.13 (b)), was den Einfluss des RTA-Prozesses auf die QP-Emission aller drei Probenstücke nachweist. Eine mögliche Limitierung stellt die, trotz des RTA-Schrittes verbleibende, geringe piezoelektrische Anisotropie zwischen der $[110]$ - und der $[1\bar{1}0]$ -Kristallrichtung des eingesetzten

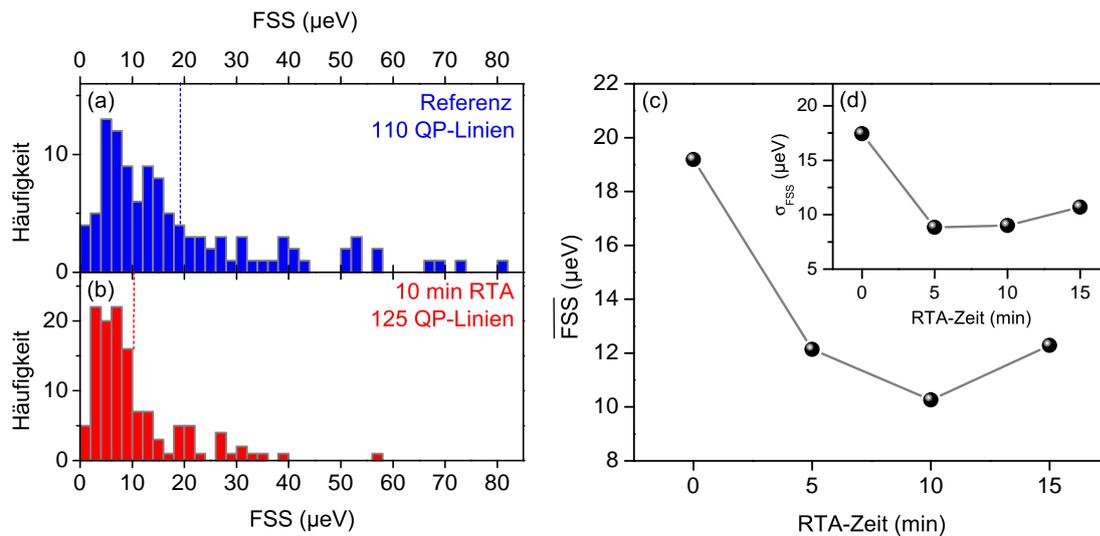


Abbildung 5.14: Statistische Erhebung zum Einfluss des thermischen Ausheilens (RTA) auf die Feinstrukturaufspaltung (FSS) einzelner Quantenpunkt- (QP-) Emissionslinien: (a) und (b) Häufigkeitsverteilung der QP-Emissionslinien einer unbehandelten Referenz-Probe (blau) und eines Probenstückes welches für 10 Minuten thermisch ausgeheizt wurde (rot), jeweils aufgetragen über der FSS. Der Mittelwert der jeweiligen Verteilung ist als gestrichelte Linie angedeutet. Die Verringerung der FSS durch das thermische Ausheilen ist auf die Symmetrisierung des QP-Potential zurückzuführen. (c) und (d) Mittlere Feinstrukturaufspaltung \overline{FSS} und zugehörige Standardabweichung σ_{FSS} als Funktion der Zeitdauer des RTA-Prozesses (Hilfslinie in grau). Die Sättigung der FSS für RTA-Zeiten oberhalb von 5 Minuten deutet auf eine intrinsische Limitierung durch das QP-Potential hin.

(001)-orientierten GaAs-Substrates dar [Gru95, Bes06]. Diese Asymmetrie verbleibt auch im Falle eines QPes mit einer perfekt kreisrunden Grundfläche in der Wachstumsebene, und führt zu einer endlichen Polarisationsaufspaltung des Exziton-Niveaus [Sch09a, Tre12].

Eine vielversprechende Perspektive hinsichtlich der Entwicklung elektrisch betriebener Quellen polarisationsverschränkter Photonenpaare bieten InAs-QPe, welche auf (111)-orientiertem GaAs-Substrat gewachsen werden [Sch09a]. Diese zeigen aufgrund der dreifachen Rotationssymmetrie des Substrates eine, gegenüber (001)-QPen deutlich reduzierte Feinstrukturaufspaltung [Sto10, Man10, Tre12]. Kürzlich wurde von Juska et al. in [Jus13] auch erstmals der Nachweis einer Polarisations-Verschränkung an räumlich deterministisch auf (111)-Substrat gewachsenen pyramidalen QPen berichtet. Eine Integration (111)-orientierter QPe in dotierte Halbleiterstrukturen, welche einen elektrischen Betrieb ermöglichen würden, steht jedoch weiterhin aus.

5.6 Zusammenfassung des Kapitels

Dieses Kapitel befasste sich mit der elektrischen Erzeugung korrelierter Photonenpaare über die Biexziton-Exziton-Zerfallskaskade einzelner, selbstorganisierter InAs/GaAs-Quantenpunkte. Die durchgeführten Photonen-Kreuzkorrelationsexperimente ermöglichten einen tiefen Einblick in die Dynamik der kaskadierten Emission von Lichtquanten, bis hin zu einer Quantentomographie des Zweiphotonen-Zustandes.

Die Quantenpunkte wurden zu diesem Zweck in eine pin-dotierte Halbleiterstruktur eingebettet, welche eine spektral breitbandige Auskopplung sowohl der Exziton- als auch der Biexziton-Emission in Wachstumsrichtung erlaubt. Um eine starke räumliche Selektion der Quantenpunkte im Bereich weniger hundert Nanometer zu erreichen und dennoch effizient Ladungsträger in die aktive Schicht injizieren zu können, wurde ein innovativer Ansatz zur elektrischen Kontaktierung von Mesa-Strukturen beschrieben. Ein Vergleich dieser Mesa-Strukturen mit einer konventionellen, auf einer Metall-Lochmaske basierenden Methode zeigte die Überlegenheit des Ansatzes im elektrischen Betrieb der Quantenpunkt-Leuchtdioden. Eine Analyse der Photonen-Kreuzkorrelation an elektrisch gepumpten Mesa-Strukturen ermöglichten einen tiefen Einblick in die Dynamik der in hohem Maße korrelierten Emission der Biexziton-Exziton-Kaskade einzelner Quantenpunkte. Des Weiteren konnte anhand polarisationsaufgelöster Messungen der Photonen-Kreuzkorrelation ein hoher Korrelationsgrad der linear co-polarisierten Biexziton-Exziton-Photonenpaare von 79% beobachtet werden. Berechnungen auf Basis eines idealen 3-Zustands-Systems zeigten, dass die Polarisationskorrelation in diesem Fall durch Spinflips limitiert ist und ließen auf eine untere Grenze für die Relaxationszeit zwischen den beiden *hellen* Exziton-Zuständen von 3 ns schließen. Darüber hinaus erfolgte eine Quantentomographie des Zweiphotonen-Zustandes der Biexziton-Exziton-Kaskade in der rektilinearen (HV), diagonalen (DA) und horizontalen (HV) Polarisationsbasis. Die aus den Messdaten extrahierte Fidelity zu dem perfekten, polarisationsverschränkten Bell-Zustand $|\Psi^+\rangle$ zeigte einen Wert von $f_{\text{entf.}}^+ = 0,45$ im klassischen Regime, was einer nahezu perfekten, klassischen Polarisationskorrelation ($f^+ = 0,5$) entspricht und konsistent mit der Beobachtung einer Feinstrukturaufspaltung von 8,9 μeV ist. Schließlich konnte gezeigt werden, dass die mittlere Feinstrukturaufspaltung der Quantenpunkte durch thermisches Ausheilen signifikant reduziert werden kann. Jedoch sind Anzeichen einer intrinsischen Limitierung durch die Asymmetrie des (001)-orientierten GaAs-Substrates zu beobachten.

6 Quanten-Schlüsselverteilung mit elektrisch getriggerten Einzelphotonenquellen

Dieses Kapitel beschreibt die erstmalige Implementierung elektrisch betriebener Quantenpunkt-Einzelphotonenquellen in Experimenten zur Quanten-Schlüsselverteilung (QKD¹). Auf Basis der in Kapitel 4 eingehend analysierten Quantenpunkt-Mikroresonatoren konnten dabei, in enger Kollaboration mit der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Harald Weinfurter², zwei unterschiedliche Experimente in Freistrahloptik demonstriert werden: Das erste, durchgeführt im Labormaßstab in Würzburg, basiert auf einem Quantenkanal mit einer Länge von ca. 40 cm (siehe Abschnitt 6.2). Das zweite QKD-Experiment wurde über eine Distanz von 500 m in der Münchner Innenstadt zwischen zwei Gebäuden der Ludwig-Maximilians-Universität realisiert (siehe Abschnitt 6.3). Eine Zusammenfassung und Diskussion der im Rahmen dieses Kapitels erzielten Resultate erfolgt am Ende des Kapitels (6.4). In dem folgenden Abschnitt wird nun zunächst das Konzept der QKD sowie das BB84 Protokoll vorgestellt und erläutert.

6.1 Quanten-Schlüsselverteilung und BB84-Protokoll

Die QKD beruht auf der grundlegenden Idee fundamentale quantenmechanische Gesetze bei der Erzeugung und Verteilung eines Schlüssels zwischen einem Sender und einem Empfänger - *Alice* und *Bob* genannt - auszunutzen [Gis02, Sca09]. Mit dem sicheren Schlüssel kann anschließend eine Nachricht mittels klassischer Kryptographie codiert werden. Unabhängig von der QKD ist bis zum heutigen Tag aus informationstheoretischer Sicht nur ein einziges Verschlüsselungsverfahren bekannt, welches nachweisbar sicher ist [Sha49]: Das *one-time pad*. Dieses symmetrische³ Verschlüsselungsverfahren, erstmals von Gilbert Vernam im Jahre 1926 postuliert, beruht auf vier entscheidenden Voraussetzungen: Der

1 Quantum Key Distribution

2 Kontakt: Ludwig-Maximilians-Universität München, Fakultät für Physik, Schellingstr. 4/III, D-80799 München, Germany;

3 Symmetrisch bedeutet, dass Kodierung und Dekodierung mit ein und demselben Schlüssel erfolgen.

Schlüssel von Alice und Bob ist geheim, zufällig erzeugt, besitzt mindestens dieselbe Länge wie die zu verschlüsselnde Nachricht¹ und er wird nur ein einziges mal eingesetzt (daher der Name *one-time pad*). Existiert ein solcher Schlüssel, so kann dieser mittels einer XOR²-Verknüpfung auf die Nachricht aufgeprägt werden. Die resultierende verschlüsselte Nachricht erscheint für Dritte so zufällig wie der Schlüssel selbst und liefert ihnen daher keinerlei nützliche Information. Das Problem ist jedoch eben die geheime Verteilung des Schlüssels - eine Voraussetzung, welche nur durch Methoden der QKD absolut sichergestellt werden kann. Die Sicherheit der QKD basiert dabei nicht darauf einen Lauschangriff zu verhindern. Sie erlaubt jedoch - im Gegensatz zu jeglicher klassischen Kommunikation - die Bestimmung einer oberen Grenze des Informationsgehalts, welchen ein potentieller Angreifer bei der Schlüsselverteilung abgehört haben könnte. Liegt dieser zu hoch, so wird der Schlüssel nicht eingesetzt.

In der Quanteninformation wird das *Quanten-Bit* (Qubit) als Träger von Information verwendet. Ein Qubit kann dabei jeder quantenmechanische Zustand $|\Psi\rangle$ sein, der als Superposition zweier zueinander orthogonaler Basis-Zustände, $|0\rangle$ und $|1\rangle$, beschrieben werden kann. Im Gegensatz zum klassischen Bit, welches nur die Werte 0 oder 1 besitzt, kann ein Qubit daher auch eine kohärente Superposition der Basis-Zustände annehmen. Allgemein kann jedes quantenmechanische Zwei-Zustands-System als Qubit verwendet werden [Sca09]. Praktikabel ist jedoch insbesondere die Verwendung sogenannter *flying-qubits*, welche durch polarisierte Photonen repräsentiert werden und auch bei der folgenden Erläuterung des BB84 Protokolls betrachtet werden.

Das BB84 Protokoll von C.H. Bennett und G. Brassard ist das erste publizierte QKD Protokoll und basiert auf einer Idee von S. Wiesner um 1970³ [Wie83]. In den Jahren nach 1984 wurde eine Vielzahl weiterer QKD Protokolle postuliert, und dennoch ist das BB84 Protokoll auch heute noch die Grundlage vieler moderner QKD-Systeme - nicht zuletzt aufgrund seiner schlichten Eleganz. Das BB84 Protokoll verwendet vier unterschiedliche Polarisationszustände der Photonen, welche den Eigenzuständen zweier zueinander konjugierter, vollständiger quantenmechanischer Basen entsprechen. Im Folgenden werden ohne Beschränkung der Allgemeinheit die vier Zustände der Photonen zu $|H\rangle$ -, $|V\rangle$ -, $|D\rangle$ - und $|A\rangle$ - (horizontal-, vertikal-, diagonal- und antidiagonal-) polarisiert gewählt. Diese vier Polarisationsrichtungen sind Eigenzustände zu den konjugierten, vollständigen Basen HV

1 Die Datenübertragungsrate mit einem *one-time pad* ist daher durch die erzielbare Schlüsselrate limitiert.

2 eXclusive OR

3 Nach Bennett et al. [Ben92] wurde das Manuskript Wiesners' bereits in den späten 1960er Jahren verfasst, jedoch erst im Jahre 1983 publiziert.

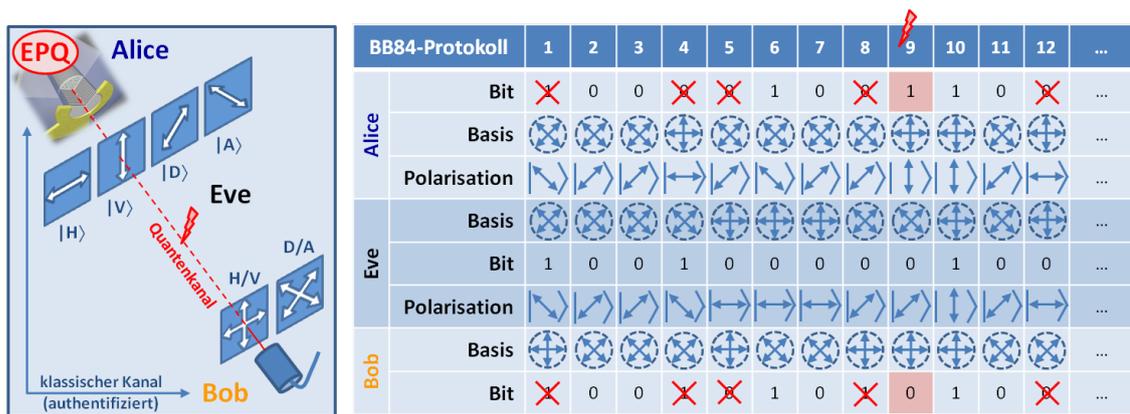


Abbildung 6.1: Links: Schema des Messkonzeptes bei der Durchführung eines BB84-Protokolls: Die Kommunikation zwischen Sender (Alice) und Empfänger (Bob) erfolgt mit einzelnen Photonen unterschiedlicher Polarisation ($|H\rangle$, $|V\rangle$, $|D\rangle$ und $|A\rangle$). Ein potentieller Angreifer (Eve), welcher den Quantenkanal abhört, ist als roter Blitz symbolisiert. Rechts: Exemplarisches Protokoll einer BB84 Alice-Eve-Bob Kommunikation, bei welcher Eve die sogenannte *intercept-resend*-Strategie anwendet (siehe Text). Rote Kreuze markieren Bits welche aufgrund unterschiedlicher Messbasen bei Alice und Bob verworfen werden müssen („*key sifting*“). Der rote Blitz zeigt einen aufgedeckten Abhörversuch Eves an: Die Bit-Werte von Alice und Bob stimmen nicht überein, obwohl in der selben Basis gemessen wurde.

und DA, da $|D\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|H\rangle + |V\rangle)$ und $|A\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|H\rangle - |V\rangle)$. Mit dieser Wahl der Polarisationzustände kann das BB84 Protokoll, welches schematisch in Abbildung 6.1 dargestellt ist, wie folgt zusammengefasst werden [Gis02, Sca09]:

1. Der Sender (Alice) präpariert Photonen zufällig und voneinander unabhängig in den vier Polarisationszuständen $|H\rangle$, $|V\rangle$, $|D\rangle$ und $|A\rangle$, notiert sich die jeweilige Polarisation in einer Liste und sendet die Photonen über den Quantenkanal dem Empfänger (Bob). Dieser versucht die Polarisation jedes einzelnen Zustandes zu analysieren, indem er jeweils zufällig eine der beiden Polarisationsbasen, HV oder DA, für seine Messung wählt.
2. Bob teilt Alice mit, welche der Photonen er detektiert hat und Alice streicht die restlichen Einträge von ihrer Liste. Beide Parteien teilen nun den sogenannten *raw-key*, welcher aus den Polarisationszuständen beispielsweise wie folgt generiert wird: $|H\rangle$ oder $|D\rangle \mapsto 0_B$, $|V\rangle$ oder $|A\rangle \mapsto 1_B$.
3. Alice und Bob kommunizieren über einen klassischen Kanal, welche Messbasis sie jeweils für die Zustandspräparation bzw. Zustandsanalyse verwendet haben und verworfen die Bits, bei welchen sie in unterschiedlichen Basen gemessen haben. Denn in 50% aller Fälle misst Bob in der falschen Basis, wodurch sein Messergebnis zufällig auf einen der beiden Eigenzustände der konjugierten Messbasis projiziert wird.

(woraus insgesamt eine Fehlerrate von 25 % resultieren würde). Der verbleibende Schlüssel nach diesem Abgleich wird als *sifted-key* bezeichnet. Idealerweise sollten die *sifted-keys* von Alice und Bob nun identisch sein, jedoch werden sowohl durch potentielle Abhörversuche, als auch durch eine imperfekte Messanordnung gewisse Fehler in den Schlüssel übertragen. Aufgrund der geforderten „bedingungslosen“ Sicherheit der QKD wird üblicherweise davon ausgegangen, dass sämtliche Fehler durch Eve entstanden sind [Bev02, Sca09].

4. Um das Quanten-Bitfehlerverhältnis ($QBER^1$) - definiert als das Verhältnis von fehlerbehafteten Bits zu insgesamt empfangenen Bits [Gis02] - zu bestimmen, werden Teile des *sifted-keys* auf dem öffentlichen Kanal verglichen. Liegt das $QBER$ über einem bestimmten Grenzwert, kann aus den übertragenen Bits im folgenden Schritt kein sicherer Schlüssel (*secure-key*) generiert werden und das Protokoll wird an dieser Stelle abgebrochen bzw. erneut durchgeführt.
5. Andernfalls werden klassische Nachbearbeitungs-Schritte wie Fehlerkorrektur [Bra94] und *privacy amplification* [Ben88, Ben95] angewandt, um aus dem *sifted-key* einen finalen *secure-key* zu destillieren [Ren05, Wei11]. Dabei wird der *sifted-key* in Abhängigkeit von dem $QBER$ mehr oder weniger stark „geschrumpft“ um die Information, welche Eve erhalten haben könnte, auf einen beliebig kleinen Anteil zu reduzieren.

Um die informationstheoretische Sicherheit - auch *bedingungslose Sicherheit* genannt - des BB84 Protokolls gegenüber Abhörversuchen zu testen, sind verschiedenste Szenarien denkbar. Ein einfaches und zugleich praktikables Abhör-Szenarium, welches das Sicherheits-Konzept des BB84 Protokolls auf einfache Weise veranschaulicht, ist die *intercept-resend*-Strategie (vgl. hierzu auch Abbildung 6.1). Dabei unterbricht ein potentieller Abhörer (Eve²) den Quantenkanal zwischen Alice und Bob, und führt dort dieselbe Messung mit zufälliger Basenwahl wie bisher der Empfänger selbst durch. Anschließend sendet Eve mit einer eigenen Einzelphotonenquelle die Photonen mit der von ihr zuvor gemessenen Polarisation an Bob weiter. In 50 % aller Fälle hat Eve dieselbe Messbasis gewählt wie Alice, sodass Bobs Messapparat den korrekten Polarisationszustand erhält - der Eingriff Eves bleibt also von Alice und Bob unentdeckt. In den restlichen 50 % der Fälle jedoch misst Eve in der falschen Basis und projiziert den Polarisationszustand somit probabilistisch auf die Eigenzustände der konjugierten Basis. Von den anschließend an Bob weitergeleiteten, fehlerhaften Qubits werden auf Empfängerseite wiederum 50 % in der ursprünglichen

1 **Quantum Bit Error Ratio**, häufig auch als Synonym für *quantum bit error rate* verwendet.

