

# Quantenpunkt-Mikroresonatoren als Bausteine für die Quantenkommunikation



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

vorgelegt von

Peter Gold  
aus Würzburg

Würzburg 2014

Eingereicht am: 03.11.2014  
bei der Fakultät für Physik und Astronomie

1. Gutachter: Prof. Dr. Stephan Reitzenstein  
2. Gutachter: Prof. Dr. Jean Geurts  
3. Gutachter:  
der Dissertation

1. Prüfer: Prof. Dr. Stephan Reitzenstein  
2. Prüfer: Prof. Dr. Jean Geurts  
3. Prüfer: Prof. Dr. Wolfgang Kinzel  
im Promotionskolloquium

Tag des Promotionskolloquiums: 21.10.2015

Doktorurkunde ausgehändigt am: .....

# Inhaltsverzeichnis

<b>Zusammenfassung</b>	<b>1</b>
<b>Summary</b>	<b>5</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>9</b>
<b>2 Theoretische Grundlagen</b>	<b>13</b>
2.1 Halbleiterquantenpunkte . . . . .	13
2.1.1 Bandstruktur des Halbleiter-Materialsystems . . . . .	13
2.1.2 Exzitonen . . . . .	14
2.1.3 Mehrteilchenkomplexe . . . . .	16
2.1.4 Quantenpunkte als Einzelphotonenemitter . . . . .	16
2.1.5 Kohärenz und spektrale Linienbreite . . . . .	17
2.2 Photonenstatistik . . . . .	18
2.2.1 Thermisches Licht . . . . .	19
2.2.2 Kohärentes Licht . . . . .	19
2.2.3 Nichtklassisches Licht . . . . .	19
2.3 Korrelationsfunktion . . . . .	20
2.3.1 Autokorrelationsfunktion erster Ordnung . . . . .	20
2.3.2 Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung . . . . .	21
2.3.3 Experimenteller Zugang der Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung . . . . .	23
2.4 Ununterscheidbare Photonen . . . . .	24
2.4.1 Zwei-Photonen-Interferenz am Strahlteiler . . . . .	24
2.4.2 Korrelationsfunktion der Zwei-Photonen-Interferenz . . . . .	25
2.4.3 Interferenz von Photonen mit inhomogener Verbreiterung . . . . .	29
2.4.4 Visibilität der Zwei-Photonen-Interferenz . . . . .	31
2.5 Mikrosäulenresonatoren . . . . .	32
2.5.1 Dreidimensionaler photonischer Einschluss . . . . .	33
2.5.2 Qualitätsfaktor . . . . .	34
2.6 Licht-Materie-Wechselwirkung im Mikroresonator . . . . .	35
2.6.1 Starke Licht-Materie-Wechselwirkung . . . . .	35
2.6.2 Schwache Licht-Materie-Wechselwirkung . . . . .	37

<b>3</b>	<b>Technologie</b>	<b>41</b>
3.1	Probenherstellung und Prozessierung . . . . .	41
3.1.1	Epitaktisches Wachstum . . . . .	41
3.1.2	Prozessierung von Mikrosäulenresonatoren . . . . .	42
3.1.3	Prozessierung von Schattenmasken . . . . .	42
3.2	Messtechnik . . . . .	43
3.2.1	Mikrophotolumineszenzspektroskopie von Quantenpunkten . . . . .	43
3.2.2	Messaufbauten . . . . .	45
<b>4</b>	<b>Reflexions- und Photolumineszenzspektroskopie an Mikrosäulenresonatoren mit sehr hohen Güten</b>	<b>51</b>
4.1	Probenaufbau . . . . .	51
4.2	$Q$ -Faktoren in Photolumineszenzspektroskopie . . . . .	52
4.3	$Q$ -Faktoren in Photoreflexionsspektroskopie . . . . .	53
4.4	Vergleich der aus Reflexions- und Photolumineszenzspektroskopie ermittelten $Q$ -Faktoren . . . . .	55
4.5	Zusammenfassung des Kapitels . . . . .	56
<b>5</b>	<b>Photostromspektroskopie an Quantenpunkt-Mikrosäulenresonatoren</b>	<b>57</b>
5.1	Grundlegendes . . . . .	57
5.1.1	Prinzip der Einzelquantenpunkt-Photostromspektroskopie . . . . .	57
5.1.2	Messaufbau zur Photostromspektroskopie . . . . .	59
5.1.3	Strom-Spannungskennlinie elektrisch kontaktierter Mikrosäulenresonatoren . . . . .	60
5.2	Besonderheiten der Exzitonlinienform im Photostromspektrum von Quantenpunkt-Mikrosäulenresonatoren . . . . .	61
5.3	Licht-Materie-Wechselwirkung unter elektrischem Auslesen . . . . .	67
5.3.1	Seitliche Anregung des Mikrosäulenresonators . . . . .	68
5.3.2	Axiale Anregung des Mikrosäulenresonators . . . . .	71
5.4	Rabi-Oszillationen im Photostrom . . . . .	74
5.4.1	Resonante gepulste Anregung eines Zwei-Niveau-Systems . . . . .	74
5.4.2	Experimentelle Beobachtung von Rabi-Oszillationen . . . . .	74
5.4.3	Polarisationsabhängigkeit der Rabi-Frequenz . . . . .	76
5.5	Zusammenfassung des Kapitels . . . . .	78
<b>6</b>	<b>Interferenz von ununterscheidbaren Photonen aus Halbleiterquantenpunkten</b>	<b>81</b>
6.1	Interferenz von zwei Photonen aus einer Quelle . . . . .	81
6.1.1	Messaufbau zur Interferenz von zwei Photonen aus einer Quelle . . . . .	81

6.1.2	Interferenz von Photonen aus einem Quantenpunkt unter Dauerstrichanregung . . . . .	82
6.1.3	Interferenz von Photonen aus einem Quantenpunkt unter gepulster Anregung . . . . .	86
6.2	Interferenz von zwei Photonen aus zwei räumlich getrennten Quellen . . . . .	98
6.3	Ausblick: Resonanzfluoreszenz an Quantenpunkten . . . . .	102
6.3.1	Experimenteller Nachweis des Mollow triplets in Resonanzfluoreszenz	104
6.3.2	Einzelphotonenemission unter resonanter Anregung . . . . .	105
6.4	Zusammenfassung des Kapitels . . . . .	108
 <b>Literaturverzeichnis</b>		 <b>109</b>
 <b>A Anhang</b>		 <b>123</b>
A.1	Probenaufbau des Wafers C1658 . . . . .	123
A.2	Probenaufbau des Wafers C3297 . . . . .	123
A.3	Probenaufbau des Wafers M3569 . . . . .	124
A.4	Probenaufbau des Wafers M2883 . . . . .	124
A.5	Probenaufbau des Wafers M2976 . . . . .	125
A.6	Probenaufbau des Wafers M3383 . . . . .	126
 <b>Veröffentlichungen des Autors</b>		 <b>127</b>
 <b>Danksagung</b>		 <b>131</b>
 <b>Versicherung an Eides statt</b>		 <b>133</b>



# Zusammenfassung

Technologien, die im wesentlichen auf quantenmechanischen Gesetzen beruhen, wie die Quanteninformationsverarbeitung und die Quantenkommunikation, sind weltweit Gegenstand enormer Forschungsanstrengungen. Sie nutzen die einzigartigen Eigenschaften einzelner Quantenteilchen, wie zum Beispiel die Verschränkung und die Superposition, um ultra-schnelle Rechner und eine absolut abhörsichere Datenübertragung mithilfe von photonischen Qubits zu realisieren. Dabei ergeben sich Herausforderungen bei der Quantenkommunikation über große Distanzen: Die Reichweite der Übertragung von Quantenzuständen ist aufgrund von Photonenverlusten in den Übertragungskanälen limitiert und wegen des No-Cloning-Theorems ist eine klassische Aufbereitung der Information nicht möglich. Dieses Problem könnte über den Einsatz von Quantenrepeatern, die in den Quantenkanal zwischen Sender und Empfänger eingebaut werden, gelöst werden. Bei der Auswahl einer geeigneten Technologieplattform für die Realisierung eines Quantenrepeaters sollten die Kriterien der Kompaktheit und Skalierbarkeit berücksichtigt werden. In diesem Zusammenhang spielen Halbleiterquantenpunkte eine wichtige Rolle, da sie sich nicht nur als Zwei-Niveau-Systeme ideal für die Konversion und Speicherung von Quantenzuständen sowie für die Erzeugung von fliegenden Qubits eignen, sondern auch mit den gängigen Mitteln der Halbleitertechnologie und entsprechender Skalierbarkeit realisierbar sind. Ein Schlüssel zur erfolgreichen Implementierung dieser Technologie liegt in der Zusammenführung des Quantenpunktes als Quantenspeicher mit einem Bauteil, welches einzelne Photonen einfangen und aussenden kann: ein Mikroresonator. Aufgrund der Lokalisierung von Elektron und Photon über einen längeren Zeitraum auf den gleichen Ort kann die Effizienz des Informationstransfers zwischen fliegenden und stationären Qubits deutlich gesteigert werden. Des Weiteren können Effekte der Licht-Materie-Wechselwirkung in Resonatoren genutzt werden, um hocheffiziente Lichtquellen zur Erzeugung nichtklassischen Lichts für Anwendungen in der Quantenkommunikation zu realisieren.

Vor diesem Hintergrund werden in der vorliegenden Arbeit Halbleiterquantenpunkte mithilfe von spektroskopischen Methoden hinsichtlich ihres Anwendungspotentials in der Quantenkommunikation untersucht. Die verwendeten Quantenpunkte bestehen aus In(Ga)As eingebettet in eine GaAs-Matrix und sind als aktive Schicht in vertikal emittierende Mikroresonatoren auf Basis von dielektrischen Spiegeln integriert. Dabei werden entweder planare Strukturen verwendet, bei denen die Spiegel zur Erhöhung der Auskoppleffizienz von Photonen dienen, oder aber Mikrosäulenresonatoren, die es ermöglichen,

Effekte der Licht-Materie-Wechselwirkung in Resonatoren zu beobachten. Zur Untersuchung der Strukturen wurden Messplätze zur Photolumineszenz-, Resonanzfluoreszenz-, Reflexions- und Photostromspektroskopie sowie zu Photonenkorrelationsmessungen erster und zweiter Ordnung aufgebaut oder erweitert und eingesetzt.

### **Reflexions- und Photolumineszenzspektroskopie an Mikrosäulenresonatoren mit sehr hohen Güten**

Eine der wichtigsten Eigenschaften eines Mikrosäulenresonators ist seine Güte, auch  $Q$ -Faktor genannt. Er beeinflusst nicht nur das Regime der Licht-Materie-Wechselwirkung, sondern auch die Höhe der Auskoppelleffizienz eines Quantenpunkt-Mikrosäulenresonator-Systems. Vor diesem Hintergrund wird eine Analyse der Verlustmechanismen, die eine Abnahme des  $Q$ -Faktors bewirken, durchgeführt. Dazu wird die Güte von Mikrosäulenresonatoren mit Durchmessern im Bereich von  $2 - 8 \mu\text{m}$  mithilfe von Reflexions- und Photolumineszenzspektroskopie gemessen. Aufgrund der erhöhten Absorption an nicht-resonanten Quantenpunkten und freien Ladungsträgern sind die Verluste bei den Messungen in Photolumineszenzspektroskopie höher als in Reflexionsspektroskopie, wodurch die in Reflexionsspektroskopie ermittelten  $Q$ -Faktoren für alle Durchmesser größer sind. Für einen Quantenpunkt-Mikrosäulenresonator mit einem Durchmesser von  $8 \mu\text{m}$  konnten Rekordgüten von  $184.000 \pm 8000$  in Photolumineszenzspektroskopie und  $268.000 \pm 13.000$  in Reflexionsspektroskopie ermittelt werden.

### **Photostromspektroskopie an Quantenpunkt-Mikrosäulenresonatoren**

Durch einen verbesserten Messaufbau und die Verwendung von Mikrosäulenresonatoren mit geringen Dunkelströmen konnte erstmals der Photostrom von einzelnen Quantenpunktexzitonlinien in elektrisch kontaktierten Mikroresonatoren detektiert werden. Dies war Voraussetzung, um Effekte der Licht-Materie-Wechselwirkung zwischen einem einzelnen Quantenpunktexziton und der Grundmode eines Mikrosäulenresonators elektrisch auszulesen. Hierzu wurden Photostromspektren in Abhängigkeit der Verstimmung zwischen Exziton und Kavitätsmode unter Anregung auf die Säulenseitenwand sowie in axialer Richtung durchgeführt. Unter seitlicher Anregung konnte der Purcell-Effekt, als Zeichen der schwachen Kopplung, über eine Abnahme der Photostromintensität des Quantenpunktes im Resonanzfall nachgewiesen werden und der entsprechende Purcell-Faktor zu  $F_P = 5,2 \pm 0,5$  bestimmt werden.

Da die Transmission des Resonators bei der Anregung auf die Säulenoberseite von der Wellenlänge abhängt, ist die effektive Anregungsintensität eines exzitonischen Übergangs von der spektralen Verstimmung zwischen Exziton und Resonatormode bestimmt. Dadurch ergab sich im Gegensatz zur Anregung auf die Seitenwand des Resonators eine Zunahme des Photostroms in Resonanz. Auch in diesem Fall konnte ein Purcell-Faktor

über eine Anpassung ermittelt werden, die einen Wert von  $F_P = 4,3 \pm 1,3$  ergab.

Des Weiteren wird die kohärente optische Manipulation eines exzitonischen Qubits in einem Quantenpunkt-Mikrosäulenresonator gezeigt. Die kohärente Wechselwirkung des Zwei-Niveau-Systems mit den Lichtpulsen des Anregungslasers führt zu Rabi-Oszillationen in der Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunktgrundzustandes, die über dessen Photostrom ausgelesen werden können. Über eine Änderung der Polarisation des Anregungslasers wurde hier eine Variation der Kopplung zwischen dem Quantenemitter und dem elektromagnetischen Feld demonstriert.

### **Interferenz von ununterscheidbaren Photonen aus Halbleiterquantenpunkten**

Für die meisten technologischen Anwendungen in der Quantenkommunikation und speziell in einem Quantenrepeater sollten die verwendeten Quellen nicht nur einzelne sondern auch ununterscheidbare Photonen aussenden. Vor diesem Hintergrund wurden Experimente zur Interferenz von ununterscheidbaren Photonen aus Halbleiterquantenpunkten in planaren Resonatorstrukturen durchgeführt. Dazu wurde zunächst die Interferenz von Photonen aus einer Quelle demonstriert. Im Fokus der Untersuchungen stand hier der Einfluss der Anregungsbedingungen auf die Visibilität der Zwei-Photonen-Interferenz. So konnte in nichtresonanter Dauerstrichanregung ein nachselektierter Wert der Visibilität von  $V_{HOM} = 0,39$  gemessen werden. Um den nicht nachselektierten Wert der Visibilität der Zwei-Photonen-Interferenz zu bestimmen, wurde die Einzelphotonenquelle gepulst angeregt. Während die Visibilität für nichtresonante Anregung in die Benetzungsschicht über ein Wiederbefüllen und zusätzliche Dephasierungsprozesse durch Ladungsträger auf einen Wert von 12% reduziert ist, konnte unter  $p$ -Schalen-Anregung in einem Hong-Ou-Mandel-Messaufbau eine hohe Visibilität von  $v = (69 \pm 1) \%$  erzielt werden.

Außerdem wurde die Interferenz von zwei Photonen aus zwei räumlich getrennten Quantenpunkten demonstriert. Hierbei konnte eine maximale Visibilität von  $v = (39 \pm 2) \%$  für gleiche Emissionsenergien der beiden Einzelphotonenquellen erzielt werden. Durch die Änderung der Photonenenergie über eine Temperaturvariation eines der beiden Quantenpunkte konnten die Photonen der beiden Quellen zunehmend unterscheidbar gemacht werden. Dies äußerte sich in einer Abnahme der Interferenz-Visibilität. Um noch größere Visibilitäten der Zwei-Photonen-Interferenz zu erreichen, ist die resonante Anregung des Quantenpunktexzitons vielversprechend. Deswegen wurde ein konfokales Dunkelfeldmikroskop für Experimente zur Resonanzfluoreszenz aufgebaut und bereits Einzelphotonenemission sowie das Mollowtriplet im Resonanzfluoreszenzspektrum eines Quantenpunktexzitons nachgewiesen.



# Summary

Technologies relying on the basic laws of quantum mechanics are subject to huge research interest all over the world. They use the unique properties of single quantum particles, like quantum entanglement and superposition, to allow for ultra-fast computers and absolutely secure data transfer with photonic qubits. However, there are some challenges with quantum communication over long distances. The transfer range is limited due to unavoidable photon losses in transfer channels and classic signal amplification is not possible because of the 'no-cloning-theorem'. This issue could be solved by integrating quantum repeaters into the quantum channel between the transmitter and the receiver. An appropriate technology platform for the implementation of a quantum repeater should satisfy the criteria of compactness and scalability. In this context, semiconductor quantum dots become important. As two-level-systems, quantum dots are not only suited for the conversion and storage of quantum states and the generation of flying qubits, but also offer the advantage to be realized with standard semiconductor technology and the corresponding scalability. The key to successfully implement this technology is to combine quantum dots with a device that can trap and emit photons: a microcavity. This device allows for increasing the interaction between the two-level-system and a photon by localizing both at the same place for an extended period of time. In addition, cavity quantum electrodynamics effects can be used to create highly efficient sources of non-classical light for applications in quantum communications.

In this context, semiconductor quantum dots are studied in this thesis by means of spectroscopic methods with regard to their potential for applications in quantum communication. The quantum dots consist of In(Ga)As embedded in a GaAs matrix and are integrated into microcavities with distributed bragg reflectors. Here, either planar structures are used to increase the out-coupling efficiency of photons by an asymmetric cavity design or micropillars are applied to facilitate the observation of light-matter coupling in the cavity quantum electrodynamics regime. Furthermore, different experimental setups were extended or built to investigate these structures, including photoluminescence, resonance fluorescence, reflection and photocurrent spectroscopy and setups for measuring the first and second order correlation function.

## Reflection- and Photoluminescence Spectroscopy of Micropillar Cavities with Very Large Quality Factors

One of the most important characteristics of a microresonator is its quality factor. It influences not only the regime of the light-matter interaction but also the out-coupling efficiency of a quantum dot-micropillar cavity system. In this context, an analysis of the loss channels that lead to a reduction of the quality factor is performed. For this purpose, the quality factor of micropillar cavities with different diameters in the range  $2 - 8 \mu\text{m}$  are measured by reflection- and photoluminescence spectroscopy. Because of the increased absorption due to nonresonant quantum dots and free carriers, the photon losses in photoluminescence are larger than in reflection spectroscopy. Therefore, the quality factors measured in reflection spectroscopy are larger for each diameter. Record quality factors of  $184.000 \pm 8.000$  in photoluminescence and  $268.000 \pm 13.000$  were obtained for a quantum dot-micropillar cavity with a diameter of  $8 \mu\text{m}$ .

## Photocurrent Spectroscopy on Quantum Dot-Micropillar Cavities

An improved experimental setup and the exploitation of micropillar cavities with reduced dark currents made it possible to observe single quantum dot exciton lines in the photocurrent signal of an electrically contacted microresonator. This was the precondition for the electrical readout of light-matter coupling effects between a single quantum emitter and the fundamental mode of a micropillar cavity. For this purpose, photocurrent spectra were taken as a function of the detuning between the exciton and the cavity mode under excitation either on the pillar sidewall or on top of the pillar. In sidewall excitation, the Purcell effect, as a clear sign of the weak coupling regime, could be observed through a reduced photocurrent signal of the quantum dot in resonance with the cavity mode and a corresponding Purcell factor of  $F_P = 5,2 \pm 0,5$ . In top excitation, the transmission of the resonator is a function of the wavelength, i.e. the maximum transfer of light into the resonator occurs when the laser wavelength coincides with an optical resonance of the micropillar cavity. Therefore, the effective excitation power of the excitonic transition depends on the spectral detuning between the exciton and the cavity mode. Due to this detuning dependent excitation intensity, the photocurrent signal shows an increase at resonance, which is in contrast to the sidewall excitation scheme. Also, in this case a Purcell factor of  $F_P = 4,3 \pm 1,3$  was extracted by a fit to the experimental data.

In addition, the coherent optical control of an excitonic qubit in a quantum dot-micropillar cavity is demonstrated. The coherent interaction of the two-level system with the light pulses of the excitation laser leads to Rabi oscillations in the occupation probability of the quantum dot ground state, which were monitored via the photocurrent originating from the quantum dot. By changing the polarization angle of the exciting laser, a variation of the coupling between the quantum emitter and the electromagnetic

field was observed.

### **Interference of Indistinguishable Photons Emitted from Semiconductor Quantum Dots**

Most technological applications in the field of quantum communication, and especially quantum repeaters, require photon sources of not only single but also indistinguishable photons. In this context, experiments on the interference of indistinguishable photons emitted from semiconductor quantum dots in planar resonator structures were performed. First, the interference of consecutively emitted photons from the same quantum dot is studied. The investigation focuses on the influence of the excitation condition on the two-photon interference visibility. In nonresonant continuous wave excitation, a postselected value of the two-photon interference visibility of  $V_{HOM} = 0,39$  is measured. To obtain the non-postselected value, the excitation of the single photon source has to be pulsed. Recapturing and dephasing processes of additional charge carriers reduce the non-postselected visibility for nonresonant excitation into the wetting layer states to a value of 12%, while for  $p$ -shell excitation, a larger visibility of  $v = (69 \pm 1) \%$  was achieved in a Hong-Ou-Mandel setup.

Furthermore, the interference of two photons from two spatially separated quantum dots is demonstrated. Here, a maximum visibility of  $v = (39 \pm 2) \%$  was achieved for equal emission energies of both single photon sources. By changing the emission energy of one of the two quantum dots via a variation of its temperature, the photons emitted from each source could be made increasingly distinguishable, resulting in a decrease of the interference visibility. To obtain even larger two-photon interference visibilities, a strict resonant excitation of the quantum dot exciton is very promising. Hence, a confocal dark field microscope was built for experiments in resonance fluorescence. Single photon emission as well as the Mollow triplet were already identified in resonance fluorescence.



# 1 Einleitung

Die 2013 vom ehemaligen Geheimdienstmitarbeiter der National Security Agency, Edward Snowden, enthüllten Details der globalen Überwachungs- und Spionageaffäre, machten es deutlich, dass zurzeit weder Staatsoberhäupter noch höchste internationale Organisationen vor Abhörangriffen sicher sind. Dementsprechend ist der Wunsch nach einer verbesserten Verschlüsselungstechnologie für die Datenkommunikation groß. Die ultimative Lösung für eine abhörsichere Datenübertragung bietet die Quantenschlüsselverteilung (QKD<sup>1</sup>), ein Teilgebiet der Quanteninformationstechnologie. Im Gegensatz zu klassischen Verschlüsselungsverfahren, die auf der Verlässlichkeit von Vertrauenspersonen oder Leistungsfähigkeit von Computern, wie dem RSA<sup>2</sup>-Verfahren, beruhen und damit prinzipiell angreifbar bleiben, ermöglicht es die QKD aufgrund quantenphysikalischer Gesetzmäßigkeiten, Informationen abhörsicher zu übertragen.

Die erste experimentelle Umsetzung der Quantenschlüsselverteilung im Labor wurde 1992 mithilfe des BB84 Protokolls demonstriert [Ben92]. Dieses Verfahren wurde von C.H. Bennett und G. Brassard im Jahr 1984 vorgestellt [Ben84] und seine Abhörsicherheit basiert auf dem sogenannten No-Cloning-Theorem [Woo82]. Beim BB84 Protokoll wird ein geheimer und zufälliger Schlüssel zur Kodierung bzw. Dekodierung zwischen zwei Parteien mittels unterschiedlicher Polarisationszustände einzelner Photonen (flying Qubits) ausgetauscht. Aufgrund des No-Cloning Theorems, das besagt, dass ein unbekannter Quantenzustand nicht perfekt<sup>3</sup> kopiert werden kann, kann eine dritte Partei diese Polarisationszustände nicht messen ohne sie zu verändern. Deshalb kann durch einen nachträglichen Abgleich zwischen Sender und Empfänger ein möglicher Abhörversuch verlässlich entdeckt werden und der zuvor generierte Schlüssel wird verworfen.

Die zurzeit komfortabelsten und billigsten Lichtquellen, die zur Realisierung des BB84 Protokolls zum Einsatz kommen, sind stark abgeschwächte Laserpulse. Jedoch besteht bei Laserlicht aufgrund seiner Poisson'schen Photonenstatistik selbst bei einer geringen mittleren Photonenzahl  $\mu$  von 0,1 Photonen pro Puls eine Wahrscheinlichkeit von 0,5 %, dass sich zwei oder mehr Photonen in einem Laserpuls befinden [Gis02]. Diese Multipho-

---

1 Akronym für quantum key distribution

2 Nach Rivest, Shamir und Adleman benanntes Kryptographieverfahren, das auf der Schwierigkeit beruht, große Zahlen in Primzahlen zu faktorisieren.

3 Die maximale durchschnittliche Wahrscheinlichkeit mit der ein Quantenzustand kopiert werden kann beträgt  $5/6$  [Buz96].

tonenpulse stellen ein Sicherheitsrisiko dar, welches aber über bestimmte Protokolle, wie z.B. das Decoy Zustands-Protokoll [Hwa03] oder das *differential phase shift* QKD Schema [Ino02], beseitigt werden kann. Mithilfe dieser erweiterten Protokolle ist selbst bei einer mittleren Photonenzahl von  $\mu = 0,2 - 0,5$  noch ein sicherer Datentransfer über größere Distanzen möglich [San12]. Jedoch ist die Datenübertragungsrate aufgrund der geringen mittleren Photonenzahl reduziert.

Um möglichst hohe Datenübertragungsraten zu ermöglichen, benötigt man Lichtquellen die deterministisch nur ein Photon pro Anregungspuls aussenden und dadurch mit einer mittleren Photonenzahl von  $\mu = 1$  betrieben werden können, sogenannte Einzelphotonenquellen. Sie emittieren nichtklassisches Licht, das über Fock-Zustände beschrieben werden kann. Mögliche Ansätze für solche Quantenemitter sind isolierte Atome, organische Moleküle, Fehlstellen in Diamantnanokristallen oder Halbleiterquantenpunkte. Letztere sind zentraler Bestandteil dieser Arbeit und besitzen den Vorteil einer direkten Integration in Mikroresonatoren und Wellenleitern zur Erhöhung der Auskoppelleffizienz der Photonen und zur Manipulation der Emittereigenschaften über Effekte der Licht-Materie-Wechselwirkung. So kann die spontane Lebensdauer von Quantenpunktexzitonen durch den Purcell-Effekt in einem Mikroresonator stark reduziert werden, um kurze Photonenwellenpakete mit einer Dauer von weniger als 100 ps zu generieren [San02, Var05], wodurch prinzipiell Übertragungsraten von mehr als 10 GHz möglich wären. Zurzeit sind Einzelphotonenquellen aber technologisch noch nicht weit genug entwickelt, um den Weg in eine käuflich erhältliche Anwendung zu finden, weswegen für die ersten kommerziellen Quantenschlüsselverteilungssysteme bislang stark abgeschwächte Laser verwendet werden [Kla02].

Ein nicht zu unterschätzendes Problem beim Aufbau von Quantenkanälen zur sicheren Datenkommunikation über Distanzen von mehreren hundert Kilometern sind unumgänglich auftretende Verluste in Glasfaserkabeln. So besitzt eine typische Glasfaser, bei einer optimalen Übertragungswellenlänge von 1550 nm einen Verlust von ca. 0,2 dB/km und damit eine Transmission von nur 1% über 100 km oder  $10^{-18}$  % über 1000 km. Dadurch scheint eine Quantenkommunikation über sehr große Distanzen unmöglich zu sein, da im Gegensatz zu klassischen Signalen die fliegenden Qubits aufgrund des No-Cloning-Theorems nicht auf herkömmliche Weise über optische Verstärker vervielfacht werden können. Die Lösung für dieses Problem liefert jedoch das 1998 veröffentlichte Konzept des Quantenrepeaters [Bri98]. Dabei werden ein oder mehrere Quantenrepeater-Knoten zwischen Sender und Empfänger in den Quantenkanal eingebracht und zum Aufbau einer Verschränkungsverteilung genutzt. Diese kann dann mittels Quantenteleportation zur Übermittlung eines beliebigen Quantenzustands genutzt werden. Ein Quantenrepeater kann zum einen über Photonenpaarquellen und zum anderen über Einzelphotonenquellen realisiert werden [San11], wobei die Vorteile des Einzelphotonenprotokolls ab einer Auskoppelleffizienz der Quelle von 67% gegenüber dem DLCZ-Protokoll [Dua01] für Pho-

---

tonenpaarquellen überwiegen [San07]. Dies unterstreicht die Bedeutung der Entwicklung von hocheffizienten Einzelphotonenquellen.

Neben einer möglichst hohen Auskoppelleffizienz und starken Unterdrückung von Mehrfachphotonenereignissen besteht noch eine weitere Anforderung an die Quantenemitter. Ein Quantenrepeater sowie die meisten Anwendungen in der Quantenkommunikation und dem optischen Quantencomputing basieren auf Lichtquellen, die einzelne Photonen mit einem hohen Grad an Ununterscheidbarkeit aussenden. Das heißt, die Photonen müssen die gleiche Polarisierung und Frequenz besitzen. Die Quanteninterferenz von ununterscheidbaren Photonen spiegelt sich im Hong-Ou-Mandel-Effekt wider: Treffen zwei ununterscheidbare Photonen auf einen gleichmäßigen Strahlteiler und überlappen ihre Wellenpakete dabei zeitlich und räumlich, so verlassen sie diesen stets gemeinsam in einen Ausgang des Strahlteilers. Sind die Photonen dagegen unterscheidbar, so kommt es zu einer zufälligen Aufteilung der beiden Photonen auf beide Ausgänge. Des Weiteren ist es für mögliche Anwendungen unumgänglich, dass die Photonen gleiche Puls- und Bandbreiten aufweisen sowie möglichst Fourier-Transformations-limitiert sind. Letzteres ist bei Quantenpunkten aufgrund ihrer Festkörperumgebung und der damit einhergehenden Dephasierung durch Wechselwirkung mit Phononen und geladenen Zuständen schwer zu realisieren. Jedoch konnten kürzlich durch ein verbessertes resonantes Anregungsschema immense Fortschritte bei der Erzeugung von nahezu Fourier-Transformations-limitierten Photonen aus Halbleiterquantenpunkten erzielt werden [He13b, He13a, Gao13, Wei14], die das Potential der Strukturen für die Anwendung in der Quantenkommunikation und dem optischen Quantencomputing deutlich machen.

Zur Untersuchung der Quanteninterferenz von zwei Photonen aus Halbleiterquantenpunkten wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Hong-Ou-Mandel Messaufbau realisiert, mit dessen Hilfe der Einfluss der Anregungsart auf die Zwei-Photonen-Interferenz untersucht wird. Des Weiteren konnte die Quanteninterferenz von Photonen aus zwei unterschiedlichen Quantenpunkten demonstriert werden. Hierbei wird der Einfluss einer inhomogenen Verbreiterung der Emissionslinien auf die Visibilität der Zwei-Photonen-Interferenz untersucht.

Neben Photonen als fliegende Qubits, benötigt man für einen Quantenrepeater zusätzlich stationäre Qubits als Quantenspeicher. Diese können über Elektron- oder Lochspins in einem Halbleiterquantenpunkt realisiert werden. Eine mögliche Schnittstelle zwischen fliegenden und stationären Qubits stellen Quantenpunkt-Mikrosäulenresonatoren dar [Hu08b, Hu08a, Hu09, Hu11, Wan12]. Diese ermöglichen eine hohe Ein- und Auskoppelleffizienz der Photonen, eine Manipulation der Emittiereigenschaften über Effekte der Licht-Materie Wechselwirkung und können elektrisch betrieben und kontrolliert werden [Böc08, Kis08, Kis10]. Im Fokus der vorliegenden Arbeit befindet sich vor diesem Hintergrund das Auslesen der Interkonversion von einzelnen Photonen in elektrische Anregungen in einem Quantenpunkt mittels Photostromspektroskopie. Diese Spektroskopietechnik

wird dazu genutzt, um Effekte der Licht-Materie-Wechselwirkung, wie den Purcell-Effekt, und Rabi-Oszillationen an einzelnen Quantenpunkten zu demonstrieren.

Im Folgenden wird eine kurze Gliederung der Arbeit aufgeführt: In Kapitel 2 werden zunächst die für das Verständnis dieser Arbeit wichtigen theoretischen Grundlagen kurz erläutert, bevor in Kapitel 3 die Technologie beschrieben wird, die zur Herstellung der Proben und zur Untersuchung derselben verwendet wird. Zum Einstieg in die experimentellen Ergebnisse dient Kapitel 4, das sich mit der Photolumineszenz- und Reflexionsspektroskopie von Quantenpunkt-Mikrosäulenresonatoren mit sehr hohen Güten beschäftigt. Insbesondere werden hier die beiden Messmethoden in Bezug auf die ermittelten Güten verglichen. Daraufhin wird in Kapitel 5 eine weitere Spektroskopiemethode vorgestellt, die Photostromspektroskopie, mit deren Hilfe elektrisch kontaktierte Mikrosäulenresonatoren über einen resonanten Anregungsprozess untersucht werden. Das abschließende Kapitel 6 behandelt Experimente zur Quanteninterferenz von Photonen aus Halbleiterquantenpunkten.

## 2 Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel werden die theoretischen Grundlagen erläutert, die für das Verständnis der experimentellen Untersuchungen wichtig sind. Das Kapitel beginnt mit den physikalischen Eigenschaften von Halbleiterquantenpunkten, geht über zur Photonenstatistik von nichtklassischen Lichtquellen und endet mit der Theorie zu quantenelektrodynamischen Effekten in Mikroresonatoren.

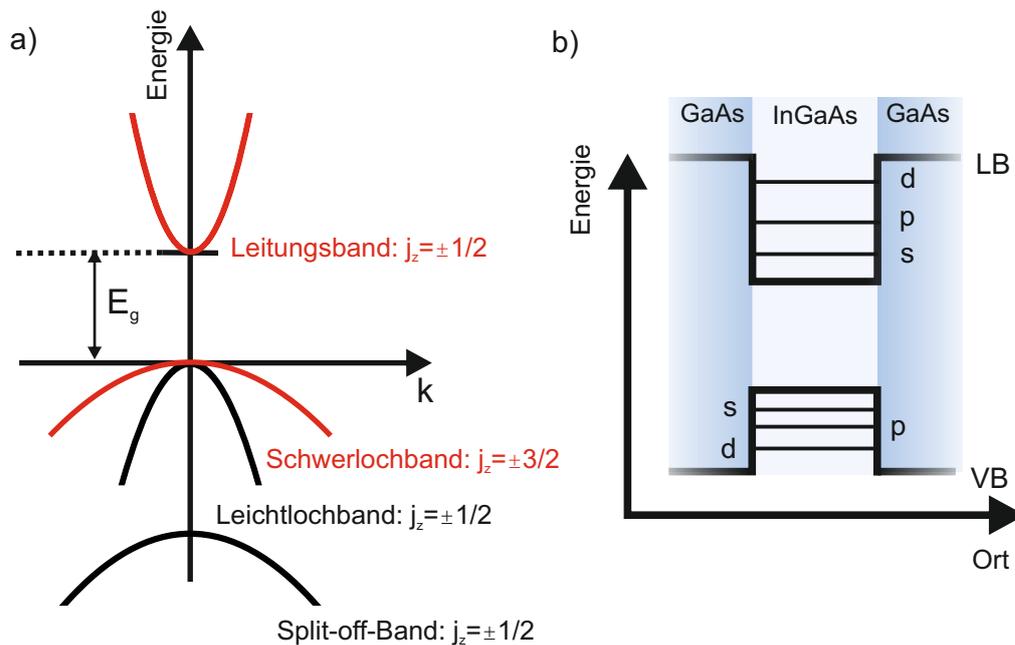
### 2.1 Halbleiterquantenpunkte

Als Quantenpunkte bezeichnet man Strukturen, deren Abmessungen in allen drei Raumrichtungen im Bereich der de Broglie Wellenlänge der Ladungsträger liegen [Bim99]. Die in dieser Arbeit untersuchten Halbleiterquantenpunkte im Speziellen sind meist nur wenige Nanometer große, aus mehreren hundert bis tausend Atomen bestehende kristalline Cluster, die eingebettet in eine dielektrische Matrix eines anderen Halbleitermaterials sind. Sie können als quasi „nulldimensionale“ Strukturen bezeichnet werden, in denen sich Ladungsträger nicht mehr frei bewegen können. Ähnlich wie bei Atomen kommt es dadurch zu einer Quantisierung der Energieeigenwerte und zur Ausbildung einer elektronischen Schalenstruktur, weshalb Quantenpunkte häufig auch als „künstliche Atome“ [Bay00, Ash96] bezeichnet werden. Ihre elektronischen und optischen Eigenschaften können maßgeschneidert werden und sind allein von der Geometrie (Größe und Form) und der Materialzusammensetzung der Quantenpunkte abhängig.

#### 2.1.1 Bandstruktur des Halbleiter-Materialsystems

Die in dieser Arbeit untersuchten Quantenpunkte bestehen aus Indium-(Gallium)-Arsenid (In(Ga)As) eingebettet in eine umgebende Gallium-Arsenid (GaAs) Matrix. GaAs und InAs werden als direkte Halbleiter bezeichnet, da bei ihnen das Leitungsbandminimum und das Valenzbandmaximum in der Brillouinzone bei gleichem (Quasi-) Impuls am  $\Gamma$ -Punkt liegen. Dadurch ist für die Absorption bzw. Emission von Photonen kein zusätzlicher Impuls durch Phononenabsorption oder -emission nötig, was dieses Materialsystem für optisch aktive Bauteile interessant macht.

Das Leitungsband wird hauptsächlich von den s-Orbitalen der Gruppe-III-Elemente (In, Ga) gebildet und deshalb als s-artig bezeichnet (Bahndrehimpuls  $l = 0$ ). Es ist zweifach spinentartet mit Gesamtdrehimpuls  $j_z = s_z = \pm 1/2$ . Hingegen entstehen die Valenzbänder



**Abbildung 2.1:** a) Schematische Abbildung der Energie-Impuls-Dispersionsrelation eines direkten Halbleiters mit Energielücke  $E_g$  am  $\Gamma$ -Punkt. Die für den exzitonischen Übergang relevanten Bänder sind rot markiert. b) Skizze der elektronischen Struktur eines Quantenpunktes. Schematisch dargestellt ist der Potentialverlauf von Leitungs- und Valenzbandkante entlang einer Geraden durch den Quantenpunkt.

aus den p-Orbitalen der As-Anionen und werden dementsprechend als p-artig bezeichnet (Bahndrehimpuls  $l = 1$ ). Bei Übergängen zwischen dem Leitungs- und Valenzband ist also die Auswahlregel für den Bahndrehimpuls  $\Delta l = \pm 1$  erfüllt. Das Valenzband ist aufgrund der Spin-Bahn-Wechselwirkung in das zweifach spinentartete, energetisch abgesenkte split-off Band mit Gesamtdrehimpuls  $j = 1/2$  und ein bei  $k = 0$  vierfach entartetes Band mit  $j = 3/2$  aufgespalten. Dieses Band spaltet abseits vom  $\Gamma$ -Punkt in zwei Bänder mit unterschiedlicher Krümmung auf, das Leichtlochband mit  $j_z = \pm 1/2$  und das Schwerlochband mit  $j_z = \pm 3/2$ . In Abbildung 2.1 a) ist der schematische Bandverlauf eines direkten Halbleiters am  $\Gamma$ -Punkt dargestellt.

### 2.1.2 Exzitonen

Wird ein Elektron vom Valenzband in das Leitungsband eines Festkörpers gehoben, so bleibt im Valenzband ein Defektelektron, auch Loch genannt, zurück. Aufgrund der Coulomb Wechselwirkung zwischen den Ladungsträgern können Elektron und Loch eine Bindung eingehen, die zur Bildung eines Quasiteilchen führt, dem Exziton oder auch Elektron-Loch-Paar. In Abhängigkeit von der Bindungsstärke unterscheidet man zwischen schwach gebundenen Mott-Wannier-Exzitonen und stark gebundenen Frenkel-Exzitonen. Während letztere vor allem in Isolatoren auftreten, sind erstere typisch für Halbleiter wie GaAs,

da hier die Ladungen aufgrund der relativ großen Dielektrizitätskonstante  $\epsilon_r$  abgeschirmt werden. Man kann Mott-Wannier-Exzitonen in einfacher Näherung in einem modifizierten Wasserstoffmodell behandeln. Eine wichtige Größe, die aus diesem Modell abgeleitet werden kann, ist der Exziton Bohr-Radius

$$a_B^X = \frac{4\pi\epsilon_0\epsilon_r\hbar^2}{\mu e^2} \quad (2.1)$$

mit der effektiven Masse des Elektron-Loch-Paares  $\mu$ , der Elementarladung  $e$ , der relativen Dielektrizitätskonstanten  $\epsilon_r$  und der elektrischen Feldkonstanten  $\epsilon_0$ . Er beschreibt den mittleren Abstand zwischen dem Elektron und dem Loch. Für GaAs bzw. InAs beträgt  $a_B^X$  ca. 11 nm bzw. 33 nm. Das Exziton ist also bei einer Gitterkonstanten von  $a_{GaAs} = 5,6532 \text{ \AA}$  bzw.  $a_{InAs} = 6,0584 \text{ \AA}$  über viele Gitterperioden des Kristalls delokalisiert.

In einem Volumenhalbleiter können sich Exzitonen frei bewegen, wohingegen sie in Quantenpunkten aufgrund des Einschlusspotentials gefangen sind. Dieses wird durch Banddiskontinuitäten gebildet, welche an den Grenzflächen der beiden Halbleitermaterialien aufgrund der unterschiedlichen Bandlücken entstehen (im betrachteten In(Ga)As-System  $E_{g,GaAs} = 1,42 \text{ eV}$  und  $E_{g,InAs} = 0,354 \text{ eV}$ ). Dadurch bildet sich ein dreidimensionaler Potentialtopf für Elektronen im Leitungsband und für Löcher im Valenzband dessen Potentialstruktur von der Form, Größe und Materialzusammensetzung der Quantenpunkte abhängt. Die Lösung der Schrödingergleichung für ein solches System liefert diskrete Energieniveaus  $E_i$  und damit eine ebenfalls diskrete Zustandsdichte

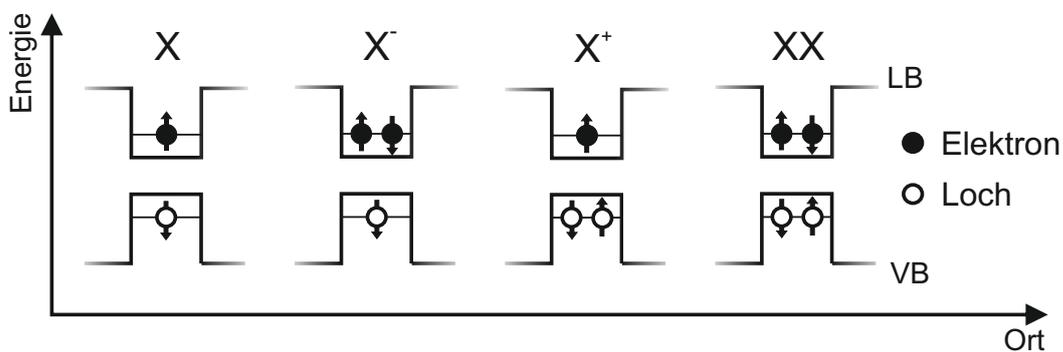
$$D_{QD}(E) = \sum_i \delta(E - E_i). \quad (2.2)$$

In Analogie zur Atomphysik wird das energetisch niedrigste Niveau in einem Quantenpunkt als Grundzustand oder s-Schale bezeichnet (siehe Abbildung 2.1 b). Meist ist die laterale Ausdehnung eines epitaktisch gewachsenen Quantenpunktes größer als seine Höhe. Da die Quantisierungsenergie reziprok mit der Ausdehnung einer niederdimensionalen Struktur zusammenhängt, wird der energetische Abstand zum nächst höheren Energieniveau, der p-Schale, deshalb im Wesentlichen von der lateralen Quantenpunktausdehnung bestimmt.

Durch Verzerrungen und unterschiedliche Quantisierungseffekte für schwere und leichte Löcher sind in einem Quantenpunkt die entsprechenden Valenzbänder am  $\Gamma$ -Punkt getrennt, wobei das Leichtlochband meist gegenüber dem Schwerlochband energetisch abgesenkt ist. Die Grundzustandsrekombination im Quantenpunkt wird deshalb durch ein Elektron im Leitungsband und ein Loch im Schwerlochband gebildet. Befindet sich ein Elektron-Schwerloch-Paar im Grundzustand des Quantenpunktes, so kann es unter Aussendung eines Photons rekombinieren. Durch Kopplung von Schwerlochdrehimpuls  $j = 3/2$  und Elektronenspin  $s = 1/2$  ergeben sich für den Gesamtdrehimpuls dieses Übergangs die

Werte  $J = 1, 2$  mit den resultierenden z-Komponenten  $J_z = \pm 1, \pm 2$ . Der Übergang ist also vierfach entartet, wobei ein optischer Übergang zwischen dem Schwerlochband und dem Leitungsband nur unter Erhaltung des Drehimpulses stattfinden kann. Das heißt, die Rekombination von Elektron und Loch unter Aussendung eines Photons mit Drehimpuls  $\pm 1$  kann nur über die Zustände mit  $J_z = \pm 1$  erfolgen. Diese werden deshalb als helle Exzitonen bezeichnet, wohingegen die Zustände mit  $J_z = \pm 2$  als dunkle Exzitonen bezeichnet werden.

### 2.1.3 Mehrteilchenkomplexe



**Abbildung 2.2:** Schematische Darstellung von Mehrteilchenkomplexen in einem Quantenpunkt. Abgebildet sind das neutrale Exziton ( $X$ ), das negativ und positiv geladene Trion ( $X^+$ ,  $X^-$ ) und das Biexziton ( $XX$ ).

Aufgrund ihres fermionischen Charakters unterliegen Elektronen und Löcher dem Pauli-Prinzip. Die  $s$ -Schale im Quantenpunkt kann deshalb mit maximal zwei Ladungsträgern mit entgegengesetztem Spin besetzt werden. Daraus ergeben sich für den Grundzustand verschiedene Mehrteilchenzustände (siehe Abbildung 2.2), die aufgrund von unterschiedlich starker Coulombwechselwirkung zwischen den Ladungsträgern in der Regel spektral voneinander getrennt sind. In Einzelquantenpunktuntersuchungen können deshalb mehrere Spektrallinien der  $s$ -Schale beobachtet werden [Bay00, Fin01]. Man unterscheidet zwischen dem neutralen Exziton ( $X$ ), dem positiv und negativ geladenen Exziton ( $X^+$  und  $X^-$ ), dem Biexziton ( $XX$ ) und weiteren exzitonischen Komplexen. Der spektrale Abstand zwischen Exziton und Biexziton wird als Biexziton-Bindungsenergie bezeichnet, die sowohl positives als auch negatives Vorzeichen besitzen und durch elektrische Felder und Spannungsfelder beeinflusst werden kann [Tro12].

### 2.1.4 Quantenpunkte als Einzelphotonenemitter

Der Grundzustand im Leitungs- und Valenzband eines Quantenpunktes kann aufgrund des fermionischen Charakters der Ladungsträger, für die das Pauli-Prinzip gilt, nur mit maximal zwei Ladungsträgern mit entgegengesetztem Spin besetzt werden. Befindet sich

nun ein Elektron-Loch-Paar in einem Quantenpunkt, so kann dieses nach einer für den Quantenpunkt charakteristischen Zeit, der Lebensdauer  $\tau_r$ , spontan zerfallen. Diese hängt vom Dipolmatrixelement des Übergangs sowie der (lokalen) photonischen Zustandsdichte bei der Übergangsenergie ab und beträgt für die Grundzustandsrekombination in InAs Quantenpunkten ca. 1 ns. Während dieser Zeit kann kein weiteres Elektron-Loch-Paar in den gleichen Zustand relaxieren, sodass keine zwei Photonen gleichzeitig aus einem Zustand im Quantenpunkt emittiert werden können. Außerdem sind Exziton und Biexziton in der Regel spektral voneinander getrennt, dadurch kann man durch spektrales Filtern die Emission des Exzitons selektieren, um den Quantenpunkt als Einzelphotonenquelle zu betreiben.

### 2.1.5 Kohärenz und spektrale Linienbreite

Quantenpunktexzitonen lassen sich näherungsweise als Zwei-Niveau-System beschreiben. Der Grundzustand entspricht hierbei dem leeren Quantenpunkt ohne Elektron bzw. Loch und der angeregte Zustand einem Quantenpunkt in dem sich ein Exziton befindet. Die natürliche Linienbreite einer Quantenpunktmissionslinie ist im klassischen Sinne eine Konsequenz aus der Fourier-Transformation des zeitlichen Verlaufs der Emission. Quantenmechanisch betrachtet ist sie eine Konsequenz aus der Energie-Zeit-Unschärfe. Die Photonenwellenpakete, die von einem Quantenpunkt ausgesendet werden, sind im zeitlichen Verlauf einseitige Exponentialfunktionen (siehe Abbildung 2.3 a)

$$\xi(t) = \xi_0 e^{-\frac{t}{2\tau_r} + i\omega_0 t}. \quad (2.3)$$

Die Einzelphotonenwellenpakete können durch eine Überlagerung von einzelnen monochromatischen Wellen der Frequenz  $\omega$  ausgedrückt werden

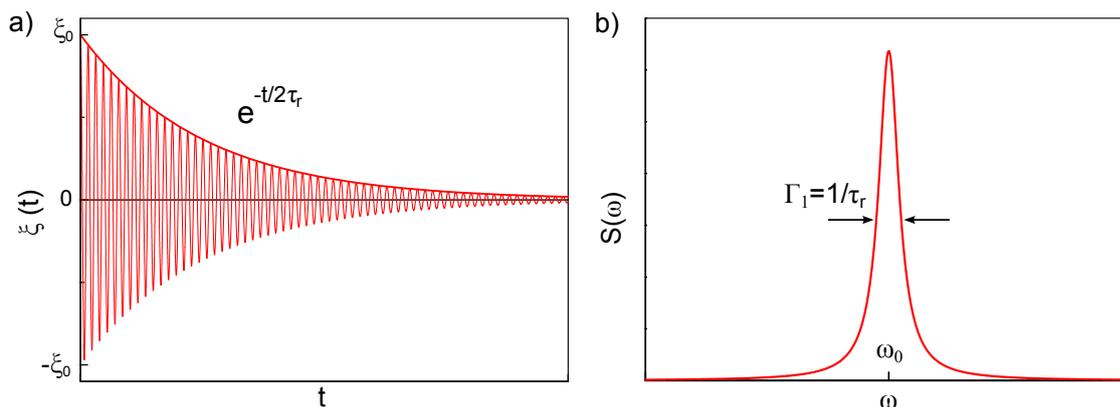
$$\xi(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \Phi(\omega) e^{i\omega t} d\omega. \quad (2.4)$$

Dies entspricht der Fourier-Transformierten des dazugehörigen Spektrums (siehe Abbildung 2.3 b). Das Intensitätsspektrum des Wellenpaketes ist dann gegeben durch eine Lorentzlinie

$$S(\omega) = |\Phi(\omega)|^2 = \frac{1}{2\pi} \cdot \frac{\Gamma_1}{(\omega - \omega_0)^2 + \Gamma_1^2}. \quad (2.5)$$

Dabei gibt  $\Gamma_1 = 1/\tau_r$  die Halbwertsbreite der Linie an. In realen Systemen ist die Linienform aufgrund von Dephasierung verbreitert. Für den Fall von reiner Dephasierung (*pure dephasing*) setzt sich die Kohärenzzeit  $\tau_c$  folgendermaßen zusammen

$$\frac{1}{\tau_c} = \frac{1}{2\tau_r} + \frac{1}{\tau_{deph}}. \quad (2.6)$$



**Abbildung 2.3:** Zusammenhang zwischen Lebensdauer und Linienbreite für Fourier-Transformations-limitierte Photonen. a) Die Photonewellenpakete, die von einem Quantenpunkt emittiert werden, sind einseitige Exponentialfunktionen. b) Aus einer Fourier-Transformation ergibt sich das zugehörige Spektrum zu einer Lorentzlinie der Halbwertsbreite  $\Gamma_1 = 1/\tau_r$ .

Der Faktor 2 für die Lebensdauer ergibt sich aus den optischen Bloch-Gleichungen, die die zeitliche Entwicklung eines Zwei-Niveau-Systems mithilfe von charakteristischen Dämpfungskonstanten beschreiben. Dabei bewirkt die Änderung der Besetzung des Zwei-Niveau-Systems einen Verlust der Phase des Zustandes, der über den Dämpfungsterm  $1/2\tau_r$  berücksichtigt wird. Alle Prozesse, die eine Änderung der Phase verursachen aber nicht die Besetzung des Quantenpunktes ändern, werden über den Dämpfungsterm der reinen Dephasierung  $1/\tau_{deph}$  berücksichtigt. Solche Prozesse treten aufgrund von Ladungsträger-Phonon- oder Ladungsträger-Ladungsträger-Streuung unter Beteiligung des Exzitons im Quantenpunkt auf. In Abwesenheit von reinen Dephasierungsprozessen gilt für Fourier-Transformations-limitierte Photonen

$$\tau_c = 2\tau_r. \quad (2.7)$$

## 2.2 Photonenstatistik

Um Lichtfelder in Klassen unterteilen zu können, betrachtet man die Statistik der von der Quelle ausgesandten Photonen. Eine Photonenstatistik ist eine Verteilung  $P(n, t)$ , die die Wahrscheinlichkeit angibt, eine Anzahl von  $n$  Photonen in einem Zeitintervall  $[t, t + dt]$  zu detektieren. In Abhängigkeit ihrer Photonenstatistik können Lichtfelder so entweder in thermisches, kohärentes oder nichtklassisches Licht eingeteilt werden. Die von thermischen Lichtquellen, wie z. B. Glühlampen oder LEDs, emittierten Photonen folgen einer geometrischen Verteilung, während kohärentes Licht, wie es in guter Näherung von einem Laser emittiert wird, durch eine Poisson-Verteilung beschrieben wird. Sowohl kohärente als auch thermische Lichtfelder können klassisch beschrieben werden, hingegen werden die in dieser Arbeit verwendeten Einzelphotonenemitter als nichtklassische Lichtquellen bezeich-

net. Diese werden über Photonenzahlzustände beschrieben und folgen einer sub-Poisson-Verteilung. Für ein Verständnis der besonderen Eigenschaften nichtklassischer Lichtquellen ist eine vorausgehende Betrachtung der statistischen Eigenschaften von thermischem und kohärentem Licht von Vorteil.

### 2.2.1 Thermisches Licht

Thermische Strahlung hat ihren Ursprung in einem thermischen Gleichgewicht von Emission und Absorption zwischen einem Strahlungsfeld und einem Ensemble von Emittlern. In diesem Fall ist die Photonenstatistik durch eine geometrische Verteilung gegeben [Lou00]

$$P(n) = \frac{\langle n \rangle^n}{(1 + \langle n \rangle)^{1+n}}, \quad (2.8)$$

wobei  $\langle n \rangle$  der mittleren Anzahl der Photonen in einer Mode entspricht.

### 2.2.2 Kohärentes Licht

Kohärentes Licht wird durch eine lineare Überlagerung einzelner Photonenzahlzustände beschrieben, wobei diese mit einer Poisson-Verteilung gewichtet sind

$$P(n) = e^{-\langle n \rangle} \frac{\langle n \rangle^n}{n!}. \quad (2.9)$$

### 2.2.3 Nichtklassisches Licht

Im Allgemeinen generieren nichtklassische Lichtquellen Zustände, die nicht durch die Maxwell-Gleichungen beschrieben werden können, wie z.B. Photonenzahlzustände, auch Fock-Zustände  $|n\rangle$  genannt. Diese Zustände sind ganz und gar nichtklassischer Natur. Ein Fock-Zustand ist Eigenzustand zum Photonenzahloperator  $\hat{N}$  mit  $\hat{N}|n\rangle = n|n\rangle$ , was bedeutet, dass eine in diesen Zustand angeregte Mode mit genau  $n$  Photonen besetzt ist. Die Wahrscheinlichkeit aller anderen Besetzungszahlen ist dann gleich null, was einer Varianz von  $(\Delta n)^2 = 0$  entspricht. Die Wahrscheinlichkeit  $i$  Photonen im Fock-Zustand  $|n\rangle$  anzutreffen, ist demnach gegeben durch

$$P = \begin{cases} 1 & \text{falls } i = n \\ 0 & \text{falls } i \neq n \end{cases}. \quad (2.10)$$

Die in dieser Arbeit untersuchten Einzelphotonenquellen können Fock-Zustände mit  $n = 1$  generieren.

## 2.3 Korrelationsfunktion

Um die kohärenten und statistischen Eigenschaften von Lichtfeldern zu untersuchen, bedient man sich in der Optik Korrelationsfunktionen  $g^{(n)}(\tau)$  [Gla63]. Man unterscheidet hier zum einen zwischen dem Grad  $n$  der Korrelationsfunktion und zum anderen zwischen Auto- und Kreuzkorrelationsfunktion. Letztere beschreibt die Korrelation unterschiedlicher Signale, beispielsweise der Exziton- und der Biexzitonlinie eines Quantenpunktes, und kann somit zum Nachweis verschränkter Photonen über die Exziton-Biexziton-Kaskade genutzt werden [Ben00, Ste06]. Die Korrelation eines Signals mit sich selbst hingegen wird Autokorrelation genannt. Dabei unterscheidet man zwischen Korrelationen bezüglich des elektromagnetischen Feldes (Autokorrelationsfunktion erster Ordnung  $g^{(1)}$ ) und dessen Intensität (Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung  $g^{(2)}$ ).

### 2.3.1 Autokorrelationsfunktion erster Ordnung

Die Korrelationsfunktion erster Ordnung dient zur Beschreibung der Interferenzfähigkeit von Licht und ermöglicht damit Aussagen über die Kohärenz von Lichtwellen. Sie ist klassisch definiert über

$$g^{(1)}(\tau) = \frac{\langle E^{(-)}(\mathbf{r}, t) E^{(+)}(\mathbf{r}, t + \tau) \rangle}{\sqrt{\langle E^{(-)}(\mathbf{r}, t) E^{(+)}(\mathbf{r}, t) \rangle \langle E^{(-)}(\mathbf{r}, t + \tau) E^{(+)}(\mathbf{r}, t + \tau) \rangle}}, \quad (2.11)$$

wobei  $E^{(+)}(\mathbf{r}, t)$  und  $E^{(-)}(\mathbf{r}, t)$  den positiven und negativen Frequenzanteil des elektrischen Feldes darstellt.

Die experimentelle Bestimmung der Korrelationsfunktion erster Ordnung erfolgt üblicherweise über einen Michelson-Interferometer Messaufbau. Dazu wird ein einlaufender Lichtstrahl an einem 50/50 Strahlteiler in zwei Teilstrahlen zerlegt, einer der Teilstrahlen um eine Zeit  $\tau$  verzögert und anschließend beide Anteile wieder zur Interferenz gebracht. Nimmt man eine einfallende quasi monochromatische ebene Welle an, so ist die Intensität  $I$  am Ausgang des Michelson-Interferometers in Abhängigkeit der Zeitdifferenz  $\tau$  der beiden Teilstrahlen [Sal08]

$$I = I_0 [1 + K(\tau) \cos(\omega_0 \tau + \phi(\tau))], \quad (2.12)$$

wobei  $I_0$  die Intensität des einfallenden Lichtstrahls,  $\omega_0$  dessen Frequenz und  $\phi(\tau)$  ein sich langsam verändernder Phasenfaktor ist [Kam02]. Die Kontrastfunktion  $K(\tau)$  ist definiert über

$$K(\tau) = \frac{I_{\max}(\tau) - I_{\min}(\tau)}{I_{\max}(\tau) + I_{\min}(\tau)} = |g^{(1)}(\tau)|. \quad (2.13)$$

Sie beschreibt die Differenz aus dem minimalen und maximalen Interferenzsignal bei einer Verzögerung der Teilstrahlen um  $\tau = \Delta L/c$ , wobei  $\Delta L$  die optische Wegdifferenz

ist. Der Betrag der zeitlichen Kohärenz kann also über eine Messung des Interferenzkontrastes in Abhängigkeit der Verzögerungszeit gemessen werden. Durch das Wiener-Chintchin-Theorem ist das Spektrum der Lichtquelle  $S(\omega)$  mit der Korrelationsfunktion erster Ordnung über eine Fourier-Transformation verknüpft

$$S(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} d\tau g^{(1)}(\tau) e^{-i\omega\tau}. \quad (2.14)$$

Dadurch ergibt sich für eine gaußförmige Spektrallinie der Breite  $\Delta\omega$  (FWHM<sup>1</sup>)  $|g^{(1)}(\tau)| \propto \exp\left(-\frac{\pi\tau^2}{2\tau_c^2}\right)$  und eine Kohärenzzeit von  $\tau_c = 2\sqrt{2\pi \ln 2}/\Delta\omega$  sowie für eine lorentzförmige Spektrallinie  $|g^{(1)}(\tau)| \propto \exp\left(-\frac{|\tau|}{\tau_c}\right)$  und eine Kohärenzzeit von  $\tau_c = 2/\Delta\omega$ .

### 2.3.2 Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung

Die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung beschreibt zeitliche Intensitätskorrelationen des Lichtes und ist klassisch durch folgende Gleichung gegeben

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

Sie beschreibt Korrelationen zwischen den Intensitäten des Lichtfeldes, die zu den Zeitpunkten  $t$  und  $t+\tau$  gemessen werden. Um nicht klassische Lichtquellen beschreiben zu können, muss Gleichung (2.15) in ihr quantenmechanisches Analogon umgewandelt werden. Dazu werden die Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren  $a$  und  $a^\dagger$  statt der klassischen Feldamplituden verwendet

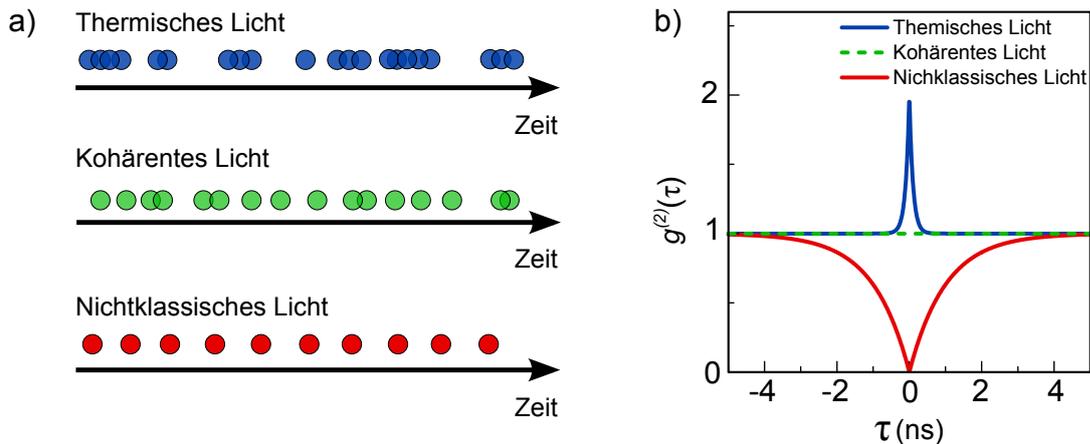
$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle a^\dagger(t)a^\dagger(t+\tau)a(t+\tau)a(t) \rangle}{\langle a^\dagger(t)a(t) \rangle^2}. \quad (2.16)$$

Sie gibt die Wahrscheinlichkeit an, ein Photon zur Zeit  $t+\tau$  zu detektieren, wenn zur Zeit  $t$  bereits ein Photon detektiert wurde. Über  $g^{(2)}(\tau)$  ist es möglich, zwischen den in Kapitel 2.2 aufgeführten Photonenzuständen zu unterscheiden. Dazu wird die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung beim Zeitpunkt  $\tau = 0$  betrachtet. Gleichung (2.16) vereinfacht sich dadurch zu

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle n^2 \rangle - \langle n \rangle}{\langle n \rangle^2} = 1 + \frac{(\Delta n)^2 - \langle n \rangle}{\langle n \rangle^2}, \quad (2.17)$$

wobei die Vertauschungsrelation  $[a, a^\dagger] = 1$ , die mittlere Photonenzahl in einer Mode  $\langle n \rangle = \langle a^\dagger a \rangle$  und die Definition der Varianz  $(\Delta n)^2 = \langle n^2 \rangle - \langle n \rangle^2$  genutzt wurde. Daraus

<sup>1</sup> Akronym für full width at half maximum



**Abbildung 2.4:** Veranschaulichung der Photonenstatistik für verschiedene Arten von Licht. a) Schematische Darstellung der zeitlichen Abfolge von Photonen für thermisches, kohärentes und nichtklassisches Licht. b) Die Zugehörige Korrelationsfunktion zweiter Ordnung bei konstanter mittlerer Intensität zeigt für nichtklassisches Licht mit einer mittleren Photonenzahl von  $n = 1$  (rote durchgezogene Linie) ein sogenanntes Antibunching mit  $g^{(2)}(0) = 0$ . Für thermisches Licht (blaue durchgezogene Linie) weist sie hingegen ein Bunching mit  $g^{(2)}(0) = 2$  auf und für kohärentes Licht (grüne gestrichelte Linie) eine flache Linie mit  $g^{(2)}(0) = 1$ .

folgt für die unterschiedlichen Arten von Licht [Lou00]:

$$g_{\text{thermisch}}^{(2)}(0) = 2 \quad \Leftrightarrow \quad (\Delta n)^2 = \langle n^2 \rangle + \langle n \rangle \quad (2.18)$$

$$g_{\text{kohärent}}^{(2)}(0) = 1 \quad \Leftrightarrow \quad (\Delta n)^2 = \langle n^2 \rangle \quad (2.19)$$

$$g_{\text{Fock}}^{(2)}(0) = 1 - \frac{1}{n} \quad \Leftrightarrow \quad (\Delta n)^2 = 0 \quad (2.20)$$

Für thermisches Licht bedeutet dies, dass die Wahrscheinlichkeit Photonen gleichzeitig zu detektieren erhöht ist. In diesem Fall treten die Photonen, wie in Abbildung 2.4 dargestellt, zeitlich in Bündeln auf (engl.: *bunching*), was sich in  $g_{\text{thermisch}}^{(2)}(\tau)$  durch eine Überhöhung um  $|\tau| < \tau_c$  äußert, wobei  $\tau_c$  die Kohärenzzeit des thermischen Lichtes ist. Für Schwarzkörperstrahlung bei Raumtemperatur befindet sich diese im Bereich von  $10^{-14}$  s [Meh63]. Für  $|\tau| > \tau_c$  ist die Emission der Photonen unkorreliert, weshalb  $g_{\text{thermisch}}^{(2)}(\tau)$  gegen eins geht.

Kohärentes Licht zeichnet sich dadurch aus, dass jeder zeitliche Abstand zwischen zwei Photonen mit der gleichen Wahrscheinlichkeit auftritt, sodass nicht nur  $g_{\text{kohärent}}^{(2)}(0) = 1$ , sondern sogar  $g_{\text{kohärent}}^{(2)}(\tau) = 1$  gilt. Die Emission ist also zeitlich unkorreliert.

Der  $g_{\text{Fock}}^{(2)}(0)$ -Wert für nichtklassisches Licht ist abhängig von der mittleren Photonenzahl  $n$ , die eine nichtklassische Quelle aussendet. Für eine Einzelphotonenquelle gilt  $n = 1$  und damit  $g^{(2)}(0) = 0$ . Dies bedeutet anschaulich, dass die Photonen zeitlich getrennt emittiert werden, also die Wahrscheinlichkeit zwei Photonen gleichzeitig zu detektieren gleich null ist. Bei Quantenpunkt-Einzelphotonenquellen wird der mittlere zeitliche Abstand der Photonen durch die Lebensdauer des exzitonischen Zustands bestimmt, die bei den in

dieser Arbeit verwendeten In(Ga)As-Quantenpunkten ca. 1 ns beträgt. Dementsprechend fällt die  $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion für nichtklassisches Licht in Abbildung 2.4 gegen  $\tau = 0$  exponentiell mit einer Zeitkonstanten von  $\tau_r = 1$  ns ab. Diese Abnahme von Koinzidenzen um  $\tau = 0$  wird auch Antibunching genannt. Der Nachweis einer Einzelphotonenquelle kann durch eine Messung des  $g^{(2)}(0)$ -Wertes durchgeführt werden. Dieser muss kleiner sein als der  $g^{(2)}(0)$ -Wert einer Zweiphotonenquelle mit  $n = 2$ :  $g^{(2)}(0) < 0,5$ . Ist diese Bedingung erfüllt, kann die Quelle als Einzelphotonenemitter bezeichnet werden.

### 2.3.3 Experimenteller Zugang der Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung

Mit einem Einzelphotonendetektor, der nicht nur eine unendlich hohe Zeitauflösung, sondern auch die Photonenzahl messen kann, könnte man aus der Zeit zwischen den Detektionsereignissen direkt auf die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung nach Gleichung (2.16) zurückrechnen. Die zurzeit erhältlichen Einzelphotonendetektoren auf Basis des Avalanche-Effekts besitzen jedoch eine Totzeit, in der nach einer erfolgreichen Detektion kein weiteres Photon detektiert werden kann. In den meisten Fällen beträgt sie einige 10 ns. Dadurch ist es in dem besonders interessanten Bereich um  $\tau = 0$  nicht möglich, die Korrelationsfunktion mit nur einem einzigen Detektor aufzunehmen. Dieses Problem wird durch die Verwendung von zwei Einzelphotonendetektoren in einem nach Hanbury-Brown und Twiss (HBT) benannten Aufbau umgangen [HB56]. Die Photonen werden dabei durch einen 50:50 Strahlteiler mit gleicher Wahrscheinlichkeit auf zwei Arme aufgeteilt, an deren Enden sich je ein Detektor befindet. Dadurch kann bei einem Detektionsereignis auf dem ersten Detektor der zweite ein Photon detektieren, während der erste immer noch „tot“ ist. Beide Photonendetektoren geben bei Detektion eines Photons einen elektrischen Puls aus, der über Koaxialkabel an den Start- bzw. Stopp-Eingang eines TCSPC<sup>2</sup>-Moduls (SPC-130 von Becker & Hickl) geführt wird. Dieses Modul besteht aus einem Zeit-zu-Amplituden-Wandler (engl. *time to amplitude converter: TAC*) sowie einem Analog-Digital-Wandler. Wird ein elektrischer Puls vom Starteingang registriert, beginnt der Zeit-zu-Amplituden-Wandler mit einer linearen Spannungserhöhung, bis ein zweiter Puls vom Stopp-Eingang registriert wird. Die Höhe des gemessenen Spannungspegels ist proportional zur Zeitdifferenz  $\tau$  zwischen diesen zwei Ereignissen und wird über eine Messsoftware als ein Ereignis in einem Koinzidenzhistogramm dargestellt. Das gemessene Koinzidenzhistogramm  $n(\tau)$  entspricht jedoch nicht exakt der Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung, sondern ist durch folgende Gleichung gegeben [Mic09]

$$n(\tau) = \left( G^{(2)}(\tau) + R_{dunkel} \right) \cdot \left( 1 - \int_0^\tau n(\tau') d\tau' \right), \quad (2.21)$$

<sup>2</sup> Akronym für time-correlated single photon counting

wobei  $R_{\text{dunkel}}$  die Dunkelzählrate der Detektoren und  $G^{(2)}(\tau)$  die nicht normierte Korrelationsfunktion zweiter Ordnung ist. Nur wenn die Dunkelzählrate viel kleiner als die Detektionsrate  $R$  ist und die mittlere Ankunftszeit der Photonen  $1/R$  wiederum viel größer als das betrachtete Zeitintervall von 0 bis  $\tau$  der Detektionsereignisse ist, gilt  $n(\tau) \approx g^{(2)}(\tau)$  [Rem06].

## 2.4 Ununterscheidbare Photonen

### 2.4.1 Zwei-Photonen-Interferenz am Strahlteiler

Stimmen zwei oder mehrere Photonen in ihren physikalischen Eigenschaften überein, so sind sie ununterscheidbar. Der Nachweis von ununterscheidbaren Photonen gelingt über eine Interferenz der Photonen am Strahlteiler eines Hong-Ou-Mandel Experiments. Die Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren der Ausgangsseite  $\hat{a}_{3,4}$  des Strahlteilers definieren sich über die Erzeuger und Vernichter der Eingangsseite  $\hat{a}_{1,2}$  mittels der Transformationsmatrix  $\mathbf{B}$

$$\begin{pmatrix} \hat{a}_3 \\ \hat{a}_4 \end{pmatrix} = \mathbf{B} \begin{pmatrix} \hat{a}_1 \\ \hat{a}_2 \end{pmatrix}. \quad (2.22)$$

Für die Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren müssen die bosonischen Kommutator-Vertauschungsrelationen erfüllt sein [Cam89]

$$[\hat{a}_\nu, \hat{a}_\mu^\dagger] = \delta_{\nu,\mu} \quad \text{und} \quad [\hat{a}_\nu^\dagger, \hat{a}_\mu^\dagger] = [\hat{a}_\nu, \hat{a}_\mu] = 0. \quad (2.23)$$

Aus dieser Bedingung folgt nicht nur, dass  $\mathbf{B}$  unitär sein muss  $\mathbf{B}^{-1} = \mathbf{B}^\dagger$ , sondern auch, dass beim verlustfreien Strahlteiler die Energie erhalten ist. Für einen gleichmäßigen Strahlteiler (Teilungsverhältnis 50/50) nimmt die Strahlteilermatrix die folgende Form an [Leo10]

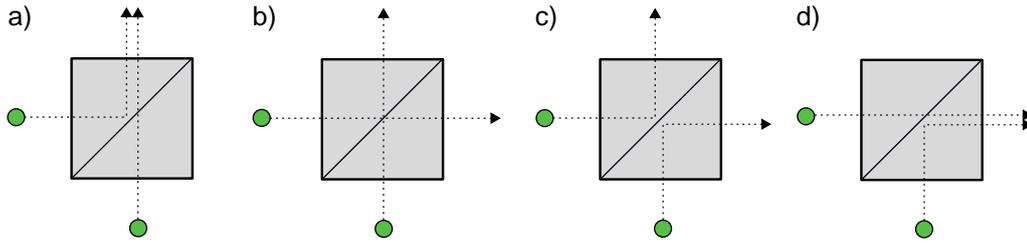
$$\mathbf{B}_{50:50} = 1/\sqrt{2} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ -1 & 1 \end{pmatrix}. \quad (2.24)$$

Betrachtet man nun den Fall, dass sich in beiden Eingängen ein Photon befindet  $|1_1 1_2\rangle$  so berechnet sich der Ausgangszustand zu

$$\begin{aligned} |1_1 1_2\rangle &= \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2^\dagger |0\rangle = \frac{1}{2} (\hat{a}_3^\dagger - \hat{a}_4^\dagger) (\hat{a}_3^\dagger + \hat{a}_4^\dagger) |0\rangle = \\ &= \frac{1}{2} (\hat{a}_3^\dagger \hat{a}_3^\dagger + \hat{a}_3^\dagger \hat{a}_4^\dagger - \hat{a}_4^\dagger \hat{a}_3^\dagger - \hat{a}_4^\dagger \hat{a}_4^\dagger) |0\rangle = \end{aligned} \quad (2.25)$$

$$= \frac{1}{\sqrt{2}} (|2_3 0_4\rangle - |0_3 2_4\rangle). \quad (2.26)$$

Die in Gleichung (2.25) enthaltenen Terme beschreiben die in Abbildung 2.5 dargestellten vier Möglichkeiten, zwei auf den Strahlteiler treffende Photonen auf die Ausgänge zu verteilen. Der erste und letzte Term (a und d) entsprechen einem gemeinsamen Auftre-



**Abbildung 2.5:** Schematische Darstellung der Interferenz von Photonen am Strahlteiler. Treffen zwei Photonen in unterschiedlichen Eingängen  $\hat{a}_1^\dagger$  und  $\hat{a}_2^\dagger$  eines Strahlteilers zusammen, so bestehen vier mögliche Konstellationen diesen wieder zu verlassen. Die Möglichkeiten b) und c) heben sich jedoch für ununterscheidbare Photonen gegenseitig auf, was dazu führt, dass ununterscheidbare Photonen den Strahlteiler immer gemeinsam in eine Richtung verlassen, wie in a) und d) zu sehen.

ten der Photonen in einem Ausgang des Strahlteilers, während bei den mittleren Termen beide Photonen entweder transmittiert (b) oder reflektiert (c) werden. Aufgrund der Tatsache, dass die Kommutator-Vertauschungsrelation  $[\hat{a}_3^\dagger, \hat{a}_4^\dagger] = 0$  ist, heben sich die beiden mittleren Terme jedoch auf und es verbleiben nur noch die Möglichkeiten (a) und (d) (Gleichung (2.26)). Treffen also zwei ununterscheidbare Photonen aus unterschiedlichen Armen des Strahlteilers am Strahlteiler zusammen, so verlassen sie diesen immer in die gleiche Richtung. Wären die am Strahlteiler auftreffenden Photonen jedoch unterscheidbar, so könnte man zwischen den Fällen (b) und (c) differenzieren, sodass sich die mittleren Terme in Gleichung (2.25) nicht aufheben würden. Der Ausgangszustand für zwei über ihre Polarisierung unterscheidbare Photonen berechnet sich zu

$$|1_{1H}1_{2V}\rangle = \hat{a}_{1H}^\dagger \hat{a}_{2V}^\dagger |0\rangle = \frac{1}{2} (\hat{a}_{3H}^\dagger - \hat{a}_{4H}^\dagger) (\hat{a}_{3V}^\dagger + \hat{a}_{4V}^\dagger) |0\rangle = \quad (2.27)$$

$$= \frac{1}{2} (\hat{a}_{3H}^\dagger \hat{a}_{3V}^\dagger + \hat{a}_{3H}^\dagger \hat{a}_{4V}^\dagger - \hat{a}_{4H}^\dagger \hat{a}_{3V}^\dagger - \hat{a}_{4H}^\dagger \hat{a}_{4V}^\dagger) |0\rangle, \quad (2.28)$$

wobei im ersten Eingang ein Photon mit horizontaler Polarisierung (H) und im zweiten Eingang ein zu diesem orthogonal polarisiertes Photon mit vertikaler Polarisierung (V) angenommen wurde. Da die beiden mittleren Terme in Gleichung (2.28) nicht vertauschen, können unterscheidbare Photonen den Strahlteiler auch in unterschiedliche Ausgänge verlassen.

### 2.4.2 Korrelationsfunktion der Zwei-Photonen-Interferenz

Für den Nachweis von ununterscheidbaren Photonen lässt man zwei Photonen an einem 50:50 Strahlteiler interferieren und misst die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung der Zwei-Photonen-Interferenz, ähnlich wie beim HBT-Aufbau zur Messung der Autokorrelationsfunktion.