2 Abgeleitet von dem englischen Wort *eavesdropping*, zu deutsch das Abhören bzw. das Lauschen.

korrekten Messbasis (bezogen auf Alice) detektiert, führen nun jedoch zu einem unkorrelierten Ergebnis. Insgesamt werden Alice und Bob also auch nach dem Abgleich Ihrer Messbasen ein *QBER* von 25 % in dem *sifted-key* detektieren und Eves Abhörversuch ist enttarnt (vgl. roter Blitz in Abbildung 6.1).

Neben dieser *intercept-resend*-Strategie sind verschiedenste weiterer Attacken denkbar, welche jedoch allesamt durch eine Reihe von Beweisen zur informationstheoretischen Sicherheit des BB84 Protokolls entkräftet werden können [Lo99, Sho00, May01]. Nach dem bisher allgemeinsten und zugleich kompaktesten Beweis von P. W. Shore und J. Preskill [Sho00] ist die absolute Sicherheit des BB84 Protokolls bis zu einem *QBER* von 11 % gewährleistet. Die Vorgabe des BB84 Protokolls, eine perfekte Einzelphotonenquelle in Alice' Apparat zu verwenden, ist in tatsächlichen Experimenten jedoch schwer zu realisieren. Die meisten Experimente basieren, wie zu Beginn dieser Arbeit erwähnt (vgl. Kapitel 1), gar auf abgeschwächten Lasern, welche aufgrund ihrer Poisson-Statistik intrinsisch eine endliche Wahrscheinlichkeiten für Mehrphotonen-Pulse besitzen (vgl. Abschnitt 2.3.2). Durch Erweiterungen des BB84 Protokolls mit sogenannten *Decoy*¹-Zustände kann auch in diesen Fällen eine sichere Datenübertragung erreicht werden [Wan05], jedoch auf Kosten einer stark reduzierten Schlüsselrate. Der Einsatz von effizienten, nichtklassischen Lichtquellen, welche durch $g^{(2)}(0) < 1$ charakterisiert sind, hat somit insbesondere bei der Kommunikation über große Distanzen oder bei hohen Kanalverlusten klare Vorteile [Wak02b, Bev02, All04, Int09, Lei13].

6.2 Labor-Experiment über eine Distanz von 40 cm

In diesem Abschnitt wird die Implementierung der elektrisch betriebenen Quantenpunkt-Einzelphotonenquelle (QP-EPQ) in ein QKD-Experiment im Labormaßstab vorgeschaltet. Der Quantenkanal, über welchen die polarisations-modulierten Photonen gesendet werden, ist dabei in Freistrahloptik über eine Distanz von etwa 40 cm realisiert. Ziel dieses ersten Experimentes ist neben einer Demonstration der Machbarkeit, die erzielbaren Schlüssel- und Fehlerraten zu untersuchen, und das Übertragungskonzept in einer „geschützten“ Laborumgebung zu optimieren.

In Abschnitt 6.2.1 erfolgt zunächst die grundlegende Spezifizierung des eingesetzten QP-Mikroresonators, bevor in Abschnitt 6.2.2 die Messanordnung für die Durchführung des QKD-Experimentes näher erläutert wird. Die Ergebnisse des Experimentes werden in Abschnitt 6.2.3 vorgestellt und diskutiert.

¹ engl. für Köder;

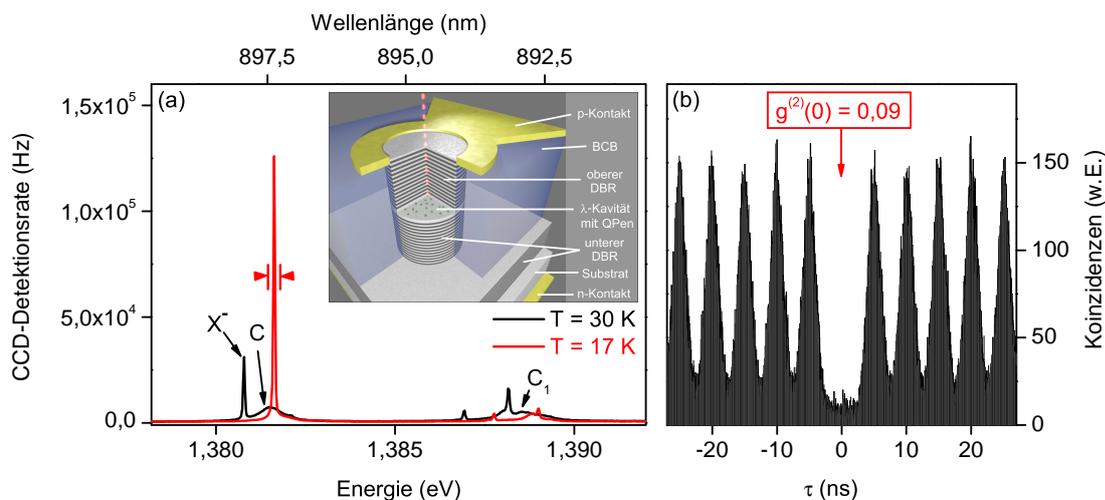


Abbildung 6.2: (a) μ EL-Spektren einer Quantenpunkt-Einzelphotonenquelle (QP-EPQ) mit einem Durchmesser von $2,0\ \mu\text{m}$ unter gepulst-elektrischer Anregung bei $199\ \text{MHz}$. Bei einer Temperatur von $17\ \text{K}$ ist eine einzelne QP-Emissionslinie in Resonanz mit der fundamentalen optischen Mode des Mikroresonators. Eingebettet: Schematische Darstellung der elektrisch kontaktierten QP-EPQ (vgl. Kapitel 6). (b) Photonen-Autokorrelationsmessung des EPQ-Signals aus (a) bei $T = 17\ \text{K}$ nach spektraler Filterung durch einen Monochromator. Die Wahrscheinlichkeit von Mehrphotonen-Emissionsereignissen liegt unter $10\ \%$.

6.2.1 Grundcharakterisierung der eingesetzten Einzelphotonenquelle

Abbildung 6.2(a) zeigt temperaturabhängige μ EL-Spektren einer QP-EPQ mit einem Durchmesser von $d_C = 2,0\ \mu\text{m}$ unter gepulst-elektrischer Anregung bei einer Repetitionsrate von $199\ \text{MHz}$ (Pulsbreite $\Delta t \approx 200\ \text{ps}$). Die Amplitude der Spannungspulse beträgt $U_{AC} = 5,25\ \text{V}$ bei einem DC-Offset von $U_{DC} = 1,450\ \text{V}$. Durch eine Verringerung der Temperatur von $30\ \text{K}$ auf $17\ \text{K}$ kann die QP-Emissionslinie eines Trion-Zustandes (X^-) in spektrale Resonanz mit der fundamentalen optischen Mode C ($Q = 2100$) des Mikroresonators verschoben werden. Die Emissionsintensität der spektral dominierenden X^- -Linie wird als Folge des Purcell-Effektes drastisch erhöht (vgl. Abschnitt 4.3), was zu einer maximalen CCD-Detektionsrate von $1,26 \cdot 10^5\ \text{Hz}$ führt. Bemerkenswert ist dabei der äußerst geringe spektrale Hintergrundbeitrag weiterer QP-Emissionslinien, auch im Spektralbereich der ersten höheren optischen Mode C_1 . Insbesondere der in Mikroresonatoren mit hohen Q-Faktoren häufig beobachtete Effekt des nichtresonanten „Fütterns“ der Resonatormoden durch andere QPe [Pre07, Hen07, Ate09], ist aufgrund der niedrigen spektralen Dichte der QPe im Bereich der optischen Mode stark reduziert. Eine entsprechende Photonen-Autokorrelationsmessung der resonant gekoppelten X^- -Emission ($T = 17\ \text{K}$) mit der fasergekoppelten HBT-Messanordnung aus Abschnitt 3.3 bestätigt die bemerkenswerte Reinheit der Einzelphotonenemission mit $g^{(2)}(0) = 0,09$ (siehe Abbildung

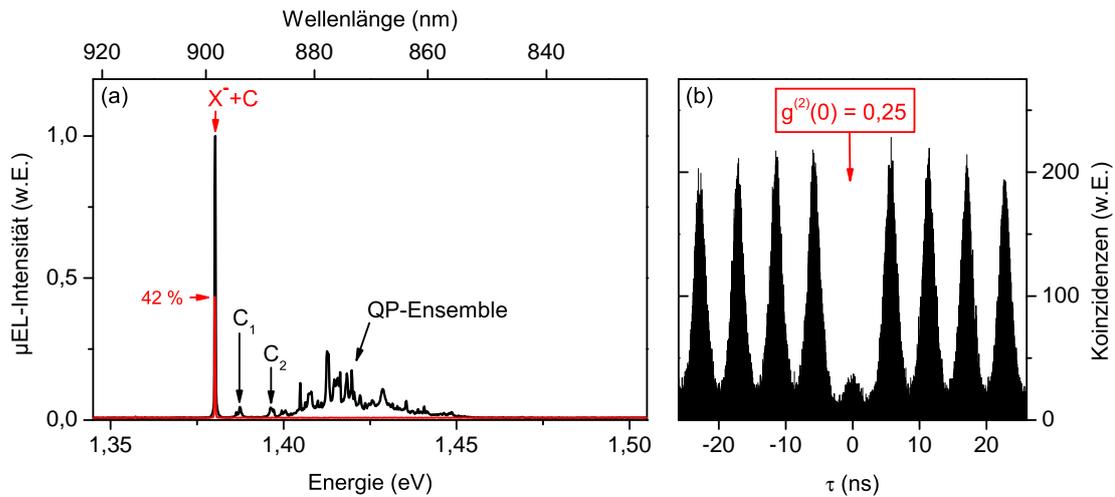


Abbildung 6.3: Testmessungen mit einem Bandpassfilter für den Einsatz in der QKD: (a) μ EL-Spektren der Einzelphotonenquelle aus Abbildung 6.2 vor (schwarz) und nach (rot) spektraler Filterung durch einen Interferenzfilter mit einer Transmission von 42 % bei einer Halbwertsbreite von 0,25 nm und einer 10 %-Bandbreite von 0,44 nm. (b) Mit diesem (0,25/0,44) nm-Bandpassfilter wurde ein Antibunching-Wert von $g^{(2)}(0) = 0,25$ erreicht.

6.2 (b)). Mehrphotonen-Emissionsereignisse sind folglich im Vergleich zu einer poissonverteilten Lichtquelle derselben mittleren Intensität um etwa eine Größenordnung unterdrückt [Yua02]. Erwähnenswert ist des Weiteren, dass die Schwankungen in der maximalen Emissionsintensität der QP-EPQ über einen Zeitraum von einigen Monaten unterhalb von 20 % lagen, wobei viele Einkühl- und Aufwärm-Zyklen durchlaufen wurden. Die Kombination aus Langzeitstabilität einerseits, und emissionsstarker Einzelphotonenemission bei niedrigen $g^{(2)}(0)$ -Werten andererseits, prädestiniert die QP-EPQ für die Durchführung von QKD-Experimenten.

Im Hinblick auf zukünftige Anwendungen der EPQn ist eine Miniaturisierung, nicht nur der Quelle selbst, sondern auch der notwendigen Peripherie erstrebenswert. Die notwendige spektrale Filterung der Einzelphotonen-Emission, welche bisher durch einen Gitter-Monochromator erfolgte, wird für das Senden der Qubits während der QKD daher mit einem kompakten Interferenzfilter realisiert. Aufgrund der verhältnismäßig hohen Q -Faktoren der Mikroresonatoren müssen, im Gegensatz zu Experimenten an Strukturen mit breitbandigerem Resonatoreffekt¹, für die QKD äußerst schmalbandige Interferenzfilter eingesetzt werden (siehe auch Anhang A.2). Die besten Ergebnisse werden mit einem Bandpassfilter (*Andover Corporation*) mit einer Halbwertsbreite von 0,25 nm und einer 10 %-Bandbreite

¹ In [Col10] wurde eine QP-Mikroresonatorstruktur mit 6/16 Spiegelpaaren im oberen/unteren DBR eingesetzt und bei spektraler Filterung durch einen 2 nm-Bandpassfilter ein $g^{(2)}(0)$ -Wert von 0,32 erreicht.

von 0,44 nm erzielt. Dieser zeichnet sich durch besonders steile Flanken der Transmissionskurve aus und basiert auf einem sogenannten *2-Cavity* Design, bei dem zwei Interferenzfilter übereinander gewachsen werden. Die maximale Transmission dieses Filters beträgt 0,42 %. Abbildung 6.3 (b) zeigt das μ EL-Spektrum der in Abbildung 6.2 vorgestellten EPQ vor (schwarze Kurve) und nach (rote Kurve) spektraler Filterung durch den (0,25/0,44) nm-Bandpassfilter ($f = 176$ MHz). Die Abstimmung der Zentralwellenlänge (ZWL) des Bandpassfilters bezüglich der QP-Emission erfolgt dabei durch leichte Verkipfung des Filters (hier $\approx 10^\circ$) relativ zur optischen Achse ($\Delta\lambda_{\max} \approx -7$ nm für eine Verkipfung um 15°). Nach dem Bandpassfilter wird das μ EL-Signal der QP-EPQ direkt in die fasergekoppelte HBT-Messanordnung eingekoppelt. Die entsprechende Photonen-Autokorrelationsmessung zeigt mit $g^{(2)}(0) = 0,25$ nur einen etwa um einen Faktor zwei höheren *Antibunching*-Wert (siehe Abbildung 6.3 (b)) im Vergleich zu der spektralen Filterung durch den Monochromator (vgl. Abbildung 6.2 (b)).

6.2.2 Experimentelle Messanordnung

Abbildung 6.4 zeigt schematisch die Messanordnung zur Durchführung der QKD-Experimente im Labormaßstab. Als Kern des Sender-Moduls („Alice“) ist die elektrisch kontaktierte QP-EPQ in die μ EL-Messanordnung von Abschnitt 3.3 integriert und wird mit einem Pulsgenerator betrieben. Die Emission der EPQ wird durch ein 20fach-Mikroskopobjektiv ($NA = 0,4$) kollimiert, durch einen Bandpassfilter spektral gefiltert und anschließend über einen Klappspiegel in eine Singlemode- (SM-) Glasfaser (Typ 780HP) eingekoppelt. Die Verwendung eines schmalbandigen Interferenzfilters¹ mit einer Transmission von 42 % anstatt eines Monochromators (≈ 30 %) unterstreicht nicht nur das Anwendungspotential des vorgestellten Konzeptes, sondern verringert darüber hinaus auch die optischen Verluste. Die Abstimmung der Zentralwellenlänge des Bandpassfilters bezüglich der Einzelphotonen-Emission erfolgt, wie im vorangehenden Abschnitt 6.2.1 erläutert, durch leichte Verkipfung des Filters relativ zur optischen Achse, wobei das Spektrum mit einem Monochromator mit CCD überprüft werden kann. Für die Durchführung von Photon-Autokorrelationsmessungen an der bandpassgefilterten Emission der Probe wird die fasergekoppelte HBT-Messanordnung (vgl. Abschnitt 3.3) direkt an die SM-Faser gekoppelt. Die Notwendigkeit der SM-Glasfaserverbindung selbst ergibt sich zum einen aus der Geometrie des weiter unten erläuterten elektrooptischen-Modulators (1 mm freie Apertur, 4 cm Länge), welcher eine hohe Strahlqualität voraussetzt. Zum anderen dient sie als flexible optische Verbindung zu der im Folgenden beschriebenen, auf einem separaten Breadboard

¹ Spezifikationen: FWHM = 0,25 nm, 10 %-Bandbreite = 0,44 nm, Transmission = 42 %;

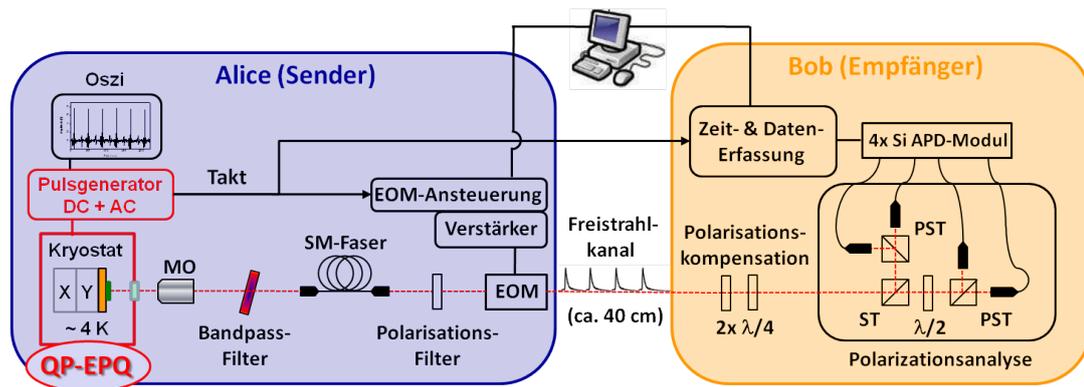


Abbildung 6.4: Schematische Darstellung der Messanordnung zur Durchführung von QKD-Experimenten im Labormaßstab auf der Basis des BB84-Protokolls. Der Quantenkanal in Freistrahloptik hat eine Länge von etwa 40 cm. Kern des Sender-Moduls „Alice“ ist eine elektrisch betriebene Quantenpunkt-Einzelphotonenquelle (QP-EPQ). Der zur Anregung verwendete elektrische Pulsgenerator liefert gleichzeitig den Takt für die Synchronisation der Messanordnung.

realisierten Messanordnung¹.

Für die Durchführung der QKD wird die Emission der EPQ nach der Auskopplung aus der SM-Glasfaser zunächst durch einen Linearpolarisator gesandt und anschließend die vier, für das BB84-Protokoll notwendigen Polarisationszustände mit einem schnellen (500 MHz Bandbreite) elektrooptischen-Modulator (EOM) (Modell: TWAM-10HP-75, *Quantum Technology, Inc.*) mit einem Kontrastverhältnis von 1:25 präpariert. Verwendet wurden hierbei die horizontal- und vertikal-linearen sowie links- und rechts-zirkularen Polarisationen ($|H\rangle$, $|V\rangle$, $|L\rangle$ und $|R\rangle$). Da es sich bei dieser QKD-Messanordnung um einen Demonstrationsaufbau handelt wurde der EOM mit einem 4-stufigen Rechtecksignal eines Wellenformgenerators angesteuert, welcher eine feststehende, sich wiederholende Abfolge der vier Polarisationszustände generiert². Nach dem EOM verlassen die Photonen den Sender und propagieren in der etwa 40 cm langen Freistrahlsverbindung in Richtung Empfänger-Modul („Bob“). Innerhalb Bobs werden die zirkularen Polarisations-Zustände zunächst durch zwei $\lambda/4$ -Wellenplättchen auf $\pm 45^\circ$ -Linearpolarisation gedreht und die horizontalen und vertikalen Achsen von Sender und Empfänger angeglichen. Anschließend erreichen die Photonen den Polarisationsanalysator, in welchem zunächst ein nichtpolarisierender Strahlteiler zufällig die Basis der Messung auswählt. Danach durchläuft der Strahlengang in dem einen Pfad einen polarisierenden Strahlteiler (PST), an welchem

¹ Der folgende Teil der Messanordnung sowie die Software-Implementation zur Durchführung des QKD-Protokolls wurde von Markus Rau (LMU-München) entwickelt.

² Für die tatsächliche Erzeugung eines sicheren Schlüssels nach dem BB84-Protokoll muss eine zufällige Abfolge der Polarisationszustände generiert werden.

die horizontal- und vertikal-lineare Polarisierung getrennt wird. In dem anderen Pfad befindet sich eine Kombination aus $\lambda/2$ -Wellenplättchen und polarisierendem Strahlteiler, wodurch die Trennung der $\pm 45^\circ$ -Linearpolarisationen erfolgt. An den vier Kanalausgängen der Polarisationsanalyse werden die Photonen durch fasergekoppelte Si-APDs (35 % Detektionseffizienz bei einer Wellenlänge von 900 nm) detektiert und die Signale an die zeiterfassende Elektronik weitergeleitet. Ein Rechner führt schließlich elektronisch eine zeitliche Filterung sowie die „Aussiebung“ (*key sifting*) der verwertbaren Detektionsereignisse durch, bei welchen Sender und Empfänger dieselbe Messbasis hatten. Als Takt für die Synchronisation der gesamten Messanordnung wird der Trigger-Ausgang des anregenden Pulsgenerators verwendet ($f = 183$ MHz).