Für die Beschreibung der Zwei-Photonen-Interferenz ist eine klassische oder auch semi-klassische Beschreibung nicht ausreichend [Scu97]. Deswegen soll hier kurz die Quanti-

sierung des elektromagnetischen Feldes erläutert werden. Bei der Quantisierung des elektromagnetischen Feldes werden die klassischen Feldamplituden durch die entsprechenden Leiteroperatoren  $\hat{a}_i$  und  $\hat{a}_i^\dagger$  ersetzt. Diese genügen den bosonischen Kommutatorrelationen [Lou00]

$$[\hat{a}_\nu, \hat{a}_\mu^\dagger] = \delta_{\nu,\mu} \quad \text{und} \quad [\hat{a}_\nu^\dagger, \hat{a}_\mu^\dagger] = [\hat{a}_\nu, \hat{a}_\mu] = 0. \quad (2.29)$$

Des Weiteren ist der Hamiltonoperator des quantisierten elektromagnetischen Feldes gegeben durch

$$\hat{H} = \sum_i \hat{H}_i = \sum_i \hbar\omega_i \left( \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i + \frac{1}{2} \right) = \sum_i \hbar\omega_i \left( \hat{N}_i + \frac{1}{2} \right), \quad (2.30)$$

wobei  $\hat{N}_i = \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i$  der Besetzungszahloperator ist. Die Leiteroperatoren definieren einen vollständigen Satz von Eigenzuständen  $|n_i\rangle$  des Hamiltonoperators mit den Energieeigenwerten  $E_i = \hbar\omega_i(n_i + 1/2)$ . Dabei entsprechen die Energieeigenwerte dem Vorhandensein von  $n$  Photonen der Energie  $\hbar\omega_i$  innerhalb einer Mode. Die Eigenzustände  $|n_i\rangle$  werden auch als Fock- oder Photonenzahlzustände bezeichnet. Sie sind im Gegensatz zur klassischen Theorie der Elektrodynamik, in der die Energie jeden beliebigen Wert annehmen kann, diskretisiert. Die Anwendung der Leiteroperatoren auf einen Photonenzahlzustand entspricht der Vernichtung bzw. Erzeugung eines Photons der entsprechenden Mode

$$\hat{a}_i |n_i\rangle = \sqrt{n_i} |n_i - 1\rangle \quad \text{und} \quad \hat{a}_i^\dagger |n_i\rangle = \sqrt{n_i + 1} |n_i + 1\rangle, \quad (2.31)$$

weswegen  $\hat{a}_i$  und  $\hat{a}_i^\dagger$  auch als Vernichtungs- und Erzeugungsoperator bezeichnet werden.

Im Allgemeinen können eindimensionale optische Anregungen über Felder bestehend aus kontinuierlichen Moden beschrieben werden [Fea89, Blo90]. Die Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren besitzen dann die Vertauschungsrelation

$$[\hat{a}_i(\omega), \hat{a}_j(\omega')] = [\hat{a}_i^\dagger(\omega), \hat{a}_j^\dagger(\omega')] = 0 \quad \text{und} \quad [\hat{a}_i(\omega), \hat{a}_j^\dagger(\omega')] = \delta_{i,j} \delta(\omega - \omega'). \quad (2.32)$$

Sie erzeugen bzw. vernichten eindimensional unendlich ausgedehnte monochromatische Wellen. Um Photonen jedoch als Anregungsquanten von Wellenpaketen darzustellen, wird ein Wechsel auf ein System von abzählbaren lokalisierten Moden durchgeführt [Blo90]. Diese Moden werden über einen Satz orthonormaler Funktionen  $\Phi_i(\omega)$  mit entsprechender Frequenzverteilung definiert. Die Anregung eines einzelnen Photons ist dann über den Erzeugungsoperator definiert [Leg06]

$$\hat{A}^\dagger(\Phi) = \int d\omega \Phi(\omega) \hat{a}^\dagger(\omega), \quad (2.33)$$

wobei  $\Phi(\omega)$  die normierte Frequenzverteilung der Anregung darstellt. Diese ist über eine

Fourier-Transformation mit den zeitabhängigen Funktionen verknüpft

$$\xi(t - z/c) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int d\omega \Phi(\omega) e^{-i\omega(t-z/c)}. \quad (2.34)$$

Für den strahlenden Zerfall eines Exzitons entspricht diese zeitabhängige Funktion einer abfallenden einseitigen Exponentialfunktion (siehe Gleichung (2.3)). Um ebenfalls zeitabhängige Leiteroperatoren zu definieren, muss die Bandbreitenbedingung erfüllt sein. Dazu muss die Bandbreite der optischen Anregung viel kleiner sein als ihre Frequenz, was für optische Anregungen in der Regel erfüllt ist

$$\hat{a}^\dagger(t - z/c) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int d\omega \hat{a}^\dagger(\omega) e^{-i\omega(t-z/c)}. \quad (2.35)$$

Dann gilt für den Erzeugungsoperator aus Gleichung (2.33)

$$A^\dagger(\xi) = \int dt \xi(t - z/c) a^\dagger(t - z/c). \quad (2.36)$$

Der Zustandsvektor einer perfekten Einzelphotonenquelle, die immer identische Photonen aussendet, wird durch die Anwendung des Erzeugungsoperators auf den Vakuumzustand beschrieben

$$|1_\xi\rangle = \hat{A}^\dagger(\xi) |0\rangle. \quad (2.37)$$

Dieser Einzelphotonenzustand ist ein reiner Zustand, der ein über die Fourier-Transformation begrenztes Photon beschreibt. Die angeregten elektronischen Zustände in Halbleiterquantenpunkten sind Ladungs- sowie Spinstörsignalen ausgesetzt. Diese führen zu kleinen Fluktuationen in der Emissionsenergie der ausgesendeten Photonen. Um dies zu berücksichtigen, muss das Lichtfeld durch einen quantenmechanischen Dichteoperator ausgedrückt werden

$$\hat{\rho} = \int d\omega f(\omega) |1_\xi\rangle \langle 1_\xi|, \quad (2.38)$$

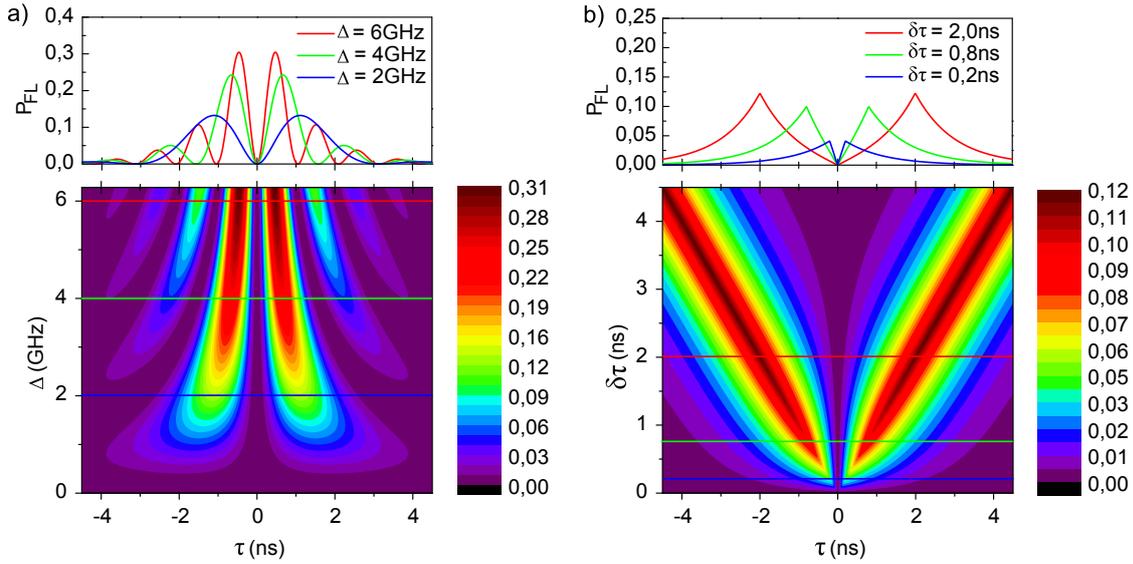
wobei  $|1_\xi\rangle \langle 1_\xi|$  der Dichteoperator der reinen Zustände ist. Die Korrelationsfunktion zwischen den Kanälen 3 und 4 des Strahlteilers ist gegeben durch [Leg06]

$$G_{3,4}^{(2)}(t_1, t_2) = \text{tr} \left[ \hat{\rho}_{1,2} \hat{A}_{3,4} \right], \quad (2.39)$$

wobei  $\hat{\rho}_{1,2}$  den Dichteoperator des Zwei-Photonen-Eingangszustands beschreibt und  $\hat{A}_{3,4} = \hat{a}_3^\dagger(t_1) \hat{a}_4^\dagger(t_2) \hat{a}_4(t_2) \hat{a}_3(t_1)$ . Mit  $t_2 - t_1 = \tau$  und  $t_1 = t_0$  erhält man die Korrelationsfunktion für zwei Fourier-limitierte Photonen mit gleicher Polarisation

$$G_{FL}^{(2)}(t_0, t_0 + \tau) = \frac{|\xi_1(t_0) \xi_2(t_0 + \tau) - \xi_2(t_0) \xi_1(t_0 + \tau)|^2}{4}. \quad (2.40)$$

Wurde ein Photon zur Zeit  $t_0$  in einem Ausgang des Strahlteilers detektiert, so ist die



**Abbildung 2.6:** Gemeinsame Wahrscheinlichkeit ein Fourier-Transformations-limitiertes Photon mit lorentzförmiger Frequenzverteilung zur Zeit  $\tau$  in einem Ausgang des Strahlteilers zu detektieren, während ein zweites im anderen Ausgang zur Zeit  $t_0 = 0$  detektiert wurde (Gleichung (2.44)). Dargestellt ist eine Variation der Frequenzdifferenz  $\Delta$  (a) und der Zeitdifferenz  $\delta\tau$  (b) der beiden Photonen. Die jeweils über den Konturdarstellungen angebrachten Graphen entsprechen den gekennzeichneten Schnitten bei konstantem  $\Delta$  bzw.  $\delta\tau$ .

Wahrscheinlichkeit, ein zweites Photon zur Zeit  $t_0 + \tau$  zu detektieren gegeben durch [Leg06]

$$P_{FL} = \eta_3 \eta_4 T^2 \int_{-\infty}^{+\infty} dt_0 G_{FL}^{(2)}(t_0, t_0 + \tau), \quad (2.41)$$

wobei  $\eta_{3,4}$  die Detektoreffizienzen sind, welche im Folgenden der Einfachheit wegen auf  $\eta_{3,4} = 1$  gesetzt wurden, und  $T$  die Zeitauflösung der Detektoren darstellt. Die Wellenpakete der einzelnen Photonen, die in den Eingängen 1 und 2 auf den Strahlteiler treffen, werden beschrieben durch

$$\xi_1(t) = \begin{cases} \sqrt{\frac{4}{\pi\tau_r}} e^{-\frac{t - \frac{\delta\tau}{2}}{2\tau_r} - i(\omega - \frac{\Delta}{2})t} & \text{wenn } t - \frac{\delta\tau}{2} > 0 \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \quad (2.42)$$

$$\xi_2(t) = \begin{cases} \sqrt{\frac{4}{\pi\tau_r}} e^{-\frac{t + \frac{\delta\tau}{2}}{2\tau_r} - i(\omega + \frac{\Delta}{2})t} & \text{wenn } t + \frac{\delta\tau}{2} > 0 \\ 0 & \text{sonst} \end{cases}, \quad (2.43)$$

wobei  $\tau_r$  die Lebensdauer des exzitonischen Zustands,  $\Delta$  die Frequenzdifferenz und  $\delta\tau$  die Zeitdifferenz zwischen dem Auftreffen der beiden Photonen ist. Damit gilt [Pat10a]

$$P_{FL}(\tau, \delta\tau, \tau_r, \Delta) = \frac{\eta_3 \eta_4 T^2}{8\tau_r} \left( e^{-\frac{|\delta\tau - \tau|}{\tau_r}} + e^{-\frac{|\delta\tau + \tau|}{\tau_r}} - 2 \cos(\Delta\tau) e^{-\frac{|\delta\tau| + |\tau|}{\tau_r}} \right). \quad (2.44)$$

In Abbildung 2.6 ist  $P_{FL}(\tau, \delta\tau, \tau_r, \Delta)$  für eine Lebensdauer von  $\tau_r = 1$  ns einmal als Konturdarstellung unter Variation des Frequenzunterschiedes  $P_{FL}(\tau, \delta\tau = 0, \tau_r = 1 \text{ ns}, \Delta)$  (a) und des Weiteren unter Variation der Zeitdifferenz  $P_{FL}(\tau, \delta\tau, \tau_r = 1 \text{ ns}, \Delta = 0)$  der beiden Photonen (b) abgebildet. Besitzen die Photonen identische Frequenz und treffen zum selben Zeitpunkt auf den Strahlteiler ( $\Delta = 0$  und  $\delta\tau = 0$ ), so ist die Wahrscheinlichkeit ein Photon in einem Arm zu detektieren, während ein zweites bereits im anderen Arm des Strahlteilers detektiert wurde, gleich null. Das bedeutet, dass die in unterschiedlichen Eingängen des Strahlteilers einfallenden Photonen diesen stets gemeinsam verlassen.

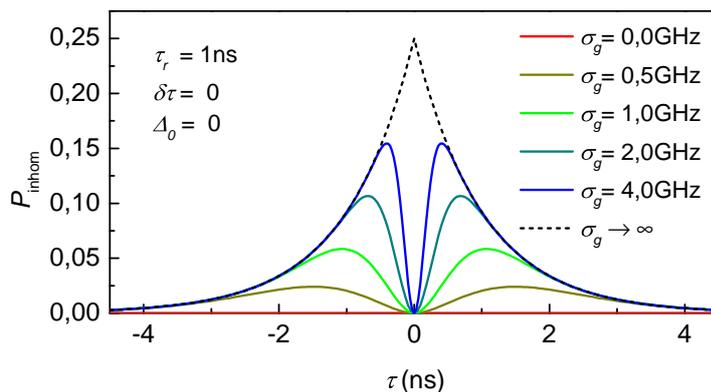
Besitzen beide Photonen jedoch unterschiedliche Frequenzen, so sind sie in gewissem Maße unterscheidbar und die Koinzidenzwahrscheinlichkeit ist für  $\tau > 0$  endlich. Es treten dann Oszillationen in Abhängigkeit der Detektionszeitdifferenz  $\tau$  auf, deren Periode mit steigendem Frequenzunterschied abnimmt (Abbildung 2.6 a). Hierbei muss beachtet werden, dass die Oszillationen experimentell nur dann beobachtbar sind, wenn zum einen die Detektorzeitauflösung (hier je nach verwendetem Detektor entweder 400 ps oder 700 ps) kleiner als die Dauer der Photonenpulse ist und zum anderen die Pulsdauer der Photonen größer als die Periode der Oszillationen  $\tau_r > 2\pi/\Delta$  ist.

Treffen beide Photonen mit identischer Frequenz nicht gleichzeitig, sondern nacheinander mit der Zeitdifferenz  $\delta\tau$  auf den Strahlteiler auf, so ist die Koinzidenzwahrscheinlichkeit ebenfalls ungleich null um  $|\tau| > 0$ . Für große Zeitdifferenzen  $\delta\tau \gg \tau_r$  interferieren die beiden Photonenpulse am Strahlteiler nicht und die über  $\tau$  integrierte gemeinsame Detektionswahrscheinlichkeit ist konstant. Ist die Zeitdifferenz jedoch kleiner als die Pulsdauer, so kommt es zur Quanteninterferenz am Strahlteiler und beide Photonen verlassen den Strahlteiler mit abnehmender Zeitdifferenz zunehmend in denselben Ausgang. In diesem Fall kommt es bei Photonen identischer Frequenz nicht zu Oszillationen in Abhängigkeit der Detektionszeitdifferenz (Abbildung 2.6 b).

### 2.4.3 Interferenz von Photonen mit inhomogener Verbreiterung

Bisher wurden ausschließlich Fourier-Transformations-limitierte Photonen behandelt, für die Gleichung (2.7) gilt. Im Experiment ist die Kohärenzzeit der von einem Quantenpunkt emittierten Photonen aufgrund von Dephasierungsprozessen jedoch meist kürzer als  $2\tau_r$ . Die Folge ist eine erhöhte Wahrscheinlichkeit, dass zwei ununterscheidbare Photonenpulse den Strahlteiler eines Hong-Ou-Mandel Experiments in entgegengesetzte Ausgänge verlassen. Da auch die in dieser Arbeit untersuchten Einzelphotonenquellen keine Fourier-Transformations-limitierten Photonen aussenden, wird nachfolgend der Einfluss einer inhomogenen Verbreiterung auf die Zwei-Photonen-Interferenz beschrieben.

Im Folgenden wird angenommen, dass die Photonen, die am Strahlteiler zur Interferenz gebracht werden, je aus einem Ensemble von Einzelphotonenpulsen mit den Dichteoperatoren  $\hat{\rho}_1$  und  $\hat{\rho}_2$  stammen. Eine inhomogene Verbreiterung der Quantenpunktemission wird durch eine Gaußsche Frequenzverteilung der zwei Photonenensembles, wie sie im Experi-



**Abbildung 2.7:**  $P_{\text{inhom}}(\tau)$  für unterschiedliches  $\sigma_g$  und gleichzeitig am Strahlteiler auftreffende Photonen  $\delta\tau = 0$  mit einer Pulsdauer von  $\tau_r = 1$  ns und einer Differenz der Mittelwerte der Frequenzverteilung von  $\Delta_0 = 0$  (vgl. Gleichung (2.49)). Im Grenzfall verschwindender Frequenzstreuung ( $\sigma_g = 0$ ) gilt  $P_{\text{inhom}} = P_{\text{FL}}$ , wohingegen im Grenzfall einer unendlich breiten Frequenzverteilung ( $\sigma_g \rightarrow \infty$ )  $P_{\text{inhom}}(\tau)$  dem Fall unterscheidbarer Photonen entspricht.

ment durch eine inhomogene Verbreiterung der Emission zweier einzelner Quantenpunkte auftreten kann (vgl. Abschnitt 6.2), berücksichtigt

$$f_{i=1,2}(\omega_i) = \frac{1}{\sqrt{\pi} 2\sigma_i} e^{-\frac{(\omega_i - \omega_i)^2}{2\sigma_i^2}}. \quad (2.45)$$

In diesem Fall ist der quantenmechanische Dichteoperator durch Gleichung (2.38) gegeben. Weiterhin wird angenommen, dass die beiden Ensembles unabhängig voneinander sind. Dadurch kann man den Dichteoperator als Tensorprodukt schreiben

$$\hat{\rho}_{1,2} = \hat{\rho}_1 \otimes \hat{\rho}_2 = \iint d\omega_1 d\omega_2 f_1(\omega_1) f_2(\omega_2) \hat{\rho}(\xi_1(\omega_1), \xi_2(\omega_2)), \quad (2.46)$$

wobei  $\hat{\rho}(\xi_1(\omega_1), \xi_2(\omega_2)) = |1_{\xi_1}\rangle |1_{\xi_2}\rangle \langle 1_{\xi_1}| \langle 1_{\xi_2}|$  den Dichteoperator der reinen Zustände darstellt. Mit  $\omega_1 = \omega$  und  $\omega_2 = \omega + \Delta$  erhält man die Verteilungsfunktion für die Frequenzdifferenz

$$f(\Delta) = \int d\omega f_1(\omega) f_2(\omega, \Delta) = \frac{1}{\sqrt{\pi} 2\sigma_g} e^{-\frac{(\Delta - \Delta_0)^2}{4\sigma_g^2}}, \quad (2.47)$$

wobei  $\Delta_0 = \omega_{02} - \omega_{01}$  die Differenz der Mittelwerte der beiden Frequenzverteilungen ist und  $\sigma_g = \sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}$  über deren Breiten definiert ist. Durch Einsetzen in Gleichung (2.39) ergibt sich die Korrelationsfunktion der Zwei-Photonen-Interferenz mit inhomogener Verbreiterung

$$G_{\text{inhom}}^{(2)}(t_0, t_0 + \tau) = \int d\Delta f(\Delta) \text{tr}(\hat{\rho}(\xi_1, \xi_2) \hat{A}(t_0, t_0 + \tau)), \quad (2.48)$$

wobei  $\text{tr}(\hat{\rho}(\xi_1, \xi_2) \hat{A}(t_0, t_0 + \tau))$  die Korrelationsfunktion für reine Zustände darstellt und durch Gleichung (2.40) gegeben ist. Nun lässt sich die gemeinsame Detektionswahrschein-

lichkeit für Photonen mit inhomogener Verbreiterung berechnen:

$$\begin{aligned}
 P_{\text{inhom}} &= \int_{-\infty}^{\infty} dt_0 G_{\text{inhom}}^{(2)}(t_0, t_0 + \tau) = \int d\Delta f(\Delta) P_{FL}(\tau, \delta\tau, \tau_r, \Delta) \\
 &= \frac{T^2}{8\tau_r} \left( e^{-\frac{|\delta\tau-\tau|}{\tau_r}} + e^{-\frac{|\delta\tau+\tau|}{\tau_r}} - 2 \cos(\Delta_0 \tau) e^{-\frac{|\delta\tau|+|\tau|}{\tau_r}} e^{-\sigma_g^2 \tau^2} \right). \quad (2.49)
 \end{aligned}$$

In Abbildung 2.7 ist die Koinzidenzwahrscheinlichkeit als Funktion der Detektionszeitdifferenz  $\tau$  für unterschiedlich breite Frequenzverteilungen  $\sigma_g$  der Frequenzdifferenz der Photonenpaare dargestellt. Gezeigt ist der Fall gleichzeitig ( $\delta\tau = 0$ ) auf den Strahlteiler auftreffender Photonenwellenpakete mit gleicher Pulsdauer  $\tau_r = 1$  ns. Diese stammen aus zwei Ensembles von Fourier-Transformations-limitierten Photonen, welche jeweils einer Streuung in den Emissionsfrequenzen gemäß den Verteilungen  $f_1(\omega_1)$  und  $f_2(\omega_2)$  unterliegen. Beide Verteilungen besitzen den gleichen Frequenzmittelwert  $\Delta_0 = 0$ .

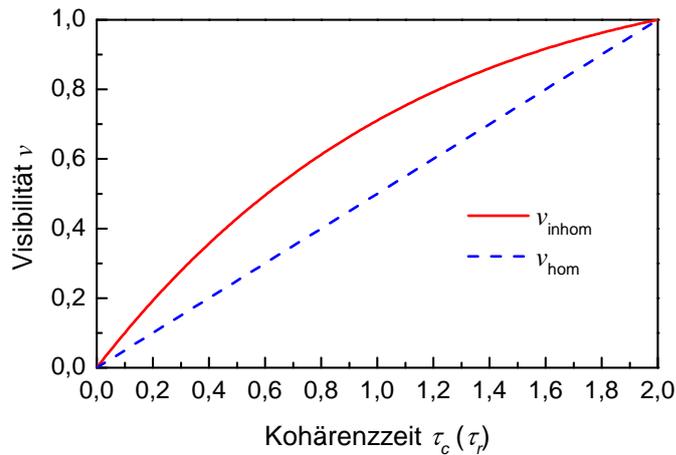
Weisen beide Ensembles keine Streuung in den Frequenzen auf ( $\sigma_g = 0$ ), so ist die Koinzidenzwahrscheinlichkeit für inhomogen verbreiterte Photonen gleich der für Fourier-Transformations-limitierte  $P_{\text{inhom}} = P_{FL}$ , nämlich gleich null unabhängig von  $\tau$  für  $\delta\tau = 0$  und  $\Delta_0 = 0$ . Für zunehmende Breiten  $\sigma_g$  steigt auch  $P_{\text{inhom}}$  um  $\tau = 0$  an, bis im Grenzfall einer unendlich breiten Frequenzverteilung  $P_{\text{inhom}}(\tau)$  einem zweiseitigem exponentiellen Zerfall entspricht (gestrichelte schwarze Linie), wie er für die Interferenz von unterscheidbaren Photonen erwartet werden würde.

#### 2.4.4 Visibilität der Zwei-Photonen-Interferenz

Wie gut man die Quanteninterferenz zwischen zwei Photonen nachweisen kann, hängt von den experimentellen Bedingungen ab. Ist die räumliche und zeitliche Überlagerung der Photonen am Strahlteiler nicht perfekt, so gibt es immer eine Restwahrscheinlichkeit, dass die Photonen den Strahlteiler in unterschiedliche Ausgänge verlassen. Des Weiteren führt ein nicht idealer Strahlteiler ebenfalls zu einer Restwahrscheinlichkeit einer gemeinsamen Detektion der Photonen in beiden Ausgängen. Um nun die Qualität der Zwei-Photonen-Interferenz zu bestimmen, wird die Visibilität  $v$  der Quanteninterferenz eingeführt. Im Falle einer homogenen spektralen Verbreiterung durch reine Dephasierung, wie sie z.B. durch die Wechselwirkung mit Phononen auftritt [Byl03], ist die Visibilität für zwei ununterscheidbare Photonen bei idealem Strahlteiler und perfektem räumlichem und zeitlichem Überlapp durch die folgende Gleichung gegeben [Sun09]

$$v_{\text{hom}} = \frac{\tau_c}{2\tau_r}. \quad (2.50)$$

Für Fourier-Transformations-limitierte Photonen (siehe Gleichung (2.7)) ist die Visibilität also  $v = 1$ . Die Visibilität für spektral inhomogen verbreiterte Photonenpaare kann



**Abbildung 2.8:** Visibilität der Zwei-Photonen-Interferenz für inhomogen (rote durchgezogene Linie) sowie homogen verbreiterte Photonen (blaue gestrichelte Linie) in Abhängigkeit der Kohärenzzeit. Die Visibilität ist für inhomogen verbreiterte Photonen für alle Kohärenzzeiten höher als für homogen verbreiterte.

folgendermaßen berechnet werden

$$v_{\text{inhom}} = 1 - \frac{2}{T^2} \int d\tau P_{\text{inhom}}. \quad (2.51)$$

Für  $\Delta_0 = 0$  und  $\delta\tau = 0$  folgt

$$v_{\text{inhom}} = \frac{1}{2\tau_r\sigma_g} e^{\frac{1}{4\tau_r^2\sigma_g^2}} \sqrt{\pi} \operatorname{erfc} \left( \frac{1}{2\tau_r\sigma_g} \right). \quad (2.52)$$

In Abbildung 2.8 ist die Visibilität für inhomogen und homogen verbreiterte Photonenpaare in Abhängigkeit der Kohärenzzeit dargestellt. Es wurde angenommen, dass die Photonenwellenpakete, die auf dem Strahlteiler zur Interferenz gebracht werden, die gleichen Pulsdauern und Kohärenzzeiten besitzen. Dazu wurde  $\sigma_g$  in Gleichung (2.52) in eine Kohärenzzeit umgewandelt. In beiden Fällen geht die Visibilität für  $\tau_c \rightarrow 0$  gegen null und für  $\tau_c \rightarrow 2\tau_r$  gegen eins. Für den Fall einer rein inhomogenen Verbreiterung ist die Visibilität für alle Zwischenwerte größer als für den Fall einer rein homogenen Verbreiterung. Man kann also mit inhomogen verbreiterten Photonenpaaren eine höhere Visibilität bei gleicher Kohärenzzeit erzielen als mit homogen verbreiterten. Für eine perfekte Zwei-Photonen-Interferenz muss jedoch Gleichung (2.7) erfüllt sein.

## 2.5 Mikrosäulenresonatoren

Neben einem hohen Grad an Ununterscheidbarkeit und Reinheit der Einzelphotonenemission ist für viele Anwendungen auch eine hohe Auskoppelleffizienz von Nutzen. Ein Photon, das im Halbleiter erzeugt wird, muss also mit einer hohen Wahrscheinlichkeit auf einen

definierten optischen Weg gelenkt werden. Ein Halbleiterquantenpunkt in einer unstrukturierten GaAs-Matrix sendet isotrop Photonen aus, die aufgrund der Reflexion an der Grenzfläche zu Luft oder Vakuum nur mit einer Wahrscheinlichkeit von 3% den Halbleiter verlassen [Bar02]. Dieser Wert kann bedeutend erhöht werden, indem man den Quantenpunkt in einen Mikroresonator einbettet: Aufgrund des dreidimensionalen Lichteinschlusses auf der Skala der Photonenwellenlänge ist die Modendichte in so einer Struktur gegenüber dem freien Raum stark modifiziert und auf spektral schmale Resonanzlinien eingeschränkt. Dadurch lässt sich eine erhöhte Wechselwirkung zwischen Licht und Materie (Quantenpunkten) erzielen, was die Untersuchung von Effekten der Quantenelektrodynamik in Resonatoren (cQED<sup>3</sup>) ermöglicht. Eine Lichtquelle innerhalb eines Resonators emittiert in diesem Fall nicht mehr isotrop, sondern ihre Emission wird in eine solche Resonatormode „kanalisiert“. Die räumliche Verteilung der Mode und die Abstrahlcharakteristik des Resonators lässt sich durch die Resonatorgeometrie so maßschneidern, dass ein großer Anteil der in die Mode emittierten Photonen den Resonator auf einen definierten Weg verlässt und von einer Linse eingesammelt werden kann. Wichtige Resonatorgeometrien sind Mikroscheiben, photonische Kristalle und die in dieser Arbeit verwendeten Mikrosäulenresonatoren [Vah03]. Im Gegensatz zu beiden Ersteren wird bei Mikrosäulenresonatoren der dreidimensionale optische Einschluss des Lichts nicht ausschließlich durch Reflexion an der Halbleiter-Vakuum-Grenzfläche realisiert, sondern zusätzlich durch dielektrische Spiegel, die oberhalb und unterhalb des Resonatormediums platziert sind. Diese Resonatorgeometrie ermöglicht eine vertikale Ein- und Auskopplung von Photonen mit einer geringen Strahldivergenz von ca. 12° für einen Säulendurchmesser von 1 µm bei einer Wellenlänge von 1 µm [Bar02], welche ein effizientes Einkoppeln in übliche Sammellinsen gewährleistet. Beispielsweise beträgt der Akzeptanzwinkel des in dieser Arbeit verwendeten Mikroskopobjektives 24°.

### 2.5.1 Dreidimensionaler photonischer Einschluss

Die in der vorliegenden Arbeit verwendeten Mikroresonatoren bestehen aus einer zentralen GaAs-Kavität, die von zwei Braggspiegeln (DBRs<sup>4</sup>) aus alternierenden dünnen Schichten von GaAs und AlAs umgeben ist. Die Schichtdicken im DBR werden so gewählt, dass sie einem Viertel der Resonanzwellenlänge im jeweiligen Medium  $\frac{\lambda_c}{4n}$  entsprechen, was bei Reflexion an den Grenzschichten zu konstruktiver und bei Transmission zu destruktiver Interferenz führt. Der Reflexionskoeffizient eines einzelnen Schichtpaares hängt vom Brechungsunterschied zwischen den beiden Dielektrika ab und ist für ein einzelnes Spiegelpaar gering. Um eine Reflektivität von nahezu 100% zu erreichen, werden deshalb mehrere Spiegelpaare benötigt, wie anhand der Formel für die Gesamtreflektivität  $R$  in

<sup>3</sup> Akronym für cavity quantum electrodynamics

<sup>4</sup> Akronym für distributed bragg reflector

Abhängigkeit der Spiegelpaaranzahl  $m$  erkenntlich ist [Li03]

$$\sqrt{R} = \frac{1 - \frac{n_{oben}}{n_{unten}} \left( \frac{n_{AlAs}}{n_{GaAs}} \right)^{2m}}{1 + \frac{n_{oben}}{n_{unten}} \left( \frac{n_{AlAs}}{n_{GaAs}} \right)^{2m}}, \quad (2.53)$$

wobei  $n_{oben}$  bzw.  $n_{unten}$  für den Brechungsindex des Mediums oberhalb bzw. unterhalb des betrachteten DBRs stehen. Um eine gerichtete Emission zu ermöglichen, wird die Reflektivität des oberen DBRs durch eine kleinere Anzahl an Spiegelpaaren geringer gewählt.

Zur Vervollständigung des dreidimensionalen Einschlusses wird der laterale Einschluss der Photonen durch den Übergang zwischen GaAs-Resonatormedium und Vakuum realisiert. Dazu werden in einem top-down Prozess aus der planaren Resonatorstruktur Mikrosäulenresonatoren mit Durchmessern von wenigen Mikrometern bis mehreren hundert Nanometern geätzt [Rei10].

### 2.5.2 Qualitätsfaktor

Ein Photon, das sich in einer Mode des Mikroresonators befindet, wird in diesem für eine Anzahl an Hin- und Rückläufen zwischen den Spiegelpaaren „gespeichert“, bevor es entweder absorbiert wird oder den Mikrosäulenresonator verlässt. Über diese Aufenthaltsdauer im Resonator  $\tau_{cav}$  ist der sogenannte Güte- oder Qualitätsfaktor ( $Q$ -Faktor) der Kavität definiert [Rei10]

$$Q = \tau_{cav} \omega_0, \quad (2.54)$$

wobei  $\omega_0$  die Resonanzfrequenz darstellt. Gleichung (2.54) kann in eine Abhängigkeit von der Resonanzenergie bzw. -wellenlänge und der spektralen Linienbreite  $\gamma$  umgeformt werden:  $Q = \frac{E}{\gamma E} = \frac{\lambda}{\gamma \lambda}$ . Die Lebensdauer eines Photons in einem idealen planaren Resonator ohne Absorptionsverluste kann über die Reflektivitäten der Spiegel gemäß [Rei10]

$$Q_{2D} = \frac{2L_{eff}}{\lambda} \frac{\pi}{1 - r_o r_u} \quad (2.55)$$

bestimmt werden, wobei  $r_{o,u}$  die Reflektivität des oberen bzw. unteren Spiegels und  $L_{eff}$  die effektive Länge des Resonators ist, die berücksichtigt, dass die sich im Resonator ausbildende stehende Welle zu einem gewissen Anteil in die angrenzenden Spiegelpaare eindringt. In realen Mikrosäulenresonatoren ist die Kavitätslebensdauer des Photons neben den endlichen Reflektivitäten der Spiegel zusätzlich durch unterschiedliche Streu- und Absorptionsprozesse reduziert. Die Gesamtverlustrate  $1/Q$  summiert sich aus den jeweiligen Teilverlustraten [Slu93, Riv99, Eng06, Rei07]

$$\frac{1}{Q} = \frac{1}{Q_{int}} + \frac{1}{Q_{abs}} + \frac{1}{Q_{Randstreuung}}. \quad (2.56)$$

Der erste Term  $\frac{1}{Q_{\text{int}}}$  beschreibt die intrinsischen Verluste des Mikrosäulenresonators, die keine Absorption enthalten und im Falle eines planaren Resonators aus Gleichung (2.55) berechnet werden können. Für Mikrosäulenresonatoren mit endlichem Durchmesser ist  $\frac{1}{Q_{\text{int}}} > \frac{1}{Q_{2\text{D}}}$ , da die intrinsischen Verluste mit abnehmendem Resonatorradius aufgrund einer zunehmend schlechteren Modenanpassung zwischen Kavität und Braggspiegel ansteigen [Vuc02, Rei10]. Die Verluste durch Materialabsorption von Photonen im Resonatormedium werden durch  $Q_{\text{abs}} = \frac{4\pi n_{\text{Res}}}{\lambda_0 \alpha_M}$  berücksichtigt. Dabei ist  $\lambda_0$  die Resonanzwellenlänge sowie  $n_{\text{Res}}$  und  $\alpha_M$  der Brechungsindex und der Materialabsorptionskoeffizient des Resonatormediums. Außerdem treten in realen Mikrosäulenresonatoren Verluste durch Streuung und Absorption an den Seitenwänden auf, da das elektromagnetische Feld an den Seitenwänden einen endlichen Wert besitzt. Diese Verluste werden durch  $\frac{1}{Q_{\text{Randstreuung}}} = \kappa J_0^2(k_t r_c)/r_c$  in Gleichung (2.56) einbezogen. Hierbei steht  $J_0(k_t r_c)$  für die Besselfunktion nullter Ordnung, welche die Intensitätsverteilung der Grundmode des Mikrosäulenresonators mit Radius  $r_c$  beschreibt. Der Streukoeffizient  $\kappa$  ist ein Parameter, der nicht nur ein Maß für die Rauheit der Resonatorseitenwand darstellt, sondern auch Absorption durch Oberflächenzustände einbezieht. Dieser hängt stark vom angewandten Ätzprozess ab.

## 2.6 Licht-Materie-Wechselwirkung im Mikroresonator

Aufgrund der veränderten optischen Modendichte in einem Resonator ändern sich die spontanen Emissionseigenschaften von integrierten Emittlern im Vergleich zu Emittlern in einem homogenen Medium grundlegend. Die physikalischen Eigenschaften des Systems werden in diesem Fall über die Theorie der cQED beschrieben. Dabei unterteilt man die Wechselwirkung nach Grad der Kopplungsstärke in schwache und starke Kopplung. Beide Regime werden im Folgenden anhand von Quantenpunkt-Mikrosäulenresonatoren diskutiert.

### 2.6.1 Starke Licht-Materie-Wechselwirkung

Befindet sich ein Quantenpunkt in einem Mikrosäulenresonator, so kann dieser von seinem Grundzustand  $|g\rangle$  durch optische oder elektrische Anregung in seinen angeregten Zustand  $|e\rangle$  versetzt werden. Hierbei entspricht der Grundzustand dem „leeren“ Quantenpunkt und der angeregte Zustand einem im Quantenpunkt lokalisierten Exziton. Dieses Exziton kann durch spontane Emission unter Aussendung eines Photons in eine Mode des Resonators oder in ein Kontinuum an Leckmoden rekombinieren. Ist die Lebensdauer des Photons im Resonator groß genug, um vom Quantenpunkt reabsorbiert zu werden, so befindet sich wieder im angeregten Zustand. Der Prozess der spontanen Emission wird also reversibel und wiederholt sich solange, bis das Photon den Mikrosäulenresonator verlässt. Dieser gegenseitige kohärente Energieaustausch zwischen dem Emitter und dem Vakuum-

feld der Resonatormode wird Vakuum-Rabi-Oszillation genannt und ist charakteristisch für das Regime der starken Licht-Materie-Wechselwirkung. Die Stärke der Wechselwirkung  $g$ , auch Kopplungskonstante genannt, ist über die Rabi-Frequenz der Oszillation  $\Omega$  definiert

$$2g = \hbar\Omega. \quad (2.57)$$

Befindet sich ein Quantenemitter im Feldmaximum eines Mikrosäulenresonators, so kann  $g$  in Abhängigkeit der Oszillatorstärke  $f$  und des effektiven Modenvolumens  $\tilde{V}$  ausgedrückt werden [And99]

$$g = \sqrt{\frac{1}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \frac{\pi e^2 f}{2m_0\tilde{V}}}, \quad (2.58)$$

wobei  $\epsilon_r$  ( $\epsilon_0$ ) die relative (Vakuum-) Permittivität,  $e$  die Elementarladung und  $m_0$  die Masse des freien Elektrons darstellt.

Ein idealisiertes quantenmechanisches Modell der Licht-Materie-Wechselwirkung ist das Jaynes-Cummings-Modell [Sho93, And99]. Die Lösung der Eigenwertgleichung des Jaynes-Cummings-Hamiltonians für einen Einzelphotonenprozess liefert die folgenden Realteile der Energieeigenwerte

$$E_{+,-} = \frac{1}{2}\hbar(\omega_c + \omega_x) \pm \sqrt{g^2 + \hbar^2(\omega_c - \omega_x)^2/16}. \quad (2.59)$$

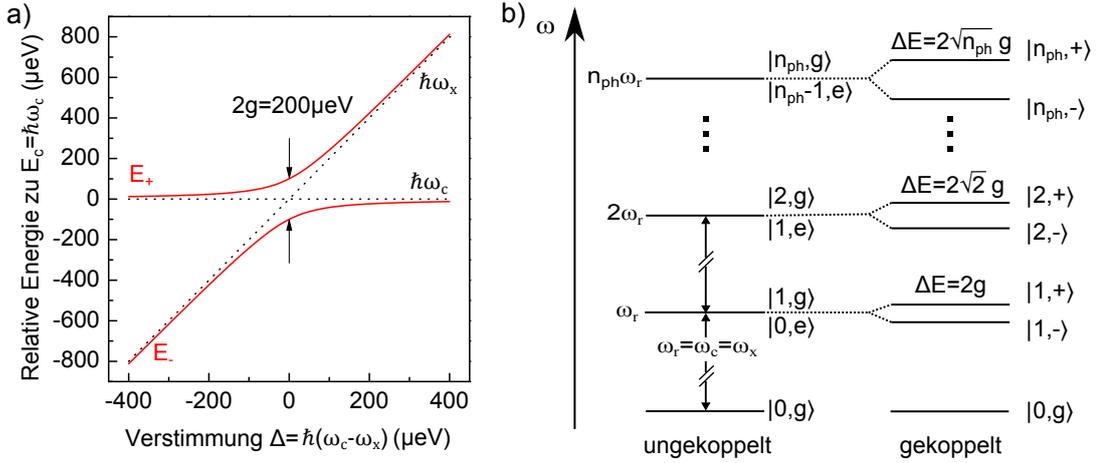
Im Resonanzfall  $\omega_c = \omega_x$  kommt es also zu einer Aufspaltung der Energieeigenwerte, der Vakuum-Rabi-Aufspaltung  $\Delta E_{\text{VRS}} = |E_+ - E_-| = 2g$  (siehe Abbildung 2.9 a). Befinden sich mehrere Photonen im Resonator, so ergibt sich die Aufspaltung der Energieeigenwerte in Abhängigkeit der Photonenzahl  $n_{ph} \in \mathbb{N}$  zu  $\Delta E = 2g\sqrt{n_{ph} + 1}$ . Aufgrund dieser Struktur wird das Energiespektrum auch als Jaynes-Cummings-Leiter bezeichnet (siehe Abbildung 2.9 b).

Das Jaynes-Cummings-Modell beinhaltet keine dissipativen Verluste, die in realen Systemen jedoch aufgrund der endlichen Dämpfung vorherrschen. Um die endlichen spektralen Linienbreiten des Exzitons  $\gamma_x$  und der Resonatormode  $\gamma_c$  angemessen in das Modell zu integrieren wird angenommen, dass diese aus der Kopplung an externe Reservoirs hervorgehen. Des Weiteren wird mit einer Mastergleichung für die Dichtematrix des Quantenemitter-Resonator-Systems gearbeitet, deren Lösung die Energieeigenwerte

$$E_{+,-} = E_0 - i\frac{(\gamma_c + \gamma_x)}{4} \pm \sqrt{g^2 - \left(\frac{\gamma_c - \gamma_x}{4}\right)^2} \quad (2.60)$$

besitzt, wobei  $E_0$  die Energie der ungekoppelten Exziton- und Photonmoden ist. In der Regel gilt  $\gamma_x \ll \gamma_c$ , wodurch aus Gleichung (2.60) die Bedingung für das Auftreten der Vakuum-Rabi-Aufspaltung abgeleitet werden kann

$$g > \frac{\gamma_c}{4}. \quad (2.61)$$



**Abbildung 2.9:** a) Relative Energie der Energieeigenwerte aus Gleichung (2.59) bezogen auf  $\hbar\omega_c$  gegenüber der Verstimmung  $\Delta = \hbar(\omega_c - \omega_x)$  für eine Kopplungskonstante von  $g = 100 \mu\text{eV}$ . Im Resonanzfall  $\Delta = 0$  kommt es bei einem Einzelphotonenprozess  $n_{ph} = 1$  aufgrund der starken Licht-Materie-Wechselwirkung zu einer Aufspaltung der Energieeigenwerte um  $2g$ . b) Schematische Darstellung der Jaynes-Cummings-Leiter. Im ungekoppelten System bilden die Eigenenergien eine Leiter mit äquidistanten Energieabständen, wobei die jeweiligen Produktzustände  $|n_{ph}, g\rangle$  und  $|n_{ph} - 1, e\rangle$  zweifach entartet sind. Im gekoppelten Quantenemitter/Photon System spalten die Produktzustände in Abhängigkeit der Photonenzahl  $n_{ph}$  um  $\Delta E = 2g\sqrt{n_{ph} + 1}$  auf. Die gekoppelten Eigenzustände des Systems sind dann gegeben durch  $|n_{ph}, \pm\rangle = (|n_{ph}, g\rangle \pm |n_{ph} - 1, e\rangle) / \sqrt{2}$ .

Für die experimentelle Beobachtung muss also  $Q\sqrt{f/\tilde{V}}$  optimiert werden, um das Regime der starken Kopplung zwischen einem einzelnen Quantenpunktexziton und dem Photon einer Resonatormode sichtbar zu machen. Für Quantenpunkt-Mikroresonatoren wurde dies zum ersten Mal im Jahr 2004 zum einen für Mikrosäulenresonatoren von Reithmaier et al. [Rei04] und zum anderen für photonische Kristalle von Yoshie et al. [Yos04] erreicht.

### 2.6.2 Schwache Licht-Materie-Wechselwirkung

Sind die dissipativen Verluste im Resonator so groß, dass das ausgesendete Photon nicht vom Emittor reabsorbiert wird, dann befindet sich das System im Regime der schwachen Kopplung. Die Bedingung hierfür ist

$$g < \frac{\gamma_c}{4}, \quad (2.62)$$

bei der Gleichung (2.60) nur eine reelle Lösung besitzt. Trotzdem werden die Emissionseigenschaften des Emittors aufgrund des diskreten Modenspektrums beeinflusst, da nach Fermis goldener Regel die Rate der spontanen Emission  $\Gamma = 1/\tau_r$  direkt proportional zur optischen Modendichte  $\rho(\omega)$  bei der Übergangsfrequenz  $\omega$  ist [Gér98]

$$\Gamma = \frac{1}{\tau_r} = \frac{2\pi}{\hbar} \rho(\omega) |\langle \mathbf{d} \cdot \mathbf{E} \rangle|^2, \quad (2.63)$$

wobei  $|\langle \mathbf{d} \cdot \mathbf{E} \rangle|$  das Dipolübergangselement des entsprechenden Übergangs ist. Die Modendichte im Resonator ist gegenüber dem Volumenmaterial im Bereich der Resonanzwellenlänge stark erhöht, hingegen im Stoppband des Resonators reduziert. Dadurch ist die Lebensdauer eines gekoppelten Quantenemitters in Resonanz stark verkürzt, abseits der Resonanz hingegen erhöht. Dieser Effekt wurde von E.M. Purcell 1946 vorhergesagt und wird deshalb Purcell-Effekt genannt [Pur46]. Das Verhältnis der Lebensdauer des Emitters im Volumenmaterial  $\tau_{3D}$  zur Lebensdauer des Emitters in der Kavität  $\tau_{res}$  in Abhängigkeit der Verstimmung  $\Delta$  zwischen Emitter und Resonatormode ist gegeben durch [Gay03]

$$\frac{\tau_{3D}}{\tau_{res}} = \frac{3Q(\lambda_0/n_{Res})^3}{4\pi^2\tilde{V}} \cdot \frac{\gamma_c^2}{4\Delta^2 + \gamma_c^2} \cdot \frac{|\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}|^2}{|\mathbf{d}|^2}, \quad (2.64)$$

wobei der erste Term nur von den Eigenschaften des Resonators mit der Resonanzwellenlänge  $\lambda_0$  abhängt. Der mittlere Term berücksichtigt die spektrale Verstimmung und der letzte Term die Ausrichtung und den Überlapp des elektrischen Feldes  $\mathbf{E}$  mit dem Dipolmoment des Emitters  $\mathbf{d}$ . Für den Resonanzfall  $\Delta = 0$  und für maximalen Überlapp zwischen Dipolmoment und elektrischem Feld erhält man den Purcell-Faktor des Mikroresonators

$$F_P = \frac{3Q(\lambda_0/n_{Res})^3}{4\pi^2\tilde{V}}. \quad (2.65)$$

Für die in dieser Arbeit untersuchten Mikrosäulenresonatoren kann das effektive Modenvolumen über eine Abnahme des Säulendurchmessers reduziert werden. Jedoch führt eine Abnahme des Säulendurchmessers in der Regel auch zu geringeren  $Q$ -Faktoren [Rei10]. Um hohe Purcell-Faktoren zu erzielen, muss aus technologischer Sicht deshalb das Verhältnis  $Q/\tilde{V}$  optimiert werden.

Über die schwache Licht-Materie-Wechselwirkung ist es also möglich die Lebensdauer eines Übergangs zu verkürzen, wodurch höhere Photonen-Übergangsraten für die Quantenkommunikation möglich sind. Um möglichst hohe reale Emissionsraten der Einzelphotonenquellen für zukünftige Anwendungen in der Quanteninformationstechnologie zu realisieren, ist neben einer hohen Übergangsrate auch eine hohe Photonen-Auskoppleffizienz  $\eta_{ph}$  von zentraler Bedeutung. Für einen In(Ga)As-Quantenpunkt in einer umgebenden GaAs-Matrix ist der Anteil der vom Quantenpunkt emittierten Photonen, die den Halbleiter auch in den oberen Halbraum verlassen, aufgrund des Brechungsindexunterschiedes zwischen GaAs und Luft/Vakuum auf ca. 3% reduziert. Dieser Wert kann beispielsweise über einen unterhalb des Quantenpunktes angebrachten DBR auf ca. das Doppelte und durch die Integration eines Quantenpunktes in einen Mikrosäulenresonator auf über 70 % erhöht werden [Bar02, Gaz13].

Der Anteil der spontanen Emission des Emitters, der direkt in eine optische Mode des Resonators eingekoppelt werden kann, wird  $\beta$ -Faktor genannt. Er setzt sich aus dem

Purcell-Faktor wie folgt zusammen

$$\beta = \frac{F_P}{F_P + 1}. \quad (2.66)$$

Mit zunehmendem Purcell-Faktor erhöht sich der Anteil der spontanen Emission, der in die optische Mode des Resonators eingespeist wird. Dementsprechend wird der Prozentsatz der in andere Moden emittierten Photonen  $1 - \beta$  reduziert, wodurch Verluste minimiert werden können. Von besonderer Bedeutung ist der  $\beta$ -Faktor bei der Realisation eines schwellenlosen Lasers, für welchen  $\beta \rightarrow 1$  gelten muss [Nod06, Kha12]. Die Photonen-Auskoppeleffizienz ist bei gegebener Mikroresonatorgeometrie jedoch nicht nur vom  $\beta$ -Faktor abhängig, sondern zusätzlich vom Anteil des gesamten Photonenflusses, welcher über den oberen DBR in Richtung Sammeloptik ausgekoppelt werden kann. Dieser ist über das Verhältnis des gesamten  $Q$ -Faktors zu  $Q_{2D}$ , dem  $Q$ -Faktor für den Grenzfall einer planaren Resonatorstruktur, gegeben, wodurch sich die Photonen-Auskoppeleffizienz zu

$$\eta_{ph} = \frac{Q}{Q_{2D}} \beta = \frac{Q}{Q_{2D}} \frac{F_P}{F_P + 1} \quad (2.67)$$

ergibt [Bar02]. Aus technologischer Sicht sollten demnach die bei geringen Mikrosäulendurchmessern dominierenden Verluste aufgrund von Seitenwandstreuung minimiert werden, um ein möglichst hohes Verhältnis von  $Q/Q_{2D}$  bei gleichzeitig hohem  $\beta$  zu ermöglichen.



## 3 Technologie

In diesem Abschnitt wird zunächst kurz auf die Probenherstellung und Prozessierung eingegangen, bevor im weiteren Verlauf die grundlegenden Methoden und Messvorrichtungen, die für den experimentellen Teil der Arbeit aufgebaut wurden, erklärt werden. Spezifische Erweiterungen der Aufbauten werden in den experimentellen Kapiteln 5 und 6 erläutert.

### 3.1 Probenherstellung und Prozessierung

#### 3.1.1 Epitaktisches Wachstum

Die Herstellung der in dieser Arbeit verwendeten Mikroresonatoren erfolgt über Molekularstrahlepitaxie (MBE<sup>1</sup>) auf einem GaAs (100) Substrat. Zunächst wird auf das GaAs-Substrat eine 400 nm dicke Pufferschicht zur Glättung der Probenoberfläche gewachsen. Darauf folgen die AlAs/GaAs-Spiegelpaare des unteren Bragg-Spiegels, die aufgrund der ähnlichen Gitterkonstanten gitterangepasst gewachsen werden können, und die erste Hälfte der  $\lambda$ -dicken GaAs-Kavität. Nun beginnt das Wachstum der In(Ga)As-Schicht zur Ausbildung der selbstorganisierten Quantenpunkte im Stranski-Krastanov-Modus: Durch die unterschiedlichen Gitterkonstanten der beiden Halbleitermaterialien erfolgt das Schichtwachstum solange zweidimensional, bis eine kritische Schichtdicke von wenigen Monolagen erreicht ist, nach der ein Inselwachstum einsetzt. Die morphologischen Eigenschaften der Quantenpunkte wie Geometrie, Größe und chemische Zusammensetzung und somit ihre optischen Eigenschaften können in gewissem Maße über die Wachstumsparameter wie Substrattemperatur und Materialfluss geregelt werden. Die Quantenpunkte werden mit der zweiten Hälfte der  $\lambda$ -dicken GaAs-Kavität überwachsen, bevor das Wachstum des oberen Spiegels beginnt. Dieser wird mit einer Schicht aus GaAs abgeschlossen, um einer möglichen Oxidation einer AlAs-Schicht vorzubeugen. Bei elektrisch betreibbaren Quantenpunkt-Mikrosäulenresonatoren werden die unteren Spiegelpaare mit Silizium n-dotiert und die oberen Spiegelpaare mit Kohlenstoff p-dotiert. Für eine möglichst gute Strominjektion bei geringer Photonabsorption durch freie Ladungsträger nimmt die Dotierkonzentration der Spiegel vom Resonatoräußeren zum -inneren ab. Des Weiteren werden die Übergänge an den AlAs/GaAs-Grenzflächen  $\delta$ -dotiert, um den elektrischen

---

<sup>1</sup> Akronym für molecular beam epitaxy

Widerstand der DBRs zu reduzieren [Böc08]. Der Schichtaufbau der verwendeten Proben befindet sich im Anhang dieser Arbeit.

#### 3.1.2 Prozessierung von Mikrosäulenresonatoren

Die Mikrosäulenresonatoren werden durch ein Top-Down Verfahren hergestellt. Nach einer Reinigung des Probenstücks wird auf dieses eine dünne Schicht (ca. 500 nm) PMMA<sup>2</sup> als elektronenstrahlsensitiver Positivlack aufgebracht. Anschließend werden mittels Elektronenstrahlolithographie die Resonatorquerschnitte in den Lack geschrieben. In den belichteten Bereichen erhöht sich die chemische Löslichkeit der Polymerketten, sodass diese Stellen durch eine Entwicklerlösung entfernt werden können, während die unbelichteten Bereiche weiterhin die Probe bedecken. Daraufhin wird die Ätzmaske auf die Probe aufgedampft. Diese besteht entweder aus BaF<sub>2</sub>/Cr oder aus Nickel. Nach dem Entfernen der unbelichteten PMMA-Bereiche mit einem Lösungsmittel im sogenannten „*Lift-off*“-Schritt werden die Mikroresonatoren durch reaktives Ionenätzen in einer Elektron-Zyklotron-Resonanz-Kammer aus dem Halbleitermaterial freigelegt. Im Falle einer Nickelmaske wird deren Schichtdicke (ca. 150 nm) so gewählt, dass sie während des Ätzprozesses möglichst vollständig entfernt wird. Besteht die Maske aus BaF<sub>2</sub>/Cr so kann diese nach dem Ätzen in einem Wasserbad vollständig entfernt werden. Hierbei oxidieren jedoch bei fehlender Versiegelung der Seitenwände der Mikrosäulenresonatoren die AlAs-Schichten der Spiegelpaare, was eine Reduktion der Resonatorgüte mit sich führt.

Für eine elektrische Kontaktierung müssen nach dem Ätzen die Zwischenräume der einzelnen Mikrosäulenresonatoren mit dem transparenten und isolierenden Polymer BCB<sup>3</sup> aufgefüllt werden. Daraufhin wird das BCB in einem Sauerstoff/Trifluormethan-Plasma wieder so weit entfernt, bis die oberen Spitzen der Mikrosäulenresonatoren freigelegt sind. Dieser Planarisierungsschritt hat gleichzeitig den Vorteil einer Versiegelung der Seitenwände, sodass die für elektrisch kontaktierte Mikrosäulenresonatoren verwendete BaF<sub>2</sub>/Cr-Maske ohne Oxidation der AlAs-Schichten entfernt werden kann. Die ringförmigen oberen Goldkontakte werden wie zuvor die Nickel- bzw. BaF<sub>2</sub>/Cr-Maske in einem Lithographieschritt auf dem BCB angebracht. Beim Planarisieren entsteht am oberen Rand des Resonators ein kleiner Spalt, in welchem sich beim Kontaktierungsprozess das Gold zur seitlichen Kontaktierung abscheiden kann, sodass eine die Säulenspitze umgebende Goldfacette entsteht.

#### 3.1.3 Prozessierung von Schattenmasken

Neben Mikrosäulenresonatoren werden in dieser Arbeit auch Quantenpunkte in planaren Resonatoren untersucht. Die Resonatorstrukturen sind in diesem Fall mit 18 (Probe

---

<sup>2</sup> Akronym für Polymethylmethacrylat

<sup>3</sup> Akronym für Benzocyclobuten

C3297) bzw. 24 Spiegelpaaren (Probe M3569) im unteren und fünf Spiegelpaaren im oberen DBR stark asymmetrisch, um eine gute Auskoppelleffizienz der Quantenpunktemission zu erzielen. Auf beide Proben wird eine Aluminium-Lochmaske aufgebracht. Diese besteht aus mehreren gekennzeichneten Feldern, die aus sechs Reihen mit je sechs Löchern bestehen. Die Durchmesser der Löcher im Bereich von  $1 - 4 \mu\text{m}$  sind so gewählt, dass sich nur wenige Quantenpunkte unterhalb einer Apertur befinden, um einzelne Quantenpunkte im Spektrum selektieren zu können.

## 3.2 Messtechnik

### 3.2.1 Mikrophotolumineszenzspektroskopie von Quantenpunkten

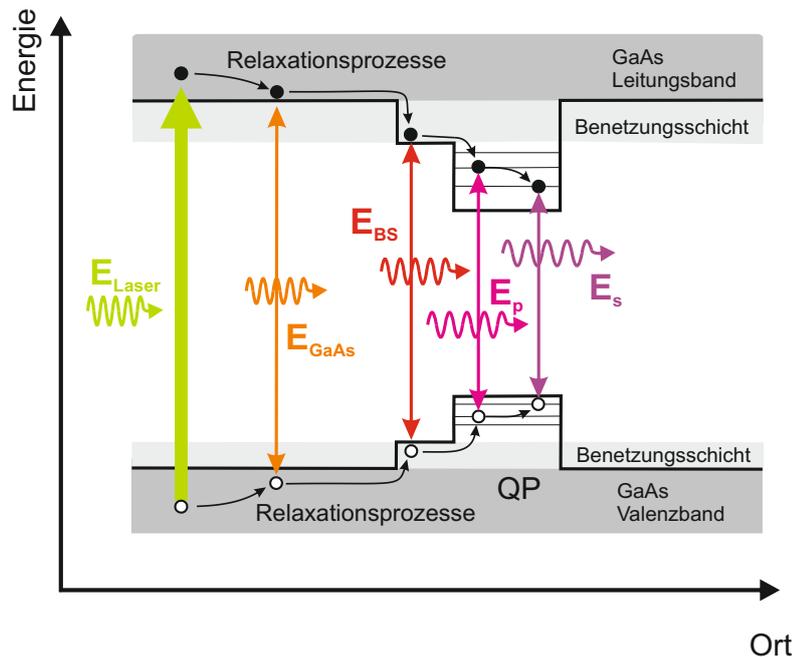
Eine wichtige Methode, um die optischen Übergänge in Halbleitern und niederdimensionalen Halbleitersystemen zu untersuchen, ist die Mikrophotolumineszenzspektroskopie ( $\mu\text{PL}$ ). Dabei werden durch optische Anregung mit einem Laser Elektronen vom Valenz- ins Leitungsband des Halbleiters angehoben. Für einen Halbleiterquantenpunkt unterscheidet man zwischen nichtresonanter, quasiresonanter und resonanter Anregung:

- **Nichtresonante Anregung über die Bandkante**

Die Energie der absorbierten Photonen ist größer als die Bandlücke des den Quantenpunkt umgebenden Halbleitermaterials. Dadurch werden freie Ladungsträger in der Halbleitermatrix erzeugt, die aufgrund von nichtstrahlenden Relaxationsprozessen, meist durch Streuung mit Phononen, Energie verlieren und von der Bandkante und den energetischen Zuständen in der Benetzungsschicht oder im Quantenpunkt unter Aussendung eines Photons rekombinieren (siehe Abbildung 3.1). Da die Relaxationsprozesse auf der Zeitskala von wenigen Picosekunden ablaufen, die Lebensdauer der Exzitonen in den jeweiligen Zuständen jedoch mehrere hundert Picosekunden beträgt, erfolgt die Emission für geringe Anregungsleistungen zunächst vom Grundzustand des Quantenpunktes. Eine Erhöhung der Anregungsleistung führt zu einer Steigerung der Ladungsträgerkonzentration in der Umgebung des Quantenpunktes, wodurch eine höhere Anzahl von Ladungsträgern pro Zeitintervall im Quantenpunkt eingefangen werden kann. Dadurch werden die niederenergetischen Niveaus im Quantenpunkt aufgefüllt und die Emission von energetisch höheren Zuständen wird wahrscheinlicher.

- **Nichtresonante Anregung in die Benetzungsschicht**

Bei Anregung in die Zustände der sich beim Stranski-Krastanov-Wachstum ausbildenden Benetzungsschicht besteht der Vorteil, dass im Vergleich zur Anregung über die Bandkante der umgebenden Halbleitermatrix die Diffusionszeit der Ladungsträger in den Quantenpunkt verkürzt ist.



**Abbildung 3.1:** Anregungsschema und Relaxationsprozesse bei der Mikrophotolumineszenzspektroskopie: Die nichtresonante Anregung in die umgebende GaAs-Matrix und die Benetzungsschicht führt zu einer erhöhten Ladungsträgerkonzentration in der Umgebung des Quantenpunktes. Die auf diese Weise erzeugten Ladungsträger können aufgrund nichtstrahlender Relaxationsprozesse Energie verlieren und vom Quantenpunkt eingefangen werden. Hingegen werden bei der quasiresonanten und resonanten Anregung die Ladungsträger direkt im Quantenpunkt erzeugt.

- **Quasiresonante Anregung**

Bei der quasiresonanten Anregung werden die Ladungsträger direkt in eine höhere Schale des Quantenpunktes, meist in die  $p$ -Schale, angeregt. Dadurch ergeben sich gleich mehrere Vorteile. Zum einen verhindert man die Emission anderer Quantenpunkte, wodurch nur die Linien des angeregten Quantenpunktes im Emissionsspektrum vorhanden sind. Dies ist vor allem für den Nachweis der Einzelphotonenemission von Vorteil, da unerwünschte Beiträge anderer Quantenpunkte zur Emission den  $g^{(2)}(0)$ -Wert erhöhen. Außerdem werden Ladungsträger in der unmittelbaren Umgebung des Quantenpunktes, die zu Fluktuationen in der elektrostatischen Umgebung und zu Dephasierung führen, stark reduziert. Zuletzt wird die Zeitverzögerung, die durch das Einfangen der Ladungsträger aus der Benetzungsschicht entsteht, umgangen. Jedoch besteht auch hier die Unsicherheit in der Photonemissionszeit die aufgrund der endlichen Relaxationszeit von der höheren Schale in die  $s$ -Schale (wenige Picosekunden) herrührt.

- **Resonante Anregung**

Die strikt resonante Anregung in die  $s$ -Schale hat die gleichen Vorteile wie die qua-

siresonante Anregung, jedoch entfällt zusätzlich die Unsicherheit aufgrund der endlichen Relaxationszeit aus höheren Schalen, sodass die zeitliche Unsicherheit auf die Lebensdauer des exzitonischen Zustands eingeschränkt ist. Dadurch können in resonanter Anregung die höchsten Visibilitäten für die Zwei-Photonen-Interferenz mit nahezu Fourier-Transformations-limitierten Photonen erzielt werden [He13b]. Bei der experimentellen Umsetzung der resonanten Anregung besteht die Herausforderung, das Lumineszenzsignal der Quantenpunktemission vom Streulicht des Lasers durch Polarisationsoptiken herauszufiltern [Vam09, Hou12] und/oder räumlich zu trennen [Mul07, Mel08, Ate09a].

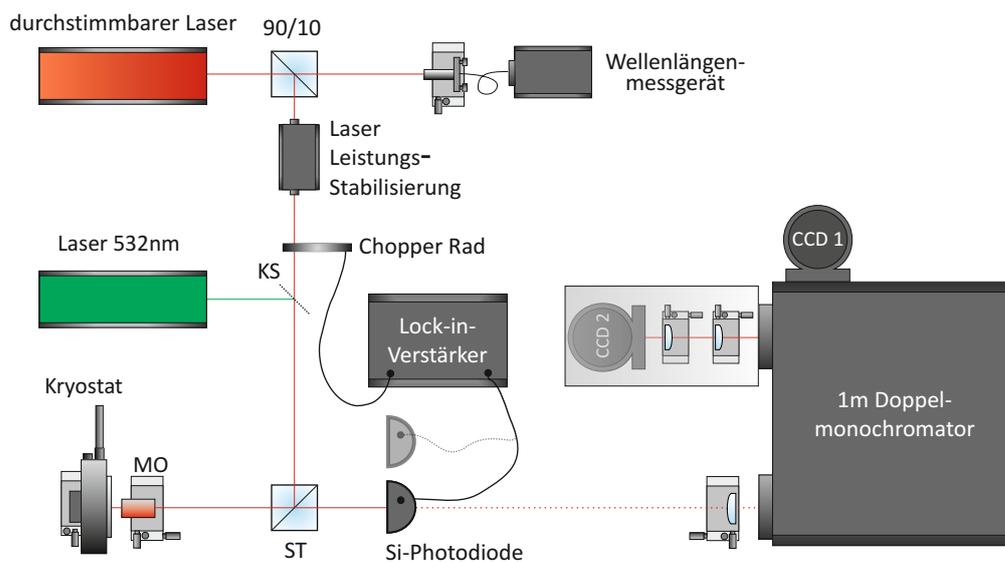
### 3.2.2 Messaufbauten

Eine wichtige experimentelle Aufgabe dieser Arbeit war es, die für die jeweiligen Experimente notwendigen Messplätze aufzubauen. So wurden der Aufbau für Photostromspektroskopie, ein Fabry-Perot und ein Michelson-Interferometer sowie der Aufbau zur Zwei-Photonen-Interferenz neu aufgebaut.

#### Messaufbau zur spektral hochauflösenden Mikrophotolumineszenz- und Mikroreflexionsspektroskopie

Um die in Kapitel 3.1 beschriebenen Proben untersuchen zu können, wurde ein bereits bestehender Mikrophotolumineszenzmessplatz optimiert (siehe Abbildung 3.2). Da die meisten durchgeführten Experimente lange Integrationszeiten beanspruchen, wurde auf eine hohe zeitliche Stabilität des Messaufbaus Wert gelegt. Unvermeidbare Schwankungen der Raumtemperatur führen zu einer unterschiedlichen Ausdehnung der aus verschiedenen Materialien gefertigten opto-mechanischen Bauteile. Deswegen wurden alle relevanten aus Aluminium gefertigten Bestandteile des Messaufbaus durch Edelstahlkomponenten ersetzt, welche eine geringere Wärmeleitfähigkeit und einen geringeren Wärmeausdehnungskoeffizienten besitzen.

Da die Emissionslinien von Halbleiterquantenpunkten bei Raumtemperatur aufgrund von Phononenwechselwirkungen stark verbreitert sind [Bay02b], werden die Experimente bei Temperaturen von 5 – 50 K durchgeführt. Dazu werden die Proben auf einem Kaltfinger in einem Helium-Durchflusskryostaten befestigt. Die Probentemperatur wird über die Spannung einer am Kaltfinger befestigten Siliziumdiode ausgelesen und über die Spannung an einem Heizwiderstand unterhalb des Kaltfingers geregelt. Zur Anregung der Probe für Photolumineszenzexperimente wird ein frequenzverdoppelter Nd:YAG Festkörperlaser benutzt, der bei einer Wellenlänge von 532 nm emittiert. Für Reflexionsexperimente wird ein Diodenlaser benutzt, der eine sehr schmale Linienbreite von weniger als 1 neV besitzt und im Wellenlängenbereich zwischen 918 – 980 nm durchstimmbare ist. Die Auswahl des jeweiligen Lasers erfolgt über einen umklappbaren Spiegel (KS) im Strahlengang. Mit-



**Abbildung 3.2:** Schematische Skizze des Messaufbaus zur Mikrophotolumineszenz- und Mikroreflexionsspektroskopie. Über einen Klappspiegel (KS) kann zwischen einem grünen Laser für die Anregung zur Photolumineszenz und einem infraroten durchstimmbaren Laser für Reflexionsexperimente gewählt werden. Das Laserlicht wird mit einem Mikroskopobjektiv (MO) auf die Probenoberfläche fokussiert. Zur Aufnahme eines Reflexionsspektrums dient eine in die optische Achse eingefügte Si-Photodiode, die das von der Probe zurückgestreute Laserlicht detektiert. Für Photolumineszenzexperimente wird das von der Probe emittierte Signal in einem Doppelmonochromator spektral zerlegt und über eine CCD-Kamera aufgenommen.

hilfe eines auswechselbaren Strahlteilers (ST) werden beide Laser auf die optische Achse zwischen den Kryostaten und Monochromator gelenkt. Während für die Reflexionsspektroskopie ein 50/50 Strahlteiler verwendet wird, wird dieser für Photolumineszenzmessungen durch einen Kaltlichtspiegel ersetzt, welcher das grüne Licht des Anregungslasers gut reflektiert und das langwelligere Licht der Quantenpunktemission gut transmittiert. Zur Fokussierung des Laserlichtes auf die Probenoberfläche sowie zum Einsammeln der Emission von der Probe dient ein Mikroskopobjektiv (MO). Hier stehen drei Objektive mit unterschiedlicher Vergrößerung  $V$  und Numerischer Apertur  $NA$  zur Verfügung:  $V = 20$ -fach und  $NA = 0,40$ ,  $V = 50$ -fach und  $NA = 0,42$  sowie  $V = 100$ -fach und  $NA = 0,70$ . Zur präzisen räumlichen Positionierung des Laserfokus auf der Probe kann der Kryostat in der Ebene senkrecht zur optischen Achse mithilfe von zwei Verschiebetischen bewegt werden. Zusätzlich befindet sich das Mikroskopobjektiv auf einem Würfel mit piezoelektrischen Kristallen, der eine Feinjustage in drei Raumrichtungen mit einer Genauigkeit von 100 nm ermöglicht.

Für spektral hochauflösende Mikrophotolumineszenzuntersuchungen wird das vom Objektiv eingesammelte Licht über eine Linse auf den Eingangspalt eines 1 m Doppelmonochromators fokussiert. Im Doppelmonochromator wird das Licht durch zwei Gitter mit je 1200 Strichen/mm spektral zerlegt und schließlich von einer  $LN_2$ -gekühlten Silizium-

CCD<sup>4</sup>-Kamera (CCD1) detektiert. Die spektrale Auflösung von  $16 \mu\text{eV}$  in dieser Konfiguration ist nicht aufgrund der Auflösung des Monochromators limitiert, sondern von der Detektorpixelgröße ( $26 \mu\text{m} \times 26 \mu\text{m}$ ) der CCD-Kamera begrenzt. Um eine höhere Auflösung zu erzielen, wird das PL-Signal durch einen Klappspiegel auf einen zweiten Ausgang des Monochromators gelenkt. Hinter diesem befindet sich eine Teleskopanordnung. Diese besteht aus zwei Linsen mit Fokusslängen von  $f_1 = 30 \text{ cm}$  und  $f_2 = 4,5 \text{ cm}$  die zusammen eine Vergrößerung von  $f_1/f_2 = 6,7$  ergeben. Die vergrößerte Abbildung wird von einer weiteren LN<sub>2</sub>-gekühlten Silizium-CCD Kamera (CCD2) detektiert. Durch diese Anordnung konnte eine spektrale Auflösung von  $6,2 \mu\text{eV}$  erreicht werden, die nahe an der rechnerisch maximal möglichen Auflösung des Spektrometers von  $5 \mu\text{eV}$  liegt.

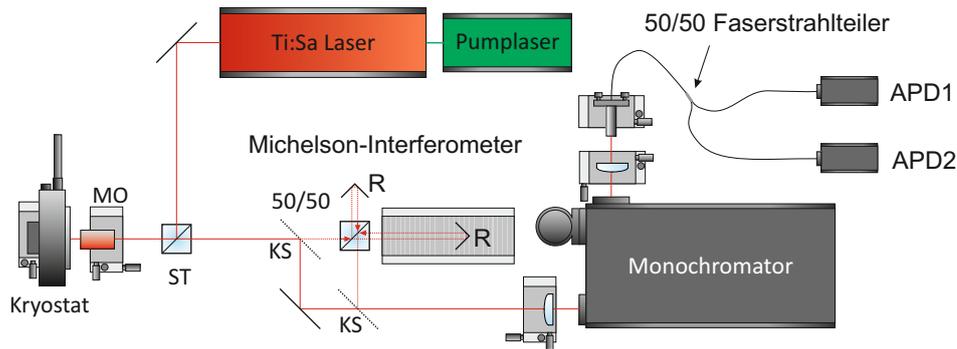
Für Reflexionsexperimente wird in den Strahlengang zwischen 50/50-Strahlteiler und Monochromator ein Silizium-Photodetektor eingebaut, welcher die von der Probe zurückreflektierte Lichtintensität in eine Spannung umwandelt. Diese wird über einen Lock-in-Verstärker ausgelesen. Das dafür nötige Referenzsignal wird über ein Chopper-Rad erzeugt, das sich zwischen einem Laserleistungsstabilisator, zum Ausgleich der Leistungsschwankungen des Lasers, und dem umklappbaren Spiegel befindet. Zur Aufnahme eines Reflexionsspektrums wird die Emissionswellenlänge des Lasers variiert. Dabei wird ein kleiner Teil des Laserlichtes über einen 90/10 Strahlteiler abgezweigt und in ein Wellenlängenmessgerät (Auflösung:  $0,4 \mu\text{eV}$ ) eingekoppelt. Die Wellenlänge des Lasers wird zusammen mit der dazugehörigen Spannung des Photodetektors von einem Rechner ausgelesen und gespeichert.

### **Messaufbau des Michelson-Interferometers und Hanbury-Brown und Twiss Aufbau**

Für den Nachweis der Einzelphotonenemission, Messungen der Kohärenzzeit und Lebensdauer der Quantenpunktemission sowie der Zwei-Photonen-Interferenz wurde ein weiterer Mikrophotolumineszenzmessplatz aufgebaut. Zur Anregung der Quantenpunkte wurde ein Titan:Saphir Laser benutzt. Dieser wird von einem 10 W Festkörperlaser gepumpt und ermöglicht eine gepulste Anregung mit einer Pulsbreite von ca. 1 ps und einem Pulsabstand von 12,2 ns in einem Wellenlängenbereich von 840 – 1000 nm. Aufgrund der besseren Transmissionseigenschaften wird nun statt eines Doppelmonochromators ein einfacher Monochromator mit einer optischen Weglänge von 75 cm und drei Gittern mit 300, 1200 und 1500 Strichen/mm verwendet. Die dadurch maximal erreichbare spektrale Auflösung liegt bei ca.  $30 \mu\text{eV}$ . Auch dieser Monochromator besitzt zwei Ausgänge, die über einen elektrisch ansteuerbaren Klappspiegel im Inneren des Spektrometers ausgewählt werden können. So kann bei Selektion des Frontausgangs ein Mikrophotolumineszenzspektrum mithilfe einer LN<sub>2</sub> gekühlten CCD aufgenommen werden oder aber durch Auswahl des seitlichen

---

4 Akronym für charge-coupled device



**Abbildung 3.3:** Schematische Darstellung eines Mikrophotolumineszenzmessplatzes mit Michelson-Interferometer und Hanbury-Brown und Twiss Aufbau : Die vom Mikroskopobjektiv eingesammelte Photolumineszenz kann durch Verwendung von zwei Klappspiegeln durch ein Michelson-Interferometer geleitet werden. Zur spektralen Selektion und Analyse der Emission wird ein Monochromator verwendet. Um die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung aufzunehmen, befindet sich hinter dem seitlichen Ausgang des Monochromators eine glasfaserbasierte Hanbury-Brown und Twiss Messanordnung mit Silizium-Lawinenphotodioden (APD1 und APD2).

Ausgangs das Photolumineszenzsignal aus dem Monochromator wieder ausgekoppelt werden. Dabei wird über einen Spalt mit verstellbarer Breite im Ausgang die Emission zur spektralen Selektion abgeschnitten, sodass bei ausreichend geringer spektraler Dichte eine einzelne Emissionslinie herausgefiltert werden kann. Das divergente Photolumineszenzsignal wird daraufhin über eine Linse kollimiert und abschließend über einen Faserkollimator in den Eingang eines 50/50 Faserstrahlteilers eingekoppelt. Dieser Faserstrahlteiler ist Bestandteil des Hanbury-Brown und Twiss Aufbaus und besteht aus polarisationserhaltenden Monomodefasern an deren Ausgängen fasergekoppelte Silizium-Lawinenphotodioden (APDs<sup>5</sup>) zur Detektion einzelner Photonen angebracht sind. Je nach Verwendungszweck stehen hierfür drei APD-Paare mit unterschiedlicher Zeitauflösung  $\delta t_{\text{res}}$  zur Verfügung: id100-MMF50 von *IDQ* mit  $\delta t_{\text{res}} = 40$  ps,  $\tau$ -SPAD von *picoquant* mit  $\delta t_{\text{res}} = 400$  ps und SPCM-AQR-16-FC von *PerkinElmer* mit  $\delta t_{\text{res}} = 700$  ps. Bei Detektion eines Photons geben die APDs einen Spannungspuls an das TCSPC-Modul, das sich in einem Rechner befindet, weiter (siehe Abschnitt 2.3.3).

Für die Messung der Kohärenzzeit von Licht kann ein Michelson-Interferometer über zwei Klappspiegel in den Strahlengang integriert werden. Das Michelson-Interferometer besteht aus einem 50/50 Strahlteiler und je einem Retroreflektor (R) in beiden Armen, von denen einer fest positioniert ist und der andere sich auf einem motorisierten und ansteuerbaren Lineartisch befindet. Dieser kann über eine Gesamtstrecke von 30 cm verfahren werden und ist zusätzlich mit einem Piezoelement versehen. Nachdem das auf den 50/50

<sup>5</sup> Akronym für avalanche photo diode

Strahlteiler eintreffende Licht gleichmäßig auf beide Arme des Interferometers aufgeteilt wurde, wird es von den Retroreflektoren zurückgeworfen, sodass sich beide Teilstrahlen wieder am Strahlteiler überlagern und somit zur Interferenz gebracht werden können (siehe Abbildung 3.3). Dabei kann der optische Wegstreckenunterschied  $\Delta L$  zwischen den beiden Armen über den motorisierten Lineartisch grob justiert werden und über eine am Piezoelement angelegte Spannung mit einer Präzision von wenigen Nanometern fein eingestellt werden. Nach dem Michelson-Interferometer wird das Licht durch den Monochromator spektral gefiltert und anschließend in eine Glasfaser eingekoppelt, an deren Ende sich eine APD zur Messung der Photonenzählrate befindet. Zur Aufnahme der in Abschnitt 2.3.1 erwähnten Kontrastfunktion  $K(\tau = \Delta L/c)$  wird der Lineartisch in Schrittweiten von 5 – 10 mm verschoben und nach jedem Schritt zur Bestimmung der maximalen und minimalen Interferenzintensität das Piezoelement um ca. 1200 nm verfahren. Die Photonenzählrate in Abhängigkeit der Spannung am Piezoelement wird über ein TCSPC-Modul ausgelesen und von einem Rechner gespeichert.



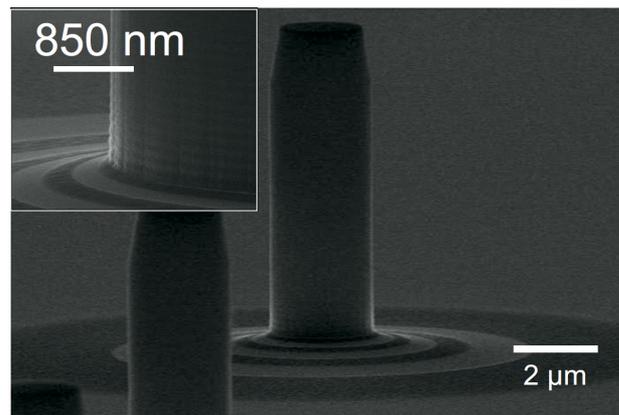
# 4 Reflexions- und Photolumineszenzspektroskopie an Mikrosäulenresonatoren mit sehr hohen Güten

Um möglichst hohe Datenraten in der Quantenkommunikation über große Distanzen mit Quantenrepeatern ermöglichen zu können, werden Photonenquellen benötigt, die eine hohe Auskoppelleffizienz besitzen. Eine Möglichkeit, die Auskoppelleffizienz eines Quantenpunktes als Einzelphotonenquelle zu erhöhen, besteht in der Integration des Quantenpunktes in einen Mikrosäulenresonator. Außerdem können Quantenpunkt-Mikrosäulenresonatoren als Schnittstelle zwischen fliegenden Qubits und stationären Qubits in einem Quantenrepeater eingesetzt werden. Hier stellt die Stärke der Licht-Materie-Wechselwirkung zwischen Quantenpunktexziton und Photon eine wichtige Größe dar, die die Effizienz der Schnittstelle beeinflusst [Hu08b, Hu08a, Hu09, Hu11, Wan12]. Sowohl das Regime der Licht-Materie-Wechselwirkung als auch die Höhe der Auskoppelleffizienz eines Quantenpunkt-Mikrosäulenresonators sind vom  $Q$ -Faktor des Resonators abhängig. Vor diesem Hintergrund ist eine exakte Analyse der Verlustmechanismen, die zu einer Abnahme des  $Q$ -Faktors führen, von grundlegendem Interesse.