6.2.3 Quanten-Schlüsselverteilungs-Experiment

Für die Durchführung des QKD-Experimentes wird die in Abschnitt 6.2.1 vorgestellte QP-EPQ mit einer Emissionswellenlänge von $\lambda_{\text{EPQ}} = 897$ nm eingesetzt ($T = 20$ K). Die EPQ sowie die übrige Messanordnung aus Abbildung 6.4 wird mit einer Anregungs-Repetitionsrate f von 183 MHz getaktet. Amplitude U_{AC} und zeitliche Breite Δt der Spannungspulse betragen 6,0 V bzw. 200 ps. Der DC-Offset U_{DC} hingegen dient, wie in Abschnitt 4.5 beschrieben, als Kontroll-Parameter für die Einzelphotonenemissionsrate. Der nichtklassische Charakter der Einzelphotonen-Pulse innerhalb des Quantenkanals wird überwacht, indem die glasfaserbasierte HBT-Messanordnung für $g^{(2)}(\tau)$ -Messungen direkt an die bandpassgefilterte Emission der QP-EPQ in der SM-Glasfaser gekoppelt wird.

Abbildung 6.5 (a) und (b) zeigt die gemessenen *sifted-key rates*, das zugehörige Quanten-Bitfehlerverhältnis (*QBER*) sowie den jeweiligen $g^{(2)}(0)$ -Wert¹. Bei niedriger Anregung ($U_{\text{DC}} = 1,350$ V) beträgt die *sifted-key rate* 8,6 kbit/s bei einem $g^{(2)}(0)$ -Wert von 0,30. Mit zunehmendem DC-Offset steigt die Schlüsselrate bis auf 27,2 kbit/s bei $U_{\text{DC}} = 1,400$ V an wobei der $g^{(2)}(0)$ -Wert nur geringfügig auf 0,35 zunimmt. Die entsprechende Photon-Autokorrelationsmessung dieses Arbeitspunktes ist in dem eingebetteten Graphen in Abbildung 6.5 (a) dargestellt. Eine weitere Erhöhung von U_{DC} bewirkt schließlich eine Sättigung der Schlüsselrate sowie einen merklichen Anstieg des $g^{(2)}(0)$ -Wertes. Ersteres ist dabei auf die Sättigung der QP-Emission selbst zurückzuführen, während die Zunahme der Mehrphotonen-Emissionsereignisse durch den zunehmenden Beitrag unkorrelierter Hinter-

¹ Für die Berechnung von $g^{(2)}(0) = A_0/\bar{A}$ wurden in diesem Kapitel die gemessenen Koinzidenzen summiert um die Fläche A_0 des Peaks bei $\tau = [-(2f)^{-1}, +(2f)^{-1}]$ sowie den Mittelwert \bar{A} der Flächen der Peaks bei $\tau \neq 0$ zu bestimmen. Da keinerlei Korrekturen der Messdaten bezüglich der Dunkelzählraten der Detektoren erfolgten sind die angegebene Werte jeweils eine obere Grenze für die Zweiphotonen-Emissionswahrscheinlichkeit in dem Quantenkanals.

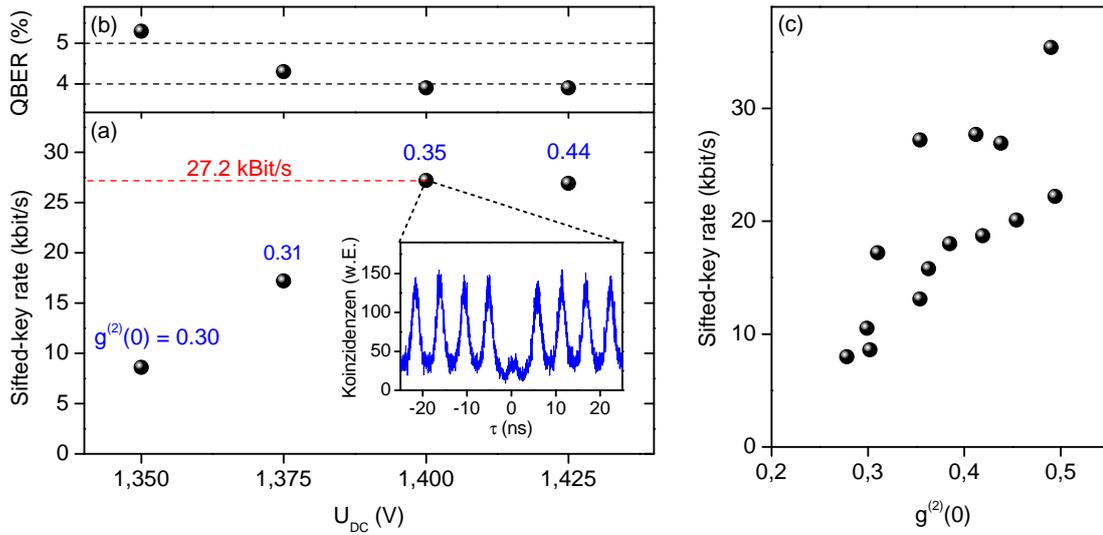


Abbildung 6.5: QKD-Experiment mit einer elektrisch betriebenen Quantenpunkt-Einzelphotonenquelle ($T = 20$ K) bei einer Anregungs-Repetitionsrate von $f = 183$ MHz über eine Distanz von 40 cm: (a) *sifted-key rate* sowie entsprechende $g^{(2)}(0)$ -Werte (blau) in Abhängigkeit des DC-Offsets U_{DC} . Die Unterabbildung zeigt die $g^{(2)}(\tau)$ -Messung bei einer *sifted-key rate* von 27,2 kbit/s und verifiziert mit $g^{(2)}(0) = 0,35 < 0,5$ die Einzelphotonen-Emission innerhalb des Quantenkanals. (b) Gemessenes Quanten-Bitfehlerverhältnis (*QBER*) der Daten in (a). (c) *Sifted key rate* aufgetragen über dem $g^{(2)}(0)$ -Wert.

grundemission der fundamentalen optischen Mode hervorgerufen wird. Des Weiteren sind die erzielten $g^{(2)}(0)$ -Werte gegenüber Messungen mit einem Monochromator leicht erhöht, was durch die größere Bandbreite des eingesetzten (0,25/0,44)nm-Interferenzfilters zu erklären ist (vgl. Abschnitt 6.2). Die limitierenden Faktoren für die Schlüsselraten werden am Ende dieses Abschnittes näher analysiert.

Abbildung 6.5 (b) dokumentiert, dass die erzielten Schlüsselraten jeweils bei geringen Fehlerraten deutlich unter 10 % aufgezeichnet wurden - eine entscheidende Voraussetzung für die Sicherheit der QKD (vgl. Abschnitt 6.1). Die beobachtete Abnahme des *QBER* von 5,3 % auf 3,9 % mit zunehmender Anregung ist, wie im Folgenden erläutert, auf die Verbesserung des Signal-zu-Hintergrund Verhältnisses zurückzuführen. Nach Gisin et al. kann das *QBER* wie folgt beschrieben werden [Gis02]:

$$QBER \approx \underbrace{p_{opt}}_{QBER_{opt}} + \underbrace{R_{Det}/R_{sifted}}_{QBER_{Det}} \cdot \quad (6.1)$$

Dabei bezeichnet p_{opt} die Wahrscheinlichkeit für ein Photon, einen falschen Polarisationskanal zu durchlaufen und $R_{Det} = \frac{1}{4}\tilde{D}$ einen Beitrag zur detektierten *sifted-key rate* R_{sifted} , welcher durch die Dunkelzählrate D ($4 \cdot 500$ Hz) sowie Streulicht hervorgerufen wird. Da-

bei ist zu beachten, dass von der Dunkelzählrate D durch die zeitliche Filterung nur etwa 25 % zur *sifted-key rate* beitragen ($\tilde{D} \approx 0,25 \cdot D$). Das gemessene $QBER$ setzt sich demnach aus einem, der optischen Messanordnung intrinsischen Beitrag $QBER_{\text{opt}}$ und dem relativen Detektorbeitrag $QBER_{\text{Det}}$ zusammen. Bei hohen Schlüsselraten ist letzterer zu vernachlässigen und das $QBER$ ist durch das Kontrastverhältnis des EOMs (1:25) limitiert: $QBER_{\text{opt}} \approx 4\%$ [Gis02]. Bei niedrigen Schlüsselraten hingegen nimmt der relative Beitrag der Hintergrund-Zählrate zu und führt über den Term $QBER_{\text{Det}}$ zu dem beobachteten Anstieg des $QBER$.

Erfolgt neben U_{DC} auch eine inkrementelle Variation der restlichen Anregungsparameter sowie jeweils eine Anpassung der zeitlichen Filterung der Detektionselektronik, so konnte eine maximale *sifted-key rate* von 35,4 kbit/s bei einem $QBER$ von 3,8 % und $g^{(2)}(0) = 0,49$ erzielt werden. Die entsprechenden Schlüsselraten bei unterschiedlichen Anregungsbedingungen zeigt Abbildung 6.5 (c) aufgetragen über dem $g^{(2)}(0)$ -Wert. Das zugehörige $QBER$ lag dabei weiterhin auf einem niedrigen Niveau (3,8 % bis 6,7 %). Die hier erstmals mit einer elektrisch betriebenen EPQ erzielten Schlüsselraten sind dabei vergleichbar mit dem Bestwert für optische gepumpte QP-EPQn, welcher von Waks et al. mit einer sicheren Kommunikationsrate von 25 kbit/s berichtet wurde [Wak02a]. Andere Arbeiten mit ebenfalls optisch gepumpten QP-EPQn erzielten beispielsweise eine *sifted-key rate* von 16 bit/s [Int07], eine *secure key rate* von 288 bit/s [Col10] oder eine *raw key rate* von 102 bit/s über eine 50 km lange Glasfaserverbindung [Tak10].

Um die limitierenden Faktoren für die erzielten Schlüsselraten zu identifizieren ist eine Abschätzung der Photonenemissionsrate der eingesetzten QP-EPQ von Interesse. Bei einem Arbeitspunkt moderater Anregungsstärke der QP-EPQ (*sifted-key rate*=27,2 kbit/s, $g^{(2)}(0) = 0,35$; vgl. Abbildung 6.5 (a)) beträgt die Detektionsrate einer direkt an die SM-Glasfaser gekoppelten Si-APD etwa $\dot{n}_{\text{APD}} = 0,25$ MHz. Die Gesamttransmission der Messanordnung bis zu diesem Punkt kann zu $\eta_{\text{Setup}} \approx 3,3\%$ abgeschätzt werden¹. Die Photonenemissionsrate der QP-EPQ in das Mikroskopobjektiv beträgt demnach $\dot{n}_{\text{APD}}/\eta_{\text{Setup}} \approx 7,6$ MHz. Ausgehend von der APD-Detektionsrate an der SM-Glasfaser (0,25 MHz) kann unter Berücksichtigung des Polarisationsfilters (50 %) und der Transmission des EOMs (80 %) auf eine Photonenrate innerhalb des Quantenkanals² von $\dot{n}_{\text{Alice}} = 0,29$ MHz geschlossen werden. Dies entspricht einer mittleren Photonenanzahl pro Puls von $\mu_{\text{Alice}} = \dot{n}_{\text{Alice}}/f = 0,0016$. Die Transmission der Messanordnung von der SM-Glasfaser bis ein-

1 Dabei wird die Transmission der einzelnen Komponenten wie folgt berücksichtigt: Kryostaten-Fenster (97 %), Mikroskopobjektiv (70 %), fünf Spiegel (88 %), Bandpassfilter (42 %), SM-Glasfasereinkopplung (38 %), APD-Detektionseffizienz (35 %);

2 $\dot{n}_{\text{Alice}} = \dot{n}_{\text{APD}} \cdot \eta_{\text{APD}}^{-1} \cdot T_{\text{Pol}} \cdot T_{\text{EOM}}$

schließlich der Detektion durch die APDs wurde unabhängig von der obigen Abschätzung mit einem Laser bestimmt und beträgt etwa 16 %. Bei „Bob“ wird demnach eine detektierte Photonenrate von $\dot{n}_{\text{Bob}} \approx \dot{n}_{\text{APD}} \cdot \eta_{\text{APD}}^{-1} \cdot 0,16 = 114 \text{ kHz}$ erwartet. Die Diskrepanz zu der gemessenen *sifted-key rate* von 27,2 kbit/s ist schließlich auf den *key sifting*-Schritt der rohen Schlüsselrate (50 %) sowie die zeitliche Filterung der Pulse zurückzuführen. Letztere ermöglicht dabei die im Experiment erzielten, niedrigen Quanten-Bitfehlerraten.

Ansatzpunkte für eine weitere Optimierung der Messanordnung bietet zum Beispiel eine direktere Kopplung der QP-EPQ an die SM-Glasfaser durch eine weitere Reduzierung optischer Komponenten zwischen Mikroskopobjektiv und SM-Glasfasereinkopplung. Des Weiteren ist anzumerken, dass gegenüber den optimalen Arbeitspunkten der QP-EPQn bei Anregungs-Repetitionsraten f von 199 MHz bzw. 220 MHz (vgl. Abschnitt 6.2.1 und 4.5) eine Reduzierung von f aufgrund der endlichen Bandbreite des EOMs (500 MHz) erfolgen musste. Aufgrund der hochfrequenten Anteile der zu modulierenden stufenförmigen Signale kann ein hoher Polarisationskontrast und damit eine geringe Quanten-Bitfehlerrate nur bei Taktraten, welche erheblich unterhalb der Bandbreite liegen, erzielt werden. Darüber hinaus ist aus konzeptionell-technologischer Sicht bei der QKD mittels Freistrahverbindungen insbesondere der Einsatz von InP-QPn von großem Interesse, da deren Emission im sichtbaren Spektralbereich ($\approx 650 \text{ nm}$) nahe der maximalen Detektionseffizienz der Si-basierten APDs liegt [Roß08, Rei10a]. Und auch der Einsatz von polarisierten QP-EPQn [Str07, Kre12, Des13b, Bra13] bietet eine weitere Möglichkeit die erzielbaren Schlüsselraten zu erhöhen, da in diesem Fall auf den Linearpolarisator vor der Zustandspräparation verzichtet werden kann.

6.3 500 m-Freistrahlexperiment

Aufbauend auf den Ergebnissen der Laborexperimente in Würzburg (siehe Abschnitt 6.2) erfolgte ein weiteres QKD-Experiment in München mit dem Ziel, die Skalierbarkeit der Quanten-Schlüsselverteilung mittels elektrisch betriebener Einzelphotonenquellen unter Beweis zu stellen. Zu diesem Zweck wurde die Übertragungsdistanz in Freistrahloptik von 40 cm auf 500 m gesteigert. Sender (Alice) und Empfänger (Bob) wurden auf den Dächern zweier Gebäude der Ludwig-Maximilians-Universität in der Innenstadt Münchens postiert. Wie der schematischen Kartenansicht in Abbildung 6.7 entnommen werden kann, erfolgte die Übertragung der einzelnen Photonen über zwei Straßenzüge hinweg in Richtung Südwesten in einer Höhe von etwa 26 m über Grund (ca. 540 m über Normalhöhennull).

In Abschnitt 6.3.1 wird zunächst die experimentelle Messanordnung beschrieben, wobei der Schwerpunkt auf die Herausforderungen, welche mit einem derart dimensionierten

Experiment verbunden sind, gelegt wird. Eine Zusammenfassung der erzielten Ergebnisse folgt in Abschnitt 6.3.2.

6.3.1 Experimentelle Messanordnung

Die experimentelle Messanordnung des QKD-Experimentes ist in Abbildung 6.6 schematisch dargestellt. Auf Senderseite, in einem Raum direkt unterhalb des Gebäudedaches, befindet sich zunächst das Einzelphotonenquellen-Modul welches den Betrieb der EPQ sicherstellt. Von dort führt eine SM-Glasfaserverbindung zu der 500 m-Freistrahlinnverbindung zwischen Sender- und Empfänger-Teleskop, bei welcher die Zustandspräparation bzw. Zustandsdetektion erfolgt. Die einzelnen Messanordnungen des QKD-Experimentes werden im Folgenden näher erläutert.

Einzelphotonenquellen-Modul

Auf Senderseite wird die Emission der EPQ mittels eines Mikroskopobjektives kollimiert, durch einen schmalbandigen Interferenzfilter¹ spektral gefiltert und in eine SM-Glasfaser eingekoppelt. Zur Kühlung der EPQ wurde, anstatt des bisherigen ℓHe_4 Durchfluss-Kryostaten, ein Pulsröhrenkühler² (Modell: ATTODRY700, *attocube systems*) eingesetzt. Dieser ist auf eine Temperatur von 4 K spezifiziert und nicht auf eine Infrastruktur für flüssiges Helium angewiesen. Ein Vorteil dieses speziellen Kryostaten-Modells gegenüber anderen, sogenannten *closed-cycle*-Systemen, ist die starke Reduzierung der Vibrationen, welche durch die funktionsbedingten, niederfrequenten (ca. 1 Hz) Druckschwankungen innerhalb des Kompressors zustande kommen. Die über Mini-Koaxialkabel elektrisch kontaktierte EPQ ist über drei Piezoaktuatoren (Modelle: 2x ANPx101, 1x ANPz101, *attocube systems*) innerhalb des Kryostaten in allen drei Raumrichtungen positionierbar. Die Emission der Probe wird mittels eines tieftemperatur-tauglichen Mikroskopobjektives ($\text{NA} = 0,68$) noch innerhalb des Kryostaten kollimiert und durch ein Glasfenster ausgekoppelt. Der kompakte Aufbau, bestehend aus dem Kryostaten selbst und der Messapparatur zur spektroskopischen Charakterisierung (aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht in Abbildung 6.6 dargestellt), fand auf einem Breadboard mit den Abmessungen $(1,20 \times 0,80) \text{ m}^2$ Platz und ist in Abbildung 6.7 gezeigt. Für $g^{(2)}(\tau)$ -Messungen innerhalb des Quantenkanals kann die MM-glasfaserbasierte HBT-Messanordnung aus Abschnitt 3.3 direkt mit der SM-Glasfaser

¹ Spezifikationen: FWHM = 0,23 nm, 10 %-Bandbreite = 0,44 nm, Transmission = 48 %;

² Diese Art von Kryostat basiert auf dem Prinzip des Stirlingmotors. Der Pulsröhrenkühler enthält jedoch keine beweglichen Teile in der Umgebung der Kältesenke, wodurch die erzielbare Temperatur nicht durch die entstehende Reibungswärme limitiert ist [Rad00].

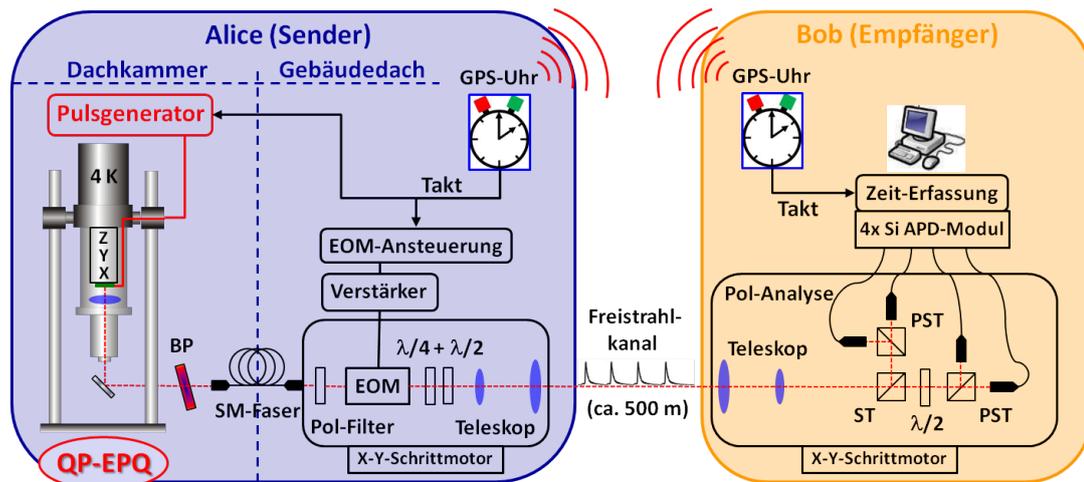


Abbildung 6.6: Schematische Darstellung der Messanordnung zur Durchführung von QKD-Experimenten auf Basis des BB84 Protokolls über eine Distanz von 500 m. Auf Senderseite befindet sich das Modul mit einer elektrisch betriebene Quantenpunkt-Einzelphotonenquelle (QP-EPQ) in einer Dachkammer und das Sender-Teleskop sowie die Optiken zur Zustands-Präparation auf dem Gebäudedach selbst. Das Empfänger-Teleskop und die Zustandsanalyse von Bob befinden sich auf einem weiteren Gebäudedach. Die Synchronisation von Alice und Bob ist über zwei GPS-Uhren realisiert.

verbunden werden, welche während der QKD als optischer Link zum Sender-Teleskop auf dem Dach fungiert.