In diesem Kapitel werden zwei experimentelle Methoden zur Bestimmung von  $Q$ -Faktoren verglichen. Zum einen die Mikrophotolumineszenzspektroskopie, bei der die Grundmode des Resonators durch die angeregten Quantenpunkte gepumpt wird und aus der Linienbreite und der Energie des emittierten Lichts der  $Q$ -Faktor berechnet wird. Zum anderen die Reflexionsspektroskopie, bei der die Grundmode über einen abstimmbaren Laser „abgetastet“ wird und aus der Breite der im Reflexionsspektrum auftretenden Abnahme, die Güte des Resonators abgeleitet wird.

## 4.1 Probenaufbau

Um Mikroresonatoren mit hohen  $Q$ -Faktoren herzustellen, wurde eine planare Struktur mit 36 (32) Spiegelpaaren im unteren (oberen DBR) gewachsen (siehe Anhang A.1). Als aktives Medium wurden  $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$  Quantenpunkte verwendet, welche sich durch eine erhöhte Oszillatorstärke auszeichnen und somit für Experimente der starken Wechselwir-

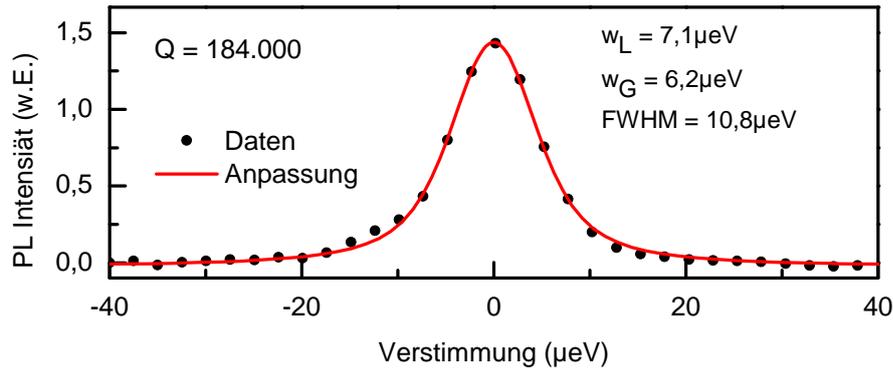


**Abbildung 4.1:** Rasterelektronenmikroskopaufnahme eines Mikrosäulenresonators mit einem Durchmesser von  $2,3 \mu\text{m}$ .

kung besonders gut geeignet sind [Rei04]. Für eine Messung des  $Q$ -Faktors in Abhängigkeit des Säulendurchmessers wurden aus der planaren Struktur Resonatoren mit Durchmessern im Bereich von  $2 - 8 \mu\text{m}$  geätzt. Diese zeichnen sich durch sehr glatte Seitenwände aus, wie in Abbildung 4.1 zu sehen ist.

## 4.2 $Q$ -Faktoren in Photolumineszenzspektroskopie

Die oben erwähnten Strukturen besitzen sehr hohe Güten, welche im Experiment nur durch eine sehr hohe spektrale Auflösung messbar sind. Dazu wurde der in Abschnitt 3.2.2 beschriebene Messaufbau zur spektral hochauflösenden Mikro-photolumineszenzspektroskopie mit Teleskopanordnung genutzt. Die Anregung der Probe erfolgte mit einem grünen Laser bei einer Wellenlänge von  $532 \text{ nm}$ , einem Fokusdurchmesser von ca.  $4 \mu\text{m}$  und einer Probentemperatur von  $14 \text{ K}$ . In Abbildung 4.2 ist das Photolumineszenzspektrum der Grundmode eines Mikrosäulenresonators mit einem Durchmesser von  $8 \mu\text{m}$  gezeigt. Für einen perfekt runden Mikrosäulenresonator ist die Grundmode zweifach entartet. Durch die prozessbedingt leicht elliptische Querschnittsform realer Mikrosäulenresonatoren wird die radiale Symmetrie gebrochen und die Entartung aufgehoben. Dadurch können im Emissionsspektrum zwei orthogonal, linear polarisierte Moden leicht unterschiedlicher Energie beobachtet werden. Deshalb wurde mit einem Linearpolarisator der Anteil der polarisationsaufgespaltenen Grundmode selektiert, der die höhere Güte besitzt. Zur Anpassung der experimentellen Daten (schwarze Kreise) wurde ein Voigt-Linienprofil (rote durchgezogene Linie) ausgewählt, das aus einer Faltung einer Gaußkurve mit einem Lorentzprofil entsteht. Auf diese Weise kann die endliche Auflösung des Messaufbaus von  $6,2 \mu\text{eV}$  als Gaußscher Anteil der Voigtlinie berücksichtigt werden und aus der Breite des Lorentzanteils der entfaltete  $Q$ -Faktor berechnet werden. Zur Bestimmung der spektralen Auflösung des Messaufbaus wurden bei gleicher Stellung des Monochromatorgitters mehrere auflö-

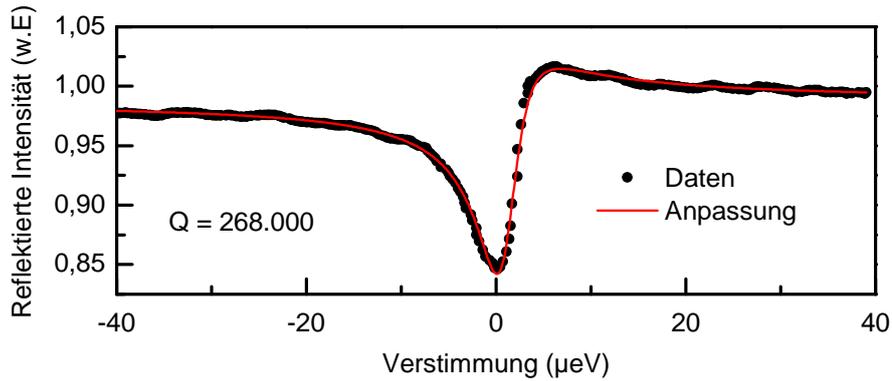


**Abbildung 4.2:** Photolumineszenzintensität (PL) eines Mikrosäulenresonators mit einem Durchmesser von  $8\ \mu\text{m}$  in willkürlichen Einheiten (w.E.) bei einer Proben­temperatur von 14 K. Die Anpassung der experimentellen Daten (schwarze Kreise) erfolgt mit einem Voigt-Profil (durchgezogene rote Linie), das die spektrale Auflösung des Messaufbaus von  $6,2\ \mu\text{eV}$  berücksichtigt. Aus der Linienbreite des Lorentzanteils und der Emissionsenergie ergibt sich der  $Q$ -Faktor zu  $Q = 184.000 \pm 8.000$ .

sungslimitierte Laserlinien ( $\text{FWHM} < 1\ \text{neV}$ ) bei unterschiedlichen Wellenlängen im Bereich der Grundmode mit dem Spektrometer aufgenommen und mit einer Gaußfunktion angepasst. Zusätzlich wurde zu jedem Spektrum die Wellenlänge der Laserlinie mit einem Wellenlängenmessgerät bestimmt. Aus der jeweiligen Linienposition der Anpassungskurve und der zugehörigen Wellenlänge konnte auf diese Weise der Wellenlängenbereich eines Spektrums auf der CCD kalibriert werden und aus der Linienbreite die spektrale Auflösung bestimmt werden. Die Gesamtbreite (FWHM) der in Abbildung 4.2 gezeigten Linie beträgt  $10,8\ \mu\text{eV}$ , von der  $7,1\ \mu\text{eV}$  auf den Lorentzanteil entfallen. Bei einer Emissionsenergie der Grundmode von  $1,312113\ \text{eV}$  entspricht dies einer Güte von  $Q = 184.000 \pm 8.000$ . Der gemessene  $Q$ -Faktor ist damit größer als der höchste, mittels PL gemessene und veröffentlichte Wert von  $Q = 165.000$  [Rei07], der jedoch an einem Mikrosäulenresonator mit einem Durchmesser von  $4\ \mu\text{m}$  gemessen wurde.

### 4.3 $Q$ -Faktoren in Photoreflexionsspektroskopie

Um die ermittelten  $Q$ -Faktoren in Reflexion und Photolumineszenz direkt vergleichen zu können, wurde für verschiedene Resonatordurchmesser im Bereich von  $d = 2 - 8\ \mu\text{m}$  neben dem Mikro­photolumineszenzspektrum auch ein Reflexionsspektrum bei der gleichen Proben­temperatur von 14 K aufgenommen. Dazu wurde der in Abschnitt 3.2.2 erwähnte Diodenlaser mit einem Fokus­durchmesser von ca.  $7\ \mu\text{m}$  auf den Mikrosäulenresonator fokussiert und dessen Wellenlänge im Bereich der Resonanzfrequenz der Grundmode variiert. Dabei wird über einen Linear­polarisator und ein  $\lambda/2$ -Plättchen die Polarisation des Lasers so gewählt, dass sie mit der polarisationsaufgespaltenen Grundmode höherer Güte übereinstimmt. Da die Linienbreite des Lasers viel schmäler ist als die der Grundmode, ist



**Abbildung 4.3:** Zurückgestreute Intensität des Laserlichtes in willkürlichen Einheiten (w.E.) des Mikrosäulenresonators aus Abb. 4.2 bei einer Probertemperatur von 14 K. Die Anpassung der experimentellen Daten (schwarze Kreise) erfolgt mit einem Fano-Profil (durchgezogene rote Linie). Aus der Linienbreite und der Resonanzenergie ergibt sich der  $Q$ -Faktor zu  $Q = 268.000 \pm 13.000$ .

in diesem Fall keine Entfaltung des Spektrums notwendig. In Abbildung 4.3 ist das korrespondierende Reflexionsspektrum des in Abbildung 4.2 gezeigten Mikrosäulenresonators dargestellt. Im Gegensatz zum Mikrophotolumineszenzspektrum weist die Linienform der Reflexionsabnahme eine starke Asymmetrie auf, die sehr gut mit einem Fano-Profil angepasst werden kann [Gal09]

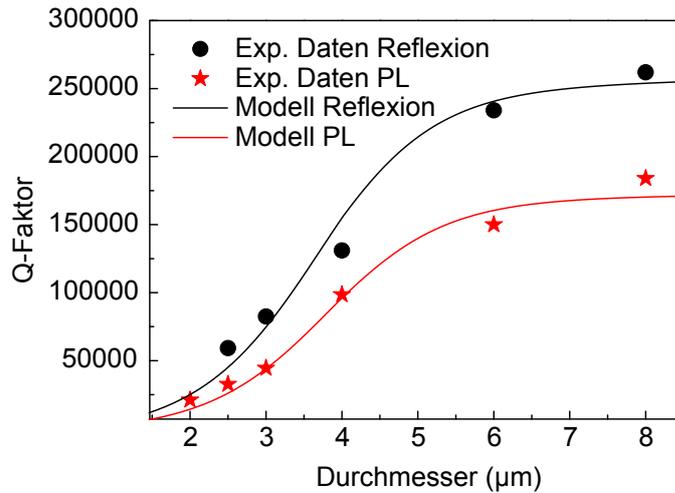
$$F(\omega) = R_0 + A_0 \frac{(q + 2(\omega - \omega_0)/\gamma_c)^2}{1 + (2(\omega - \omega_0)/\gamma_c)^2}, \quad (4.1)$$

wobei  $R_0$  und  $A_0$  Konstanten für Reflexionsoffset und -amplitude sind,  $\omega_0$  die Resonanzfrequenz,  $\gamma_c$  deren Linienbreite und  $q$  der Fano-Faktor ist. Fano-Resonanzen treten bei der Interferenz von einem diskreten und einem kontinuierlichen Kanal auf [Fan61]. Im Falle des Mikrosäulenresonators stellt die Grundmode einen resonanten, diskreten Streukanal dar. Die Mode des einfallenden Laserstrahls kann aber aufgrund einer unzureichenden Modenanpassung der Blochmode an die Kavitätsmode an Streukanäle wie höhere Resonanzmoden und propagierende Blochmoden in den DBRs koppeln [Gre10], die einen quasi-kontinuierlichen Kanal darstellen. Die Interferenz beider Kanäle führt zur Fano-Resonanz im Spektrum.

Aus der Anpassung erhält man eine Linienbreite von  $4,9 \mu\text{eV}$  bei einer Resonanzenergie von  $1,3121964 \text{ eV}$ , was einem  $Q$ -Faktor von  $Q = 268.000 \pm 13.000$  entspricht. Der gemessene  $Q$ -Faktor ist damit größer als der höchste, mittels Reflexionsspektroskopie gemessene und veröffentlichte Wert von  $Q = 215.000$  für einen Mikrosäulenresonator mit einem Durchmesser von  $7,3 \mu\text{m}$  [Arn12].

## 4.4 Vergleich der aus Reflexions- und Photolumineszenzspektroskopie ermittelten $Q$ -Faktoren

In Abbildung 4.4 sind die  $Q$ -Faktoren der Mikrosäulenresonatoren in Abhängigkeit vom Durchmesser aufgetragen. Dabei entsprechen rote Kreise den in Mikro-photolumineszenzspektroskopie und schwarze Sterne den in Reflexionsspektroskopie ermittelten  $Q$ -Faktoren. Für beide Messmethoden nimmt die Resonatorgüte mit steigendem Durchmesser zunächst stark zu, bis sie sich für große Durchmesser einem konstanten Wert annähert. Die Abnahme des  $Q$ -Faktors zu kleineren Durchmessern kann zum einen über eine schlechte Modenanpassung erklärt werden, die erhöhte intrinsische Streuverluste mit sich bringt [Ler12, Lal04]. Zum anderen erhöht sich der Beitrag der Randstreuung zu kleinen Durchmessern hin (siehe Gleichung (2.56)). Außerdem verringert sich die Breite der photonischen Bandlücke für kleine Durchmesser und es findet eine Blauverschiebung der Grundmode relativ zur photonischen Bandlücke statt, was zu einem reduzierten Lichteinschluss der Grundmode führt [Vuc02]. Für große Durchmesser sind die endliche Reflektivität der Spiegelpaare und Absorption die Hauptverlustkanäle. Weiterhin zeigen die Ergebnisse eine deutliche Abhängigkeit von der Messmethode. Die in Reflexionsspektroskopie gemessenen  $Q$ -Faktoren sind für alle Durchmesser höher als die in Photolumineszenzspektroskopie ermittelten. Beide Verläufe können mit Gleichung (2.56) angepasst werden. Für Photoreflexionsmessungen wurde dabei der Koeffizient für Randstreuung zu  $\kappa = (6,3 \pm 1,0) \cdot 10^{-9}$  m und der Absorptionskoeffizient zu  $\alpha = (1,3 \pm 0,2) \text{ cm}^{-1}$  gewählt, wohingegen für Photolumineszenzuntersuchungen die beste Anpassung mit deutlich höheren Werten von  $\kappa = (11,6 \pm 1,5) \cdot 10^{-9}$  m und  $\alpha = (2,5 \pm 0,4) \text{ cm}^{-1}$  gelang. Der Unterschied zwischen den Werten, die mittels Photolumineszenzspektroskopie und Reflexion gewonnen wurden, kann auf eine bestehende Absorption von Photonen durch die integrierten Quantenpunkte in Photolumineszenzspektroskopie zurückgeführt werden. In der nichtresonanten Photolumineszenzspektroskopie sind die Emissionslinien der Quantenpunkte aufgrund von reiner Dephasierung und lichtinduzierter spektraler Diffusion verbreitert [Bor05, Rob00]. Folglich können die Emissionsausläufer von nichtresonanten, aber stark verbreiterten Quantenpunktlinien [Str06] mit der Resonatormode überlappen. Sind nicht alle Quantenpunktzustände, die mit der Resonatormode überlappen, komplett gesättigt, kann dieser Effekt den erhöhten Absorptionskoeffizienten für die in Photolumineszenzspektroskopie ermittelten Werte erklären. Aufgrund der sehr hohen  $Q$ -Faktoren der untersuchten Proben kann die Anregungsleistung jedoch nicht beliebig hoch gewählt werden, da man sonst Gefahr läuft das System im Lasing-Regime zu betreiben, bei dem die Linienbreite nicht mehr den  $Q$ -Faktor widerspiegelt [Rei06, Gay08]. Dagegen können die Quantenpunktzustände, die mit der Resonatormode überlappen, in Reflexion direkt in Sättigung gebracht werden, ohne einen Übergang ins Lasing-Regime zu befürchten. Eine weitere Ursache für die geringeren  $Q$ -Faktoren in Photolumineszenzspektroskopie stellen Verluste aufgrund von Absorption an



**Abbildung 4.4:** Die experimentell ermittelten  $Q$ -Faktoren als Funktion des Säulendurchmessers. Rote Sterne bzw. schwarze Kreise zeigen die  $Q$ -Faktoren, die über Photolumineszenz- bzw. Reflexionsspektroskopie ermittelt wurden. Die Anpassung an die experimentellen Daten ist als rote bzw. schwarze durchgezogene Linie dargestellt.

freien Ladungsträgern dar [Maj10]. Diese werden bei der nichtresonanten Anregung in der GaAs-Matrix erzeugt. Die Abweichung der Werte für  $\kappa$  kann auf ähnliche Weise durch eine von der Ladungsträgerdichte abhängige Seitenwandstreuung bzw. Seitenwandabsorption begründet werden. Durch die Erzeugung von freien Ladungsträgern durch die nichtresonante Anregung kommt es auch im Bereich der Seitenwand zu einer erhöhten Ladungsträgerdichte, die zu einer verstärkten Absorption an den Seitenwänden führt.

## 4.5 Zusammenfassung des Kapitels

In diesem Kapitel wurden Mikrosäulenresonatoren höchster Güte in Reflexions- und Mikro-photolumineszenzspektroskopie untersucht. Mit  $Q_{PL} = 184.000 \pm 8.000$  und  $Q_{Ref} = 268.000 \pm 13.000$  konnten Rekordgüten für einen Quantenpunkt-Mikrosäulenresonator mit einem Durchmesser von  $8 \mu\text{m}$  in beiden Spektroskopiemethoden ermittelt werden. Des Weiteren wurde ein Einfluss der Spektroskopiemethode auf den ermittelten  $Q$ -Faktor festgestellt. Dieser wurde auf die zusätzliche Absorption von Photonen durch nichtresonante Quantenpunkte sowie zusätzliche freie Ladungsträger bei der Photolumineszenzspektroskopie zurückgeführt.

# 5 Photostromspektroskopie an Quantenpunkt-Mikrosäulenresonatoren

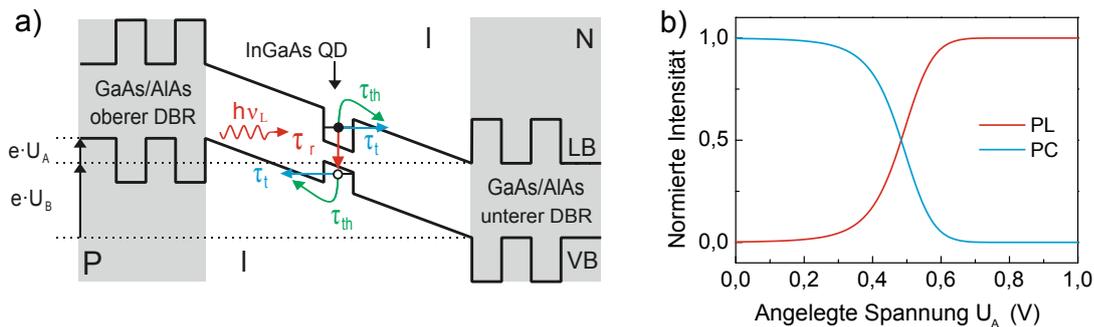
Für die Quantenkommunikation können zum einen Photonen zur Datenübertragung als fliegende Qubits und zum anderen Elektronen- oder Lochspins in einem Quantenpunkt als stationäre Qubits zur Datenspeicherung verwendet werden. Eine mögliche Schnittstelle zwischen fliegenden und stationären Qubits stellen Quantenpunkt-Mikrosäulenresonatoren dar. Sie ermöglichen eine hohe Auskoppelleffizienz der Photonen, eine Manipulation der Emittiereigenschaften über Effekte der Licht-Materie-Wechselwirkung und können elektrisch betrieben, kontrolliert und ausgelesen werden. In diesem Kapitel steht das Auslesen und die Manipulation eines Zwei-Niveau-Systems in einem elektrisch kontaktierten Mikrosäulenresonator mittels Photostromspektroskopie im Mittelpunkt. Dabei wird zunächst auf grundsätzliche Effekte der Photostromspektroskopie an Quantenpunkten eingegangen, daraufhin wird die schwache Kopplung im Photostrom untersucht und abschließend Rabi-Oszillationen eines Zwei-Niveau-Systems in einem Mikrosäulenresonator untersucht.

## 5.1 Grundlegendes

### 5.1.1 Prinzip der Einzelquantenpunkt-Photostromspektroskopie

Bei der Photostromspektroskopie werden durch resonante Anregung mit einem schmalbandigen Laser Elektron-Loch-Paare in Quantenpunkten erzeugt. Nach Anregung eines Exzitons kann dieses entweder unter Aussendung eines Photons strahlend rekombinieren oder aber aufbrechen, sodass ein Ladungsträger den Quantenpunkt verlässt. Dies geschieht entweder durch ein quantenmechanisches Tunneln der Ladungsträger oder aber durch eine thermische Aktivierung. Letztere ist jedoch bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Tieftemperaturexperimenten vernachlässigbar, da bei Temperaturen unterhalb von 50 K der elektronische Einschluss der Ladungsträger um mehr als eine Größenordnung höher ist als die thermische Aktivierungsenergie. Die Gesamtverlustrate des Zustands  $1/\tau_{ges}$  setzt sich aus den Raten für die radiativen  $1/\tau_r$ , die thermischen  $1/\tau_{th}$  und die Verluste durch Tunnelprozesse  $1/\tau_t$  zusammen

$$1/\tau_{ges} = 1/\tau_r + 1/\tau_{th} + 1/\tau_t. \quad (5.1)$$



**Abbildung 5.1:** a) Schematische Darstellung des Bandschemas der pin-Diode unter Rückwärtsspannung. Durch resonante Anregung werden Elektron-Loch-Paare im Quantenpunkt erzeugt. Die Ladungsträger können den Quantenpunkt entweder durch thermische Aktivierung, quantenmechanisches Tunneln oder aber strahlende Rekombination wieder verlassen. b) Normierte Photostrom- (PC, blau) und Photolumineszenzintensität (PL, rot) als Funktion der angelegten Spannung  $U_A$ .

Die Verlustkanäle des Exzitons sind in Abbildung 5.1 a) zusammen mit einer schematischen Darstellung des Bandschemas des Mikrosäulenresonators dargestellt. Aufgrund des Dotierprofils des Mikrosäulenresonators ist die Bandstruktur bereits ohne angelegte äußere Spannung durch das sich ausbildende intrinsische elektrische Potential  $eU_B$  gekrümmt, wobei  $U_B$  die Antidiffusionsspannung ist. Des Weiteren kann diese Verkippung der Bänder über eine äußere angelegte Spannung  $U_A$  verstärkt oder reduziert werden. Der Photostrom, der über das Tunneln der Ladungsträger aus den Quantenpunkten entsteht, ist stark von dieser angelegten Spannung abhängig, da sich über diese die Breite der Tunnelbarriere einstellen lässt. Die Tunnelrate lässt sich über eine eindimensionale Wentzel-Kramers-Brillouin Näherung in Abhängigkeit von der angelegten Spannung berechnen [Fry00]

$$1/\tau_t = \frac{\hbar\pi}{2m^*L^2} \exp\left(-\frac{4}{3\hbar e(U_B - U_A)/d} \sqrt{2m^*E_{ion}^3}\right), \quad (5.2)$$

wobei  $L$  die Ausdehnung des Quantenpunktes in Wachstumsrichtung,  $m^*$  die effektive Masse der betrachteten Ladungsträgerart,  $d$  die Dicke der Kavitätsschicht des Mikrosäulenresonators und  $E_{ion}$  die Ionisierungsenergie des elektronischen Zustandes ist.

Geht man von einer im zeitlichen Mittel konstanten Besetzung des Zustands aus, so erkennt man anhand Gleichung (5.1) die Konkurrenz zwischen strahlender Rekombination und Tunnelprozessen. In Abbildung 5.1 b) ist dieses Verhalten anhand der normierten Intensitäten für die vom Grundzustand im Quantenpunkt stammende Photolumineszenz und den Photostrom in Abhängigkeit der angelegten Spannung dargestellt.

Um den Photostrom in Abhängigkeit der Anregungsleistung zu bestimmen, müssen neben den Verlusten durch radiativen Zerfall und quantenmechanisches Tunneln auch die Verluste durch stimulierte Emission berücksichtigt werden. Unter der Annahme, dass der Quantenpunkt ein einfaches Zwei-Niveau-System darstellt, lässt sich über ein Ratengleichungsmodell folgende Gleichung für den Photostrom in Abhängigkeit der Anregungsleistung

tung finden [Beh01]

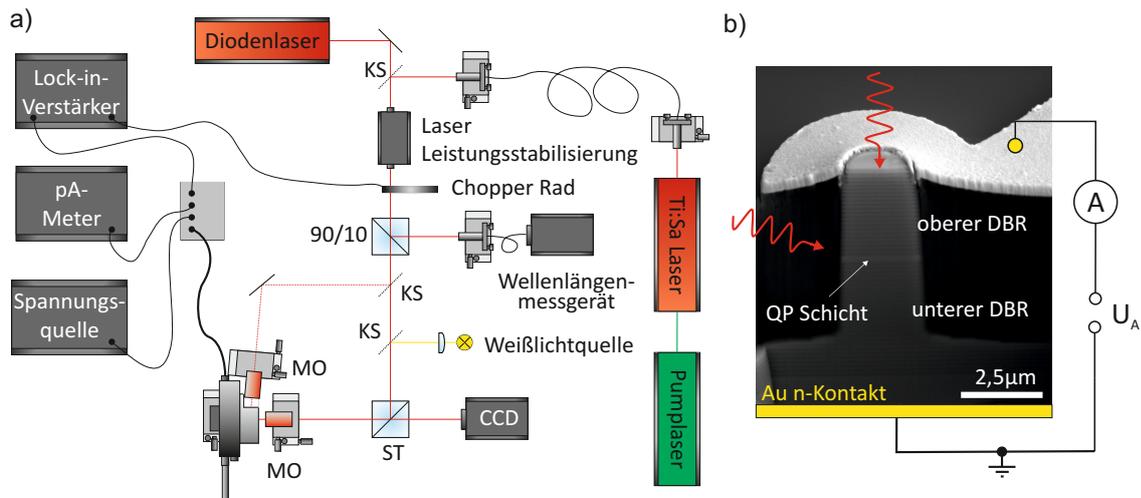
$$I = e \frac{N_0}{\tau_t} = \frac{e}{2\tau_t} \frac{uP}{uP + \left(\frac{1}{\tau_t} + \frac{1}{\tau_r}\right)}, \quad (5.3)$$

wobei  $u$  ein proportionaler Faktor und  $uP$  die Rate für stimulierte Absorption und Emission ist, die sich aus den Einsteinkoeffizienten  $B_{12} = B_{21}$  und der Energiedichte des Strahlungsfeldes  $\rho$  zusammensetzt  $B_{12}\rho = uP$ . Für hohe Leistungen  $P \rightarrow \infty$  kommt es bei einem Photostrom von  $I_{\text{sat}} = \frac{e}{2\tau_t}$  zur Sättigung des Signals.

### 5.1.2 Messaufbau zur Photostromspektroskopie

Der Messaufbau für Experimente der Photostromspektroskopie (siehe Abbildung 5.2 a) an elektrisch kontaktierten Mikrosäulenresonatoren ist gegenüber dem der Mikroreflexionspektroskopie (siehe Abschnitt 3.2.2) leicht modifiziert. Zusätzlich zur Anregung parallel zur Wachstumsrichtung des Mikrosäulenresonators ist in diesem Fall auch eine seitliche Anregung möglich. Zu diesem Zweck wird die Probe auf einen erhöhten Kaltfinger in den Kryostaten eingebaut und eine eigens gefertigte Verschlusskappe mit einem seitlichen und einem oberen Fenster verwendet. Durch einen Klappspiegel wird der Laserstrahl durch ein zweites seitlich angebrachtes Mikroskopobjektiv auf die Resonatorwand fokussiert. Zur besseren Kontrolle der Position und der Größe des Laserfokus ist das Objektiv auf einem XYZ-Positioniertisch mit integrierten Piezoelementen montiert, der Positionsänderungen mit einer Genauigkeit von ca. 100 nm ermöglicht. Zur Orientierung auf der Probe wird die Probenoberfläche mit einer Weißlichtquelle über das vordere Mikroskopobjektiv beleuchtet und das zurückreflektierte Licht auf einer CCD-Kamera vergrößert abgebildet.

Die Ladungsträger, die den Photostrom in der aktiven Schicht des Mikrosäulenresonators erzeugen, werden entweder über einen Diodenlaser oder einen Titan:Saphir Laser angeregt (siehe Abschnitt 3.2.2). Die Leistung beider Laser wird über eine Leistungsstabilisierung geregelt sowie zeitlich konstant gehalten und die Wellenlänge des Laserlichts von einem Wellenlängenmessgerät aufgezeichnet. Im Gegensatz zur Reflexionsspektroskopie benötigt man für die Photostromspektroskopie keine externe Photodiode, sondern der Mikrosäulenresonator selbst dient als Detektor. Die dafür nötigen elektrischen Kontakte werden aus dem Kryostaten geführt und mit Messgeräten (Picoamperemeter oder Lock-In Verstärker) und Spannungsquelle verbunden. Eine Rasterelektronenmikroskopaufnahme mit skizzierten Anregungsschema und Schaltplan ist in Abbildung 5.2 b) gezeigt. Zur Darstellung der Schichtstruktur des Resonators wurde mittels fokussierten Ionenstrahls ein Schnitt durch die vertikale Achse des Mikrosäulenresonators gezogen. Der Mikrosäulenresonator kann über zwei unterschiedliche geometrische Konfigurationen angeregt werden. Wird das Laserlicht auf die Säulenoberseite fokussiert (axiale Anregung), wirken die Braggspiegel als spektraler Filter, sodass das Laserlicht nur dann in den Resonator eindringen kann, wenn seine Wellenlänge mit der Resonanzenergie einer optischen Mode des Mikrosäulenresonators übereinstimmt. Außerdem kann das Laserlicht über das seitliche

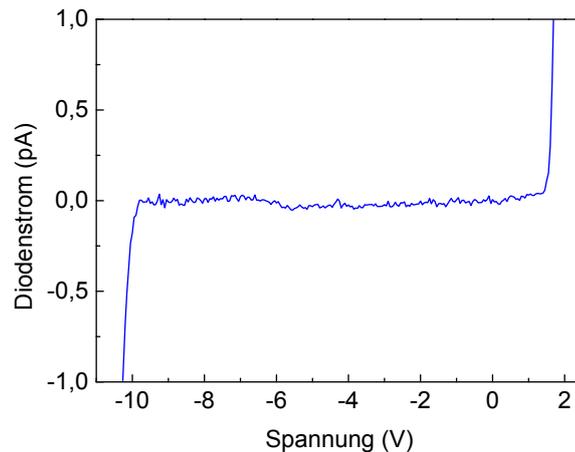


**Abbildung 5.2:** a) Messaufbau zur Photostromspektroskopie. Über einen Klappspiegel (KS) kann zwischen einem Diodenlaser zur Aufnahme von Photostromspektren in Dauerstrichanregung und einem Titan:Saphir Laser zur gepulsten Anregung gewählt werden. Das Laserlicht kann entweder über ein seitliches Fenster auf die Resonatorseitenwand oder über ein frontales Fenster in axialer Richtung auf die Säulenseitenwand fokussiert werden. b) Rasterelektronenmikroskopaufnahme eines elektrisch kontaktierten Mikrosäulenresonators im Durchschnitt mit skizzierten Anregungsschema und Schaltplan. Der von den Quantenpunkten stammende Photostrom wird entweder über ein Picoamperemeter oder einen Lock-in-Verstärker detektiert. Die angelegte Spannung  $U_A$  kann über eine Präzisionsspannungsquelle variiert werden.

Fenster auf die Säulenseitenwand fokussiert werden. Auf diese Weise kann die Reflektivität der Braggspiegel umgangen werden. Während die obere Goldfacette über einen Bonddraht mit den elektrischen Leitungen innerhalb des Kryostaten kontaktiert ist, wird die Unterseite der Probe über einen n-Kontakt aus AuGe/Au mit dem geerdeten Kaltfinger des Kryostaten verbunden.

### 5.1.3 Strom-Spannungskennlinie elektrisch kontaktierter Mikrosäulenresonatoren

Für Einzelquantenpunktuntersuchungen ist es notwendig, den Dunkelstrom der Strukturen in der für die Photostrommessungen relevanten Rückwärtsrichtung zu reduzieren. Dies konnte durch eine geringe Quantenpunktdichte in der aktiven Schicht erzielt werden, die einen Beitrag nichtresonanter Quantenpunkte zum Dunkelstrom verringert. Zur Aufnahme der Strom-Spannungskennlinie eines elektrisch betriebenen Mikrosäulenresonators wird eine Gleichspannung mittels einer Präzisionsspannungsquelle an einem Mikrosäulenresonator angelegt und der resultierende Strom über ein Picoamperemeter gemessen. In Abbildung 5.3 ist die Dunkelstrom-Spannungskennlinie eines elektrisch kontaktierten Mikrosäulenresonators mit einem Durchmesser von  $2,5\ \mu\text{m}$  bei einer Temperatur von 10 K dargestellt. In dem für Photostrommessungen relevanten Bereich von  $+1\ \text{V}$  bis  $-10\ \text{V}$  beträgt er weniger als  $0,2\ \text{pA}$ . Für Rückwärtsspannungen bei denen die Tunnelzeit in der



**Abbildung 5.3:** Strom-Spannungskennlinie eines elektrisch kontaktierten Mikrosäulenresonators mit einem Durchmesser von  $2,5 \mu\text{m}$  bei einer Temperatur von 10 K ohne Beleuchtung der Struktur (Dunkelstrom). Der geringe Dunkelstrom ermöglicht den Nachweis von Einzelquantenpunkteffekten im Photostrom.

Größenordnung der Lebensdauer des Übergangs liegt (ca. 1 ns), beträgt der Photostrom in Sättigung  $I_{\text{sat}} \approx 100 \text{ pA}$ . Daher ist für diesen Bereich ein sehr gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis bei Photostrommessungen an einzelnen Quantenpunkten in Mikrosäulenresonatoren möglich.

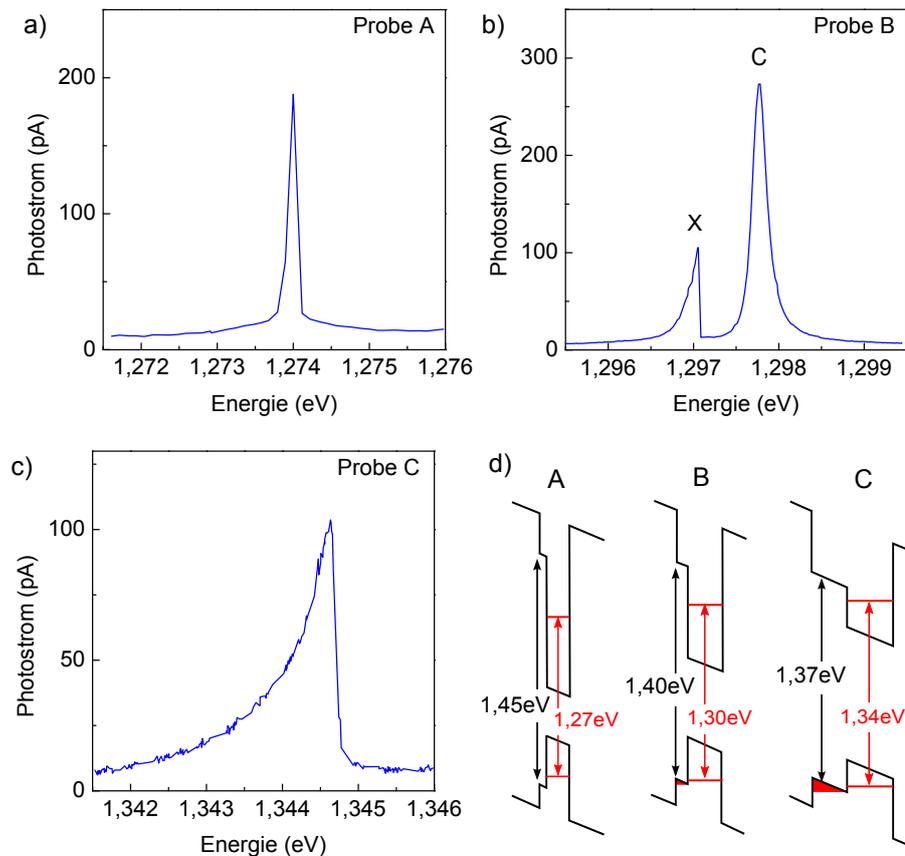
Während es für Rückwärtsspannungen kleiner als  $-10 \text{ V}$  zum Durchbruch kommt, können bei Vorwärtsspannungen größer als  $+1,5 \text{ V}$  Ladungsträger in die Quantenpunkte injiziert werden. Auf diese Weise kann der Mikrosäulenresonator als Quantenpunkt-LED<sup>1</sup> betrieben werden.

## 5.2 Besonderheiten der Exzitonlinienform im Photostromspektrum von Quantenpunkt-Mikrosäulenresonatoren

Der spektrale Verlauf der Quantenpunktexzitonlinien im Photostrom von Mikrosäulenresonatoren weicht teilweise deutlich von herkömmlichen Lorentz- oder Gaußkurven ab. Dies äußert sich in einer asymmetrischen Linienform mit einem Ausläufer hin zu niedriger Energie, die für unterschiedliche Quantenpunkt-Mikrosäulenresonator-Proben verschieden stark ausgeprägt ist. Asymmetrische Linienformen von Quantenpunktexzitononen in Photostromspektren, die den in dieser Arbeit untersuchten Linienform sehr ähnlich sind, wurden in unterschiedlichen Veröffentlichungen gezeigt. In [Oul02, Oul04] wird die Asymmetrie auf Monolagenfluktuationen an der Grenze zur Verarmungszone im p-Kontakt

---

<sup>1</sup> Akronym für light emitting diode



**Abbildung 5.4:** Photostromspektren von Quantenpunkt-Exzitonlinien unterschiedlicher Proben. Während Probe A eine symmetrische Exzitonlinienform zeigt, sind die Linien bei Probe B und C stark asymmetrisch. In b) ist zusätzlich zur Exzitonlinie (X) die Resonatorgrundmode (C) zu erkennen. d) Schematische Bandverläufe von den Proben A, B und C. Zusätzlich zu den Übergangsenergien der Exzitonen (rot) ist die Energie der Zustände der Benetzungsschicht (schwarz) eingezeichnet.

der Diodenstruktur zurückgeführt. Diese sollen zu Ladungsfuktuationen führen, die sich über den Stark-Effekt auf die Linienbreite der Quantenpunkte im Photostrom auswirken. In [Fas06, Fas05] wird zwar eine asymmetrische Linienform eines Quantenpunkt Exzitons gezeigt, aber nicht auf die Herkunft der Asymmetrie eingegangen. In Abbildung 5.4 sind Photostromspektren von drei Mikrosäulenresonatoren unterschiedlicher Proben (siehe Anhang A) dargestellt. Die drei Mikrosäulenresonatoren besitzen Durchmesser im Bereich von  $1,8\ \mu\text{m}$  bis  $2,0\ \mu\text{m}$  und alle drei Spektren wurden bei vergleichbaren Anregungsleistungen, Probentemperaturen ( $10 - 35\ \text{K}$ ) und angelegten Spannungen zwischen  $-0,4\ \text{V}$  und  $-0,8\ \text{V}$  gemessen. Während für Probe A (M3383) eine symmetrische Linienform beobachtet werden kann (Abbildung 5.4 a), sind die Exzitonlinien der Proben B (M2883) bzw. C (M2976) asymmetrisch (Abbildung 5.4 b bzw. c).