500 m-Freistrahlsverbindung und Elektronik

Von dem Einzelphotonenquellen-Modul aus wird die durch den Interferenzfilter spektral selektierte Emission der Probe über eine 20 m lange SM-Glasfaser auf das Gebäudedach zum Sender-Teleskop geleitet. Hier werden in einem freistehenden Modul zunächst die Polarisationszustände der einzelnen Photonen durch eine Kombination von Linearpolarisator und EOM präpariert (siehe Abbildung 6.6). Wie in Abschnitt 6.2.2 wurde dabei eine feststehende, sich wiederholende Abfolge der vier nötigen Polarisationszustände generiert. Die nachfolgenden Wellenplättchen dienen der Anpassung der horizontalen und vertikalen Achsen von Sender und Empfänger. Nach der Zustandspräparation werden die Einzelphotonen-Pulse über ein Teleskop mit einer 3"-Linse in den Quantenkanal in Richtung Empfänger eingekoppelt. Die optischen Komponenten sind auf einem Breadboard montiert, welches über zwei Schrittmotoren computergesteuert positioniert und so gegenüber dem Empfänger ausgerichtet werden kann. Das Sender-Teleskop befindet sich in einem Aluminium-Gehäuse, um die Optiken vor äußeren Wettereinflüssen zu schützen.

Der 500 m weit entfernt gelegene Empfänger (Bob) befindet sich ebenfalls freistehend

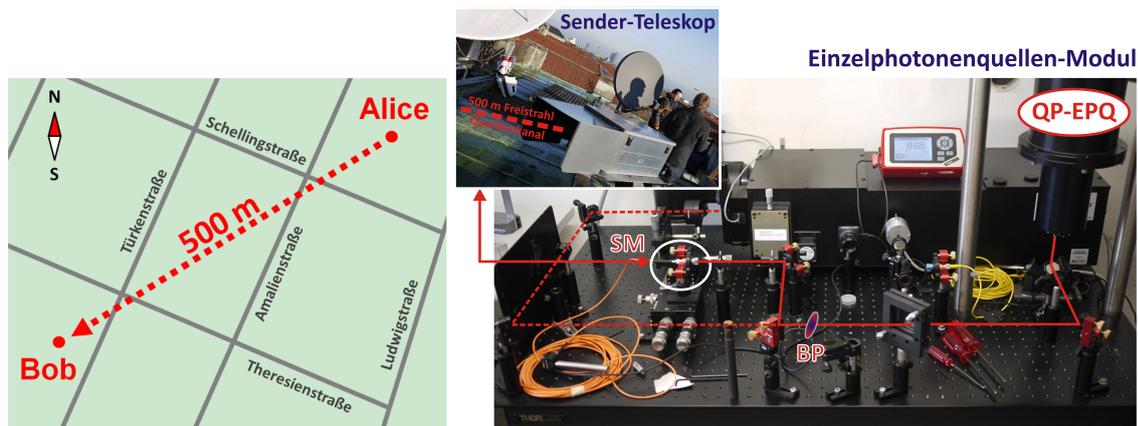


Abbildung 6.7: Links: Schematische Kartenansicht des QKD-Experimentes in München: Sender (Alice) und Empfänger (Bob) befinden sich auf den Dächern zweier Gebäude der Ludwig-Maximilians-Universität und sind mittels zweier Teleskope über einen 500 m langen Quantenkanal miteinander verbunden. Rechts: Modul für den Betrieb der elektrisch betriebenen Quantenpunkt-Einzelphotonenquelle (QP-EPQ) bei Alice: Die QP-EPQ wird mittels eines *closed-cycle* Kryostaten gekühlt. Für die QKD wird die Emission der QP-EPQ durch einen schmalbandigen Bandpass (BP) spektral gefiltert und über eine Singlemode-Glasfaser (SM) an das Sender-Teleskop auf dem Gebäudedach gekoppelt (durchgezogene, roter Pfeil). Ein Monochromator und eine glasfaserbasierte Hanbury-Brown und Twiss Messanordnung (nicht abgebildet) dienen der spektralen Charakterisierung sowie der Überwachung der $g^{(2)}(0)$ -Werte der QP-EPQ.

auf dem Dach eines zweiten LMU-Gebäudes. Das Signal des Quantenkanals wird dort durch das zweite Teleskop auf eine vierkanalige Einheit zur Polarisationsanalyse, mit zufälliger, passiver Wahl der Polarisationsbasis, abgebildet (vgl. hierzu auch Abschnitt 6.4). Auch wenn die QKD-Experimente ausschließlich Nachts durchgeführt wurden, ist die Unterdrückung von Streulicht essentiell für ein gutes Signal-zu-Rausch Verhältnis und damit niedrige Quanten-Bitfehlerraten während der QKD-Messungen. Daher ist der Polarisationsanalyse ein Bandpassfilter mit einer Halbwertsbreite von 40 nm vorgeschaltet. Als Detektoren wurden in diesem Fall vier passiv gequenchte, Peltier-gekühlte Si-APDs mit einer Detektorfläche von $500 \mu\text{m}$ eingesetzt (4 kHz addierte Dunkelzählrate). Das Empfänger-Modul ist ebenfalls mittels computergesteuerter Schrittmotoren positionierbar und durch ein Aluminium-Gehäuse gegenüber Wittereinflüssen geschützt. Die Abschwächung durch den Quantenkanal einschließlich der Detektoren konnte mit einem Referenz-Laser zu 10 dB bestimmt werden.

Die für die Durchführung der QKD notwendige, präzise zeitliche Synchronisation zwischen Sender und Empfänger erfolgte aufgrund der großen Distanz zwischen Alice und

Bob kabellos mittels zweier GPS¹ disziplinierter Quarz-Oszillatoren (GPS-Uhr), welche jeweils auf Sender- und Empfängerseite als globale 10 MHz-Referenzfrequenz dienen. Dies erlaubte eine Synchronisation mit einer Genauigkeit von etwa 30 ps, limitiert durch Phasendrifts der GPS-Uhren relativ zueinander. Auf Senderseite wird diese Referenzfrequenz zu der nötigen Anregungsfrequenz der EPQ ($f = 125$ MHz) konvertiert und als Signal an den Trigger-Eingang des elektrischen Pulsgenerators sowie der Ansteuerung des EOMs gegeben. Der EOM selbst generiert, wiederum mit einer fest vorgegebenen, sich wiederholenden Abfolge die vier Polarisationszustände des BB84 Protokolls. Auf Empfängerseite werden die Detektionsereignisse mit einer zeiterfassenden Elektronik, welche an Bobs GPS-Uhr gekoppelt ist, registriert und an einen PC weitergeleitet. Nach dem softwarebasierten zeitlichen Filtern des Signals (1,8–2,2 ns Akzeptanz-Fenster) und einem *key-sifting* Schritt wird schließlich, durch den Vergleich der Detektionsereignisse in den verschiedenen Polarisations-Kanälen mit der bekannten Polarisationsabfolge des Senders, die Quanten-Bitfehlerrate bestimmt.

6.3.2 Quanten-Schlüsselverteilungs-Experiment

Für das QKD-Experiment über eine Distanz von 500 m wurde ebenfalls eine EPQ mit einem Resonator Durchmesser von $d_C = 2,0$ μm eingesetzt, welche in Testmessungen einen $g^{(2)}(0)$ -Werte von 0,23 bei einer Anregungs-Repetitionsrate von 180 MHz erreichte.

Sender- und Empfänger-Teleskop wurden zueinander ausgerichtet, indem ein Referenz-Laser über die SM-Glasfaserverbindung bei Alice in die Freistrahverbindung eingekoppelt wurde. Mit dem Laser konnte zugleich auch die Anpassung der Polarisationsachsen von Sender und Empfänger erfolgen. Anschließend erfolgte die Einkopplung der gepulsten Emission des Einzelphotonenquellen-Moduls in den 500 m-Quantenkanal.

Die EPQ wurde gepulst-elektrisch bei einer Anregungs-Repetitionsrate von $f = 125$ MHz und einer Pulsbreite von $\Delta t \approx 1,0$ ns betrieben ($T = 56$ K). Die Emissionswellenlänge während des QKD-Experimentes betrug $\lambda_{\text{EPQ}} = 910$ nm. Die Anregungsstärke der EPQ, charakterisiert durch Wertepaare $(U_{\text{DC}}, U_{\text{AC}})$ wurde über einen großen Bereich variiert und für jeden Arbeitspunkt eine separate Messung von $g^{(2)}(0)$ durchgeführt. Die Ergebnisse der *sifted-key-rate* und des Quanten-Bitfehlerverhältnisses (*QBER*) sind in Tabelle 6.8 zusammengefasst. Im Regime niedriger Anregung wird eine *sifted-key-rate* von 7,4 kbit/s bei einem *QBER* von 7,2 % erreicht ($U_{\text{DC}} = 2,00$ V, $U_{\text{AC}} = 4,75$ V). Der beobachtete Antibunching-Wert weist, mit $g^{(2)}(0) = 0,39$, eindeutig den Einzelphotonen-Charakter der in den Quantenkanal eingekoppelten Emission nach. Bei einer hohen Anregungsstärke

¹ Global Positioning System

Distanz	f (MHz)	niedrige Anregung			moderate Anregung			hohe Anregung		
		SKR (kbit/s)	QBER (%)	$g^{(2)}(0)$	SKR (kbit/s)	QBER (%)	$g^{(2)}(0)$	SKR (kbit/s)	QBER (%)	$g^{(2)}(0)$
40 cm	183	8,0	6,7	0,28	27,2	3,9	0,35	35,4	3,8	0,49
500 m	125	7,4	7,2	0,39	11,6	6,2	0,46	16,8	6,3	0,71

Abbildung 6.8: Zusammenfassung der Ergebnisse der beiden QKD-Experimente mit gepulst-elektrisch betriebenen QP-EPQn: Angegeben sind die *sifted-key-rate* (SKR), das Quanten-Bitfehlerverhältnis (*QBER*) sowie der $g^{(2)}(0)$ -Wert innerhalb des Quantenkanals.

der EPQ wächst die *sifted-key-rate* bis auf einen maximalen Wert von 16,8 kbit/s bei einem *QBER* von 6,3 % ($U_{DC} = 2,75$ V, $U_{AC} = 5,00$ V). Auch in diesem Regime der starken Anregung ist die Photonen-Statistik der Emission, mit $g^{(2)}(0) = 0,71$, noch deutlich im nichtklassischen Bereich ($g^{(2)}(0) < 1$). Jedoch ist die Einzelphotonen-Emission der betrachteten QP-Exzitonlinie merklich durch den unkorrelierten Hintergrundbeitrag der Resonatorgrundmode maskiert. Die höchste erzielte *sifted-key-rate* im Einzelphotonen-Regime beträgt 11,6 kbit/s bei $g^{(2)}(0) = 0,46$ (*QBER* = 6,2 %) und wurde bei einer moderaten Anregungsstärke aufgezeichnet ($U_{DC} = 2,25$ V, $U_{AC} = 5,00$ V).

Das erzielte *QBER* liegt jeweils deutlich unter 10 %, womit eine sichere Schlüsselverteilung möglich wäre (vgl. Abschnitt 6.1). Bei niedriger Anregungsstärke ist das *QBER* vergleichbar mit dem Wert des Laborexperimentes. Bei moderater bzw. hoher Anregung der QP-EPQ liegt das *QBER* des 500-m-Experimentes etwa 2 % über den Werten des 40-cm-Experimentes. Dies ist konsistent mit der höheren Dunkelzählrate der vier passiv gequenchten APDs (4 kHz), welche nach Gleichung 6.1 neben den 4 % des EOMs ebenfalls zu dem gesamten *QBER* beiträgt. Dabei ist wieder zu berücksichtigen, dass durch die zeitliche Filterung nur etwa $\frac{2 \text{ ns}}{8 \text{ ns}} = 25$ % der Dunkelzählrate zur *sifted-key rate* beitragen.

Um die limitierenden Faktoren für die erzielten Schlüsselraten zu identifizieren, wird analog zu Abschnitt 6.2.3 die Effizienz der QP-EPQ sowie der Messanordnung analysiert. Im Bereich der höchsten Anregungsstärke kann aus den APD-Detektionsraten in der SM-Glasfaser ($\dot{n}_{APD} = 0,40$ MHz) und der Transmission der vorliegenden Messanordnung ($\eta_{Setup} \approx 3,9\%$ ¹) eine Photonenemissionsrate der QP-EPQ in das Mikroskopobjektiv von $\dot{n}_{APD}/\eta_{Setup} \approx 10,3$ MHz abgeschätzt werden. Dies entspricht einer mittleren Photonenanzahl pro Puls von $\mu_{EPQ} = 0,082$. Weitere Verluste durch die Optiken für die

1 Transmission der einzelnen Komponenten: Mikroskopobjektiv (70 %), Kryostaten-Fenster (97 %), vier Spiegel (90 %), Bandpassfilter (48 %), SM-Glasfasereinkopplung (38 %), APD-Detektionseffizienz (35 %);

Zustandspräparation (Linearpolarisator, EOM, etc.) führen in dem Quantenkanal zu einer mittleren Photonenzahl pro Puls von $\mu_{\text{Alice}} = 0,0034$. Folglich ist unter Einbeziehung der Transmission des Quantenkanals einschließlich der Detektoren ($T_{\text{Kanal}} \approx 10\%$) eine *sifted-key-rate* von $\frac{1}{2} \cdot \mu_{\text{Alice}} \cdot T_{\text{Kanal}} \cdot f \approx 21$ kbit/s zu erwarten. Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit dem im Experiment gemessenen 16,8 kbit/s, wobei die verbleibende Diskrepanz auf die zeitliche Filterung der Detektionsereignisse zurückzuführen ist.

Eine detailliertere Beschreibung und Analyse der experimentellen Daten dieses Münchener QKD-Experimentes¹ über eine Distanz von 500 m erfolgt in der Dissertation von Markus Rau (Experimentelle Quantenphysik, Ludwig-Maximilians-Universität München).

Die in diesem Kapitel demonstrierte Implementierung elektrisch betriebener, halbleiterbasierter Einzelphotonenquellen in Experimenten zur QKD stellt einen wichtigen Schritt hinsichtlich der Realisierung effizienter und praktikabler QKD-Systeme dar. Die oben diskutierten optischen Verluste innerhalb des QKD-Systems müssen jedoch weiter reduziert werden (vgl. auch Abschnitt 6.2.3), um den Vorteil nicht-klassischer Lichtquellen gegenüber abgeschwächten Laserpulsen umsetzen zu können. Ist die mittlere Photonenzahl pro Puls μ_{Alice} einer Einzelphotonenquelle innerhalb des Quantenkanals vergleichbar mit der mittleren Intensität der abgeschwächten Laserpulse $\mu_{\text{Laser}} \approx 0,1 - 0,4$, wie sie häufig in *Decoy*-Protokollen verwendet werden [Wan05, Lou05b], so können mit der Einzelphotonenquelle höhere sichere Schlüsselraten erzielt werden, da der *sifted-key* der abgeschwächten Laserpulse aufgrund der Poisson-Statistik stärker reduziert werden muss. Mögliche Ansätze zur Optimierung des QKD-Systems sowie einer weiteren Steigerung der Effizienz von Einzelphotonenquellen wurden in Abschnitt 6.2.3 erläutert.

Um elektrisch betriebene, nicht-klassische Lichtquellen auch im Raumtemperatur-Betrieb in QKD-Systemen einsetzen zu können, sind entscheidende Impulse alternativer Materialsysteme nötig. Vielversprechend sind in diesem Zusammenhang QPe auf Basis des CdSe- [Mic00a, Ari08] und InGaN- [Kak06, Des13a] Materialsystems. Bereits bei Raumtemperatur zu betreibende Einzelphotonenquellen sind einzelne Fehlstellen in Diamant-Nanokristallen [Kur00], welche unter optischer Laseranregung bereits für die QKD eingesetzt wurden [Bev02, All04, Lei13]. Mizuochi et al. erreichten vor kurzem erstmals auch Einzelphotonen-Emission einzelner Stickstoff-Fehlstellen im elektrischen Betrieb [Miz12].

¹ Die Beiträge zu dem Experiment waren wie folgt aufgeteilt: Der Autor dieser Arbeit war verantwortlich für die Konzeptionierung, den Aufbau und den Betrieb des Einzelphotonenquellen-Moduls aus Abbildung 6.7. Markus Rau (LMU-München) entwickelte die nötige Elektronik sowie die Software-Implementation für die Durchführung des QKD-Protokolls und steuerte die beiden Teleskop-Module auf Sender- und Empfängerseite.

Diesbezüglich wurden nicht zuletzt auch bei einzelnen, in organischen Leuchtdioden eingebetteten Molekülen große Fortschritte erzielt [Not12].

6.4 Zusammenfassung des Kapitels

Dieses Kapitel beschrieb die erstmalige Implementierung elektrisch betriebener Quantenpunkt-Einzelphotonenquellen in Experimenten zur Quanten-Schlüsselverteilung (QKD). Basierend auf den in Kapitel 4 eingehend analysierten Quantenpunkt-Mikroresonatoren, konnten zwei Experimente in Freistrahloptik mit unterschiedlichen Übertragungsdistanzen demonstriert werden: Das in Würzburg durchgeführte Laborexperiment basiert auf einem Quantenkanal mit einer Länge von ca. 40 cm. Das zweite QKD-Experiment wurde über eine Distanz von 500 m in der Münchner Innenstadt zwischen den Dächern zweier Gebäude der Ludwig-Maximilians-Universität realisiert. In beiden Experimenten wurde ein BB84-Protokoll nachgeahmt, indem auf die einzelnen Photonen eine feststehende Abfolge von vier unterschiedlichen Polarisationszuständen aufmoduliert wurde. Die Ergebnisse der Experimente sind in Tabelle 6.8 zusammengefasst.

Im Rahmen des Laborexperimentes (40 cm), welches bei einer Taktrate von 183 MHz arbeitete, konnten bei moderater Anregung der Einzelphotonenquelle ausgesiebte Schlüsselraten (*sifted-key rate*) von 27,2 kbit/s bei einem Quanten-Bitfehlerverhältnis (*QBER*) von 3,9 % erzielt werden. Der Einzelphotonen-Charakter der Emission innerhalb des Quantenkanals konnte dabei mit einem $g^{(2)}(0)$ -Wert von 0,35 eindeutig nachgewiesen werden. Die maximale *sifted-key rate* im Einzelphotonen-Regime ($g^{(2)}(0) = 0,49 < 0,5$) betrug 35,4 kbit/s bei einem *QBER* von 3,8 %. Dabei führte die höhere Anregung der Einzelphotonenquelle aufgrund der unkorrelierten Hintergrundemission der Resonatorgrundmode zu einer Zunahme des $g^{(2)}(0)$ -Wertes.

Für das QKD-Experiment in München wurden die Einzelphotonen-Pulse der Quantenpunkt-Mikroresonatoren von einem Sender- zu einem 500 m weit entfernt gelegenen Empfänger-Teleskop gesandt. Die Messungen wurden bei einer Taktrate von 125 MHz durchgeführt. Die erzielte *sifted-key rate* bei niedriger Anregung betrug 7,4 kbit/s bei einem *QBER* von 7,2 %, wobei mit einem Antibunching-Wert von $g^{(2)}(0) = 0,39$ eindeutig Einzelphotonen-Emission innerhalb des Quantenkanals nachgewiesen werden konnte. Die höchste erzielte *sifted-key-rate* im Einzelphotonen-Regime betrug 11,6 kbit/s bei $g^{(2)}(0) = 0,46$ (*QBER* = 6,2 %).

Betrachtungen zu der Effizienz der Quantenpunkt-Einzelphotonenquellen sowie der Messanordnung zeigten, dass die gemessenen Schlüsselraten konsistent mit Photonenemissionraten der Quellen von 7,3 MHz (Labor) und 10,3 MHz (500 m) sind.

Literaturverzeichnis

- [Abb09] M. Abbarchi, C. Mastrandrea, T. Kuroda, T. Mano, A. Vinattieri, K. Sakoda und M. Gurioli, *Poissonian statistics of excitonic complexes in quantum dots*, Journal of Applied Physics **106**(5), 053504 (2009).
- [Aic04] T. Aichele, V. Zwiller und O. Benson, *Visible single-photon generation from semiconductor quantum dots*, New Journal of Physics **6**, S. 90 (2004).
- [Aic05] T. Aichele, *Detection and Generation of Non-Classical Light States from Single Quantum Emitters*, Dissertation, Humboldt-Universität zu Berlin (2005).
- [Ako06] N. Akopian, N. H. Lindner, E. Poem, Y. Berlatzky, J. Avron, D. Gershoni, B. D. Gerardot und P. M. Petroff, *Entangled Photon Pairs from Semiconductor Quantum Dots*, Physical Review Letters **96**(13), 130501 (2006).
- [Alb10] F. Albert, T. Braun, T. Heindel, C. Schneider, S. Reitzenstein, S. Höfling, L. Worschech und A. Forchel, *Whispering gallery mode lasing in electrically driven quantum dot micropillars*, Applied Physics Letters **97**(10), 101108 (2010).
- [Ali09] S. Ali, S. Saharudin und M. R. B. Wahiddin, *Implementation of Decoy State Protocol*, European Journal of Scientific Research **33**(1) (2009).
- [All04] R. Alléaume, F. Treussart, G. Messin, Y. Dumeige, J.-F. Roch, A. Beveratos, R. Brouri-Tualle, J.-P. Poizat und P. Grangier, *Experimental open-air quantum key distribution with a single-photon source*, New Journal of Physics **6**(1), S. 92 (2004).
- [Ari08] R. Arians, A. Gust, T. KÜmmell, C. Kruse, S. Zaitsev, G. Bacher und D. Hommel, *Electrically driven single quantum dot emitter operating at room temperature*, Applied Physics Letters **93**(17), 173506 (2008).
- [Asp80] A. Aspect, G. Roger, S. Reynaud, J. Dalibard und C. Cohen-Tannoudji, *Time Correlations between the Two Sidebands of the Resonance Fluorescence Triplet*, Phys. Rev. Lett. **45**, S. 617 (1980).