Vergleicht man die Exzitonlinienform der beiden Spektren von Probe B und C, so fällt auf, dass der niederenergetische Ausläufer bei Probe C länger ist als bei Probe B. Für

beide Proben sind die gezeigten Spektren in Abbildung 5.4 b) und c) exemplarisch. Die Linienform und Weite des Ausläufers der Exzitonspektren streut bei beiden Proben für verschiedene Exzitonen nur geringfügig. Da beide Mikrosäulenresonatoren bis auf die aktive Schicht nominell den gleichen Schichtaufbau besitzen, liegt der Verdacht nahe, dass der verschieden stark ausgeprägte Ausläufer aufgrund der unterschiedlichen aktiven Schicht zu Stande kommt, weswegen im Folgenden kurz der Aufbau der aktiven Schicht der drei Proben erläutert wird.

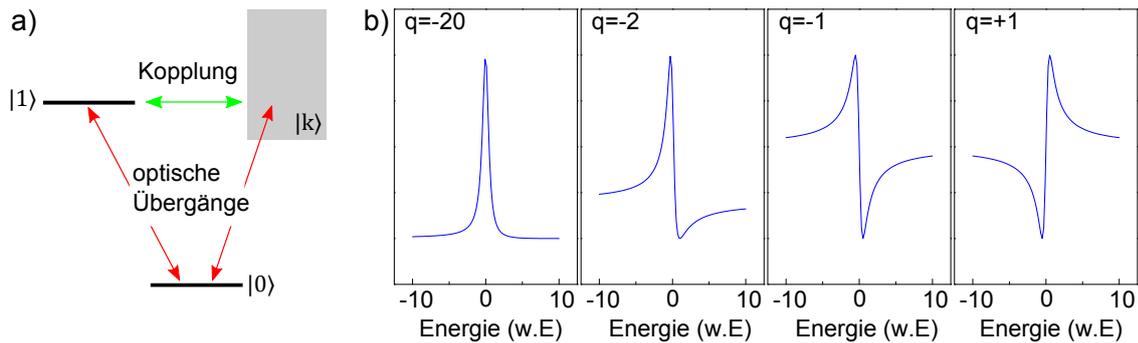
In Probe A besteht die aktive Schicht aus einer Lage InAs Quantenpunkte, die mit dem PCA<sup>2</sup>-Verfahren (capping layer: 2 nm) gewachsen wurden [Wan06], durch das indiumreiche Quantenpunkte in Form von Pyramidenstümpfen oder sehr flachen Linsen entstehen. Diese Quantenpunkte besitzen eine Flächendichte von ca.  $5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ , einen Indiumanteil von ca. 50 %, eine Seitenlänge von ca. 25 nm, eine Höhe von 2 nm und eine Benetzungsschicht mit einer Höhe von 0,5 nm [Sch11]. Die aktive Schicht in Probe B besteht aus linsenförmigen In<sub>0,6</sub>Ga<sub>0,4</sub>As Quantenpunkten, welche eine Flächendichte von ca.  $1 - 2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ , einen Durchmesser von 10 – 15 nm und eine Benetzungsschicht mit einer Dicke von 0,9 nm besitzen [Löf06, Sek06]. Hingegen besteht die aktive Schicht in Probe C aus länglichen In<sub>0,3</sub>Ga<sub>0,7</sub>As Quantenpunkten, welche eine Flächendichte von ca.  $6 - 9 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ , eine laterale Ausdehnung von 20 – 30 nm (kurze Achse) bzw. 50 – 80 nm (lange Achse), eine Höhe von 4,3 nm und eine Benetzungsschicht mit einer Dicke von 2,7 nm besitzen [Mus14].

Die Asymmetrie der Linienform kann nicht wie in [Oul02] auf Ladungsfluktuationen an der Grenze zu einer Verarmungszone zurückgeführt werden, da diese bei den hier untersuchten elektrisch kontaktierten Mikrosäulenresonatoren mit einer Distanz von ca. 130 nm ca. fünfmal so weit entfernt ist wie in [Oul02], sodass die Änderung der elektrostatischen Umgebung der Quantenpunkte in diesem Fall zu gering ist, um die asymmetrische Verbreiterung zu erklären. Eine mögliche Erklärung der Linienform ist der schon in Abschnitt 4.3 erwähnte Fano-Effekt, der im Folgenden genauer behandelt wird. Der Fano-Effekt ist ein Interferenzphänomen, dass sich in einer asymmetrischen Verbreiterung von Spektrallinien äußert. Die Voraussetzung für den Fano-Effekt ist ein System in dem drei Zustände existieren: Ein Grundzustand  $|0\rangle$ , ein angeregter Zustand  $|1\rangle$  mit diskreter Energie und ein Kontinuum an Zuständen  $|k\rangle$ . Des Weiteren müssen die beiden optische Übergänge  $|0\rangle - |1\rangle$  und  $|0\rangle - |k\rangle$  existieren (siehe Abbildung 5.5 a). Zusätzlich zu den zwei konkurrierenden optischen Übergängen muss es weiterhin eine Kopplung zwischen den Kontinuumszuständen und dem diskreten Zustand geben. Diese Kopplung war in Fanos ursprünglicher Veröffentlichung [Fan61] ein Auger-Prozess in einem He-Atom. Sie ist aber auch beispielsweise durch Tunnelprozesse möglich.

Die Stärke der Kopplung zwischen Kontinuum und diskreten Energieniveaus wird durch den Fano-Faktor  $q$  angegeben. Ist  $q$  groß (klein), so ist die Wechselwirkung mit den Kon-

---

2 Akronym für partial capping and annealing



**Abbildung 5.5:** a) Schematische Darstellungen der für den Fano-Effekt benötigten Komponenten. b) Fano-Linienform für unterschiedliche Werte von  $q$ .

tinuumzuständen (klein) groß. Je nach Messmethode äußert sich der Fano-Effekt entweder in einer symmetrischen (derivative Spektroskopiemethoden) oder asymmetrischen Linienform. Das Vorzeichen des Fano-Faktors kann entweder negativ oder positiv sein [Fan61, Kro08]. Bei negativem (positivem)  $q$  befindet sich der Ausläufer der Linienform auf der blauen (roten) Seite des Spektrums.

Bisher sind drei Veröffentlichungen bekannt, die den Fano-Effekt in Quantenpunkten im Experiment zeigen. Erstmals wurde in Xu et al. der Fano-Effekt als Ursache einer asymmetrischen Linienform eines Quantenpunktexzitons in Transmissionsspektroskopie erwähnt [Xu07]. Eine detaillierte Analyse des Ursprungs des Fano-Effektes in diesem System findet man in der Dissertation von Xu [Xu08], in der er angibt, dass sich ein Kontinuum von Zuständen aufgrund des Probenaufbaus in der Barrierschicht um die Quantenpunkte formieren könnte. Dieses koppelt an ein negativ geladenes Exziton. Erstmals wurde in Kroner et al. [Kro08] der nichtlineare Fano-Effekt gezeigt. In diesem Fall kommt es zu einer Tunnelkopplung zwischen einem zweidimensionalen Kontinuum an Zuständen, das sich in einer GaAs-Barrierschicht zwischen den Quantenpunkten und einem Übergitter ausbildet, und einem geladenen Exziton. Der nichtlineare Fano-Effekt wurde ebenfalls in Gerardot et al. gezeigt [Ger11]. Hier entsteht das Zustandskontinuum in der intrinsischen  $p^+$ -Schottky-Diodenstruktur durch eine Dotierung des Rückkontaktes mit Berylliumatomen, welche nahe an die Quantenpunktschicht diffundieren. Auf den Ursprung der Kopplung zwischen dem positiv geladenen Exzitonübergang und dem Kontinuum wird nicht eingegangen [Bar09].

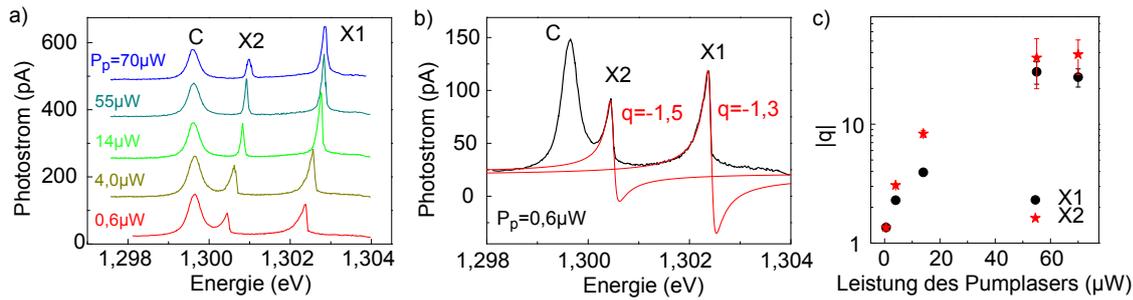
Vergleicht man die berechneten Kurven in Abbildung 5.5 b) mit den in Abbildung 5.4 b) und c) gemessenen Spektren, so fällt auf, dass die gemessene Linienform im Photostrom zwar eine Asymmetrie aufweist, jedoch das in den berechneten Kurven präsente Unterschwingen ausbleibt. Der Grund hierfür könnte sein, dass es sich bei der Photostromspektroskopie nicht wie in den Referenzen [Xu07, Kro08, Ger11] um eine direkte Messung der Absorption oder Transmission handelt. Das Spektrum resultiert aus dem Tunneln von Ladungsträgern aus einem Quantenpunkt, nachdem diese aufgrund der Absorption eines

Photons im Quantenpunkt resonant erzeugt wurden.

Für die hier untersuchten Mikrosäulenresonatoren wird davon ausgegangen, dass der Fano-Effekt aufgrund der Kopplung zwischen Kontinuumszuständen in der Benetzungsschicht und einem gebundenen Zustand im Quantenpunkt entsteht. Dabei müssen gekreuzte Übergänge zwischen den Zuständen der Benetzungsschicht und dem Quantenpunktexziton existieren, die resonant mit dem optischen Übergang des Exzitons sind. In Referenz [Vas02] werden diese gekreuzten Übergänge theoretisch behandelt und auch auf die Möglichkeit des Fano-Effektes durch die Kopplung zwischen diesen gekreuzten Übergängen mit gebundenen Zuständen in Quantenpunkten hingewiesen.

In Abbildung 5.4 d) ist der schematische Bandverlauf der aktiven Schicht der Proben A, B und C dargestellt. Die Übergänge der Benetzungsschichtzustände liegen bei  $E_{BS} = 1,45$  eV (A), 1,40 eV (B) und 1,37 eV (C) [Sch11, Sek06, Löf08]. Aufgrund einer schmalen Benetzungsschicht und einem relativ tiefen Einschlusspotential der Quantenpunkte ist bei Probe A der energetische Abstand  $\Delta E = E_{BS} - E_X$  zwischen den Kontinuumszuständen der Benetzungsschicht und dem diskreten Exzitonenzustand am größten. Dementsprechend ist die Kopplung zwischen den Zuständen gering, weswegen keine asymmetrische Linienform aufgrund des Fano-Effektes beobachtet werden kann. Probe C besitzt aufgrund der relativ großen Dicke der Benetzungsschicht und dem geringen Einschlusspotential der Quantenpunkte eine äußerst geringe Energiedifferenz  $\Delta E$  zwischen diskreten Zuständen und Kontinuum. Daher ist die Kopplung zwischen den Zuständen groß und die Asymmetrie der Linienform aufgrund des Fano-Effektes stark ausgeprägt. Bei Probe B liegt  $\Delta E$  zwischen den Werten für Probe A und C, weswegen eine asymmetrische Exziton-Spektrallinie zu erkennen ist, diese aber nicht so stark ausgeprägt ist, wie bei Probe C.

Aus diesem Grund wurde Probe C ausgewählt, um im Experiment die Kopplung zwischen einem diskreten Energieniveau und den Kontinuumszuständen der Benetzungsschicht zu manipulieren. Dazu wurde ein elektrisch kontaktierter Mikrosäulenresonator neben der resonanten Anregung des verstimmbaren Diodenlasers zur Aufnahme des Photostromspektrums gleichzeitig mit einem nichtresonanten Laser bei 854 nm angeregt. Über den nichtresonanten Laser werden Ladungsträger erzeugt, die zum einen die Kontinuumszustände in der Benetzungsschicht füllen und zum anderen auch zum Gesamtphotostrom beitragen können. Um diesen Anteil von den Beiträgen der über den verstimmbaren Laser resonant erzeugten Ladungsträger zu trennen, wurde der Photostrom über eine Lock-In Technik gemessen, bei der nur der resonante Laser zur Aufnahme des Spektrums moduliert wurde, nicht aber der Pumplaser. In Abbildung 5.6 sind Photostromspektren eines Quantenpunkt-Mikrosäulenresonators mit einem Durchmesser von 2  $\mu\text{m}$  für unterschiedliche Leistungen des Pumplasers  $P_p$  dargestellt. Die Messung wurde unter seitlicher Anregung des Mikrosäulenresonators bei einer Temperatur von 40 K, einer Leistung des verstimmbaren Lasers von 30  $\mu\text{W}$  und einer angelegten Rückwärtsspannung von  $-1$  V durch-



**Abbildung 5.6:** a) Photostromspektren eines Mikrosäulenresonators unter gleichzeitiger nichtresonanter Anregung für unterschiedliche Leistungen des nichtresonanten Pumplasers. Zu erkennen sind zwei Exzitonlinien (X1 und X2) sowie die Resonatorgrundmode (C). Mit steigender Leistung des Pumplasers werden die Linien im Photostrom zunehmend symmetrischer. b) Anpassung der Fano-Linienform (rot) an die experimentellen Daten für eine Pumpleistung von  $0,6 \mu\text{W}$  (schwarze Linie). c) Der Fano-Faktor  $q$  für X1 und X2 in Abhängigkeit der Pumpleistung.

geführt. Es sind in jedem Spektrum zwei Exzitonlinien (X1 und X2) sowie die Grundmode der Kavität (C) zu erkennen. Es ist zunächst unerwartet, dass die Grundmode unter seitlicher Anregung des Mikrosäulenresonators im Photostrom sichtbar ist, da man in diesem Fall nicht die Moden des Resonators mit dem Laser abtastet, wie es bei der axialen Anregung der Fall ist. Der Grund hierfür besteht in einer Kopplung zwischen den Moden des Resonators und nichtresonanten Quantenpunkten [Pre07, Hen07, Ate09b, Maj10, Ulh10]. Die Ursache dieser Kopplung ist Bestandteil aktueller Forschung und wird u. a. auf Elektron-Phonon Kopplung, reine Dephasierung und die Kopplung an Kontinuumszustände in der Benetzungsschicht zurückgeführt. Aufgrund dessen tragen spektral entfernte Quantenpunkte zum Photostrom bei, wenn der Anregungslaser mit der Grundmode in Resonanz ist.

Für eine geringe Pumpleistung von  $P_p = 0,6 \text{ nW}$  ist eine starke Asymmetrie der Linienformen von X1 und X2 zu erkennen, während die Grundmode des Resonators eine symmetrische Lorentzkurve aufweist. Durch Erhöhung der Pumpleistung werden die Kontinuumszustände mehr und mehr gefüllt und die Exzitonlinien werden symmetrischer. Zusätzlich tritt eine Energieverschiebung der Linien in Richtung höherer Energie auf, die auf eine Veränderung der elektrostatischen Umgebung der Quantenpunkte aufgrund der erhöhten Ladungsträgeranzahl und einer damit einhergehenden Stark-Verschiebung der Übergangsenergie zurückgeführt wird. Die durch den Pumplaser erzeugten Ladungsträger schirmen das durch Antidiffusionsspannung und externe Spannung erzeugte interne Feld ab. Damit schiebt die Emission zu höheren Energien. Um die Kopplung zwischen den Kontinuumszuständen und den diskreten Zuständen quantitativ zu erfassen, wurde die Linienform der Spektrallinien mit Gleichung (4.1) angepasst. In Abbildung 5.6 b) ist exemplarisch das Photostromspektrum für eine Pumpleistung von  $0,6 \mu\text{W}$  (schwarze Linie) zusammen mit der Anpassung (rote Linie) dargestellt. Für X1 und X2 ergibt sich

eine gute Übereinstimmung zwischen der Anpassung und den experimentellen Daten auf der niederenergetischen Seite der Spektrallinien mit Fano-Faktoren von  $q = -1,3$  bzw.  $-1,5$  für X1 bzw. X2. Abbildung 5.6 c) zeigt den Betrag der ermittelten Fano-Faktoren für X1 (schwarze Punkte) und X2 (rote Sterne) in Abhängigkeit der Pumpleistung  $P_p$ . Die Zunahme des Fano-Faktors mit ebenfalls zunehmender Pumpleistung spiegelt eine Abnahme der Kopplung zwischen den Kontinuumszuständen und den diskreten Energieniveaus wider. Es wird davon ausgegangen, dass diese Abnahme aufgrund des Füllens der Kontinuumszustände in der Benetzungsschicht zustande kommt.

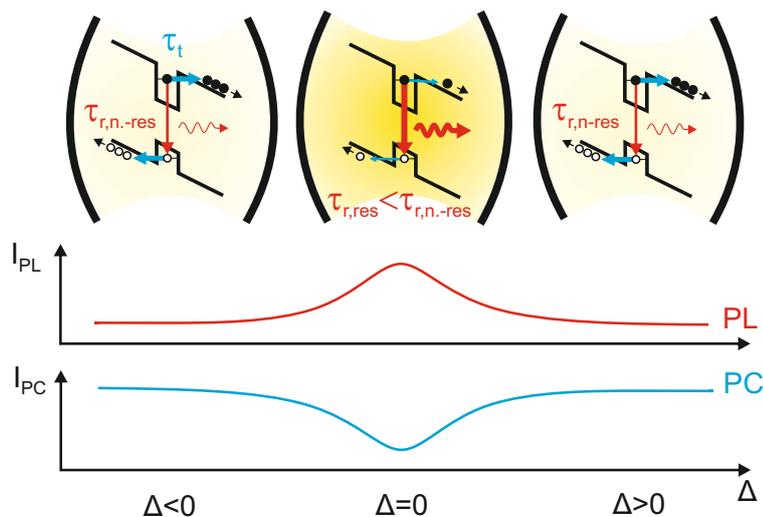
### 5.3 Licht-Materie-Wechselwirkung unter elektrischem Auslesen

Ziel der folgenden Experimente war es, Licht-Materie-Wechselwirkungseffekte zwischen einzelnen Quantenemittern und der Grundmode eines elektrisch kontaktierten Mikrosäulenresonators über den Photostrom elektrisch auszulesen. Die Kopplung zwischen exzitonischer und photonischer Mode hängt von ihrer spektralen Verstimmung ab und äußert sich unter anderem in einer Abnahme der Lebensdauer des exzitonischen Übergangs in Resonanz. Über eine Temperaturvariation des Mikrosäulenresonators ist es möglich, diese Verstimmung zu variieren [Rei04].

Die oben erwähnte Konkurrenz zwischen Photostrom und Photolumineszenz macht es nun möglich, die Abnahme der Lebensdauer im Photostrom zu detektieren. In Abbildung 5.7 ist der vorliegende physikalische Sachverhalt auf sehr instruktive Weise dargestellt. Zu sehen ist der schematische Bandverlauf sowie die Photolumineszenz und Photostromintensität eines Quantenpunktes innerhalb eines elektrisch kontaktierten Mikrosäulenresonators unter Rückwärtsspannung für unterschiedliche Verstimmungen zwischen Resonanzmode und Quantenpunktexziton. Für Verstimmungen  $\Delta \neq 0$  ist die radiative Lebensdauer  $\tau_{r,n.-res}$  des Übergangs nicht verkürzt, wodurch der dominierende Verlustprozess das Tunneln aus dem Quantenpunkt ist. Folglich ist die Photostromintensität angehoben. Im Resonanzfall  $\Delta = 0$  dagegen ist die Lebensdauer  $\tau_{r,res} < \tau_{r,n.-res}$  verkürzt. Es rekombinieren nun mehr Ladungsträger radiativ, was zu einer Abnahme der Photostromintensität und zu einer verstärkten Photolumineszenzintensität führt. Die verstimmungsabhängige Lebensdauer des exzitonischen Zustands ist über

$$\tau_r(\Delta) = \frac{\tau_{3D}}{F_P \frac{\gamma_c^2}{4\Delta^2 + \gamma_c^2}} \quad (5.4)$$

gegeben (vgl. Gleichung (2.64)). Setzt man diese in Gleichung (5.3) ein, so erhält man den Photostrom in Abhängigkeit der Verstimmung und Anregungsleistung für den Fall



**Abbildung 5.7:** Schematische Darstellung des Bandverlaufes, der Photolumineszenzintensität (PL) und des Photostroms (PC) eines Quantenpunktes innerhalb der aktiven Schicht eines Mikrosäulenresonators für unterschiedliche spektrale Verstimmung  $\Delta$ . Die Ladungsträger verlassen den Quantenpunkt entweder über strahlende Rekombination oder quantenmechanisches Tunneln. Beide Prozesse stehen in Konkurrenz zueinander und besitzen unterschiedliche Lebensdauern. Während die Tunnelzeit  $\tau_t$  bei fester angelegter Spannung  $U_A$  konstant ist, hängt die Lebensdauer von der Verstimmung ab  $\tau_r(\Delta)$ . Dadurch bewirkt eine Abnahme der Lebensdauer aufgrund des Purcell-Effektes in Resonanz ( $\Delta = 0$ ) eine Zunahme der Photolumineszenzintensität (rote Linie) bei gleichzeitiger Abnahme des Photostromsignals (blaue Linie).

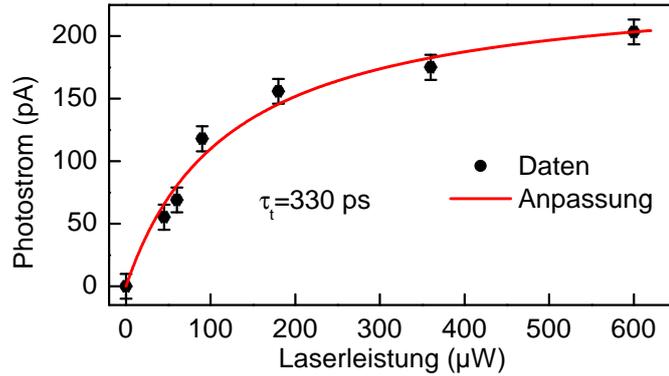
der schwachen Licht-Materie-Wechselwirkung

$$I(\Delta) = e \frac{N_0}{\tau_t(\Delta)} = \frac{e}{2\tau_t} \frac{uP}{uP + \left( \frac{1}{\tau_t} + \frac{F_P \gamma_c^2}{\tau_{3D}(4\Delta^2 + \gamma_c^2)} \right)}. \quad (5.5)$$

### 5.3.1 Seitliche Anregung des Mikrosäulenresonators

Als Erstes wird die Einzelquantenpunkt-Photostromspektroskopie unter Anregung auf die Seitenwand des Mikrosäulenresonators behandelt. In diesem Fall kann die Reflektivität der Spiegelpaare umgangen werden, sodass die Quantenpunkte in der aktiven Schicht unabhängig von ihrer spektralen Lage zur Resonatormode angeregt werden können. Für die in diesem Abschnitt durchgeführten Experimente wurde ein Mikrosäulenresonator mit  $\text{In}_{0,30}\text{Ga}_{0,70}\text{As}$ -Quantenpunkten in der aktiven Schicht verwendet. Der Durchmesser des Resonators beträgt  $d = 1,8 \mu\text{m}$  und der Gütefaktor  $Q = 7000$ , was einer spektralen Linienbreite der Grundmode von  $\gamma_c = 190 \mu\text{eV}$  entspricht.

Zunächst wird an einem Quantenpunktexziton, das sich spektral nahe der Resonatormode befindet, der Photostrom in Abhängigkeit der Anregungsleistung aufgenommen. Die experimentellen Daten für eine angelegte Spannung von  $U_A = 0 \text{ V}$  und eine Temperatur von  $10 \text{ K}$  sind in Abbildung 5.8 gezeigt. Man erkennt wie erwartet ein Sättigungsverhalten

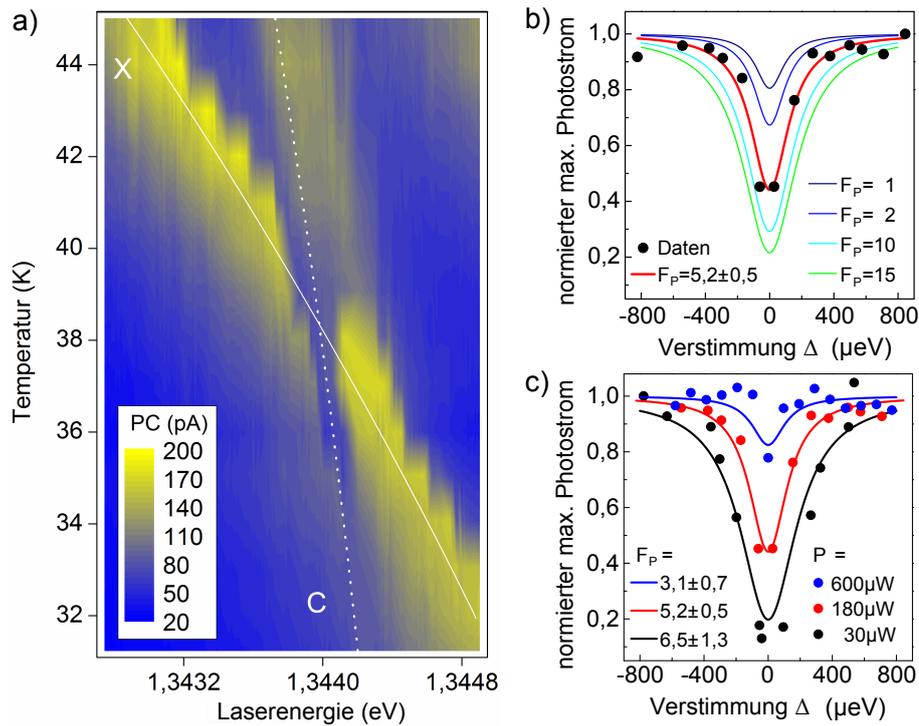


**Abbildung 5.8:** Photostrom in Abhängigkeit der Anregungsleistung eines Quantenpunktexzitons, welches sich abseits der Resonanz in einem Mikrosäulenresonator befindet. Die Daten wurden bei einer angelegten Spannung von  $U_A = 0$  V und einer Proben temperatur von 10 K aufgenommen. Aus der Anpassung der experimentellen Daten (schwarze Kreise) mit Gleichung (5.3) (rote Linie) ergibt sich die Tunnelzeit zu  $\tau_t = 330$  ps.

für hohe Anregungsleistungen. Eine Anpassung der Daten erfolgt mithilfe von Gleichung (5.3) und ergibt  $u = 48,2 \text{ W}^{-1}\text{s}^{-1}$  sowie eine Tunnelzeit von  $\tau_t = 330$  ps, wobei als Lebensdauer  $\tau_r$  des Exzitons der für diese Quantenpunkte typische Wert von 350 ps angenommen wurde [Rei09]. Damit sich eine Abnahme der Lebensdauer durch den Purcell-Effekt im Photostrom bemerkbar macht, sollte die Tunnelzeit im Bereich der Lebensdauer der Exzitonen sein. Dies ist hier der Fall, was eine mögliche Veränderung der Tunnelzeit über die angelegte Spannung  $U_A$  überflüssig macht.

Um Licht-Materie-Wechselwirkungseffekte im Photostrom zu detektieren, werden Photostromspektren eines Quantenpunkt-Mikrosäulenresonators in Abhängigkeit der spektralen Verstimmung zwischen Exziton und Resonatormode aufgenommen. Die Verstimmungsvariation wird über die Proben temperatur geregelt. Hierzu wurde das Quantenpunktexziton verwendet, an dem bereits die leistungsabhängige Messung (Abbildung 5.8) durchgeführt wurde und die Anregungsleistung von  $P = 180 \text{ μW}$  so gewählt, dass sich der Photostrom noch nicht in Sättigung befindet, um eine möglichst deutliche Abnahme des Photostroms aufgrund des Purcell-Effektes messen zu können. In Abbildung 5.9 a) ist eine Konturdarstellung des Photostroms in Abhängigkeit der Proben temperatur und der Laserenergie dargestellt. Durch eine Temperaturerhöhung der Probe von 32 K auf 44 K kann das Quantenpunktexziton (X) durch die Resonanz mit der Kavitätsmode (C) geschoben werden. Eine ausgeprägte Abnahme des Photostromsignals ist in Resonanz bei einer Temperatur von 38 K zu erkennen.

Der Grund hierfür besteht, wie oben beschrieben, in der erhöhten radiativen Zerfallsrate aufgrund des Purcell-Effektes und einer daraus resultierenden Abnahme des Photostroms. Damit wurde erstmalig die schwache Licht-Materie-Wechselwirkung zwischen einem einzelnen Quantenemitter und einer Resonatormode unter elektrischem Auslesen über den Photostrom eines Quantenpunktes demonstriert. Zur quantitativen Analyse des Resonanz-



**Abbildung 5.9:** a) Konturdarstellung der Photostromintensität eines Quantenpunkt-Mikrosäulenresonators mit einem Durchmesser von  $1,8 \mu\text{m}$  und einem  $Q$ -Faktor von 7000 als Funktion der Temperatur und der Anregungsenergie des Lasers. Die angelegte Spannung beträgt  $U_A = 0 \text{ V}$  und die Anregungsleistung  $P = 180 \mu\text{W}$ . Durch eine Temperaturerhöhung kann das Quantenpunktexziton (X) durch die Resonanz mit der Kavitätsmode (C) geschoben werden. In Resonanz bei ca. 38 K tritt eine Abnahme des Photostroms auf. b) Aus a) entnommener maximaler Photostrom des Exzitons in Abhängigkeit der Verstimmung  $\Delta$ . Eine Anpassung an die Daten ergibt einen Purcell-Faktor von  $F_P = 5,2 \pm 0,5$ . c) Resonanzverhalten für unterschiedliche Anregungsleistungen  $P = 30, 180$  und  $600 \mu\text{W}$ .

verhaltens wurde der normierte maximale Photostrom des Quantenpunktexzitons in Abhängigkeit der Verstimmung  $\Delta$  zwischen Resonatormoden- und Exzitonenergie aus den experimentellen Daten ausgelesen und in Abbildung 5.9 aufgetragen. Die experimentellen Daten zeigen ein ausgeprägtes Minimum des Photostroms für  $\Delta = 0$ . Eine Anpassung der Daten mit Gleichung (5.5) liefert eine sehr gute Übereinstimmung und ermöglicht eine Bestimmung des Purcell-Faktors zu  $F_P = 5,2 \pm 0,5$ . Hierzu wurden die Parameter  $u = 48,2 \text{ W}^{-1}\text{s}^{-1}$  und  $\tau_t = 330 \text{ ps}$  verwendet, welche aus der leistungsabhängigen Photostrommessung dieses Quantenpunktexzitons gewonnen wurden (vgl. Abbildung 5.8), sowie die Anregungsleistung entsprechend den experimentellen Bedingungen zu  $P = 180 \mu\text{W}$  gewählt. Des Weiteren sind die Werte  $\tau_{3D} = 350 \text{ ps}$  und  $\gamma_c = 190 \mu\text{eV}$  gegeben, wodurch  $F_P$  als einziger Anpassungsparameter verbleibt. Zusätzlich zu den experimentellen Daten ist der aus Gleichung (5.5) berechnete Verlauf für unterschiedliche Purcell-Faktoren eingezeichnet.

Um den Einfluss der Anregungsleistung auf den Purcell-Faktor zu ermitteln, wurde

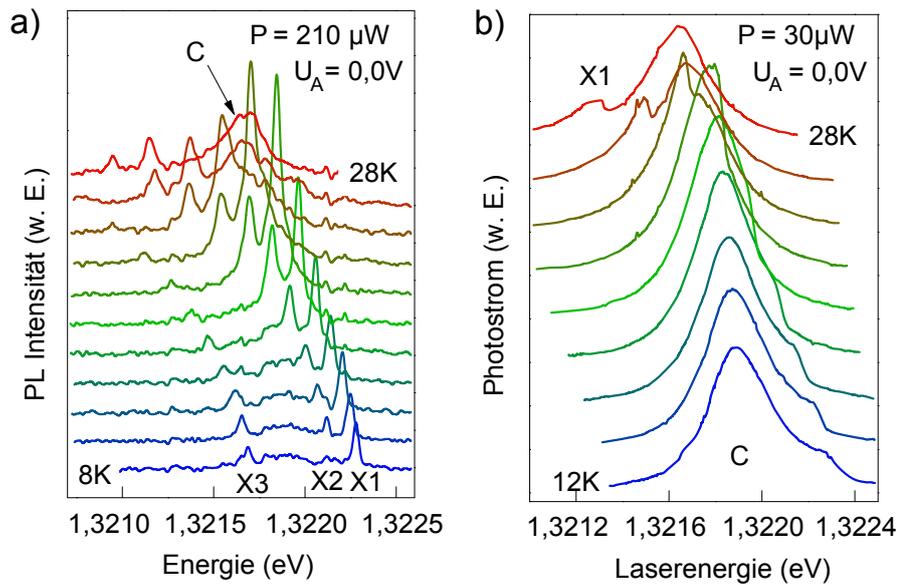
der Photostrom in Abhängigkeit der Verstimmung zum einen bei Sättigung des Übergangs mit  $P = 600 \mu\text{W}$  und zum anderen weit unterhalb der Sättigung bei  $P = 30 \mu\text{W}$  aufgenommen. Die entsprechenden Daten sind in Abbildung 5.9 c) zusammen mit den experimentellen Daten für  $P = 180 \mu\text{W}$  dargestellt. Für alle Anregungsleistungen ist eine Abnahme des Photostroms im Resonanzfall zu erkennen, wobei das Resonanzverhalten zu höheren Anregungsleistungen hin weniger ausgeprägt ist. Wird der Quantenpunkt in Sättigung gepumpt, so wirkt sich eine Abnahme der radiativen Lebensdauer auf den Gesamtphotostrom weniger stark aus, als wenn der Quantenpunkt weit unterhalb der Sättigung angeregt wird. Eine Anpassung der Daten ergibt einen Purcell-Faktor von  $F_P = 3,1 \pm 0,7$  für  $P = 600 \mu\text{W}$  und  $F_P = 6,5 \pm 1,3$  für  $P = 30 \mu\text{W}$ . Die Abnahme des Purcell-Faktors mit steigender Anregungsleistung kann einer Verbreiterung des Übergangs aufgrund der hohen Anregungsleistung zugeschrieben werden [Ulh10]. Die hier etablierte Methode erlaubt im Vergleich zu gängigen Photolumineszenz Methoden einen komplementären und sehr attraktiven Zugang zur Untersuchung von Licht-Materie-Wechselwirkungseffekten.

### 5.3.2 Axiale Anregung des Mikrosäulenresonators

Weiterhin wird die Einzelquantenpunkt-Photostromspektroskopie unter axialer Anregung untersucht. In diesem Fall wirkt der Resonator als spektraler Filter, sodass das Laserlicht nur in die aktive Schicht der Kavität eindringen kann, wenn seine Wellenlänge mit der Resonanzenergie einer optischen Mode des Mikrosäulenresonators übereinstimmt. Dadurch kann nur in den Quantenpunkten, die sich spektral nahe der Resonanzmode befinden, Photostrom erzeugt werden. Für die in diesem Teilabschnitt verwendeten Experimente wurde ein elektrisch kontaktierter Mikrosäulenresonator mit einem Durchmesser von  $d = 1,7 \mu\text{m}$  und einem Gütefaktor von  $Q = 4200$  verwendet. Zunächst wird ein Vergleich zwischen dem Purcell-Effekt in Photolumineszenz- und Photostromspektroskopie angestellt.

In Abbildung 5.10 sind a) Photolumineszenz- und b) Photostromspektren desselben Mikrosäulenresonators bei einer angelegten Spannung von  $U_A = 0,0 \text{ V}$  dargestellt. Zur Anregung des Mikrosäulenresonators in Photolumineszenzspektroskopie wurde der Titan:Saphir Laser bei einer Wellenlänge von  $842 \text{ nm}$  und einer Anregungsleistung von  $P = 210 \mu\text{W}$  benutzt. In den Spektren kann man drei Exzitonlinien (X1-X3) erkennen, von denen X2 und X3 durch eine Temperaturerhöhung in Resonanz mit der Grundmode (C) geschoben werden können. Die Intensitätserhöhung der Photolumineszenz in Resonanz ist ein Anzeichen für die schwache Licht-Materie-Kopplung, bei der die Lebensdauer des exzitonischen Zustands über den Purcell-Effekt reduziert wird. X1 weist in Resonanz eine stärkere Intensitätszunahme auf als X2. Dies kann über unterschiedliche laterale Positionen der Quantenpunkte in der aktiven Schicht des Mikrosäulenresonators erklärt werden, wobei X1 den größeren räumlichen Überlapp mit der Grundmode des Resonators besitzt.

Die Photostromspektren in Abbildung 5.10 b) unterstützen diese Theorie. Sie wurden ebenfalls bei einer Spannung von  $U_A = 0,0 \text{ V}$  aufgenommen, jedoch bei strikt resonanter



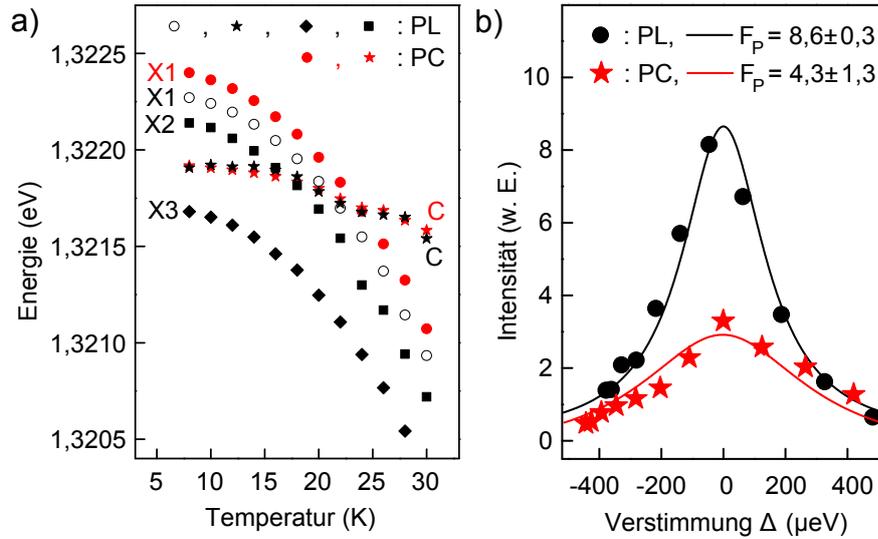
**Abbildung 5.10:** a) Photolumineszenz- und b) Photostromspektren desselben Mikrosäulenresonators unter axialer Anregung für unterschiedliche Temperaturen. In den Photolumineszenzspektren sind drei Exzitonlinien (X1, X2 und X3) zu erkennen, von denen X1 die größte Überhöhung in Resonanz mit der Grundmode (C) zeigt. Hingegen ist in den Photostromspektren nur ein Exziton zu erkennen, das eine Überhöhung des Photostromsignals im Resonanzfall aufzeigt.

Anregung mit einer Laserleistung des Diodenlasers von  $30 \mu\text{W}$ . In Photostromspektroskopie unter axialer Anregung können nur die Quantenpunkte beobachtet werden, welche einen guten spektralen und räumlichen Überlapp mit der Resonatormode aufweisen, weswegen in den Photostromspektren nur X1 sichtbar ist.

In Abbildung 5.11 a) ist die Dispersionsrelation der Exzitonlinien und der Resonatormode für Photolumineszenz- und Photostromspektren dargestellt. Die jeweiligen Energiepositionen wurden aus einer Anpassung der Linien mit einer Lorentzform ausgelesen. Aus der Auftragung ist deutlich ein Kreuzen der beiden Exzitonlinien X1 und X2 mit der Resonatormode C zu erkennen. Vergleicht man die Energiepositionen von X1 für Photostrom- und Photolumineszenzspektren, so erkennt man eine leichte Rotverschiebung der Linie in den Photolumineszenzspektren, was auf eine veränderte elektrostatische Umgebung unter strikt resonanter Anregung zurückgeführt wird. Zur Bestimmung des Purcell-Faktors werden die Intensitäten der Anpassung von X1 über die Verstimmung  $\Delta$  aufgetragen. In Photolumineszenz erkennt man eine deutliche Zunahme der Intensität, um ca. einen Faktor 8. Der Purcell-Faktor kann durch eine Anpassung an die Daten zu  $F_P = 8,6 \pm 0,3$  bestimmt werden<sup>3</sup> [Mun09, Böc08].

Im Gegensatz zu dem in Abbildung 5.7 dargestellten Verhalten, weist das Photostrom-

<sup>3</sup> Der Faktor der Zunahme der Emissionsintensität des Exzitons in Resonanz ist im Allgemeinen leistungsabhängig und ungleich dem Purcell-Faktor.



**Abbildung 5.11:** a) Dispersionsrelation der Quantenpunktemission und der Resonatormode für Photolumineszenz- und Photostromspektren. b) Extrahierte Photolumineszenz- und Photostromintensität von X1 in Abhängigkeit der Verstimmung  $\Delta$ . Eine Anpassung der experimentellen Daten ergibt einen Purcell-Faktor von  $F_P = 8,6 \pm 0,3$  (PL) bzw.  $F_P = 4,6 \pm 1,3$  (PC).

signal ebenfalls wie die Photolumineszenzintensität eine Zunahme in Resonanz auf. Die spektral abhängige Transmission des Mikrosäulenresonators führt bei konstanter Laserleistung zu einer verstimmungsabhängigen Pumprate des exzitonischen Übergangs. Ein maximaler Lichttransfer in den Resonator ist nur dann möglich, wenn die Laserwellenlänge mit einer Resonatormode übereinstimmt. Dadurch ist die Pumprate des Übergangs maximal, wenn sich das Exziton in Resonanz mit der Resonatormode befindet. Die Anregungsleistung eines Exzitons in Abhängigkeit der Verstimmung  $\Delta$  ist in guter Näherung durch

$$P(\Delta) = P_{max} \frac{\gamma_C^2}{4\Delta^2 + \gamma_C^2} \quad (5.6)$$

gegeben. Hierbei wurde die lorentzförmige Linienform der Resonatormode berücksichtigt. Fügt man die verstimmungsabhängige Anregungsleistung in Gleichung (5.5) ein, so erhält man eine Funktion mit deren Hilfe man die experimentellen Daten beschreiben kann. Eine Anpassung an die Daten liefert eine sehr gute Übereinstimmung mit einem Purcell-Faktor von  $F_P = 4,3 \pm 1,3$ . Die Abweichung der in Photolumineszenz- und Photostromspektroskopie ermittelten Purcell-Faktoren könnte aufgrund der signifikant unterschiedlichen Anregungsbedingungen (nichtresonant und resonant) zu Stande kommen. Wie schon in Kapitel 5.3.1 (siehe Abbildung 5.9 c) beschrieben führt eine hohe Anregungsleistung bei resonanter Anregung zu einer Verbreiterung des Übergangs, die eine Abnahme des Purcell-Faktors erklären könnte.

## 5.4 Rabi-Oszillationen im Photostrom

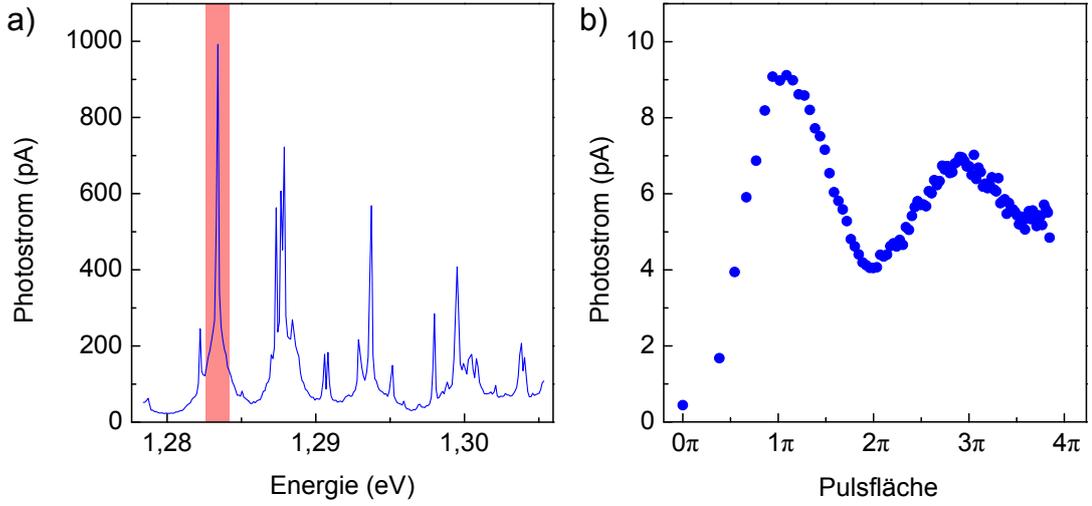
### 5.4.1 Resonante gepulste Anregung eines Zwei-Niveau-Systems

Über die in den vorherigen Abschnitten verwendete resonante Dauerstrichanregung des als Zwei-Niveau-System verwendeten Quantenpunktes kann einzig die Besetzungswahrscheinlichkeit über die Anregungsleistung variiert werden. Eine kohärente gepulste Anregung hingegen ermöglicht die Zustandsmanipulation des exzitonischen Qubits auf der Bloch-Kugel. Die Anregung des Zwei-Niveau-Systems mit einem ps-gepulsten Laser verursacht eine Rotation des Bloch-Vektors auf der Bloch-Kugel, die zu einer Oszillation der Besetzungswahrscheinlichkeit führt. Durch einen sogenannten  $\pi$ -Puls ist somit die deterministische Interkonversion einer kohärenten optischen Anregung in exakt ein Elektron-Loch-Paar möglich. Diese kohärenten Oszillationen des Zweiniveausystems werden nach Isidor Isaac Rabi als Rabi-Oszillationen bezeichnet [Rab37]. Der experimentelle Nachweis der Rabi-Oszillationen an einem Quantenpunktexziton wurde erstmals in Transmissionsspektroskopie gemessen [Sti01] und nachfolgend ebenfalls in Photostromspektroskopie [Zre02], mithilfe der Methode des degenerierten Vierwellenmischens [Pat05] sowie in Resonanzfluoreszenz [Mul07, Mel08]. Im folgenden Kapitel werden erstmals Rabi-Oszillationen eines Quantenpunktexzitons im Photostrom eines Mikroresonators demonstriert sowie die Polarisationsabhängigkeit der Rabi-Frequenz untersucht.

### 5.4.2 Experimentelle Beobachtung von Rabi-Oszillationen

Zur Beobachtung der Rabi-Oszillationen im Photostrom wurde eine elektrisch kontaktierte Mikrosäulenresonatorprobe mit 13 Spiegelpaaren im oberen und 26 im unteren DBR verwendet. Die Quantenpunkte dieser Probe zeichnen sich durch ein sehr gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis im Photostrom und eine geringe spektrale Quantenpunktdichte aus. Dadurch ist es möglich, selbst bei Anregung mit einem ps-gepulsten Laser mit einer spektralen Breite von ca. 1,5 meV, nur einzelne Quantenpunkte anzuregen. Werden im Mikroresonator mehrere Quantenpunkte simultan über den Laser angeregt, so kommt es zu einer Überlagerung von Rabi-Oszillationen mit unterschiedlicher Frequenz und Dämpfung, was zu einem Verblässen der Besetzungszosillation eines einzelnen Zwei-Niveau-Systems führt. Um die spektrale Selektivität der Bragg-Spiegel zu vermeiden, erfolgte die Anregung der Quantenpunkte auf die Seitenwand des Mikroresonators. Für die nachfolgenden Messungen wird ein Quantenpunkt-Mikrosäulenresonator mit einem Durchmesser von 1,9  $\mu\text{m}$  verwendet.

Zunächst wird ein Übersichtspektrum des Quantenpunkt-Mikrosäulenresonators unter seitlicher Anregung aufgenommen, um ein spektral gut isoliertes Quantenpunktexziton zu finden. In Abbildung 5.12 a) ist das entsprechende Photostromspektrum abgebildet, welches unter Dauerstrichanregung mit einer Anregungsleistung von 500  $\mu\text{W}$  bei einer Temperatur von 12 K und einer angelegten Spannung von  $-0,8\text{ V}$  aufgenommen wur-



**Abbildung 5.12:** a) Photostromspektrum eines elektrisch kontaktierten Mikrosäulenresonators mit einem Durchmesser von  $1,9 \mu\text{m}$  bei einer Proben­temperatur von  $12 \text{ K}$  unter seitlicher Anregung. Rot gekennzeichnet ist die spektrale Breite und Wellenlänge des Anregungslasers bei ca.  $1,283 \text{ eV}$ . b) Der Photostrom eines Quantenpunkt­exzitons in Abhängigkeit der Fläche des Anregungspulses weist Rabi-Oszillationen auf.

de. Aufgrund der geringen Quantenpunktdichte sind in einem großen Spektralbereich von  $15 \text{ meV}$  nur wenige einzelne Quantenpunkt­exzitonlinien zu erkennen. Bei ca.  $1,283 \text{ eV}$  befindet sich eine Exzitonlinie, die zum einen ein besonders hohes Photostromsignal aufweist und zusätzlich ausreichend gut von weiteren Exzitonlinien isoliert ist. Es befindet sich kein weiteres Exziton im rot eingezeichneten Bereich, der die Linienbreite des Anregungslasers repräsentiert. Diese Linie wird in den folgenden Experimenten zur Untersuchung von Rabi-Oszillationen verwendet.

Der experimentelle Nachweis von Rabi-Oszillationen erfolgt über die Variation der Pulsfläche des elektromagnetischen Feldes mit dem das Zwei-Niveau-System angeregt wird. Die Pulsfläche  $\Theta$  setzt sich aus dem Matrixelement des optischen Übergangs  $\vec{\mu}$  und der Amplitude  $\vec{E}_0(t)$  des elektrischen Feldvektors des Strahlungsfeldes zusammen

$$\Theta = \frac{\vec{\mu}}{\hbar} \int \vec{E}_0(t) dt = \int \Omega(t) dt, \quad (5.7)$$

wobei  $\Omega(t) = \frac{\vec{\mu}\vec{E}_0(t)}{\hbar}$  als Rabi-Frequenz bezeichnet wird. Ist zur Zeit  $t = 0$  der Grundzustand des Quantenpunkt­exzitons besetzt und erfolgt die Anregung strikt resonant, so ist die Besetzungswahrscheinlichkeit des oberen Zustands des Zwei-Niveau-Systems in Abhängigkeit der Pulsfläche  $\Theta$  gegeben durch [Fox06]

$$N(t) = \sin^2\left(\frac{\Theta}{2}\right). \quad (5.8)$$

Die Besetzungswahrscheinlichkeit des oberen Zustands oszilliert folglich in Abhängigkeit

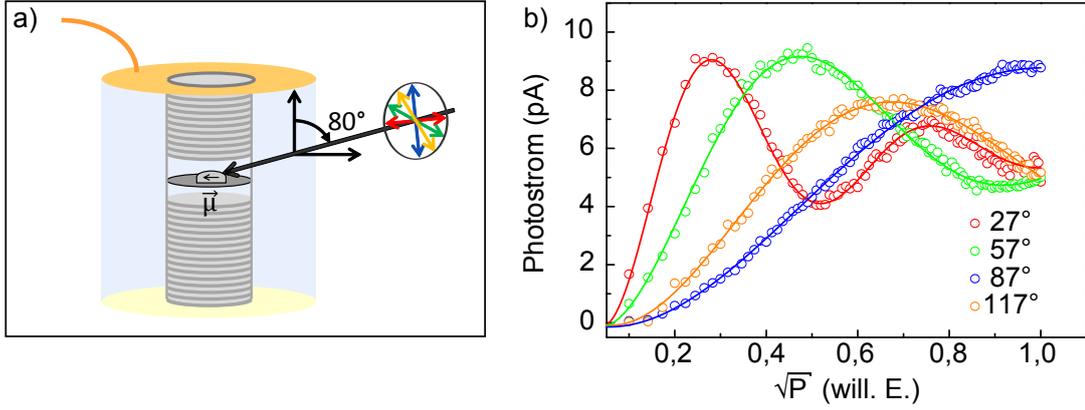
der Pulsfläche zwischen null und eins. Im Experiment ist eine Variation der Zeitdauer  $t$  des Anregungspulses nur schwer realisierbar, weswegen eine Erhöhung der Amplitude des elektrischen Feldvektors über die Anregungsleistung genutzt wird, um Rabi-Oszillationen sichtbar zu machen. In Abbildung 5.12 b) ist der Photostrom des exzitonischen Zustands in Abhängigkeit der Pulsfläche des Anregungslasers dargestellt. Die Messung wurde ebenfalls bei einer Temperatur von 12 K und einer angelegten Rückwärtsspannung von  $U_A = -0,8$  V mit linear polarisierter Anregung ausgeführt. Mit zunehmender Pulsfläche nimmt der Photostrom zu bis er bei  $\Theta = \pi$  ein Maximum bei einem Wert von ca. 9 pA erreicht. Nach einer weiteren Erhöhung der Pulsfläche um  $\pi$  ist die Besetzungswahrscheinlichkeit des Zwei-Niveau-Systems minimal, wodurch der Photostrom ein Minimum einnimmt. Insgesamt kann eine gedämpfte Rabi-Oszillation von zwei Zyklen beobachtet werden. Neben dem Photostrom des Quantenpunktexzitons trägt ein mit der Anregungsleistung linear ansteigender Hintergrund zum Photostromsignal bei, der in dieser Messung bereits abgezogen wurde. Der Ursprung dieses Signals sind inkohärente Absorptionsprozesse in der Umgebung des Quantenpunktes. Die Dämpfung der Rabi-Oszillationen wurde in einer Vielzahl von Veröffentlichungen gezeigt [Sti01, Zre02, Bor02, Wan05, Mel08, Ram10b, Ram10a, Mon13]. Sie ist von der Anregungsleistung abhängig und ihr Hauptmechanismus ist die Wechselwirkung mit longitudinal-akustischen Phononen.

### 5.4.3 Polarisationsabhängigkeit der Rabi-Frequenz

Die Rabi-Frequenz ist nicht nur von der Amplitude des elektromagnetischen Feldes sondern auch vom Überlapp des Feldvektors mit dem Vektor des Übergangsmatrixelementes abhängig. Für selbstorganisierte Quantenpunkte befindet sich der Vektor des Übergangsmatrixelementes in der Ebene senkrecht zur Wachstumsrichtung. Aufgrund der meist vorhandenen Feinstrukturaufspaltung des Quantenpunktgrundzustandes hat das Dipolmatrixelement in dieser Ebene zwei Vorzugsrichtungen, was sich auch bei polarisationsaufgelösten Messungen von Rabi-Oszillationen unter Anregung parallel zur Wachstumsrichtung niederschlägt [Mul04, Bes04]. Durch die seitliche Anregung der Quantenpunkte im vorliegenden Experiment kann der Überlapp zwischen dem Dipolmoment und dem elektromagnetischen Feld des Anregungslasers über eine Änderung der Polarisation des Laserlichtes mittels eines  $\lambda/2$ -Verzögerungsplättchens variiert werden. Eine schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus ist in Abbildung 5.13 a) gezeigt. Befindet sich der Vektor des elektromagnetischen Feldes parallel zur Wachstumsebene, so ist der Überlapp  $|\vec{\mu}\vec{E}|$  maximal, steht er jedoch senkrecht dazu, so ist er minimal. Die effektive Rabi-Frequenz  $\Omega'$  ist damit gegeben über

$$\Omega' \propto \frac{|\vec{\mu}| |\vec{E}_0| \cos \alpha}{\hbar}, \quad (5.9)$$

wobei  $\alpha$  den Winkel zwischen elektrischem Feldvektor und dem Vektor des Dipolmatrixelementes darstellt.



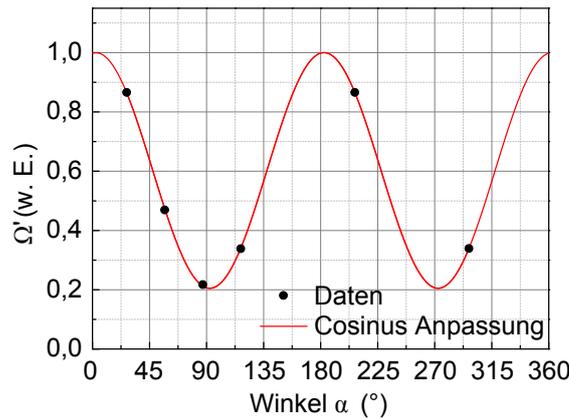
**Abbildung 5.13:** a) Skizze des Anregungsschemas. Der Mikrosäulenresonator wird seitlich unter einem Winkel von ca.  $80^\circ$  angeregt. Die lineare Polarisation des Anregungslasers kann über ein  $\lambda/2$ -Verzögerungsplättchen in der Ebene senkrecht zum einfallenden Licht gedreht werden. b) Rabi-Oszillationen für unterschiedliche Polarisation des Anregungslasers.

In Abbildung 5.13 ist der Photostrom als Funktion der Wurzel der Anregungsleistung  $\sqrt{P}$  für unterschiedliche Polarisationswinkel  $\alpha$  des elektromagnetischen Feldvektors dargestellt. Ein Winkel von  $\alpha = 0^\circ$  ist hier gleich bedeutend mit einer Polarisation parallel zur Wachstumsebene, dementsprechend ist unter einem Winkel von  $\alpha = 90^\circ$  der Überlapp  $|\vec{\mu}\vec{E}|$  minimal. Die Kurve, die diesem Fall nahezu entspricht, ist für einen Winkel von  $\alpha = 87^\circ$  gegeben. Hier kann keine komplette Rabi-Oszillation im aufgenommenen Leistungsbereich beobachtet werden. Durch eine Drehung der Polarisation des Laserlichtes kann der Überlapp zwischen dem elektromagnetischen Feld und dem Dipolmatrixelement erhöht werden, sodass für einen Winkel von  $\alpha = 57^\circ$  bereits eine erste komplette Oszillation zu erkennen ist. Die Kurve, die nahezu dem maximalen Überlapp entspricht ist für einen Winkel von  $\alpha = 27^\circ$  gegeben. In diesem Fall sind zwei komplette und gedämpfte Rabi-Oszillationen zu erkennen. Die Daten können unter Berücksichtigung eines Dämpfungstermes über die folgende Gleichung beschrieben werden

$$I(\sqrt{P}) = I_0 \left( e^{-\gamma\Omega'} \left( \sin^2 \left( \frac{\Omega'}{2} \right) - 1/2 \right) + 1/2 \right), \quad (5.10)$$

wobei  $\Omega'$  die effektive Rabi-Frequenz darstellt, die vom Winkel  $\alpha$  zwischen elektromagnetischem Feld und dem Vektor des Dipolmatrixelementes abhängt. Eine Anpassung der experimentellen Daten mit Gleichung 5.10 zeigt eine sehr gute Übereinstimmung. Aus den Daten können die effektiven Rabi-Frequenzen  $\Omega'$  gewonnen werden.

In Abbildung 5.14 ist die effektive Rabi-Frequenz gegenüber dem Winkel  $\alpha$  zwischen elektromagnetischem Feld und dem Vektor des Dipolmatrixelementes aufgetragen und mit  $\Omega' = y_0 + A \cos \left( \frac{2\pi}{w} (\alpha + \alpha_0) \right)$  angepasst. Die experimentellen Daten für  $\alpha = 207^\circ$  bzw.  $297^\circ$  haben nahezu den identischen Verlauf, wie für  $\alpha = 27^\circ$  bzw.  $117^\circ$  und sind deshalb in Abbildung 5.13 b) aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht dargestellt. Die Anpassung



**Abbildung 5.14:**  $\Omega'$  in Abhängigkeit des Winkels  $\alpha$  zwischen elektromagnetischem Feld und Dipolmatrixelement. Die experimentellen Daten (schwarze Kreise) können mit einer Cosinus-Funktion (rote Linie) angepasst werden.

mit den Parametern  $w = 180^\circ$ ,  $\alpha_0 = 2,5^\circ$ ,  $A = 0,397$  und  $y_0 = 0,603$  zeigt eine sehr gute Übereinstimmung mit der Winkelabhängigkeit der experimentell ermittelten effektiven Rabi-Frequenzen. Die effektive Rabi-Frequenz nimmt bei paralleler Polarisation des elektromagnetischen Feldes zur Wachstumsrichtung ( $\alpha = 90^\circ$  bzw.  $270^\circ$ ) einen endlichen Wert von  $\frac{A-y_0}{A+y_0} = 0,205$  an. Dies liegt daran, dass der Laserstrahl nicht perfekt senkrecht auf die Resonatorseitenwand trifft sondern unter einem Winkel  $\varphi \approx 80^\circ$ , sodass der Überlapp des elektromagnetischen Feldes mit dem in der Wachstumsebene gelegenen Dipolmatrixelement unter keiner Winkelstellung ganz verschwindet. Über  $\sin(90^\circ - \varphi) = 0,205$  kann der Winkel zu  $\varphi = 78^\circ$  bestimmt werden.

## 5.5 Zusammenfassung des Kapitels

Im Rahmen dieses Kapitels wurden elektrisch kontaktierte Mikrosäulenresonatoren unter Rückwärtsspannung als Photodetektoren betrieben. Durch einen sehr geringen Dunkelstrom der Bauteile und den experimentellen Aufbau, der auf die Minimierung von Störsignalen ausgelegt ist, war es erstmals möglich, einzelne Spektrallinien im Photostrom von Quantenpunkt-Mikroresonatoren nachzuweisen. Des Weiteren konnte der Purcell-Effekt, ein klares Indiz für die schwache Licht-Materie-Wechselwirkung, erstmalig durch elektrisches Auslesen in einem Quantenpunkt Mikrosäulenresonator demonstriert und mit einem Purcell-Faktor von  $F_P = 5,2 \pm 0,5$  quantifiziert werden. Das Kapitel schließt mit dem experimentellen Nachweis von Rabi-Oszillationen im Photostrom eines Quantenpunktes, der sich in einem elektrisch kontaktierten Mikrosäulenresonator befindet. Hierbei wurde die Kopplungsstärke zwischen dem Quantenemitter und dem elektromagnetischen Feld über eine Änderung der Polarisation des elektromagnetischen Feldes, und damit des Überlapps mit dem Dipolmatrixelement des Übergangs, variiert. Die experimentellen Ergebnisse, die in diesem Kapitel gezeigt werden, sind wegberetend für das elektrische Auslesen der Inter-

konversion von Photonen als fliegende Qubits in elektronische Anregungen von Exzitonen in Halbleiterquantenpunkten, sowie die optische Kontrolle und Manipulation exzitonischer Qubits für die Quantenkommunikation.



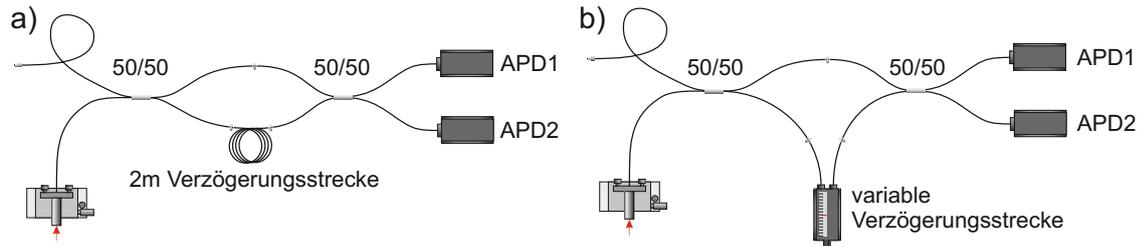
# 6 Interferenz von ununterscheidbaren Photonen aus Halbleiterquantenpunkten

Lichtquellen, die deterministisch nicht nur einzelne, sondern auch ununterscheidbare Photonen aussenden, sind die Grundbausteine einer Vielzahl von Anwendungen in der Quanteninformationstechnologie sowie Quantennetzwerken und insbesondere für den Quantenrepeater [Kok07, O'B07, Pan12, San11]. Halbleiterquantenpunkte sind hierfür ideale Kandidaten, da sie nicht nur einzelne und ununterscheidbare Photonen mit hoher Reinheit emittieren, sondern zusätzlich in Mikroresonatoren und Wellenleiter eingebaut werden können, um hohe Auskoppelleffizienzen und eine erhöhte Emissionsrate über Effekte der Licht-Materie-Wechselwirkung zu erzielen [Mic00, San02]. In diesem Kapitel wird die Ununterscheidbarkeit von Photonen aus Halbleiterquantenpunkten in einer planaren Resonatorstruktur untersucht. Für die Quanteninterferenz von Photonen aus demselben Quantenpunkt wird der Einfluss der Anregungsart betrachtet. Abschließend wird die Interferenz von Photonen aus räumlich getrennten Quantenpunkten demonstriert und ein Ausblick mit Experimenten in Resonanzfluoreszenz gegeben.

## 6.1 Interferenz von zwei Photonen aus einer Quelle

### 6.1.1 Messaufbau zur Interferenz von zwei Photonen aus einer Quelle

Die Interferenz von zwei Photonen aus derselben Quelle kann man entweder unter Dauerstrichanregung oder gepulster Anregung durchführen. Je nach Anregungsart wird der Messaufbau dementsprechend modifiziert. Der Grundaufbau unterscheidet sich von dem in Abbildung 3.3 dargestellten erst nach der Fasereinkopplung hinter dem Ausgangsspalt des Monochromators. Für beide Anregungsarten werden die Photonen zunächst durch einen 50/50 Strahlteiler zufällig auf die beiden Arme des Interferometers verteilt. Bei Dauerstrichanregung entspricht der mittlere zeitliche Abstand der eintreffenden Photonen der Lebensdauer  $\tau_r$  des exzitonischen Zustands. Deswegen muss sich der eine Arm des Interferometers um eine optische Wegstrecke, die mindestens der Lebensdauer entspricht, gegenüber dem anderen unterscheiden. Dies wird durch eine 2 m (Verzögerungszeit  $\tau = 8,85 \text{ ns}$ ) lange Glasfaser realisiert, die über Steckverbinder in einen Arm des



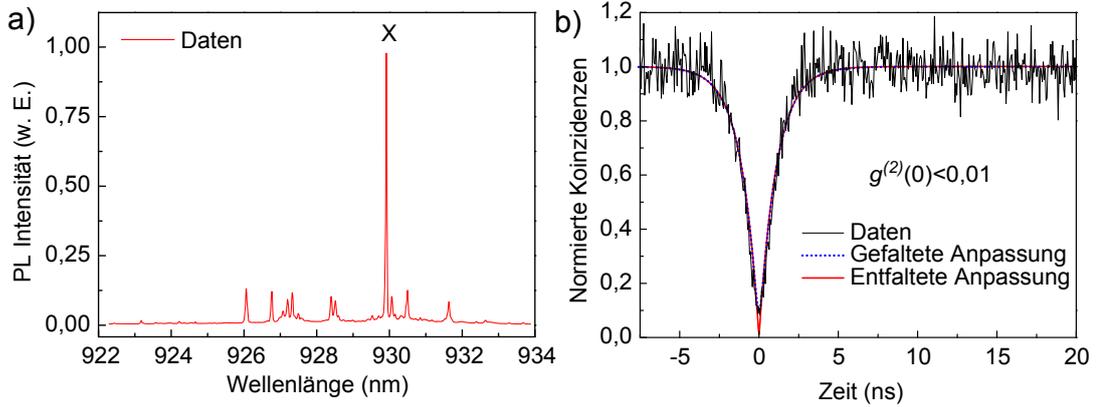
**Abbildung 6.1:** Zwei-Photonen-Interferenz-Aufbau für Emission aus derselben Einzelphotonenquelle für a) Dauerstrichanregung und b) gepulste Anregung. Während für Dauerstrichanregung eine feste Verzögerungsstrecke genutzt wird, kann die Verzögerung für gepulste Anregung in einem Bereich  $(12,20 \pm 0,25)$  ns variiert werden. Alle Glasfasern und Glasfaserstrahlteiler bestehen aus polarisationserhaltenden Monomodefasern.

Interferometers eingebaut wird (siehe Abbildung 6.1 a). Trifft nun ein erstes Photon in den Arm mit Verzögerungsstrecke und ein  $8,85$  ns später emittiertes in den kürzeren Arm, so treffen sie gleichzeitig am zweiten 50/50 Strahlteiler zusammen und verlassen diesen im Falle von ununterscheidbaren Photonen in denselben Ausgang (vgl. Kapitel 6.1.2).

Für die gepulste Anregung muss die Verzögerungsstrecke an den Pulsabstand des Anregungslasers ( $12,2$  ns) angepasst werden. Dazu wird die feste Verzögerungsstrecke durch eine variable Verzögerungsstrecke mit einer maximalen Verzögerungsdifferenz von  $500$  ps ersetzt (siehe Abbildung 6.1 b). Die gesamte Verzögerungsstrecke ( $12,20 \pm 0,25$ ) ns ist so gewählt, dass die Verzögerungsdifferenz symmetrisch um den Pulsabstand variiert werden kann. Dadurch kann die Zeitdifferenz zwischen zwei Photonen aus aufeinanderfolgenden Pulsen variiert werden und die sogenannte Hong-Ou-Mandel-Abnahme für ununterscheidbare Photonen gemessen werden [Hon87].

### 6.1.2 Interferenz von Photonen aus einem Quantenpunkt unter Dauerstrichanregung

Für die Interferenz von Photonen aus dem gleichen Quantenpunkt unter Dauerstrichanregung wurde die Probe C3297 verwendet (siehe Abschnitt 3.1.3), die sich durch Quantenpunkte mit sehr heller Emission auszeichnet. Der untersuchte Quantenpunkt befindet sich unter einer Apertur mit einem Durchmesser von  $2 \mu\text{m}$  der auf der Probe aufgebracht wurde. Dies hat zum einen den Vorteil, dass die Emission umliegender Quantenpunkte durch die Aluminiummaske geblockt ist, und zum anderen, dass der ausgewählte Quantenpunkt auf der Probe leicht wieder gefunden werden kann. Die Probe wird bei einer Wellenlänge von  $840$  nm nichtresonant angeregt und befindet sich während den Messungen bei einer Temperatur von  $8$  K. In Abbildung 6.2 a) ist das Emissionsspektrum des Quantenpunktexzitons (X) gezeigt. Man kann eine ausreichend gut isolierte Spektrallinie bei ca.  $930$  nm erkennen, die für die folgenden Korrelationsexperimente verwendet wurde. Zum Nachweis der Einzelphotonenemission wurde eine Autokorrelationsmessung



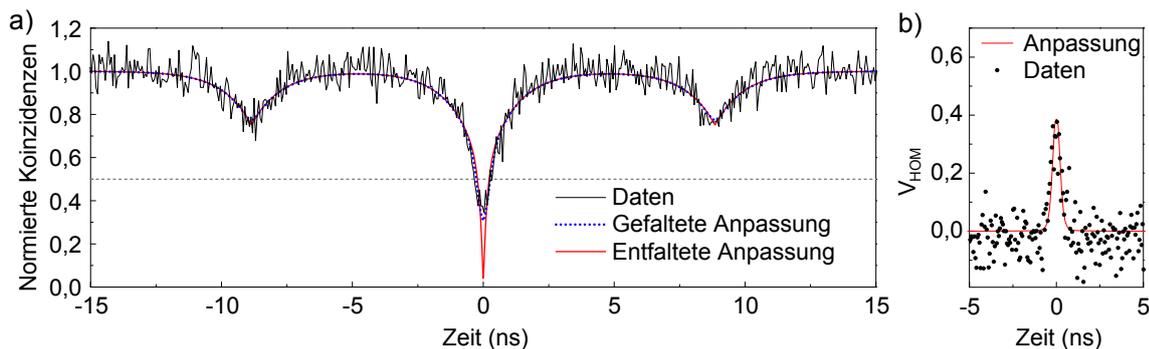
**Abbildung 6.2:** Emissionseigenschaften des Quantenpunktexzitons für nichtresonante Dauerstrichanregung. a) Das Emissionsspektrum zeigt die verwendete Exzitonlinie (X) bei ca. 930 nm. b) Die korrespondierende Autokorrelationsmessung in Dauerstrichanregung weist eine sehr gute Unterdrückung von Koinzidenzen bei  $\tau = 0$  auf. Um die endliche Zeitauflösung der Detektoren zu berücksichtigen, wurde die  $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion (Gleichung (6.1)) mit einer Gauß-Verteilung gefaltet. Diese Funktion (blaue gepunktete Linie) wurde an die experimentellen Daten (schwarze Linie) angepasst und daraus ein entfalteter Wert von  $g^{(2)}(0) < 0,01$  abgeleitet. Die rote durchgezogene Linie entspricht der entfalteten  $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion, die für eine unendlich hohe Zeitauflösung der Detektoren den Verlauf von  $g^{(2)}(\tau)$  beschreiben würde.

an diesem Exziton durchgeführt, die in Abbildung 6.2 b) gezeigt ist<sup>1</sup>. Es ist der für eine Einzelphotonenquelle typische Verlauf der Autokorrelationsfunktion  $g^{(2)}(\tau)$  mit einem exponentiellen Einfall der Koinzidenzereignisse symmetrisch um  $\tau = 0$  zu erkennen. Um aus den Daten den charakteristischen  $g^{(2)}(0)$ -Wert der Quelle zu ermitteln, wurde ein zweiseitiger exponentieller Zerfall mit einer Gaußverteilung gefaltet, welche die endliche Zeitauflösung der Detektoren berücksichtigt. Die gefaltete Funktion (blaue gepunktete Linie) wurde an die Daten (schwarze durchgezogene Linie) angepasst. Daraus erhält man die Lebensdauer des exzitonischen Zustands  $\tau_r = 1,09$  ns und  $g^{(2)}(0) < 0,01$ , was einer hochreinen Einzelphotonenemission entspricht. Die rote durchgezogene Linie stellt die entfaltete Autokorrelationsfunktion

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - \left(1 - g^{(2)}(0)\right) e^{-|\tau|/\tau_r} \quad (6.1)$$

dar, die für eine unendlich hohe Zeitauflösung der Detektoren den Verlauf von  $g^{(2)}(\tau)$  widerspiegeln würde. Um nun die Ununterscheidbarkeit der Photonen nachzuweisen, wurde das über das Spektrometer gefilterte Signal in das Interferometer aus Abbildung 6.1 a) eingekoppelt. Dabei werden mithilfe der Verzögerungsstrecke Photonen aus demselben Quantenpunkt mit einem zeitlichen Abstand von  $\delta\tau = 8,85$  ns am Strahlteiler zur Interferenz gebracht. Die experimentellen Ergebnisse sind in Abbildung 6.3 als schwarze

<sup>1</sup> Die addierten Detektionsraten von beiden Eingängen des TCSPC-Moduls betragen bei dieser Messung 90 kHz bei 60 min Integrationszeit.



**Abbildung 6.3:** Interferenz von zwei Photonen aus demselben Quantenpunkt unter Dauerstrichanregung. a) Experimentelle Daten der Korrelationsfunktion der Zwei-Photonen-Interferenz (schwarze durchgezogene Linie). Die blaue gepunktete Linie stellt die mit der Detektorzeitauflösung gefaltete Kurve dar, welche an die experimentellen Daten angepasst wurde, während die rote durchgezogene Linie die Korrelationsfunktion für eine unendlich hohe Zeitauflösung der Detektoren darstellt. b) Die Visibilität der Zwei-Photonen-Interferenz in Abhängigkeit der Zeit  $\tau$ . Für  $\tau = 0$  ergibt sich ein nachselektierter Wert von  $V_{HOM} = 0,39$ .

durchgezogene Linie dargestellt<sup>2</sup>. Bei  $\tau = 0$  kann eine Abnahme der Koinzidenzen auf einen Wert  $< 0,5$  abgelesen werden, was ein eindeutiges Zeichen dafür ist, dass die zur Interferenz gebrachten Photonen am Strahlteiler ununterscheidbar sind [Pat08, Ate09a]. Neben dem Antibunching bei  $\tau = 0$  sind noch zwei weitere Einbrüche in der Korrelationsfunktion erkennbar. Für  $|\tau| = 8,85$  ns ist ein Antibunching bis zu einem Wert von  $g_{HOM,cw}^{(2)} = 0,75$  zu erkennen, was einer Autokorrelationsmessung am ersten Strahlteiler entspricht. Angenommen ein Photon geht nach dem ersten 50/50 Strahlteiler in den kurzen Arm des Interferometers und löst nach dem zweiten Strahlteiler ein Startsignal aus, so ist die Wahrscheinlichkeit, dass ein zweites Photon zum gleichen Zeitpunkt den längeren Weg geht und nach der Verzögerung von  $\delta\tau = 8,85$  ns ein Stoppsignal auslöst bei einer perfekten Einzelphotonenquelle gleich Null. Jedoch gibt es auch noch zweimal die Möglichkeit, dass beide Photonen in den gleichen Arm gehen und einmal, dass das erste Photon in den längeren Arm geht und das zweite Photon in den kürzeren Arm geht, sodass insgesamt mit einer Wahrscheinlichkeit von 75% eine Koinzidenz bei  $\delta\tau = 8,85$  ns gemessen werden kann. Die Tatsache, dass beide dieser Einbrüche auf den gleichen Wert abfallen, ist ein Zeichen für einen ausgeglichenen zweiten Strahlteiler.

Der Einbruch der Koinzidenzen um  $\tau = 0$  ist teilweise einer Art Autokorrelationsmessung am zweiten Strahlteiler geschuldet: beide Photonen werden mit einer Wahrscheinlichkeit von 50% am ersten Strahlteiler in denselben Arm geleitet, sodass in diesen Fällen keine Interferenz am Strahlteiler zu beobachten ist. Dabei ist die Wahrscheinlichkeit einer gleichzeitigen Detektion bei  $\tau = 0$  für eine perfekte Einzelphotonenquelle gleich Null, so-

<sup>2</sup> Die addierten Detektionsraten von beiden Eingängen des TCSPC-Moduls betragen bei dieser Messung 70 kHz bei 2 Stunden Integrationszeit.

dass es in 50% der Fälle kein gleichzeitiges Detektionsereignis gibt. Werden aufeinander folgende Photonen jedoch in unterschiedliche Arme des Interferometers gelenkt, können sie am letzten Strahlteiler interferieren. Sind die Photonen ununterscheidbar und ist zusätzlich der räumliche und zeitliche Überlapp der Photonenwellenpakete maximal, so werden sie einen idealen 50/50 Strahlteiler immer in dieselbe Richtung verlassen. Es werden also bei  $\tau = 0$  für eine perfekte Einzelphotonenquelle und ununterscheidbare Photonen keine Koinzidenzen erwartet. Sendet eine perfekte Einzelphotonenquelle hingegen unterscheidbare Photonen aus, so entspricht dies, aufgrund der Aufteilung der Photonen am ersten Strahlteiler und der zeitlichen Verzögerung der Photonen in einem Arm, einer Autokorrelationsmessung an einer Zweiphotonenquelle. Deshalb nimmt die Korrelationsfunktion nach Gleichung (2.20) für unterscheidbare Photonen den Wert  $g^{(2)}(0) = 0,5$  an.