- [Asp81] A. Aspect, P. Grangier und G. Roger, *Experimental Tests of Realistic Local Theories via Bell's Theorem*, Phys. Rev. Lett. **47**, S. 460 (1981).
- [Asp82] A. Aspect, J. Dalibard und G. Roger, *Experimental Test of Bell's Inequalities Using Time-Varying Analyzers*, Phys. Rev. Lett. **49**, S. 1804 (1982).
- [Ate09] 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*, Nat Photon **3**, S. 724 (2009).
- [Bac99] G. Bacher, R. Weigand, J. Seufert, V. D. Kulakovskii, N. A. Gippius, A. Forchel, K. Leonardi und D. Hommel, *Biexciton versus Exciton Lifetime in a Single Semiconductor Quantum Dot*, Phys. Rev. Lett. **83**, S. 4417 (1999).
- [Bai06] M. H. Baier, A. Malko, E. Pelucchi, D. Y. Oberli und E. Kapon, *Quantum-dot exciton dynamics probed by photon-correlation spectroscopy*, Phys. Rev. B **73**, S. 205321 (2006).
- [Ban99] U. Banin, Y. Cao, D. Katz und O. Millo, *Identification of atomic-like electronic states in indium arsenide nanocrystal quantum dots*, Nature **400**(6744), S. 542 (1999).
- [Bar02] W. Barnes, G. Björk, J. Gérard, P. Jonsson, J. Wasey, P. Worthing und V. Zwiller, *Solid-state single photon sources: light collection strategies*, Eur. Phys. J. D **18**(2), S. 197 (2002).
- [Bay99] M. Bayer, A. Kuther, A. Forchel, A. Gorbunov, V. B. Timofeev, F. Schäfer, J. P. Reithmaier, T. L. Reinecke und S. N. Walck, *Electron and Hole g Factors and Exchange Interaction from Studies of the Exciton Fine Structure in In_{0.60}Ga_{0.40}As Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **82**, S. 1748 (1999).
- [Bay00] M. Bayer, A. Kuther, A. Forchel und T. L. Reinecke, *Effects of Confinement Potential Asymmetries on the Fine Structure of Excitons in Self-Assembled In-GaAs Quantum Dots*, physica status solidi (a) **178**(1), S. 297 (2000).
- [Bay01] M. Bayer, T. L. Reinecke, F. Weidner, A. Larionov, A. McDonald und A. Forchel, *Inhibition and Enhancement of the Spontaneous Emission of Quantum Dots in Structured Microresonators*, Phys. Rev. Lett. **86**, S. 3168 (2001).
- [Bay02] 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*, Phys. Rev. B **65**, S. 041308 (2002).

- [Böc08] C. Böckler, S. Reitzenstein, C. Kistner, R. Debusmann, A. Löffler, T. Kida, S. Höfling, A. Forchel, L. Grenouillet, J. Claudon und J. M. Gérard, *Electrically driven high-Q quantum dot-micropillar cavities*, Applied Physics Letters **92**(9), 091107 (2008).
- [Bec01] C. Becher, A. Kiraz, P. Michler, A. Imamoglu, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang und E. Hu, *Nonclassical radiation from a single self-assembled InAs quantum dot*, Phys. Rev. B **63**(12), S. 121312 (2001).
- [Ben84] 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, Bangalore, India S. 175–179 (1984).
- [Ben88] C. Bennett, G. Brassard und J. Robert, *Privacy Amplification by Public Discussion*, SIAM Journal on Computing **17**(2), S. 210 (1988).
- [Ben92] C. Bennett, F. Bessette, G. Brassard, L. Salvail und J. Smolin, *Experimental quantum cryptography*, Journal of Cryptology **5**(1), S. 3 (1992).
- [Ben95] C. Bennett, G. Brassard, C. Crepeau und U. Maurer, *Generalized privacy amplification*, Information Theory, IEEE Transactions on **41**(6), S. 1915 (1995).
- [Ben00] O. Benson, C. Santori, M. Pelton und Y. Yamamoto, *Regulated and Entangled Photons from a Single Quantum Dot*, Phys. Rev. Lett. **84**(11), S. 2513 (2000).
- [Ben05a] A. J. Bennett, D. C. Unitt, P. See, A. J. Shields, P. Atkinson, K. Cooper und D. A. Ritchie, *Electrical control of the uncertainty in the time of single photon emission events*, Phys. Rev. B **72**, S. 033316 (2005).
- [Ben05b] A. J. Bennett, D. C. Unitt, P. See, A. J. Shields, P. Atkinson, K. Cooper und D. A. Ritchie, *Microcavity single-photon-emitting diode*, Applied Physics Letters **86**(18), 181102 (2005).
- [Ben06] 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), S. 3730 (2006).
- [Ben07] 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).

- [Ben08] A. J. Bennett, R. B. Patel, A. J. Shields, K. Cooper, P. Atkinson, C. A. Nicoll und D. A. Ritchie, *Indistinguishable photons from a diode*, Applied Physics Letters **92**(19), 193503 (2008).
- [Ber06] A. Berthelot, I. Favero, G. Cassaboïs, C. Voisin, C. Delalande, P. Roussignol, R. Ferreira und J. M. Gérard, *Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantum dot*, Nat Phys **2**(11), S. 759 (2006).
- [Bes01] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal und H. Mariette, *Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission*, Phys. Rev. B **63**, S. 155307 (2001).
- [Bes06] G. Bester, A. Zunger, X. Wu und D. Vanderbilt, *Effects of linear and nonlinear piezoelectricity on the electronic properties of InAs/GaAs quantum dots*, Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics) **74**(8), 081305 (2006).
- [Bev02] A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, A. Villing, J.-P. Poizat und P. Grangier, *Single Photon Quantum Cryptography*, Phys. Rev. Lett. **89**(18), S. 187901 (2002).
- [Bim06] D. Bimberg, *Der Zoo der Quantenpunkte*, Physik Journal **5**(8), S. 43 (2006).
- [Bim12] D. Bimberg, *Vom hässlichen Entlein zum Schwan*, Physik Journal **11**(5), S. 25 (2012).
- [Bir01] D. Birkedal, K. Leosson und J. M. Hvam, *Long Lived Coherence in Self-Assembled Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **87**, S. 227401 (2001).
- [Bla82] J. S. Blakemore, *Semiconducting and other major properties of gallium arsenide*, Journal of Applied Physics **53**(10), S. R123 (1982).
- [Bor01] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang und D. Bimberg, *Ultralong Dephasing Time in InGaAs Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **87**, S. 157401 (2001).
- [Bra94] G. Brassard und L. Salvail, *Secret-key reconciliation by public discussion*, in T. Hellesteth (Herausgeber), *Advances in Cryptology EUROCRYPT'93*, Band 765 von *Lecture Notes in Computer Science*, S. 410–423, Springer Berlin Heidelberg (1994).
- [Bra13] T. Braun, S. Unsleber, V. Baumann, M. Gschrey, S. Rodt, S. Reitzenstein, C. Schneider, S. Höfling und M. Kamp, *Cascaded emission of linearly polarized single photons from positioned InP/GaInP quantum dots*, Applied Physics Letters **103**(19), 191113 (2013).

- [Bro00] R. Brouri, A. Beveratos, J.-P. Poizat und P. Grangier, *Photon antibunching in the fluorescence of individual color centers in diamond*, Opt. Lett. **25**(17), S. 1294 (2000).
- [Buc12] S. Buckley, K. Rivoire und J. Vučković, *Engineered quantum dot single-photon sources*, Reports on Progress in Physics **75**(12), S. 126503 (2012).
- [Che09] T.-Y. Chen, H. Liang, Y. Liu, W.-Q. Cai, L. Ju, W.-Y. Liu, J. Wang, H. Yin, K. Chen, Z.-B. Chen, C.-Z. Peng und J.-W. Pan, *Field test of a practical secure communication network with decoy-state quantum cryptography*, Opt. Express **17**(8), S. 6540 (2009).
- [Cla89] E. M. Clausen, H. G. Craighead, J. M. Worlock, J. P. Harbison, L. M. Schiavone, L. Florez und B. Van der Gaag, *Determination of nonradiative surface layer thickness in quantum dots etched from single quantum well GaAs/AlGaAs*, Applied Physics Letters **55**(14), S. 1427 (1989).
- [Cla10] J. Claudon, J. Bleuse, N. S. Malik, M. Bazin, P. Jaffrennou, N. Gregersen, C. Sauvan, P. Lalanne und J.-M. Gérard, *A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire*, Nature Photonics (2010).
- [Col10] R. J. Collins, P. J. Clarke, V. Fernández, K. J. Gordon, M. N. Makhonin, J. A. Timpson, A. Tahraoui, M. Hopkinson, A. M. Fox, M. S. Skolnick und G. S. Buller, *Quantum key distribution system in standard telecommunications fiber using a short wavelength single photon source*, Journal of Applied Physics **107**(7), 073102 (2010).
- [Dal08] P. A. Dalgarno, J. McFarlane, D. Brunner, R. W. Lambert, B. D. Gerardot, R. J. Warburton, K. Karrai, A. Badolato und P. M. Petroff, *Hole recapture limited single photon generation from a single n-type charge-tunable quantum dot*, Applied Physics Letters **92**(19), 193103 (2008).
- [Des13a] S. Deshpande, A. Das und P. Bhattacharya, *Blue single photon emission up to 200 K from an InGaN quantum dot in AlGaIn nanowire*, Applied Physics Letters **102**(16), 161114 (2013).
- [Des13b] S. Deshpande, J. Heo, A. Das und P. Bhattacharya, *Electrically driven polarized single-photon emission from an InGaIn quantum dot in a GaIn nanowire*, Nat Commun **4**, S. 1675 (2013).

- [Dou08] A. Dousse, L. Lanco, J. Suffczyński, E. Semenova, A. Miard, A. Lemaître, I. Sagnes, C. Roblin, J. Bloch und P. Senellart, *Controlled Light-Matter Coupling for a Single Quantum Dot Embedded in a Pillar Microcavity Using Far-Field Optical Lithography*, Phys. Rev. Lett. **101**, S. 267404 (2008).
- [Dou10] A. Dousse, J. Suffczynski, A. Beveratos, O. Krebs, A. Lemaitre, I. Sagnes, J. Bloch, P. Voisin und P. Senellart, *Ultrabright source of entangled photon pairs*, Nature **466**, S. 217 (2010).
- [Ebi98] Y. Ebiko, S. Muto, D. Suzuki, S. Itoh, K. Shiramine, T. Haga, Y. Nakata und N. Yokoyama, *Island Size Scaling in InAs/GaAs Self-Assembled Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **80**, S. 2650 (1998).
- [Eis11] M. D. Eisaman, J. Fan, A. Migdall und S. V. Polyakov, *Invited Review Article: Single-photon sources and detectors*, Review of Scientific Instruments **82**(7), 071101 (2011).
- [Eke91] A. K. Ekert, *Quantum cryptography based on Bell's theorem*, Phys. Rev. Lett. **67**(6), S. 661 (1991).
- [Ell06] D. J. P. Ellis, A. J. Bennett, A. J. Shields, P. Atkinson und D. A. Ritchie, *Electrically addressing a single self-assembled quantum dot*, Applied Physics Letters **88**(13), 133509 (2006).
- [Ell07] D. J. P. Ellis, A. J. Bennett, A. J. Shields, P. Atkinson und D. A. Ritchie, *Oxide-apertured microcavity single-photon emitting diode*, Applied Physics Letters **90**(23), 233514 (2007).
- [Ell08] D. J. P. Ellis, A. J. Bennett, S. J. Dewhurst, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Cavity-enhanced radiative emission rate in a single-photon-emitting diode operating at 0.5 GHz*, New Journal of Physics **10**(4), S. 043035 (2008).
- [Eng06] D. Englund und J. Vučković, *A direct analysis of photonic nanostructures*, Opt. Express **14**(8), S. 3472 (2006).
- [Eng07] D. Englund, H. Altug und J. Vučković, *Low-threshold surface-passivated photonic crystal nanocavity laser*, Applied Physics Letters **91**(7), 071124 (2007).
- [Far08] 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), S. 345401 (4pp) (2008).

- [Feu08] M. Feucker, R. Seguin, S. Rodt, A. Hoffmann und D. Bimberg, *Decay dynamics of neutral and charged excitonic complexes in single InAs/GaAs quantum dots*, Applied Physics Letters **92**(6), 063116 (2008).
- [Fin01a] F. Findeis, M. Baier, A. Zrenner, M. Bichler, G. Abstreiter, U. Hohenester und E. Molinari, *Optical excitations of a self-assembled artificial ion*, Phys. Rev. B **63**(12), S. 121309 (2001).
- [Fin01b] J. J. Finley, P. W. Fry, A. D. Ashmore, A. Lemaître, A. I. Tartakovskii, R. Oulton, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, P. D. Buckle und P. A. Maksym, *Observation of multicharged excitons and biexcitons in a, InGaAs quantum dot*, Phys. Rev. B **63**(16), S. 161305 (2001).
- [Gam96] 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*, Phys. Rev. Lett. **76**, S. 3005 (1996).
- [Gay03] B. Gayral und J. M. Gérard, *Comment on “Single-Mode Spontaneous Emission from a Single Quantum Dot in a Three-Dimensional Microcavity”*, Phys. Rev. Lett. **90**, S. 229701 (2003).
- [Gaz13] O. Gazzano, S. Michaelis de Vasconcellos, C. Arnold, A. Nowak, E. Galopin, I. Sagnes, L. Lanco, A. Lemaître und P. Senellart, *Bright solid-state sources of indistinguishable single photons*, Nat Commun **4**, S. 1425 (2013).
- [Gis02] N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel und H. Zbinden, *Quantum cryptography*, Rev. Mod. Phys. **74**(1), S. 145 (2002).
- [Gla63] R. J. Glauber, *The Quantum Theory of Optical Coherence*, Phys. Rev. **130**, S. 2529 (1963).
- [Gol85] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse und G. L. Roux, *Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices*, Applied Physics Letters **47**(10), S. 1099 (1985).
- [Gér96] J. M. Gérard, D. Barrier, J. Y. Marzin, R. Kuszelewicz, L. Manin, E. Costard, V. Thierry-Mieg und T. Rivera, *Quantum boxes as active probes for photonic microstructures: The pillar microcavity case*, Applied Physics Letters **69**(4), S. 449 (1996).

- [Gér98] J. M. Gérard, B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard und V. Thierry-Mieg, *Enhanced Spontaneous Emission by Quantum Boxes in a Monolithic Optical Microcavity*, Physical Review Letters **81**(5), S. 1110 (1998).
- [Gér01] J. M. Gérard und B. Gayral, *InAs Quantum Dots: Artificial Atoms for Solid-State Cavity-Quantum Electrodynamics*, Physica E **9**, S. 131 (2001).
- [Gre13] N. Gregersen, P. Kaer und J. Mørk, *Modeling and Design of High-Efficiency Single-Photon Sources*, Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of **19**(5), S. 9000516 (2013).
- [Gru95] M. Grundmann, O. Stier und D. Bimberg, *InAs/GaAs pyramidal quantum dots: Strain distribution, optical phonons, and electronic structure*, Phys. Rev. B **52**(16), S. 11969 (1995).
- [Gsc13] M. Gschrey, F. Gericke, A. Schübler, R. Schmidt, J.-H. Schulze, T. Heindel, S. Rodt, A. Strittmatter und S. Reitzenstein, *In situ electron-beam lithography of deterministic single-quantum-dot mesa-structures using low-temperature cathodoluminescence spectroscopy*, Applied Physics Letters **102**(25), 251113 (2013).
- [Haf07] 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), S. 315 (2007).
- [Hal62] R. N. Hall, G. E. Fenner, J. D. Kingsley, T. J. Soltys und R. O. Carlson, *Coherent Light Emission From GaAs Junctions*, Phys. Rev. Lett. **9**, S. 366 (1962).
- [Har13] F. Hargart, C. A. Kessler, T. Schwarzbäck, E. Koroknay, S. Weidenfeld, M. Jetter und P. Michler, *Electrically driven quantum dot single-photon source at 2 GHz excitation repetition rate with ultra-low emission time jitter*, Applied Physics Letters **102**(1), 011126 (2013).
- [HB56] R. Hanbury-Brown und R. Q. Twiss, *Correlation between photons in two coherent beams of light*, Nature **177**(4497), S. 27 (1956).
- [He04] L. He, G. Bester und A. Zunger, *Strain-induced interfacial hole localization in self-assembled quantum dots: InAs/GaAs versus tensile InAs/InSb*, Phys. Rev. B **70**, S. 235316 (2004).

- [Hei97] R. Heitz, M. Veit, N. N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev und Z. I. Alferov, *Energy relaxation by multiphonon processes in InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **56**, S. 10435 (1997).
- [Hen07] K. Hennessy, A. Badolato, M. Winger, D. Gerace, M. Atatüre, S. Gulde, S. Fält, E. L. Hu und A. Imamoglu, *Quantum nature of a strongly coupled single quantum dot-cavity system*, Nature **445**(7130), S. 896 (2007).
- [Hey00] E. Heybrock und U. Brinkmann, *Optische Technologien „made in Germany“: Eine Jahrhunderttechnologie braucht Physiker*, Physik Journal **56**(10), S. 59 (2000).
- [Hud07] A. J. Hudson, R. M. Stevenson, A. J. Bennett, R. J. Young, C. A. Nicoll, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Coherence of an Entangled Exciton-Photon State*, Phys. Rev. Lett. **99**, S. 266802 (2007).
- [Hug11] 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).
- [Huo12] Y. Huo, B. Witek, S. Kumar, R. Singh, E. Zallo, R. Grifone, D. Kriegner, R. Trotta, N. Akopian, J. Stangl et al., *Semiconductor quantum dots with light-hole exciton ground state: fabrication and fine structure*, arXiv preprint arXiv:1208.6554 (2012).
- [Int07] P. M. Intallura, M. B. Ward, O. Z. Karimov, Z. L. Yuan, P. See, A. J. Shields, P. Atkinson und D. A. Ritchie, *Quantum key distribution using a triggered quantum dot source emitting near 1.3 μ m*, Applied Physics Letters **91**(16), 161103 (2007).
- [Int09] P. M. Intallura, M. B. Ward, O. Z. Karimov, Z. L. Yuan, P. See, P. Atkinson, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Quantum communication using single photons from a semiconductor quantum dot emitting at a telecommunication wavelength*, Journal of Optics A: Pure and Applied Optics **11**(5), S. 054005 (6pp) (2009).
- [Ivc97] E. L. Ivchenko und G. E. Pikus, *Superlattices and other heterostructures : symmetry and optical phenomena*, Springer, 2nd ed. Auflage (1997).
- [Jam01] D. F. V. James, P. G. Kwiat, W. J. Munro und A. G. White, *Measurement of qubits*, Phys. Rev. A **64**(5), S. 052312 (2001).

- [Jar12] C. Jarlov, P. Gallo, M. Calic, B. Dwir, A. Rudra und E. Kapon, *Bound and anti-bound biexciton in site-controlled pyramidal GaInAs/GaAs quantum dots*, Applied Physics Letters **101**(19), 191101 (2012).
- [Jas06] W. Jaskólski, M. Zieliński, G. W. Bryant und J. Aizpurua, *Strain effects on the electronic structure of strongly coupled self-assembled InAs/GaAs quantum dots: Tight-binding approach*, Phys. Rev. B **74**, S. 195339 (2006).
- [Jus13] G. Juska, V. Dimastrodonato, L. O. Mereni, A. Gocalinska und E. Pelucchi, *Towards quantum-dot arrays of entangled photon emitters*, Nat Photon **7**(7), S. 527 (2013).
- [Kak06] S. Kako, C. Santori, K. Hoshino, S. Gotzinger, Y. Yamamoto und Y. Arakawa, *A gallium nitride single-photon source operating at 200[thinsp]K*, Nat Mater **5**(11), S. 887 (2006).
- [Kam98] H. Kamada, H. Ando, J. Temmyo und T. Tamamura, *Excited-state optical transitions of excitons and biexcitons in a single $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ quantum disk*, Phys. Rev. B **58**, S. 16243 (1998).
- [Kar09] M. Karl, B. Kettner, S. Burger, F. Schmidt, H. Kalt und M. Hetterich, *Dependencies of micro-pillar cavity quality factors calculated with finite element methods*, Opt. Express **17**(2), S. 1144 (2009).
- [Kei12] J. G. Keizer, A. B. Henriques, A. D. B. Maia, A. A. Quivy und P. M. Koenraad, *Atomically resolved study of the morphology change of InAs/GaAs quantum dot layers induced by rapid thermal annealing*, Applied Physics Letters **101**(24), 243113 (2012).
- [Kim77] H. J. Kimble, M. Dagenais und L. Mandel, *Photon Antibunching in Resonance Fluorescence*, Phys. Rev. Lett. **39**, S. 691 (1977).
- [Kip04] T. J. Kippenberg, S. M. Spillane und K. J. Vahala, *Demonstration of ultra-high- Q small mode volume toroid microcavities on a chip*, Applied Physics Letters **85**(25), S. 6113 (2004).
- [Kir01] A. Kiraz, P. Michler, C. Becher, B. Gayral, A. Imamoğlu, L. Zhang, E. Hu, W. V. Schoenfeld und P. M. Petroff, *Cavity-quantum electrodynamics using a single InAs quantum dot in a microdisk structure*, Applied Physics Letters **78**(25), S. 3932 (2001).

- [Kir02] A. Kiraz, S. Fälth, C. Becher, B. Gayral, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu und A. Imamoglu, *Photon correlation spectroscopy of a single quantum dot*, Phys. Rev. B **65**(16), S. 161303 (2002).
- [Kis09] C. Kistner, S. Reitzenstein, C. Böckler, R. Debusmann, J. Claudon, L. Grenouillet, S. Höfling, J. M. Gérard und A. Forchel, *Weak coupling effects in high-Q electrically driven micropillars*, physica status solidi (c) **6**(2), S. 381 (2009).
- [Kla02] E. Klarreich, *Quantum cryptography: Can you keep a secret?*, Nature **418**(6895), S. 270 (2002).
- [Kli05] C. Klingshirn, *Semiconductor Optics*, Springer-Verlag (2005).
- [Kni01] E. Knill, R. Laflamme und G. J. Milburn, *A scheme for efficient quantum computation with linear optics*, Nature **409**(6816), S. 46 (2001).
- [Kok07] P. Kok, W. J. Munro, K. Nemoto, T. C. Ralph, J. P. Dowling und G. J. Milburn, *Linear optical quantum computing with photonic qubits*, Rev. Mod. Phys. **79**, S. 135 (2007).
- [Kre12] S. Kremling, C. Tessarek, H. Dartsch, S. Figge, S. Höfling, L. Worschech, C. Kruse, D. Hommel und A. Forchel, *Single photon emission from InGaN/GaN quantum dots up to 50 K*, Applied Physics Letters **100**(6), 061115 (2012).
- [Kur00] C. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda und H. Weinfurter, *Stable Solid-State Source of Single Photons*, Phys. Rev. Lett. **85**, S. 290 (2000).
- [Kur01] C. Kurtsiefer, P. Zarda, S. Mayer und H. Weinfurter, *The breakdown flash of silicon avalanche photodiodes - back door for eavesdropper attacks?*, Journal of Modern Optics **48**(13), S. 2039 (2001).
- [Lad10] T. D. Ladd, F. Jelezko, R. Laflamme, Y. Nakamura, C. Monroe und J. L. O'Brien, *Quantum computers*, Nature **464**(7285), S. 45 (2010).
- [Lal04] P. Lalanne, J. P. Hugonin und J. M. Gérard, *Electromagnetic study of the quality factor of pillar microcavities in the small diameter limit*, Applied Physics Letters **84**(23), S. 4726 (2004).
- [Lay78] G. L. Lay und R. Kern, *Physical methods used for the characterization of modes of epitaxial growth from the vapor phase*, Journal of Crystal Growth **44**(2), S. 197 (1978).

- [Lec07] G. Lecamp, J. P. Hugonin, P. Lalanne, R. Braive, S. Varoutsis, S. Laurent, A. Le-maître, I. Sagnes, G. Patriarche, I. Robert-Philip und I. Abram, *Submicron-diameter semiconductor pillar microcavities with very high quality factors*, Applied Physics Letters **90**(9), 091120 (2007).
- [Lei13] M. Leifgen, T. Schröder, F. Gädeke, R. Riemann, V. Métilon, E. Neu, C. Hepp, C. Arend, C. Becher, K. Lauritsen et al., *Evaluation of nitrogen-and silicon-vacancy defect centres as single photon sources in quantum key distribution*, arXiv preprint arXiv:1310.1220 (2013).
- [Ler12] M. Lermer, N. Gregersen, F. Dunzer, S. Reitzenstein, S. Höfling, J. Mørk, L. Worschech, M. Kamp und A. Forchel, *Bloch-Wave Engineering of Quantum Dot Micropillars for Cavity Quantum Electrodynamics Experiments*, Phys. Rev. Lett. **108**, S. 057402 (2012).
- [Löf05] A. Löffler, J. P. Reithmaier, G. Şek, C. Hofmann, S. Reitzenstein, M. Kamp und A. Forchel, *Semiconductor quantum dot microcavity pillars with high-quality factors and enlarged dot dimensions*, Applied Physics Letters **86**(11), 111105 (2005).
- [Löf08] A. Löffler, *Selbstorganisiertes Wachstum von (Ga)InAs/GaAs-Quantenpunkten und Entwicklung von Mikroresonatoren höchster Güte für Experimente zur starken Exziton-Photon-Kopplung*, Dissertation, Julius-Maximilians-Universität Würzburg (2008).
- [Lo99] H.-K. Lo und H. F. Chau, *Unconditional Security of Quantum Key Distribution over Arbitrarily Long Distances*, Science **283**(5410), S. 2050 (1999).
- [Loc09] A. Lochmann, E. Stock, J. Töflinger, W. Unrau, A. Toropov, A. Bakarov, V. Haisler und D. Bimberg, *Electrically pumped, micro-cavity based single photon source driven at 1 GHz*, Electronics Letters **45**(11), S. 566 (2009).
- [Lou05a] R. Loudon, *The Quantum Theory of Light*, Oxford Science Publications, 2. Auflage (2005).
- [Lou05b] B. Lounis und M. Orrit, *Single-photon sources*, Reports on Progress in Physics **68**(5), S. 1129 (2005).
- [Mab02] H. Mabuchi und A. C. Doherty, *Cavity Quantum Electrodynamics: Coherence in Context*, Science **298**(5597), S. 1372 (2002).

- [Mai89] B. E. Maile, A. Forchel, R. Germann, D. Grützmacher, H. P. Meier und J. P. Reithmaier, *Fabrication and optical characterization of quantum wires from semiconductor materials with varying In content*, Journal of Vacuum Science & Technology B **7**(6), S. 2030 (1989).
- [Mal97] S. Malik, C. Roberts, R. Murray und M. Pate, *Tuning self-assembled InAs quantum dots by rapid thermal annealing*, Applied Physics Letters **71**(14), S. 1987 (1997).
- [Man10] T. Mano, M. Abbarchi, T. Kuroda, B. McSkimming, A. Ohtake, K. Mitsuishi und K. Sakoda, *Self-Assembly of Symmetric GaAs Quantum Dots on (111)A Substrates: Suppression of Fine-Structure Splitting*, Applied Physics Express **3**(6), S. 065203 (2010).
- [May01] D. Mayers, *Unconditional security in quantum cryptography*, J. ACM **48**(3), S. 351 (2001).
- [McC92] S. L. McCall, A. F. J. Levi, R. E. Slusher, S. J. Pearton und R. A. Logan, *Whispering-gallery mode microdisk lasers*, Applied Physics Letters **60**(3), S. 289 (1992).
- [Mic00a] P. Michler, A. Imamoglu, M. D. Mason, P. J. Carson, G. F. Strouse und S. K. Buratto, *Quantum correlation among photons from a single quantum dot at room temperature*, Nature **406**(6799), S. 968 (2000).
- [Mic00b] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu und A. Imamoglu, *A Quantum Dot Single-Photon Turnstile Device*, Science **290**(5500), S. 2282 (2000).
- [Mic09] P. Michler, *Single Semiconductor Quantum Dots*, Springer (2009).
- [Min09] B. Min, E. Ostby, V. Sorger, E. Ulin-Avila, L. Yang, X. Zhang und K. Vahala, *High-Q surface-plasmon-polariton whispering-gallery microcavity*, Nature **457**(7228), S. 455 (2009).
- [Miz12] N. Mizuochi, T. Makino, H. Kato, D. Takeuchi, M. Ogura, H. Okushi, M. Notthaft, P. Neumann, A. Gali, F. Jelezko, J. Wrachtrup und S. Yamasaki, *Electrically driven single-photon source at room temperature in diamond*, Nat Photon **6**(5), S. 299 (2012).
- [Mli09] V. Mlinar, M. Bozkurt, J. M. Ulloa, M. Ediger, G. Bester, A. Badolato, P. M. Koenraad, R. J. Warburton und A. Zunger, *Structure of quantum dots as seen by*

- excitonic spectroscopy versus structural characterization: Using theory to close the loop*, Phys. Rev. B **80**(16), S. 165425 (2009).
- [Moo07] S. Moore, *Commercializing Quantum Keys*, Spectrum, IEEE **44**(3), S. 15 (2007).
- [Mor01] E. Moreau, I. Robert, L. Manin, V. Thierry-Mieg, J. M. Gérard und I. Abram, *Quantum Cascade of Photons in Semiconductor Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **87**(18), S. 183601 (2001).
- [Mor02] E. Moreau, I. Robert, L. Manin, V. Thierry-Mieg, J. Gérard und I. Abram, *A single-mode solid-state source of single photons based on isolated quantum dots in a micropillar*, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures **13**(2 - 4), S. 418 (2002).
- [Mun13] M. Munsch, N. S. Malik, E. Dupuy, A. Delga, J. Bleuse, J.-M. Gérard, J. Claudon, N. Gregersen und J. Mørk, *Dielectric GaAs Antenna Ensuring an Efficient Broadband Coupling between an InAs Quantum Dot and a Gaussian Optical Beam*, Phys. Rev. Lett. **110**, S. 177402 (2013).
- [Nau13] S. Nauerth, F. Moll, M. Rau, C. Fuchs, J. Horwath, S. Frick und H. Weinfurter, *Air-to-ground quantum communication*, Nat Photon **advance online publication**, S. (2013).
- [Nil13] J. Nilsson, R. M. Stevenson, K. H. A. Chan, J. Skiba-Szymanska, M. Lucamarini, M. B. Ward, A. J. Bennett, C. L. Salter, I. Farrer, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Quantum teleportation using a light-emitting diode*, Nat Photon **7**(4), S. 311 (2013).
- [Nod06] S. Noda, *Seeking the Ultimate Nanolaser*, Science **314**(5797), S. 260 (2006).
- [Nod07] S. Noda, M. Fujita und T. Asano, *Spontaneous-emission control by photonic crystals and nanocavities*, Nat Photon **1**(8), S. 449 (2007).
- [Not12] M. Nothhaft, S. Höhla, F. Jelezko, N. Frühauf, J. Pflaum und J. Wrachtrup, *Electrically driven photon antibunching from a single molecule at room temperature*, Nature Communications **3** (2012).
- [Pai99] O. Painter, R. K. Lee, A. Scherer, A. Yariv, J. D. O'Brien, P. D. Dapkus und I. Kim, *Two-Dimensional Photonic Band-Gap Defect Mode Laser*, Science **284**(5421), S. 1819 (1999).

- [Pee09] M. Peev, C. Pacher, R. Alleaume, C. Barreiro, J. Bouda, W. Boxleitner, T. Debuisschert, E. Diamanti, M. Dianati, J. F. Dynes, S. Fasel, S. Fossier, M. Furst, J.-D. Gautier, O. Gay, N. Gisin, P. Grangier, A. Happe, Y. Hasani, M. Hentschel, H. Hubel, G. Humer, T. Langer, M. Legre, R. Lieger, J. Lodewyck, T. Lorunser, N. Lutkenhaus, A. Marhold, T. Matyus, O. Maurhart, L. Monat, S. Nauerth, J.-B. Page, A. Poppe, E. Querasser, G. Ribordy, S. Robyr, L. Salvail, A. W. Sharpe, A. J. Shields, D. Stucki, M. Suda, C. Tamas, T. Themel, R. T. Thew, Y. Thoma, A. Treiber, P. Trinkler, R. Tualle-Brouri, F. Vannel, N. Walenta, H. Weier, H. Weinfurter, I. Wimberger, Z. L. Yuan, H. Zbinden und A. Zeilinger, *The SECOQC quantum key distribution network in Vienna*, New Journal of Physics **11**(7), S. 075001 (37pp) (2009).
- [Pel02] M. Pelton, C. Santori, J. Vučković, B. Zhang, G. S. Solomon, J. Plant und Y. Yamamoto, *Efficient Source of Single Photons: A Single Quantum Dot in a Micropost Microcavity*, Phys. Rev. Lett. **89**(23), S. 233602 (2002).
- [Per00] 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*, Phys. Rev. B **62**, S. 5092 (2000).
- [Pom07] J. Pomplun, S. Burger, L. Zschiedrich und F. Schmidt, *Adaptive finite element method for simulation of optical nano structures*, physica status solidi (b) **244**(10), S. 3419 (2007).
- [Pop04] A. Poppe, A. Fedrizzi, R. Ursin, H. Böhm, T. Lörunser, O. Maurhardt, M. Peev, M. Suda, C. Kurtsiefer, H. Weinfurter, T. Jennewein und A. Zeilinger, *Practical quantum key distribution with polarization entangled photons*, Opt. Express **12**(16), S. 3865 (2004).
- [Pre07] D. Press, S. Götzinger, S. Reitzenstein, C. Hofmann, A. Löffler, M. Kamp, A. Forchel und Y. Yamamoto, *Photon Antibunching from a Single Quantum-Dot-Microcavity System in the Strong Coupling Regime*, Physical Review Letters **98**(11), 117402 (2007).
- [Pur46] E. M. Purcell, *Spontaneous emission probabilities at radio frequencies*, Proceedings of the American Physical Society **69**, S. 681 (1946).
- [Rad00] R. Radebaugh, *Development of the pulse tube refrigerator as an efficient and reliable cryocooler*, Proc. institute of refrigeration, London (2000).

- [Ras04] A. Rastelli, S. Ulrich, E.-M. Pavelescu, T. Leinonen, M. Pessa, P. Michler und O. Schmidt, *Self-assembled quantum dots for single-dot optical investigations*, Superlattices and Microstructures **36**(1 - 3), S. 181 (2004).
- [Reg01] 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*, Phys. Rev. Lett. **87**, S. 257401 (2001).
- [Rei97] J. P. Reithmaier, M. Röhner, H. Zull, F. Schäfer, A. Forchel, P. A. Knipp und T. L. Reinecke, *Size Dependence of Confined Optical Modes in Photonic Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **78**, S. 378 (1997).
- [Rei04] J. P. Reithmaier, G. Şek, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke und A. Forchel, *Strong coupling in a single quantum dot-semiconductor microcavity system*, Nature **432**(7014), S. 197 (2004).
- [Rei07] S. Reitzenstein, C. Hofmann, A. Gorbunov, M. Strauß, S. H. Kwon, C. Schneider, A. Löffler, S. Höfling, M. Kamp und A. Forchel, *AlAs/GaAs micropillar cavities with quality factors exceeding 150.000*, Applied Physics Letters **90**(25), 251109 (2007).
- [Rei08a] M. Reischle, G. J. Beirne, R. Roßbach, M. Jetter und P. Michler, *Influence of the Dark Exciton State on the Optical and Quantum Optical Properties of Single Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **101**, S. 146402 (2008).
- [Rei08b] S. Reitzenstein, T. Heindel, C. Kistner, A. Rahimi-Iman, C. Schneider, S. Höfling und A. Forchel, *Low threshold electrically pumped quantum dot-micropillar lasers*, Applied Physics Letters **93**(6), 061104 (2008).
- [Rei09] S. Reitzenstein, S. Münch, P. Franek, A. Rahimi-Iman, A. Löffler, S. Höfling, L. Worschech und A. Forchel, *Control of the Strong Light-Matter Interaction between an Elongated $In_{0.3}Ga_{0.7}As$ Quantum Dot and a Micropillar Cavity Using External Magnetic Fields*, Physical Review Letters **103**(12), 127401 (2009).
- [Rei10a] M. Reischle, C. Kessler, W.-M. Schulz, M. Eichfelder, R. Roßbach, M. Jetter und P. Michler, *Triggered single-photon emission from electrically excited quantum dots in the red spectral range*, Applied Physics Letters **97**(14), 143513 (2010).

- [Rei10b] S. Reitzenstein und A. Forchel, *Quantum dot micropillars*, Journal of Physics D: Applied Physics **43**(3), S. 033001 (25pp) (2010).
- [Ren05] R. Renner, N. Gisin und B. Kraus, *Information-theoretic security proof for quantum-key-distribution protocols*, Phys. Rev. A **72**, S. 012332 (2005).
- [Riv99] T. Rivera, J.-P. Debray, J. M. Gérard, B. Legrand, L. Manin-Ferlazzo und J. L. Oudar, *Optical losses in plasma-etched AlGaAs microresonators using reflection spectroscopy*, Applied Physics Letters **74**(7), S. 911 (1999).
- [Roß08] R. Roßbach, M. Reischle, G. J. Beirne, M. Jetter und P. Michler, *Red single-photon emission from an InP/GaInP quantum dot embedded in a planar monolithic microcavity*, Applied Physics Letters **92**(7), 071105 (2008).
- [Rod03] S. Rodt, R. Heitz, A. Schliwa, R. L. Sellin, F. Guffarth und D. Bimberg, *Repulsive exciton-exciton interaction in quantum dots*, Phys. Rev. B **68**, S. 035331 (2003).
- [Rod05] S. Rodt, A. Schliwa, K. Pötschke, F. Guffarth und D. Bimberg, *Correlation of structural and few-particle properties of self-organized InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **71**, S. 155325 (2005).
- [Rod06] S. Rodt, *Exzitonische Komplexe in einzelnen III-V Quantenpunkten*, Dissertation, Technische Universität Berlin (2006).
- [Sal95] T. Sale, *Cavity and reflector design for vertical cavity surface emitting lasers*, Optoelectronics, IEE Proceedings - **142**(1), S. 37 (1995).
- [Sal10] C. L. Salter, R. M. Stevenson, I. Farrer, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *An entangled-light-emitting diode*, Nature **465**(7298), S. 594 (2010).
- [San02a] G. Sanger, *How Fiber Optics Works*, The Industrial Physicist S. 18–21 (2002).
- [San02b] Santori, *Indistinguishable photons from a single-photon device*, Nature (2002).
- [San02c] C. Santori, D. Fattal, M. Pelton, G. S. Solomon und Y. Yamamoto, *Polarization-correlated photon pairs from a single quantum dot*, Phys. Rev. B **66**, S. 045308 (2002).
- [San03] C. Santori, *Generation of nonclassical light using semiconductor quantum dots*, Dissertation, Stanford University (2003).

- [Sar06] D. Sarkar, H. P. van der Meulen, J. M. Calleja, J. M. Becker, R. J. Haug und K. Pierz, *Exciton fine structure and biexciton binding energy in single self-assembled InAs/AlAs quantum dots*, Journal of Applied Physics **100**(2), 023109 (2006).
- [SQ6] G. Sęk, P. Poloczek, K. Ryczko, J. Misiewicz, A. Löffler, J. P. Reithmaier und A. Forchel, *Photorefectance 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).
- [Sca09] V. Scarani, H. Bechmann-Pasquinucci, N. J. Cerf, M. Dušek, N. Lütkenhaus und M. Peev, *The security of practical quantum key distribution*, Rev. Mod. Phys. **81**, S. 1301 (2009).
- [Sch09a] A. Schliwa, M. Winkelkemper, A. Lochmann, E. Stock und D. Bimberg, *In(Ga)As/GaAs quantum dots grown on a (111) surface as ideal sources of entangled photon pairs*, Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics) **80**(16), 161307 (2009).
- [Sch09b] C. Schneider, T. Heindel, A. Huggenberger, P. Weinmann, C. Kistner, M. Kamp, S. Reitzenstein, S. Höfling und A. Forchel, *Single photon emission from a site-controlled quantum dot-micropillar cavity system*, Applied Physics Letters **94**(11), 111111 (2009).
- [Sch11] C. Schneider, *Konzepte zur skalierbaren Realisierung von effizienten, halbleiterbasierten Einzelphotonenquellen*, Dissertation, Julius-Maximilians-Universität Würzburg (2011).
- [Sch12] C. Schneider, T. Heindel, A. Huggenberger, T. A. Niederstrasser, S. Reitzenstein, A. Forchel, S. Höfling und M. Kamp, *Microcavity enhanced single photon emission from an electrically driven site-controlled quantum dot*, Applied Physics Letters **100**(9), 091108 (2012).
- [Seg06] R. Seguin, A. Schliwa, T. D. Germann, S. Rodt, K. Pötschke, A. Strittmatter, U. W. Pohl, D. Bimberg, M. Winkelkemper, T. Hammerschmidt und P. Kratzer, *Control of fine-structure splitting and excitonic binding energies in selected individual InAs/GaAs quantum dots*, Applied Physics Letters **89**(26), 263109 (2006).

- [Seu00] J. Seufert, R. Weigand, G. Bacher, T. KÜmmell, 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), S. 1872 (2000).
- [Sha49] C. E. Shannon, *Communication theory of secrecy systems*, Bell system technical journal **28**(4), S. 656 (1949).
- [Shi02] J. Shields, R. M. Stevenson, R. M. Thompson, Z. Yuan und B. E. Kardynal, *Nano-Physics and Bio-Electronics*, Elsevier, Amsterdam, 2002 (2002).
- [Shi07] A. J. Shields, *Semiconductor quantum light sources*, Nature Photonics **1**(4), S. 215 (2007).
- [Sho00] P. W. Shor und J. Preskill, *Simple Proof of Security of the BB84 Quantum Key Distribution Protocol*, Phys. Rev. Lett. **85**, S. 441 (2000).
- [Sol01] G. S. Solomon, M. Pelton und Y. Yamamoto, *Single-mode Spontaneous Emission from a Single Quantum Dot in a Three-Dimensional Microcavity*, Phys. Rev. Lett. **86**, S. 3903 (2001).
- [Spi05] S. M. Spillane, T. J. Kippenberg, K. J. Vahala, K. W. Goh, E. Wilcut und H. J. Kimble, *Ultra-high-Q toroidal microresonators for cavity quantum electrodynamics*, Phys. Rev. A **71**, S. 013817 (2005).
- [Sri06] K. Srinivasan, M. Borselli, O. Painter, A. Stintz und S. Krishna, *Cavity Q, mode volume, and lasing threshold in small diameter AlGaAs microdisks with embedded quantum dots*, Opt. Express **14**(3), S. 1094 (2006).
- [Sri07] K. Srinivasan und O. Painter, *Linear and nonlinear optical spectroscopy of a strongly coupled microdisk-quantum dot system*, Nature **450**(7171), S. 862 (2007).
- [Ste02] 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*, Phys. Rev. B **66**, S. 081302 (2002).
- [Ste08] R. M. Stevenson, A. J. Hudson, A. J. Bennett, R. J. Young, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Evolution of Entanglement Between Distinguishable Light States*, Phys. Rev. Lett. **101**, S. 170501 (2008).
- [Ste12a] G. A. Steudle, S. Schietinger, D. Höckel, S. N. Dorenbos, I. E. Zadeh, V. Zwiller und O. Benson, *Measuring the quantum nature of light with a single source and a single detector*, Phys. Rev. A **86**, S. 053814 (2012).

- [Ste12b] R. M. Stevenson, C. L. Salter, J. Nilsson, A. J. Bennett, M. B. Ward, I. Farrer, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Indistinguishable Entangled Photons Generated by a Light-Emitting Diode*, Phys. Rev. Lett. **108**, S. 040503 (2012).
- [Sti99] O. Stier, M. Grundmann und D. Bimberg, *Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band kp* , Phys. Rev. B **59**(8), S. 5688 (1999).
- [Sto10] E. Stock, T. Warming, I. Ostapenko, S. Rodt, A. Schliwa, J. A. Töfflinger, A. Lochmann, A. I. Toropov, S. A. Moshchenko, D. V. Dmitriev, V. A. Haisler und D. Bimberg, *Single-photon emission from InGaAs quantum dots grown on (111) GaAs*, Applied Physics Letters **96**(9), 093112 (2010).
- [Str07] S. Strauf, N. G. Stoltz, M. T. Rakher, L. A. Coldren, P. M. Petroff und D. Bouwmeester, *High-frequency single-photon source with polarization control*, Nature Photonics **1**(12), S. 704 (2007).
- [Str11] O. Strobel, D. Seibl und J. Lubkoll, *Optical Communication: An Overview*, Resilient Optical Network Design: Advances in Fault-Tolerant Methodologies S. 290 (2011).
- [Tak10] K. Takemoto, Y. Nambu, T. Miyazawa, K. Wakui, S. Hirose, T. Usuki, M. Takatsu, N. Yokoyama, K. Yoshino, A. Tomita, S. Yorozu, Y. Sakuma und Y. Arakawa, *Transmission Experiment of Quantum Keys over 50 km Using High-Performance Quantum-Dot Single-Photon Source at 1.5 μm Wavelength*, Applied Physics Express **3**(9), S. 092802 (2010).
- [Tho04] J. J. Thorn, M. S. Neel, V. W. Donato, G. S. Bergreen, R. E. Davies und M. Beck, *Observing the quantum behavior of light in an undergraduate laboratory*, American Journal of Physics **72**(9), S. 1210 (2004).
- [Tür00] V. Türec, 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*, Phys. Rev. B **61**, S. 9944 (2000).
- [Tre12] J. Treu, C. Schneider, A. Huggenberger, T. Braun, S. Reitzenstein, S. Höfling und M. Kamp, *Substrate orientation dependent fine structure splitting of symmetric In(Ga)As/GaAs quantum dots*, Applied Physics Letters **101**(2), 022102 (2012).
- [Ulr03] S. M. Ulrich, S. Strauf, P. Michler, G. Bacher und A. Forchel, *Triggered*

- polarization-correlated photon pairs from a single CdSe quantum dot*, Applied Physics Letters **83**(9), S. 1848 (2003).
- [Ulr07] S. M. Ulrich, C. Gies, S. Ates, J. Wiersig, S. Reitzenstein, C. Hofmann, A. Löffler, A. Forchel, F. Jahnke und P. Michler, *Photon Statistics of Semiconductor Microcavity Lasers*, Physical Review Letters **98**(4), 043906 (2007).
- [Ulu00] G. Ulu, A. V. Sergienko und M. S. Ünlü, *Influence of hot-carrier luminescence from avalanche photodiodes on time-correlated photon detection*, Opt. Lett. **25**(10), S. 758 (2000).
- [Unr12] W. Unrau, D. Quandt, J.-H. Schulze, T. Heindel, T. D. Germann, O. Hitzemann, A. Strittmatter, S. Reitzenstein, U. W. Pohl und D. Bimberg, *Electrically driven single photon source based on a site-controlled quantum dot with self-aligned current injection*, Applied Physics Letters **101**(21), 211119 (2012).
- [Ver03] R. Verberk und M. Orrit, *Photon statistics in the fluorescence of single molecules and nanocrystals: Correlation functions versus distributions of on- and off-times*, The Journal of Chemical Physics **119**(4), S. 2214 (2003).
- [Wak02a] E. Waks, K. Inoue, C. Santori, D. Fattal, J. Vuckovic, G. S. Solomon und Y. Yamamoto, *Quantum cryptography with a photon turnstile*, Nature (2002).
- [Wak02b] E. Waks, C. Santori und Y. Yamamoto, *Security aspects of quantum key distribution with sub-Poisson light*, Phys. Rev. A **66**, S. 042315 (2002).
- [Wal79] D. Walls, *Evidence for the quantum nature of light*, Nature **280**, S. 451 (1979).
- [Wan05] X.-B. Wang, *Beating the Photon-Number-Splitting Attack in Practical Quantum Cryptography*, Phys. Rev. Lett. **94**, S. 230503 (2005).
- [Wan06] 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).
- [Wan13] J.-Y. Wang, B. Yang, S.-K. Liao, L. Zhang, Q. Shen, X.-F. Hu, J.-C. Wu, S.-J. Yang, H. Jiang, Y.-L. Tang, B. Zhong, H. Liang, W.-Y. Liu, Y.-H. Hu, Y.-M. Huang, B. Qi, J.-G. Ren, G.-S. Pan, J. Yin, J.-J. Jia, Y.-A. Chen, K. Chen, C.-Z. Peng und J.-W. Pan, *Direct and full-scale experimental verifications towards ground-satellite quantum key distribution*, Nat Photon **7**(5), S. 387 (2013).

- [Wei11] H. Weier, *European Quantum Key Distribution Network*, Dissertation, Ludwig-Maximilians-Universität München (2011).
- [Wie83] S. Wiesner, *Conjugate coding*, SIGACT News **15**(1), S. 78 (1983).
- [Wie09] J. Wiersig, C. Gies, F. Jahnke, M. Aszmann, T. Berstermann, M. Bayer, C. Kistner, S. Reitzenstein, C. Schneider, S. Hofling, A. Forchel, C. Kruse, J. Kalden und D. Hommel, *Direct observation of correlations between individual photon emission events of a microcavity laser*, Nature **460**(7252), S. 245 (2009).
- [Wil10] R. T. Willis, F. E. Becerra, L. A. Orozco und S. L. Rolston, *Correlated photon pairs generated from a warm atomic ensemble*, Phys. Rev. A **82**, S. 053842 (2010).
- [Yam12] M. Yamaguchi, T. Asano und S. Noda, *Third emission mechanism in solid-state nanocavity quantum electrodynamics*, Reports on Progress in Physics **75**(9), S. 096401 (2012).
- [Yos04] T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H. M. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O. B. Shchekin und D. G. Deppe, *Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity*, Nature **432**(7014), S. 200 (2004).
- [You05] 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*, Phys. Rev. B **72**(11), S. 113305 (2005).
- [You06] 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), S. 29 (2006).
- [You09] R. J. Young, R. M. Stevenson, A. J. Hudson, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Bell-Inequality Violation with a Triggered Photon-Pair Source*, Phys. Rev. Lett. **102**(3), S. 030406 (2009).
- [Yua02] Z. Yuan, B. E. Kardynal, R. M. Stevenson, A. J. Shields, C. J. Lobo, K. Cooper, N. S. Beattie, D. A. Ritchie und M. Pepper, *Electrically Driven Single-Photon Source*, Science **295**(5552), S. 102 (2002).
- [Zha06] Y. Zhao, B. Qi, X. Ma, H.-K. Lo und L. Qian, *Experimental Quantum Key Distribution with Decoy States*, Phys. Rev. Lett. **96**, S. 070502 (2006).

-
- [Zwi04] V. Zwiller, T. Aichele und O. Benson, *Quantum optics with single quantum dot devices*, New Journal of Physics **6**, S. 96 (2004).

A Anhang

A.1 Ratengleichungs-Modell der Biexziton-Exziton-Zerfallskaskade

Im Rahmen von Kapitel 5 werden in den Abbildungen 5.9 (e) sowie 5.11 (c) und (d) die experimentell bestimmten Photonen-Kreuzkorrelationsfunktionen $g_{XX \rightarrow X}^{(2)}(\tau)$ der Biexziton-Exziton-Zerfallskaskade (XX-X-Kaskade) mit Berechnungen verglichen, welche auf einem Ratengleichungs-Modell basieren. Dies wird im Folgenden erläutert:

Die XX-X-Kaskade eines Halbleiter-Quantenpunktes wird hierfür näherungsweise als ein ideales 3-Zustands-System betrachtet, welches durch den Grundzustand G, den Exziton-Zustand X und den Biexziton-Zustand XX gebildet wird (vgl. auch Termschema in Abbildung 5.9 (e)). Die drei Zustände werden durch die zeitabhängigen Besetzungswahrscheinlichkeiten $n_G(t)$, $n_X(t)$ und $n_{XX}(t)$, den strahlenden Lebensdauern τ_X und τ_{XX} sowie der globalen Anregungsrate τ_E^{-1} beschrieben. Die Dynamik der XX-X-Kaskade kann somit in den folgenden linearen Differentialgleichungen formuliert werden [Mor01]:

$$\begin{aligned}\frac{dn_G(t)}{dt} &= -\frac{n_G(t)}{\tau_E} + \frac{n_X(t)}{\tau_X}, \\ \frac{dn_X(t)}{dt} &= \frac{n_G(t)}{\tau_E} - \left(\frac{1}{\tau_E} + \frac{1}{\tau_X}\right) \cdot n_X(t) + \frac{n_{XX}(t)}{\tau_{XX}}, \\ \frac{dn_{XX}(t)}{dt} &= \frac{n_X(t)}{\tau_E} - \frac{n_{XX}(t)}{\tau_{XX}}.\end{aligned}\tag{A.1}$$

Die Lösungen der Gleichungen A.1 werden ausführlich in der Dissertation von T. Aichele [Aic05] hergeleitet und erläutert, weshalb im Folgenden das Ergebnis angegeben wird:

$$\begin{aligned}n_G(t) &= A\eta_X\eta_{XX} + B_i(-\eta_{XX} - 1 - \lambda_1\tau_E)e^{\lambda_1 t} + C_i(-\eta_{XX} - 1 - \lambda_2\tau_E)e^{\lambda_2 t}, \\ n_X(t) &= A\eta_{XX} + B_i(\eta_{XX} + \lambda_1\tau_E)e^{\lambda_1 t} + C_i(\eta_{XX} + \lambda_2\tau_E)e^{\lambda_2 t}, \\ n_{XX}(t) &= A + B_i e^{\lambda_1 t} + C_i e^{\lambda_2 t}.\end{aligned}\tag{A.2}$$

Dabei wurden folgende Abkürzungen eingeführt:

$$\begin{aligned}\eta_{X,XX} &= \tau_E / \tau_{X,XX} , \\ A &= (1 + \eta_{XX} + \eta_X \eta_{XX})^{-1} , \\ \lambda_{1,2} &= -\frac{1}{2} \tau_E^{-1} \left(\eta_X + \eta_{XX} + 2 \pm \sqrt{(\eta_X - \eta_{XX})^2 + 4\eta_X} \right) .\end{aligned}\tag{A.3}$$

Des Weiteren bezeichnen B_i und C_i in den Gleichungen A.2 Koeffizienten, welche im Folgenden von den jeweiligen Anfangsbedingungen abhängen.

A.1.1 Photonen-Kreuzkorrelationsfunktion zweiter Ordnung

Die im Hanbury-Brown und Twiss- (HBT-) Experiment beobachtete Photonen-Kreuzkorrelationsfunktion zweiter Ordnung ist nun proportional der Besetzungswahrscheinlichkeit des jeweils detektierten Zustandes. Je nachdem, welcher der beiden Zustände als „Start“- oder „Stopp“-Impuls für eine Koinzidenzmessung gewählt wird, ergeben sich unterschiedliche Anfangsbedingungen.

- **Biexziton \rightarrow Exziton (Bunching, $\tau > 0$)**

Startet das Biexziton die Koinzidenzmessung, während das Exziton den „Stopp“-Impuls liefert, so sind die Anfangsbedingungen $n_X(0) = 1$, $n_G(0) = n_{XX}(0) = 0$ und die von dem „Stopp“-Detektor beobachtete Besetzungswahrscheinlichkeit ist proportional zu der des Exziton-Zustandes ($g_{\tau>0}^{(2)}(t) \propto n_G(t)$). Damit folgt für das $g_{XX \rightarrow X}^{(2)}$ -Histogramm für $\tau > 0$:

$$\begin{aligned}g_{\tau>0}^{(2)}(t) &\propto \left(1 + \frac{B_1}{A} (1 + \lambda_1 \tau_{XX}) e^{\lambda_1 t} + \frac{C_1}{A} (1 + \lambda_2 \tau_{XX}) e^{\lambda_2 t} \right) , \\ \text{wobei } B_1 &= \frac{1 + \eta_{XX} + \eta_X \eta_{XX} + \lambda_2 \tau_E}{(\lambda_1 - \lambda_2) \tau_E} A , \\ \text{und } C_1 &= \frac{1 + \eta_{XX} + \eta_X \eta_{XX} + \lambda_1 \tau_E}{(\lambda_2 - \lambda_1) \tau_E} A .\end{aligned}\tag{A.4}$$

- **Exziton \rightarrow Biexziton (Antibunching, $\tau < 0$)**

Eine negative Delay-Zeit $\tau < 0$ entspricht hingegen einer Koinzidenzmessung, bei welcher das Exziton „startet“ und das Biexziton „stoppt“. Die Anfangsbedingungen sind folglich $n_G(0) = 1$, $n_X(0) = n_{XX}(0) = 0$ und die von dem „Stopp“-Detektor beobachtete Besetzungswahrscheinlichkeit ist proportional zu der des Biexziton-Zustandes ($g_{\tau<0}^{(2)}(t) \propto n_{XX}(t)$). Für die negative Seite des $g_{XX \rightarrow X}^{(2)}$ -Histogramms folgt

somit:

$$g_{\tau < 0}^{(2)}(t) \propto \left(1 + \frac{B_2}{A} e^{\lambda_1 t} + \frac{C_2}{A} e^{\lambda_2 t} \right),$$

wobei $B_2 = \frac{\lambda_2}{\lambda_1 - \lambda_2} A$,

und $C_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} A$.

(A.5)

• Empirische Berücksichtigung der Polarisation

In Abbildung 5.11 (c) und (d) wurde polartisationsaufgelöste Messungen der XX-X-Kaskade in der rektilinearen (HV) Polarisations-Basis durchgeführt und mit Berechnungen auf Basis des Ratengleichungs-Modells verglichen. In der Messung von $g_{\text{HH}}^{(2)}(\tau)$, bei welcher sowohl die „Start“- als auch die „Stopp“-Detektion durch horizontal-linear polarisierte Photonen erfolgt, wird das gemessene Histogramm durch die Gleichungen A.4 und A.5 beschrieben. Bei der Messung von $g_{\text{HV}}^{(2)}(\tau)$, bei welcher die „Start“- und „Stopp“-Detektion in zueinander orthogonaler Polarisation erfolgt, wurde für die Modellierung von $g_{\text{HV}}^{(2)}(\tau < 0)$ wiederum Gleichung A.5 verwendet, während für positive Delayzeiten $g_{\text{HV}}^{(2)}(\tau > 0) = 1$ angenommen wurde.

A.1.2 Berücksichtigung der zeitlichen Auflösung der Detektoren

Um die zeitliche Auflösung t_{res} der Detektoren zu berücksichtigen, muss die aus dem Ratengleichungs-Modell ermittelte ideale Kreuzkorrelationsfunktion $g_{\text{XX} \rightarrow \text{X}, \text{ideal}}^{(2)}(t)$ mit einer Gaußverteilung $G(\sigma_{\text{res}})$ der Standardabweichung $\sigma = t_{\text{res}} / (2\sqrt{2 \ln 2})$ gefaltet werden:

$$g_{\text{XX} \rightarrow \text{X}}^{(2)}(\tau) = g_{\text{XX} \rightarrow \text{X}, \text{ideal}}^{(2)}(t) \otimes G(t, \sigma_{\text{res}}),$$

$$= [g_{\tau < 0}^{(2)}(-t)\theta(-t) + g_{\tau > 0}^{(2)}(t)\theta(t)] \otimes G(t, \sigma_{\text{res}}).$$
(A.6)

Dabei wurde die Stufenfunktion $\theta(t)$ verwendet. Da die direkte Faltung der Gleichung A.6 aufgrund ihrer Komplexität zu Konvergenzproblemen führt, wurde sie entsprechend dem folgenden Ausdruck in Faltungen einer Exponentialfunktion mit der Gaußverteilung zerlegt [Aic05]:

$$E(t, \lambda_i, \sigma_{\text{res}}) = [e^{\lambda_i t} \theta(t)] \otimes G(t, \sigma_{\text{res}}).$$
(A.7)

Damit kann die gemessene Photonen-Kreuzkorrelation $g_{XX \rightarrow X}^{(2)}(t)$ wie folgt beschrieben werden:

$$g_{XX \rightarrow X}^{(2)}(t) = 1 + \sum_i \alpha_i E(-t, \lambda_i, \sigma_{\text{res}}) + \sum_i \beta_i E(+t, \lambda_i, \sigma_{\text{res}}) . \quad (\text{A.8})$$

Dabei müssen die Koeffizienten α_i und β_i entsprechend den jeweiligen Vorfaktoren aus den Gleichungen [A.5](#) und [A.4](#) gewählt werden.

A.2 Einfluss der Bandbreite von Bandpassfiltern auf das Antibunching

Im Rahmen von Kapitel 6 werden zur spektralen Filterung der Emission von Einzelphotonenquellen kompakte Bandpassfilter anstatt eines Monochromators eingesetzt, um die Transmission der Messanordnung zu erhöhen und die Komplexität des Aufbaus zu reduzieren. Im Vorfeld der durchgeführten QKD-Experimente erfolgten hierfür Testmessungen mit Bandpassfiltern unterschiedlicher Bandbreite, um deren Auswirkung auf die gemessenen $g^{(2)}(0)$ -Werte zu untersuchen. Hierzu zeigt Abbildung A.1 Messungen der Photonen-Autokorrelation zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ einer gepulst-elektrisch betriebenen Einzelphotonenquelle unter jeweils identischen Anregungsbedingungen. Die Referenzmessung mit dem

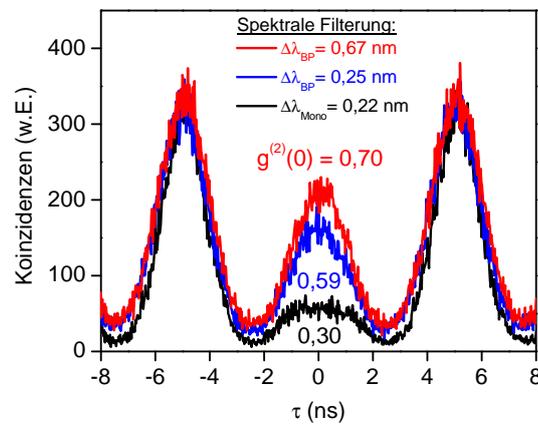


Abbildung A.1: Testmessungen mit Bandpassfiltern für den Einsatz in QKD-Experimenten: Dargestellt sind Messungen der Photonen-Autokorrelation $g^{(2)}(\tau)$ einer elektrisch betriebenen Einzelphotonenquelle bei spektraler Filterung mit unterschiedlichen Bandbreiten. Bei dem Einsatz von Bandpassfiltern (BP) werden gegenüber einer Messung mit einem Monochromator höhere $g^{(2)}(0)$ -Werte beobachtet.

Monochromator ($\Delta\lambda = 0,22 \text{ nm}$, Transmission $T \approx 30\%$) zeigt ein starkes Antibunching mit $g^{(2)}(0) = 0,30$ (schwarze Kurve). Bei dem Einsatz eines Bandpassfilters (BP) mit einer Halbwertsbreite (FWHM) von $0,67 \text{ nm}$ (10% -Bandbreite = $0,97 \text{ nm}$, $T \approx 64\%$) anstatt des Monochromators erhöht sich der $g^{(2)}(0)$ -Wert auf $0,70$ (rote Kurve). Diese Zunahme des $g^{(2)}(0)$ -Wertes bei einer spektralen Filterung der Elektrolumineszenz durch einen Bandpassfilter mit einer höheren Bandbreite ist auf eine erhöhte Detektion der unkorrelierten Hintergrundemission von Resonatorgrundmode und Quantenpunkt-Ensemble zurückzuführen. Die Verwendung eines Bandpassfilters mit einer Halbwertsbreite von $0,25 \text{ nm}$ (10% -Bandbreite = $0,82 \text{ nm}$, $T \approx 45\%$) ergibt, mit $g^{(2)}(0) = 0,59$, einen merklich besseren Wert, entspricht jedoch gegenüber der Messung mit Monochromator immer noch einer Verschlechterung um einen Faktor 2.

Die besten Ergebnisse in den QKD-Experimenten wurden mit Bandpassfiltern (*Andover Corporation*) im sogenannten *2-Cavity* Design erzielt, welche sich durch besonders steile Flanken in den Transmissionskurven auszeichnen. Der im Laborexperiment in Würzburg eingesetzte Bandpassfilter ($T \approx 42\%$) weist eine Halbwerts- bzw. 10%-Bandbreite von 0,25 nm bzw. 0,44 nm auf (vgl. Abschnitt 6.2.1 und 6.2.2). Für das QKD-Experiment in München wurde ein Bandpassfilter ($T \approx 48\%$) mit einer Halbwerts- bzw. 10%-Bandbreite von 0,23 nm bzw. 0,44 nm eingesetzt (vgl. Abschnitt 6.3.1). Die leicht unterschiedlichen Spezifikationen in der Halbwertsbreite und der Transmission rühren daher, dass die Filter jeweils Sonderanfertigungen für eine bestimmte Wellenlänge mit entsprechenden Fertigungstoleranzen sind.

A.3 Probenaufbau (Wafer: M3598, für Mikrosäulenresonatoren)

Bereich	Anzahl	Dicke (nm)	Material	Dotierkonzentration (cm^{-3})
oberer DBR	$2 \times$	65	C:GaAs	2×10^{19}
	$2 \times$	78	C:AlAs	2×10^{19}
"	$5 \times$	65	C:GaAs	6×10^{18}
	$5 \times$	78	C:AlAs	6×10^{18}
"	$3 \times$	65	C:GaAs	4×10^{18}
	$3 \times$	78	C:AlAs	4×10^{18}
"	$3 \times$	65	C:GaAs	2×10^{18}
	$3 \times$	78	C:AlAs	2×10^{18}
Kavität	$1 \times$	130	GaAs	intrinsisch
aktive Schicht	$1 \times$	1.5 Cap	PCA-InAs	intrinsisch
Kavität	$1 \times$	130	GaAs	intrinsisch
"	$4 \times$	78	Si:AlAs	2×10^{18}
	$4 \times$	65	Si:GaAs	2×10^{18}
"	$5 \times$	78	Si:AlAs	4×10^{18}
	$5 \times$	65	Si:GaAs	4×10^{18}
"	$16 \times$	78	Si:AlAs	6×10^{18}
	$16 \times$	65	Si:GaAs	6×10^{18}
Pufferschicht	$1 \times$	400	Si:GaAs	3×10^{18}

Tabelle A.1: Zusätzlich befindet sich an jeder Grenzfläche von GaAs zu AlAs ein δ -Dotierschicht, die einer Flächendotierung von $1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ entspricht.

A.4 Probenaufbau (Wafer: VC156, für Einzelquantenpunkt-Strukturen)

Bereich	Anzahl	Dicke (nm)	Material	Dotierkonzentration (cm^{-3})
oberer DBR	1 ×	65	C:GaAs	8×10^{18}
	1 ×	78	C:AlAs	8×10^{18}
"	1 ×	65	C:GaAs	4×10^{18}
	1 ×	78	C:AlAs	4×10^{18}
Kavität	1 ×	260	GaAs	intrinsisch
aktive Schicht	1 ×	1.5 Cap	PCA-InAs	intrinsisch
Kavität	1 ×	260	GaAs	intrinsisch
"	4 ×	78	Si:AlAs	1×10^{18}
	4 ×	65	Si:GaAs	1×10^{18}
"	5 ×	78	Si:AlAs	2×10^{18}
	5 ×	65	Si:GaAs	2×10^{18}
"	11 ×	78	Si:AlAs	3×10^{18}
	11 ×	65	Si:GaAs	3×10^{18}
Pufferschicht	1 ×	300	Si:GaAs	3×10^{18}

Tabelle A.2: Zusätzlich befindet sich an jeder Grenzfläche von GaAs zu AlAs ein δ -Dotierschicht, die einer Flächendotierung von $1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ entspricht.

Veröffentlichungen des Autors

Veröffentlichungen als Erstautor

- T. Heindel, C. Schneider, M. Lerner, S. H. Kwon, T. Braun, S. Reitzenstein, S. Höfling, M. Kamp und A. Forchel, *Electrically driven quantum dot-micropillar single photon source with 34% overall efficiency*, Applied Physics Letters **96**(1), S. 011107 (2010).
- T. Heindel, C. Schneider, M. Lerner, S. Höfling, S. Reitzenstein, L. Worschech und A. Forchel, *Highly efficient electrically triggered quantum dot micropillar single photon source*, Journal of Physics: Conference Series **245**(1), S. 012005 (2010).
- T. Heindel, C. A. Kessler, M. Rau, C. Schneider, M. Fürst, F. Hargart, W.-M. Schulz, M. Eichfelder, R. Roßbach, S. Nauwerth, M. Lerner, H. Weier, M. Jetter, M. Kamp, S. Reitzenstein, S. Höfling, P. Michler, H. Weinfurter und A. Forchel, *Quantum key distribution using quantum dot single-photon emitting diodes in the red and near infrared spectral range*, New Journal of Physics **14**(8), S. 083001 (2012).

Veröffentlichungen als Koautor

- S. Reitzenstein, T. Heindel, C. Kistner, A. Rahimi-Iman, C. Schneider, S. Höfling und A. Forchel, *Low threshold electrically pumped quantum dot-micropillar lasers*, Applied Physics Letters **93**(6), 061104 (2008).
- C. Kistner, T. Heindel, C. Schneider, A. Rahimi-Iman, S. Reitzenstein, S. Höfling und A. Forchel, *Demonstration of strong coupling via electro-optical tuning in high-quality QD-micropillar systems*, Opt. Express **16**(19), S. 15006 (2008).
- C. Schneider, A. Huggenberger, T. Sunner, T. Heindel, M. Strauss, S. Gopfert, P. Weinmann, S. Reitzenstein, L. Worschech, M. Kamp, S. Höfling und A. Forchel, *Single site-controlled In(Ga)As/GaAs quantum dots: growth, properties and device integration*, Nanotechnology **20**(43), S. 434012 (9pp) (2009).

- 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).
- S. Münch, S. Reitzenstein, P. Franeck, A. Löffler, T. Heindel, S. Höfling, L. Worschech und A. Forchel, *The role of optical excitation power on the emissionspectra of a strongly coupled quantum dot-micropillar system*, Opt. Express **17**(15), S. 12821 (2009).
- P. Yao, P. K. Pathak, E. Illes, S. Hughes, S. Münch, S. Reitzenstein, P. Franeck, A. Löffler, T. Heindel, S. Höfling, L. Worschech und A. Forchel, *Nonlinear photoluminescence spectra from a quantum-dot-cavity system: Interplay of pump-induced stimulated emission and anharmonic cavity QED*, Phys. Rev. B **81**(3), S. 033309 (2010).
- 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**(21), 211117 (2010).
- 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).
- F. Albert, T. Braun, T. Heindel, C. Schneider, S. Reitzenstein, S. Höfling, L. Worschech und A. Forchel, *Whispering gallery mode lasing in electrically driven quantum dot micropillars*, Applied Physics Letters **97**(10), 101108 (2010).
- 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), S. 194 (2011).
- S. Reitzenstein, T. Heindel, C. Kistner, F. Albert, T. Braun, C. Hopfmann, P. Mrowinski, M. Lermer, C. Schneider, S. Höfling, M. Kamp und A. Forchel, *Electrically Driven Quantum Dot Micropillar Light Sources*, IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics **17**(6), S. 1670 (2011).
- C. Schneider, T. Heindel, A. Huggenberger, T. A. Niederstrasser, S. Reitzenstein, A. Forchel, S. Höfling und M. Kamp, *Microcavity enhanced single photon emissi-*

on from an electrically driven site-controlled quantum dot, Applied Physics Letters **100**(9), 091108 (2012).

- W. Unrau, D. Quandt, J.-H. Schulze, T. Heindel, T. D. Germann, O. Hitzemann, A. Strittmatter, S. Reitzenstein, U. W. Pohl und D. Bimberg, *Electrically driven single photon source based on a site-controlled quantum dot with self-aligned current injection*, Applied Physics Letters **101**(21), 211119 (2012).
- M. Gschrey, F. Gericke, A. Schübler, R. Schmidt, J.-H. Schulze, T. Heindel, S. Rodt, A. Strittmatter und S. Reitzenstein, *In situ electron-beam lithography of deterministic single-quantum-dot mesa-structures using low-temperature cathodoluminescence spectroscopy*, Applied Physics Letters **102**(25), 251113 (2013).

Tagungsbeiträge als Erstautor

- T. Heindel, C. Kistner, A. Rahimi-Iman, C. Schneider, S. Höfling, S. Reitzenstein, und A. Forchel, *Low threshold lasing in electrically pumped high-Q quantum dot-micropillar cavities*, DPG Frühjahrstagung 2009, Beitrag HL 29.8, 22.-27. März, Dresden (Deutschland).
- 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*, DPG Frühjahrstagung 2010, Beitrag HL 24.1, 21.-26. März, Regensburg (Deutschland).
- T. Heindel, C. Schneider, M. Lermer, S. H. Kwon, T. Braun, S. Reitzenstein, S. Höfling, M. Kamp und A. Forchel, *Highly efficient electrically driven quantum dot micropillar single photon sources*, 6th International Conference on Quantum Dots 2010 (QD2010), 26.-30. April, Nottingham (England).
- T. Heindel, F. Albert, T. Braun, C. Schneider, M. Lermer, S. Höfling, S. Reitzenstein, L. Worschech und A. Forchel, *Electrically Driven Quantum Dot Micropillar Cavities: From Single Photon Emission to Whispering Gallery Mode Lasing* (Poster), International Nano-Optoelectronic Workshop 2010 (iNow2010), 01.-15. August, Peking (China).
- T. Heindel, M. Rau, C. Schneider, M. Fürst, S. Nauerth, M. Lermer, H. Weier, S. Reitzenstein, S. Höfling, M. Kamp, H. Weinfurter und A. Forchel, *Quantum*

key distribution using electrically triggered quantum dot - micropillar single photon sources, DPG Frühjahrstagung 2011, Beitrag ISS 8.8, 13.-18. März, Dresden (Deutschland).

- T. Heindel, M. Rau, C. Schneider, M. Fürst, S. Nauerth, M. Lermer, H. Weier, S. Reitzenstein, S. Höfling, M. Kamp, H. Weinfurter und A. Forchel, *Quantum key distribution using electrically triggered quantum dot - micropillar single photon sources* (Poster), 11th International Conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures 2011 (PLMCN11), 04.-08. April, Berlin (Deutschland).
- T. Heindel, M. Rau, C. Schneider, M. Fürst, S. Nauerth, M. Lermer, H. Weier, S. Reitzenstein, S. Höfling, M. Kamp, H. Weinfurter und A. Forchel, *Quantum key distribution using electrically triggered quantum dot - micropillar single photon sources* (Poster), Single Photon Workshop 2011 (SPW2011), 27.-30. Juni, Braunschweig (Deutschland).
- T. Heindel, M. Rau, C. Schneider, M. Fürst, S. Nauerth, M. Lermer, H. Weier, S. Reitzenstein, S. Höfling, M. Kamp, H. Weinfurter und A. Forchel, *Quantum key distribution using electrically triggered quantum dot - micropillar single photon sources* (Poster), International Nano-Optoelectronic Workshop 2011 (iNow2011), 04. Juli - 06. August, Würzburg (Deutschland).
- T. Heindel, M. Rau, C. Schneider, M. Fürst, S. Nauerth, M. Lermer, H. Weier, S. Reitzenstein, S. Höfling, M. Kamp, H. Weinfurter und A. Forchel, *Quantum key distribution using electrically triggered quantum dot - micropillar single photon sources*, DPG Frühjahrstagung 2012, Beitrag HL 104.8, 25.-30. März, Berlin (Deutschland).
- T. Heindel, M. Rau, C. Schneider, M. Fürst, S. Nauerth, M. Lermer, H. Weier, S. Reitzenstein, A. Forchel, S. Höfling, H. Weinfurter und M. Kamp, *Quantum key distribution using electrically triggered quantum dot - micropillar single photon sources* (Poster), 7th International Conference on Quantum Dots 2012 (QD2012), 13.-18. Mai, Santa Fe - New Mexico (USA).
- T. Heindel, M. Rau, C. Schneider, M. Fürst, S. Nauerth, M. Lermer, H. Weier, S. Reitzenstein, A. Forchel, S. Höfling, H. Weinfurter und M. Kamp, *Quantum key distribution using electrically triggered quantum dot - micropillar single photon sources* (Poster), 11th International Workshop Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors 2012 (NOEKS11), 23.-27. September, Stuttgart (Deutschland).

- T. Heindel, E. Stock, C. Hopfmann, F. Albert, M. Lerner, C. Schneider, S. Höfling, A. Forchel, M. Kamp, und S. Reitzenstein *On-Chip Quantum Optics with Quantum Dot Microcavities*, DPG Frühjahrstagung 2013, Beitrag HL 82.6, 10.-15. März, Regensburg (Deutschland).
- T. Heindel, E. Stock, C. Hopfmann, F. Albert, M. Lerner, C. Schneider, S. Höfling, A. Forchel, M. Kamp, und S. Reitzenstein *On-Chip Quantum Optics with Quantum Dot Microcavities* (Poster), International Nano-Optoelectronic Workshop 2013 (iNow2013), 19.-30. August, Cargèse - Corsica (Frankreich).

Danksagung

Vielen habe Ich zu danken:

Prof. Dr. Alfred Forchel für die Aufnahme an den Lehrstuhl für Technische Physik (TEP), der für meine Arbeit eine wissenschaftlich fruchtbare Umgebung bereitstellte.

Besonderer Dank gilt meinem Doktorvater Prof. Dr. Stephan Reitzenstein. Von Anfang an hast Du die Begeisterung für dieses Forschungsgebiet in mir geweckt und Deine Ratschläge sowie Deine Unterstützung haben meine wissenschaftliche Weiterentwicklung gefördert und geprägt.

Prof. Dr. Jens Pflaum für die Übernahme des Zweitgutachtens dieser Arbeit sowie Prof. Dr. Wolfgang Kinzel für die Teilnahme als Prüfer im Promotionskolloquium.

Sehr zu danken habe ich auch Prof. Dr. Sven Höfling. Nicht nur für die wissenschaftliche Unterstützung, sondern auch für das äußerst angenehme Miteinander sowie die vielfältigen Ratschläge. Du hast einen wichtigen Beitrag zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen.

Meinen ehemaligen Diplomanden Tristan Braun und Johannes Fröhlich sowie meinem ehemaligen Masteranden Sebastian Unsleber. Vielen Dank für Euer Engagement, mitunter auch zu unmenschlichen Zeiten.

Ferdinand Albert, Julian Fischer, Peter Gold, Caspar Hopfmann, Caroline Kistner, Steffen Münch, Kai Morgener, Jonathan Prechtel, Arash Rahimi-Iman, Alexander Schlehahn, Michael Schneider sowie allen anderen Kollegen aus meiner Arbeitsgruppe für das freundschaftliche Arbeitsklima und jegliche Hilfestellung.

Den Mitarbeitern der Wachstumsgruppe von Prof. Dr. Sven Höfling. Insbesondere Christian Schneider, Matthias Lermer, Dirk Bisping und Alexander Huggenberger für die Herstellung der exzellenten Proben und die hilfreichen Diskussionen.

Christian Schneider und Jan Heinrich danke ich besonders für die großartige Möglichkeit Messungen an Mikrostrukturen mit positionierten Quantenpunkten durchzuführen.

Monika Emmerling, Silke Kuhn, Adriana Wolf und allen anderen Mitarbeitern des Support-Teams für die Prozessierung der Proben auf höchstem technologischem Niveau sowie die vielen Anregungen. Zusammen mit Gerhard Heller bildet Ihr das Rückgrat des Mikrostrukturlabors.

Prof. Dr. Martin Kamp sowie Prof. Dr. Lukas Worschech für die Fortführung des Lehrstuhls. Ihr habt stets wissenschaftliche Diskussionen bereichert und ich habe immer ein offenes Ohr bei Euch gefunden.

Meinen ehemaligen Praktikanten, Bacheloranden und Austauschstudenten Manuel Gschrey, Arne Barfuß, Alexander Thoma, Anne Schade, Katrin Anneser, Gilberto de la Peña und Tamiko Masuda für ihre Unterstützung. Es war immer eine Freude mit Euch zusammenzuarbeiten.

Allen weiteren Mitgliedern der TEP für Ihre Hilfsbereitschaft und die schöne Zeit.

Prof. Dr. Harald Weinfurter und Markus Rau von der Ludwigs-Maximilians-Universität München für die gewinnbringende Zusammenarbeit bei den Experimenten zur Quantenschlüsselverteilung. Es waren überaus spannende Tagnächte bei Euch, trotz so mancher Eiseskälte über den Dächern Münchens.

Dr. Sven Burger vom Zuse Institut in Berlin (ZIB) für die Unterstützung bei den Simulationsrechnungen der Mikroresonatoren mittels des Software-Packets JCMsuite.

Meinen neuen Kollegen am Institut für Festkörperphysik der Technischen Universität Berlin für das wissenschaftlich äußerst stimulierende Umfeld und die freundliche Aufnahme.

All denen, die meine Arbeit korrekturgelesen haben: Prof. Dr. Stephan Reitzenstein, Dr. Sven Rodt, Manuel Gschrey und Markus Rau. Vielen Dank für Eure Anregungen und Verbesserungsvorschläge.

Nicht in Worten auszudrücken, ist der Dank welcher meinen Eltern, Erika und Manfred, sowie meinen Geschwistern gilt. Eure fortwährende Unterstützung in meinem Leben ist unschätzbar, auch für das Gelingen dieser Arbeit. Ebenfalls danken möchte ich meinen Nichten und Neffen für die schönen Momente und die Ablenkung in der Freizeit. Schließlich möchte ich ganz besonders meiner Freundin Luzy Krüger für ihr Verständnis und das unermüdliche Zurückholen meines Kopfes nach Feierabend danken.

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 22.06.2009 wurde mir von der Bayerischen Julius-Maximilians-Universität Würzburg der akademische Grad „Diplom-Physiker (Univ.)“ verliehen. Weitere akademische Grad habe ich weder erworben noch versucht zu erwerben.

Würzburg, den 03.12.2013

Tobias Heindel