Die experimentellen Daten können mit folgender Gleichung beschrieben werden [Pat08]

$$\begin{aligned}
 g_{\text{HOM,cw}}^{(2)}(\tau) &= 4 \left( T_1^2 + R_1^2 \right) R_2 T_2 g^{(2)}(\tau) \\
 &\quad + 4 R_1 T_1 \left[ T_2^2 g^{(2)}(\tau - \delta\tau) + R_2^2 g^{(2)}(\tau + \delta\tau) \right] \\
 &\quad \times \left( 1 - V e^{-2|\tau|/\tau_c} \right), \tag{6.2}
 \end{aligned}$$

dabei sind  $R_{1,2} = 0,5$  und  $T_{1,2} = 0,5$  die Reflexions- und Transmissionskoeffizienten des ersten bzw. zweiten Strahlteilers,  $g^{(2)}(\tau)$  die Autokorrelationsfunktion aus Gleichung (6.1),  $\tau_c$  die Kohärenzzeit der Exzitonlinie und  $V$  der räumliche Überlapp am Strahlteiler, der für den verwendeten Glasfaserstrahlteiler  $V = 1$  gesetzt werden kann. Zur korrekten Beschreibung der Daten wurde Gleichung (6.2) mit der Detektorzeitauflösung gefaltet und an das Experiment angepasst. Dabei wurde die Kohärenzzeit als einziger Parameter variiert sowie  $g^{(2)}(0) = 0$  und  $\tau_r = 1,09$  ns aus der Anpassung der Autokorrelationsmessung entnommen. Die Anpassung (blaue gepunktete Linie) ergibt eine Kohärenzzeit von  $\tau_c = 263 \pm 30$  ps und  $g_{\text{HOM,cw}}^{(2)}(0) = 0,31 < 0,5$ . Dabei ist die Tiefe der Abnahme der Koinzidenzen allein durch die Zeitauflösung der Detektoren begrenzt. Der Verlauf für unendlich hohe Zeitauflösung, der in Abbildung 6.3 a) durch die rote durchgezogene Kurve dargestellt ist, geht gegen Null für  $\tau \rightarrow 0$  [Kir05].

Um die Visibilität der Zwei-Photonen-Interferenz zu bestimmen, dreht man für gewöhnlich die Polarisation der Photonen in einem Arm um  $90^\circ$ , sodass die am Strahlteiler interferierenden Photonen perfekt unterscheidbar sind [Ben08, Ate09a, Pat10b]. In diesem Fall ergibt sich die Visibilität aus

$$V_{\text{HOM}}(\tau) = \frac{g_{\text{HOM},\perp}^{(2)}(\tau) - g_{\text{HOM},\parallel}^{(2)}(\tau)}{g_{\text{HOM},\perp}^{(2)}(\tau)}, \tag{6.3}$$

wobei  $g_{\text{HOM},\perp}^{(2)}(\tau)$  die Korrelationsfunktion für senkrecht zueinander polarisierte Photonen und  $g_{\text{HOM},\parallel}^{(2)}(\tau)$  für parallel polarisierte Photonen ist. Da dieses Experiment jedoch nicht

durchgeführt werden konnte<sup>3</sup>, wird statt  $g_{\text{HOM},\perp}^{(2)}(\tau)$  der aus Gleichung (6.2) simulierte Verlauf  $g_{\text{HOM},\text{cw}}^{(2)}(\tau, V = 0)$  für einen verschwindenden räumlichen Überlapp der Photonen verwendet, der dem Verlauf für unterscheidbare Photonen entspricht. Die experimentellen Ergebnisse sind als schwarze Kreise zusammen mit der angepassten Kurve (rote durchgezogene Linie) in Abbildung 6.3 b) dargestellt. Für eine große Zeitdifferenz zwischen den eintreffenden Photonen  $|\tau| > 700$  ps geht  $V_{\text{HOM}} \rightarrow 0$ . Für gleichzeitig eintreffende Photonen ( $\tau = 0$ ) dagegen besitzt  $V_{\text{HOM}}$  einen Maximalwert von 39%. Dieser Wert ist vergleichbar mit den Literaturwerten für die Interferenz von Photonen aus demselben Quantenpunkt unter nichtresonanter optischer Dauerstrichanregung  $V_{\text{HOM,Lit}} = 33\%$  [Ate12], elektrischer DC Anregung 33% [Pat08] sowie 52% [Ste12] und etwas geringer als unter resonanter Dauerstrichanregung 60% [Ate09a].  $V_{\text{HOM}}(\tau = 0)$  wird auch nachselektierte Visibilität genannt, da nur Detektionsereignisse betrachtet werden, bei denen die Photonen gleichzeitig am Strahlteiler aufgetroffen sind. Für eine unendlich hohe Zeitauflösung der Detektoren, perfekte Einzelphotonenquellen mit  $g^{(2)}(0) = 0$ , einen idealen räumlichen Überlapp der Photonenwellenpakete am Strahlteiler  $V = 1$  und ununterscheidbare Photonen ist  $V_{\text{HOM}}(\tau = 0) = 1$  unabhängig von der Kohärenz- und radiativen Zerfallszeit des exzitonischen Zustands.

Eine Vielzahl von quantenoptischen Anwendungen benötigen eine Lichtquelle, die durch einen optischen oder elektrischen Puls ausgelöst, einzelne und ununterscheidbare Photonen aussendet [Kok07, O'B07, Kim08, Pan12, San11], weswegen im folgenden Abschnitt die Interferenz von Photonen aus demselben Quantenpunkt unter gepulster Anregung untersucht wird.

### 6.1.3 Interferenz von Photonen aus einem Quantenpunkt unter gepulster Anregung

Für die Zwei-Photonen-Interferenz aus demselben Quantenpunkt unter gepulster Anregung werden die Photonen nach dem spektralen Filtern in das in Abbildung 6.1 b) skizzierte Interferometer eingekoppelt. Hierbei besteht die Möglichkeit, Photonen, die aus zwei aufeinanderfolgenden Anregungspulsen des Lasers erzeugt wurden, am letzten Strahlteiler gleichzeitig zur Interferenz zu bringen (vgl. Abschnitt 6.1.1). Zusätzlich kann eine Zeitdifferenz  $\delta\tau$  zwischen den Photonen über eine variable optische Verzögerungsstrecke eingestellt werden. Zunächst wird die Zwei-Photonen-Interferenz unter nichtresonanter Anregung untersucht.

<sup>3</sup> Die Lichtwellenleiter des polarisationserhaltenden Faserstrahlteilers führen nur Licht mit einer Polarisation parallel zur langsamen Achse der Faser. Die Polarisationsrichtung senkrecht zu dieser ist geblockt.

### Nichtresonante Anregung in die Benetzungsschicht

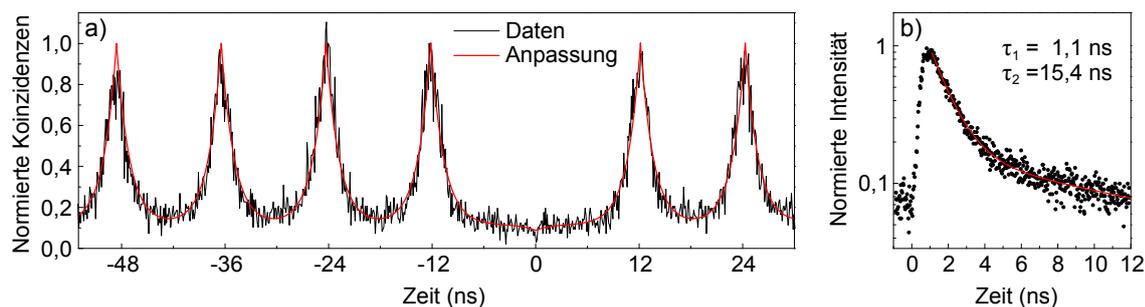
Für die nichtresonante gepulste Anregung wurde erneut das bereits im vorherigen Abschnitt 6.1.2 untersuchte Quantenpunktexziton verwendet. Die Anregung des Quantenpunktes erfolgte bei einer Wellenlänge von 850 nm mit einer Pulsfrequenz von 82 MHz und einer Pulsbreite von 1 – 2 ps. Zunächst wurde die Lichtquelle in einem HBT-Aufbau auf ihre Eigenschaft als Einzelphotonenquelle unter gepulster nichtresonanter Anregung untersucht.

In Abbildung 6.4 a) ist die gemessene Autokorrelationsfunktion  $g^{(2)}(\tau)$  für eine Anreizungsleistung von 30  $\mu\text{W}$  und eine Probertemperatur von 6 K als schwarze, durchgezogene Linie dargestellt<sup>4</sup>. Der fehlende Peak bei  $\tau = 0$  ist ein eindeutiges Zeichen für Einzelphotonenemission. Die restlichen Peaks in der gemessenen Korrelationsfunktion sind um den Pulsabstand von 12,2 ns des anregenden Lasers zeitlich getrennt. Neben den erhöhten Koinzidenzen für die eben erwähnten Pulsabstände ist weiterhin ein nahezu konstanter Beitrag von ca. 0,15 zur Korrelationsfunktion für  $|\tau| < 0$  zu erkennen. Dieser Beitrag kann nicht auf ein Hintergrundsignal aufgrund einer erhöhten Dunkelzählrate oder Beiträge von umliegenden Quantenpunkten zur eingesammelten Emission zurückgeführt werden. Dadurch liegt die Vermutung nahe, dass es sich hierbei um einen Wiederbefüllungsprozess des Quantenpunktes handeln muss [San04, Aic04, Pet07]: Durch die nichtresonante Anregung werden in der räumlichen Umgebung des Quantenpunktes eine Vielzahl von Ladungsträgern erzeugt. Zunächst wird nach kurzer Einfangzeit von wenigen Picosekunden ein erstes Elektron-Loch-Paar vom Quantenpunkt eingefangen, welches nach der radiativen Lebensdauer von ca. 1 ns unter Aussendung eines Photons rekombinieren kann. Die restlichen Ladungsträger sind in der Zwischenzeit noch nicht komplett aus dem räumlichen Einfangbereich des Quantenpunktes diffundiert. Der Quantenpunkt kann daher ein weiteres Elektron-Loch-Paar einfangen und nach einer Zeit von ca. 1 ns erneut ein Photon aussenden. In Abbildung 6.4 b) ist eine zeitaufgelöste Photolumineszenzmessung der untersuchten Exzitonlinie unter nichtresonanter Anregung bei einer Leistung von  $P = 5 \mu\text{W}$  dargestellt. Das Wiederbefüllen des Quantenpunktes äußert sich in einem exponentiellen Zerfall zweiter Ordnung. Eine Anpassung der experimentellen Daten (rote Linie) mit

$$I(\tau) = A_1 e^{-\frac{\tau}{\tau_1}} + A_2 e^{-\frac{\tau}{\tau_2}} \quad (6.4)$$

liefert die beiden Abklingzeiten  $\tau_1 = (1,1 \pm 0,2)$  ns und  $\tau_2 = (15,4 \pm 1,9)$  ns. Eine Leistungsabhängigkeit von  $\tau_2$ , eine für diese Probe unabhängig von diesen Ergebnissen gemessene sehr große Elektronendiffusionslänge sowie das Ausbleiben des konstanten Beitrags in der Autokorrelationsmessung für quasiresonante Anregung (siehe Abschnitt 6.1.3) un-

<sup>4</sup> Die addierten Detektionsraten von beiden Eingängen des TCSPC-Moduls betragen bei dieser Messung 27 kHz bei 45 min Integrationszeit.



**Abbildung 6.4:** a) Autokorrelationsmessung an einem Quantenpunktexziton unter nichtresonanter, gepulster Anregung bei 850 nm und einer Proben temperatur von 6 K. Die experimentellen Daten sind als schwarze und die Anpassung als rote Linie dargestellt. b) Zeitaufgelöste Photolumineszenzmessung der untersuchten Exzitonlinie unter nichtresonanter Anregung bei einer Leistung von  $P = 5 \mu\text{W}$ . Die experimentellen Daten (schwarze Kreise) können mit einem exponentiellen Zerfall zweiter Ordnung (rote Linie) angepasst werden, der die beiden Abklingzeiten  $\tau_1 = (1,1 \pm 0,2) \text{ ns}$  und  $\tau_2 = (15,4 \pm 1,9) \text{ ns}$  ergibt.

terstützen diese Vermutung.

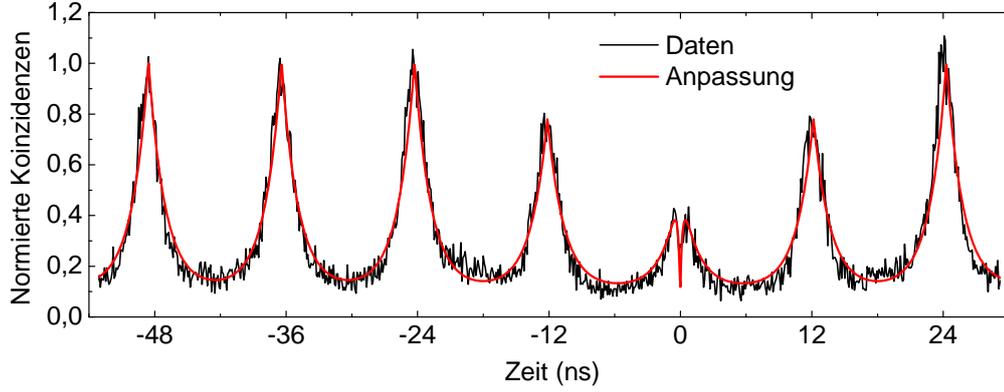
Zur Bestimmung des  $g^{(2)}(0)$ -Wertes der Emission werden die Daten mit einer Funktion angepasst, die zum einen den konstanten Beitrag, der das Wiederbefüllen der Quantenpunkte berücksichtigt, enthält sowie die gepulste Emissionscharakteristik beschreibt:

$$g^{(2)}(\tau) = (1 - C) \left( \sum_{n=-2}^4 e^{-\frac{|\tau+n\Delta t|}{\tau_r}} - (1 - g)e^{-\frac{|\tau|}{\tau_r}} \right) + \left( C - (C - g)e^{-\frac{|\tau|}{\tau_r}} \right). \quad (6.5)$$

In Gleichung (6.5) beschreibt  $C$  die Höhe des konstanten Beitrags und  $\Delta t$  den Pulsabstand des Lasers. Die Anpassung der Daten ergibt  $g^{(2)}(0) = 0,05 \pm 0,01$  mit  $C = 0,11$ ,  $\tau_r = 1,50 \text{ ns}$  und  $\Delta t = 12,14 \text{ ns}$ .

In Abbildung 6.5 ist die gemessene Korrelationsmessung  $g_{\text{HOM}}^{(2)}(\tau)$  der Zwei-Photonen-Interferenz für Emission aus demselben Quantenpunkt unter gepulster nichtresonanter Anregung bei einer Proben temperatur von 6 K als schwarze durchgezogene Linie dargestellt<sup>5</sup>. Die Korrelationsfunktion ist auf den durchschnittlichen Maximalwert der Koinzidenzen für die Ereignisse bei  $|\tau| = n \cdot 12,2 \text{ ns}$  für  $n \geq 2$  normiert ( $n \in \mathbb{N}$ ). Im Gegensatz zum vorhergehenden Abschnitt 6.1.3 nimmt  $g_{\text{HOM}}^{(2)}(\tau)$  nicht bei  $|\tau| = 8,85 \text{ ns}$  den Wert 0,75 an, sondern bei  $|\tau| = 12,2 \text{ ns}$ , da die optische Verzögerungsstrecke an den Pulsabstand des Lasers 12,2 ns angepasst wurde, um Photonen aus aufeinanderfolgenden Pulsen zur Interferenz zu bringen. Die Koinzidenzen um  $\tau = 0$  haben einen Höchstwert von ca. 0,4. Dies ist ein eindeutiger Beweis dafür, dass die zur Interferenz gebrachten Photonen ununterscheidbar sind. Des Weiteren kann man exakt bei  $\tau = 0$  eine schmale Abnahme der Koinzidenzen erkennen. Die Breite dieser Abnahme ist durch die Kohärenzzeit

<sup>5</sup> Die addierten Detektionsraten von beiden Eingängen des TCSPC-Moduls betragen bei dieser Messung 20 kHz bei 3,5 Stunden Integrationszeit.



**Abbildung 6.5:** Korrelationsmessung der Interferenz von Photonen aus aufeinanderfolgenden Pulsen. Die experimentellen Daten sind als schwarze Linie dargestellt. Eine Anpassung der experimentellen Daten mit Gleichung (6.5) (rote Linie) liefert eine Visibilität von 12%.

des Quantenpunktexzitons bestimmt und nimmt mit steigender Kohärenzzeit zu. Im Fall von Fourier-Transformations-limitierten Photonen würde der komplette Peak um  $\tau = 0$  verschwinden (siehe Abbildung 2.6). Wie schon in der Autokorrelationsmessung (Abbildung 6.4 a) ist auch hier ein konstanter Beitrag zur Korrelationsfunktion zu erkennen, der wiederum auf ein Wiederbefüllen der Quantenpunkte zurückgeführt wird.

Um den nicht nachselektierten Wert  $g_{\text{HOM,nns}}^{(2)}$  der Zwei-Photonen-Interferenz zu bestimmen, wird die Anzahl der Koinzidenzen  $A_0$  im Bereich  $|\tau| < 6,1$  ns um den  $\tau = 0$ -Peak durch die gemittelte Anzahl der Koinzidenzen  $A_s$  von vier Peaks für  $\tau \geq 24,4$  ns geteilt:

$$g_{\text{HOM,nns}}^{(2)}(0) = \frac{A_0}{(A_{-24,4} + A_{+24,4} + A_{+36,6} + A_{+48,8})/4} = \frac{A_0}{A_s} = 0,54 > 0,5. \quad (6.6)$$

Obwohl der  $\tau = 0$ -Peak eine Struktur aufweist, die auf ununterscheidbare Photonen schließen lässt, ist dieser Wert größer als der für unterscheidbare Photonen erwartete Wert von 0,5. Der Grund hierfür ist das Wiederbefüllen der Quantenpunkte, das zu zusätzlichen Koinzidenzen für  $\tau > 0$  führt und somit die Korrelationsfunktion für gepulste Anregung verfälscht. Jedoch kann eine Anpassung der Daten über ein Modell erfolgen, das ein Wiederbefüllen der Quantenpunkte, sowie die Struktur des  $\tau = 0$ -Peaks aus Ref. [Byl03] berücksichtigt. In Abbildung 6.5 ist die Anpassung als rote durchgezogene Linie gezeigt. Die Anpassung an die Daten ergibt eine Kohärenzzeit von  $\tau_c = (380 \pm 50)$  ps und eine Lebensdauer von  $\tau_r = 1,5$  ns, was in die Definition der Visibilität (siehe Gleichung (2.50)) eingesetzt einen Wert von  $v_{\text{hom}} = 12\%$  ergibt. Aus den experimentellen Daten kann man analog zu Abschnitt 6.1.3 den nachselektierten Wert der Visibilität der Zwei-Photonen-Interferenz bestimmen, der sich aus  $V_{\text{HOM}}(\tau = 0) = (0,5 - g_{\text{HOM}}^{(2)}(\tau = 0))/0,5 = 42\%$  berechnen lässt.

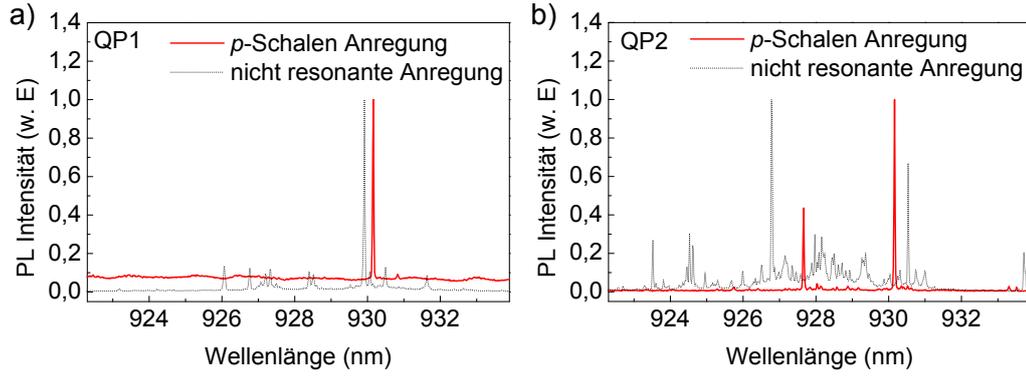
### Quasiresonante Anregung

**Emissionsspektrum:** Wie im vorherigen Abschnitt 6.1.3 dargelegt, kann ein Wiederbefüllen der Quantenpunkte mit Ladungsträgern, nach einem ersten Anregungspuls mit anschließender Rekombination, die nicht nachselektierte Visibilität der Zwei-Photonen-Interferenz reduzieren. Werden die Ladungsträger jedoch quasiresonant in die  $p$ -Schale des Quantenpunktes angeregt, so umgeht man das Wiederbefüllen des Quantenpunktes, da die Anregungsenergie der Photonen zu gering ist, um in der GaAs-Matrix oder in der Benetzungsschicht Ladungsträger zu generieren. Zusammen mit den in Abschnitt 3.2.1 aufgelisteten Vorteilen führt dies zu einer erhöhten Visibilität der Zwei-Photonen-Interferenz, wie im Folgenden ersichtlich wird.

Neben dem im vorherigen Abschnitt untersuchten Quantenpunkt (QP1) wird im Hinblick auf das anschließende Unterkapitel über Experimente zur Zwei-Photonen-Interferenz aus räumlich getrennten Quellen ein zweiter Quantenpunkt untersucht, der im Folgenden als QP2 bezeichnet wird. Beide Quantenpunkte können bei der gleichen Wellenlänge des gepulsten Lasers  $\lambda = 911$  nm in die  $p$ -Schale angeregt werden. In Abbildung 6.6 sind normierte Photolumineszenzspektren der beiden Quantenpunkte bei einer Proben temperatur von 4,5 K unter nichtresonanter bzw.  $p$ -Schalen-Anregung dargestellt.

Die nichtresonante Anregung erfolgte für beide Quantenpunkte in die Benetzungsschicht bei einer Wellenlänge von ca. 850 nm. Die dazugehörigen Spektren sind in Abbildung 6.6 als schwarze gepunktete Linie dargestellt. Obwohl QP1 sich unterhalb einer größeren ( $d = 2$   $\mu\text{m}$ ) Apertur in der Aluminium Lochmaske befindet als QP2 ( $d=1,6$   $\mu\text{m}$ ), weist das von QP2 aufgenommene Spektrum in Abbildung 6.6 a) eine deutlich höhere spektrale Dichte von Exzitonlinien auf als das von QP1 in Abbildung 6.6 b). Der Grund hierfür liegt in einer erhöhten Anhäufung von Quantenpunkten an gaußförmigen Defekten, die sich im Schichtwachstum speziell dieser Probe ausbilden [Mai14]. Dadurch kommt es zu einer stark inhomogenen Verteilung der Quantenpunkte in der aktiven Schicht der planaren Struktur.

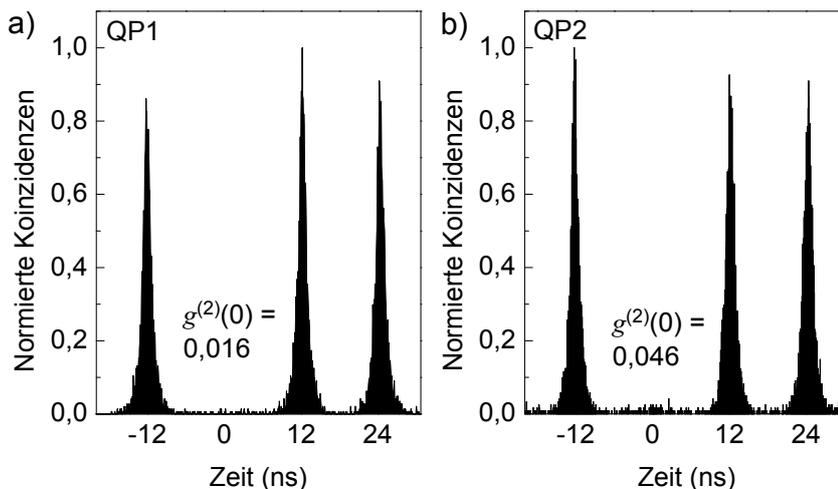
Der Vorteil der  $p$ -Schalen-Anregung wird deutlich, wenn man die Anzahl der Emissionslinien für beide Anregungsarten vergleicht. Für QP1 ist nur noch eine und für QP2 nur noch zwei intensive Emissionslinien im Spektrum (rote durchgezogene Linie) vorhanden. In beiden Spektren unter  $p$ -Schalen-Anregung ist eine Exzitonlinie bei 930,1 nm zu erkennen. Die spektrale Nähe dieser beiden Linien wird in Abschnitt 6.2 das Angleichen der Emissionsenergien über eine geringe Temperaturerhöhung ermöglichen, um die emittierten Photonen von beiden Quantenpunkten ununterscheidbar zu machen. Der erhöhte Untergrund in  $p$ -Schalen Anregung bei QP1 wird durch den Ausläufer des gepulsten Lasers verursacht, der in diesem Fall nicht optimal unterdrückt werden konnte. Weiterhin fällt auf, dass die Exzitonlinien in quasiresonanter Anregung gegenüber nichtresonanter Anregung spektral leicht verschoben sind. Dies wird auf eine Änderung der elektrostatischen Umgebung der Quantenpunkte und damit über eine Verschiebung des Energieniveaus durch den Stark-Effekt für beide Anregungsbedingungen zurückgeführt.



**Abbildung 6.6:** Normierte Photolumineszenzspektren unter nichtresonanter Anregung in die Benetzungsschicht (schwarze gepunktete Linie) und quasiresonanter Anregung (rote durchgezogene Linie) von a) QP1 und b) QP2. Der erhöhte Untergrund in  $p$ -Schalen-Anregung bei QP1 wird durch den Ausläufer des gepulsten Lasers verursacht, der in diesem Fall nicht optimal unterdrückt werden konnte.

**Charakterisierung der Einzelphotonenemission:** Im Folgenden werden beide Quantenpunktexzitonen auf ihre Eigenschaften als Einzelphotonenemitter hin geprüft. In Abbildung 6.7 ist die Autokorrelationsmessung an QP1 (a) und QP2 (b) für quasiresonante Anregung in Sättigung des Übergangs bei einer Proben temperatur von je 4,5 K gezeigt. Die addierten Detektionsraten für a) bzw. b) betragen 48,4 kHz bzw. 18,8 kHz auf beiden Kanälen des TCSPC-Moduls und es wurde über einen Zeitraum von 30 min bzw. 2,5 Stunden integriert. Die stark reduzierten Koinzidenzen um  $\tau = 0$  sind ein Beleg für eine sehr gute Unterdrückung von Mehrfachphotonenemission. Um die Qualität der Einzelphotonenemission quantitativ zu erfassen, wurde der  $g^{(2)}(0)$ -Wert aus den Daten ermittelt, indem die Anzahl der Koinzidenzen  $A_0$  im Bereich  $|\tau| < 6,1$  ns um  $\tau = 0$  durch die gemittelten Koinzidenzen  $A_s$  von drei Peaks für  $\tau > 0$  geteilt wurde. Die Werte  $g_{QP1}^{(2)}(0) = 0,016$  und  $g_{QP2}^{(2)}(0) = 0,046$  liegen deutlich unter dem Grenzwert 0,5 für eine Zweiphotonenquelle. Beide Werte sind nicht durch Abzug von Dunkelzählereignissen korrigiert. Vergleicht man die Autokorrelationsmessung von QP1 unter  $p$ -Schalen-Anregung und nichtresonanter Anregung in die Benetzungsschicht (Abbildung 6.4), so fällt auf, dass der konstante Beitrag durch ein Wiederbefüllen der Quantenpunkte nicht mehr auftritt. Dadurch ist die Wahrscheinlichkeit eines Start-Stopp-Ereignisses, das zeitlich zwischen zwei Anregungspulsen liegt, stark reduziert und es treten klar abgegrenzte Peaks in der Autokorrelationsmessung auf. In diesem Fall ist keine Anpassung der Daten wie in Kapitel 6.1.3 erforderlich und der  $g^{(2)}(0)$ -Wert kann direkt aus der Anzahl der Koinzidenzen berechnet werden.

**Lebensdauer und Kohärenzzeit:** Für die Zwei-Photonen-Interferenz wichtige Eigenschaften der Einzelphotonenquellen sind die Lebensdauer  $\tau_r$  und die Kohärenzzeit  $\tau_c$  der ausgesendeten Photonen. Die Lebensdauer der Photonen lässt sich über eine zeitaufgelöste Photolumineszenzmessung bestimmen. Dabei wird das Triggersignal des Lasers als



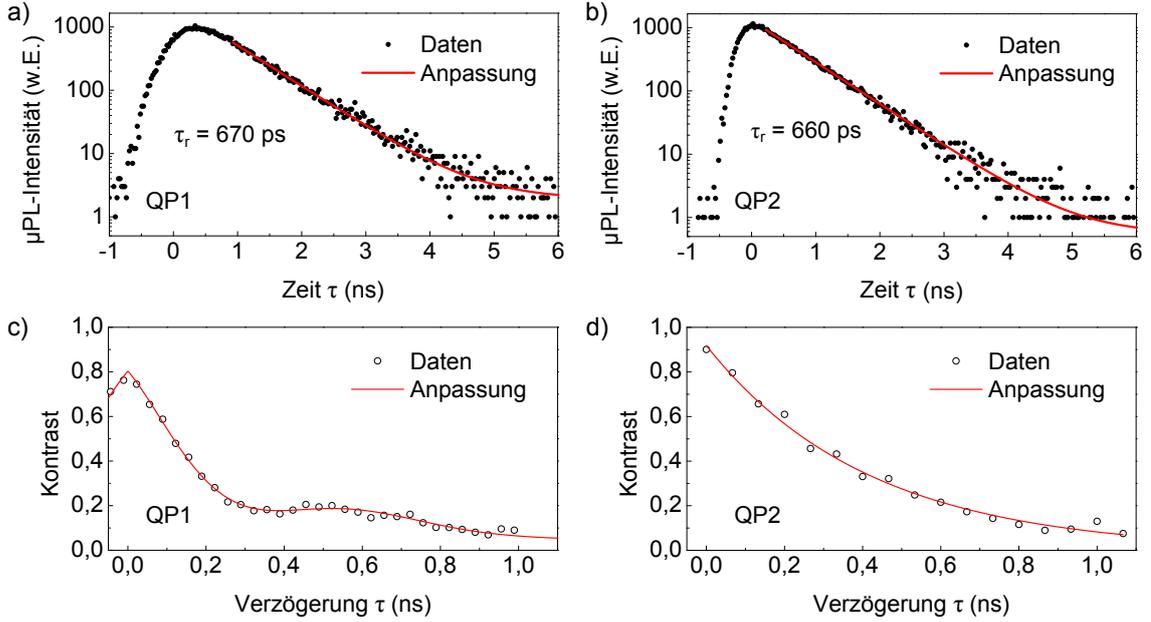
**Abbildung 6.7:** Autokorrelationsmessung unter gepulster  $p$ -Schalen-Anregung an der Exzitonlinie von a) QP1 und b) QP2. Beide Quantenpunkte zeigen eine hochreine Einzelphotonenemission mit  $g_{\text{QP1}}^{(2)}(0) = 0,016$  und  $g_{\text{QP2}}^{(2)}(0) = 0,046$ .

Startimpuls der Zeitmessung an das TCSPC-Modul gegeben und die Detektionspulse einer APD als Stoppsignal verwendet.

In Abbildung 6.8 a) und b) ist der zeitliche Verlauf der Photolumineszenzintensität für QP1 und QP2 bei einer Proben temperatur von  $T = 4,5$  K unter  $p$ -Schalen-Anregung als schwarze Punkte dargestellt. Durch die Anpassung eines exponentiellen Abfalls  $I = y_0 + A e^{-\frac{t}{\tau}}$  (rote durchgezogene Linie) an die Datenpunkte erhält man die radiativen Lebensdauern von QP1 und QP2 zu  $\tau_{r,\text{QP1}} = (670 \pm 20)$  ps und  $\tau_{r,\text{QP2}} = (660 \pm 20)$  ps.

Die Kohärenzzeit der Quantenpunktemission wurde mithilfe eines Michelson-Interferometers (vgl. Abschnitt 2.3.1) gemessen. In Abbildung 6.8 c) und d) ist der Interferenzkontrast in Abhängigkeit des Interferometerarmlängenunterschiedes  $\tau = \Delta L/c$  für Emission von QP1 und QP2 aufgetragen. Die Proben temperatur betrug in beiden Fällen  $T = 4,5$  K. Aus polarisationsabhängigen Messungen ist bekannt, dass die Photonen aus QP1 von einem neutralen Exziton stammen und die aus QP2 von einem geladenen Exziton. Dementsprechend erhält man für QP1 eine Oszillation in der Kontrastfunktion, deren Periode invers mit der Feinstrukturaufspaltung zusammenhängt [San02]. Durch eine Anpassung an die Daten mit der Fourier-Transformierten von zwei lorentzförmigen Spektrallinien erhält man die Feinstrukturaufspaltung  $\Delta E = 9,2$   $\mu\text{eV}$  sowie die Kohärenzzeiten der Feinstruktur-aufgespaltenen Linien zu  $\tau_{c_1,\text{QP1}} = 330$  ps und  $\tau_{c_2,\text{QP1}} = 180$  ps<sup>6</sup>. Für alle späteren Zwei-Photonen-Interferenz Messungen wurde die Exzitonlinie mit höherer Kohärenzzeit über einen Linearpolarisator selektiert. Da die Emission von QP2 von einem ge-

<sup>6</sup> Unabhängige Messungen der Feinstrukturaufspaltung mit einem Fabry-Perot-Interferometer ergaben einen Wert von  $\Delta E = 9,6$   $\mu\text{eV}$ . Die Tatsache, dass die Kohärenzzeiten für die feinstrukturaufgespaltenen Linien unterschiedlich groß sind, ist verwunderlich und die Ursache konnte im Rahmen dieser Arbeit nicht geklärt werden.



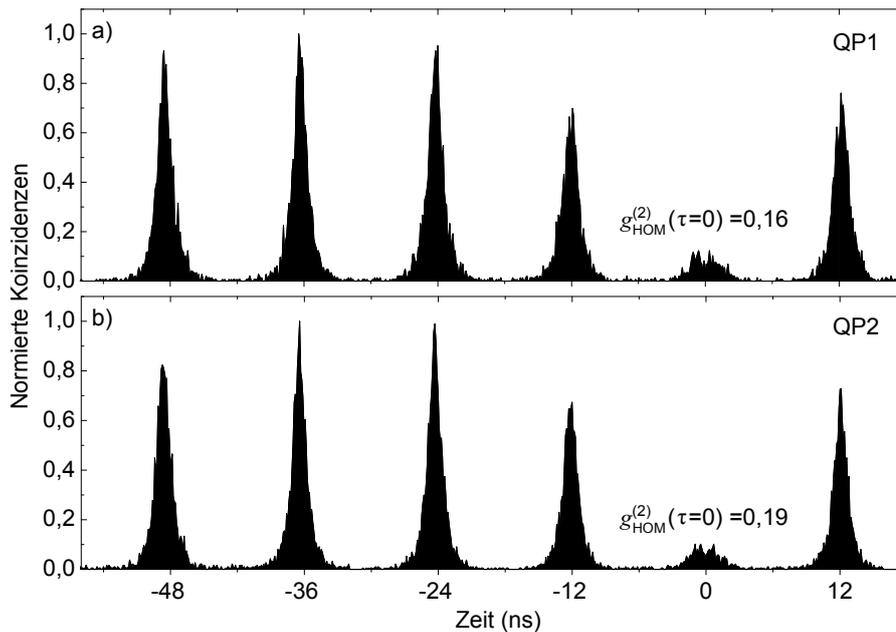
**Abbildung 6.8:** Charakteristische Zeiten der Emission der untersuchten Quantenpunktexzitonen unter gepulster  $p$ -Schalen-Anregung. In a) bzw. b) ist der zeitliche Verlauf der Photolumineszenzintensität von QP1 bzw. QP2 gezeigt. Die Anpassung der experimentellen Daten (schwarze Kreise) mit einem einfachen exponentiellen Abfall (rote Linie) ergibt die Lebensdauern von QP1 und QP2 zu  $\tau_{r,QD1} = (670 \pm 20)$  ps und  $\tau_{r,QD2} = (660 \pm 20)$  ps. Zur Messung der Kohärenzzeit wurde der Interferenzkontrast in Abhängigkeit des Interferometerpfadunterschieds für c) QP1 und d) QP2 gemessen.

ladenen Exziton stammt, zeigt der Interferenzkontrast keine Oszillationen, sondern einen exponentiellen Abfall mit einer  $1/e$  Kohärenzzeit von  $\tau_{c,QP2} = 420$  ps. Für beide Quantenpunkte ist die Linienbreite also nicht Fourier-Transformations-limitiert. Aus Gleichung 2.50 ergibt sich eine zu erwartende maximale Visibilität von

$$v_{\text{hom,max,QP1}} = 25\% \text{ bzw. } v_{\text{hom,max,QP2}} = 35\%. \quad (6.7)$$

**Zwei-Photonen-Interferenz:** Um die Photonen aus QP1 und QP2 unter gepulster  $p$ -Schalen-Anregung auf ihre Ununterscheidbarkeit hin zu testen, werden sie in einem Hong-Ou-Mandel Messaufbau zur Interferenz gebracht (siehe Abbildung 6.1 b). Die entsprechenden normierten Korrelationshistogramme für QP1 bzw. QP2 bei Proben Temperaturen von 8 K bzw. 5 K sind in Abbildung 6.9 a) bzw. b) für ein gleichzeitiges Auftreffen aufeinanderfolgender Pulse am Strahlteiler ( $\delta\tau \approx 0$ ) gezeigt<sup>7</sup>. In beiden Fällen sind die Koinzidenzen für den Peak bei  $\tau = 0$  stark reduziert. Weiterhin ist wie schon in Abschnitt 6.1.3 eine Struktur im  $\tau = 0$ -Peak zu erkennen, die weiter unten in diesem Abschnitt detaillierter behandelt wird. Die nicht nachselektierte Wahrscheinlichkeit  $g_{\text{HOM,nns}}^{(2)}(0)$ , dass

<sup>7</sup> Die addierten Detektionsraten von beiden Eingängen des TCSPC-Moduls betragen 30 kHz bei 60 min Integrationszeit für QP1 und 6 kHz bei 4 Stunden Integrationszeit für QP2.



**Abbildung 6.9:** Korrelationshistogramm für die Interferenz von zwei Photonen aus aufeinanderfolgenden Pulsen aus a) QP1 und b) QP2. Die Wahrscheinlichkeit einer gemeinsamen Detektion liegt bei 16% bzw. 19%.

die auf den Strahlteiler treffenden Photonen diesen in unterschiedliche Richtungen verlassen, ist analog zu Gleichung (6.6) durch die Koinzidenzen im Bereich  $|\tau| < 6,1$  ns geteilt durch die mittlere Anzahl der Koinzidenzen für vier Peaks bei  $|\tau| \geq 24,4$  ns gegeben. Ohne jegliche Korrektur der Daten ergibt sich aus den Rohdaten  $g_{\text{HOM,QD1}}^{(2)}(0) = 0,16$  und  $g_{\text{HOM,QD2}}^{(2)}(0) = 0,19 < 0,5$ , was ein Beweis für die Ununterscheidbarkeit der emittierten Photonen ist.

Um die für die Quanteninterferenz charakteristische Hong-Ou-Mandel Abnahme aufzunehmen, wurde die Korrelationsfunktion für unterschiedliche Zeitdifferenzen der am Strahlteiler auftreffenden Photonen gemessen. Die Zeitdifferenz  $\delta\tau$  wurde dabei über die variable Verzögerungsstrecke (siehe Abbildung 6.1 b) geändert. In Abbildung 6.10 a) und b) ist die Korrelationsfunktion der Zwei-Photonen-Interferenz für QP1 und QP2 unter Variation von  $\delta\tau$  aufgetragen. Für große Verzögerungen  $\delta\tau \approx +1,5$  ns kann man zwei Koinzidenzpulse um  $\tau = 0$  erkennen die je einen Maximalwert von ca. 0,25 erreichen. In diesem Fall ist die Zeitdifferenz zwischen den Photonenpulsen größer als die Lebensdauer der Exzitonen, sodass die Photonen aus aufeinanderfolgenden Pulsen am Strahlteiler nicht interferieren. Die Photonen verlassen dann den Strahlteiler unabhängig voneinander und in beide Ausgänge mit gleicher Wahrscheinlichkeit. Der  $g^{(2)}(0)$ -Wert hierfür grenzt deshalb an 0,5. Durch eine Verkürzung dieser Verzögerung auf Werte, die geringer sind als die zweifache Lebensdauer der Exzitonen, kommt es dazu, dass die Photonen vermehrt gleichzeitig am Strahlteiler zusammentreffen. In diesen Fällen verlassen ununterscheidbare Photonen den Strahlteiler nicht mehr unabhängig voneinander, sondern stets in den glei-

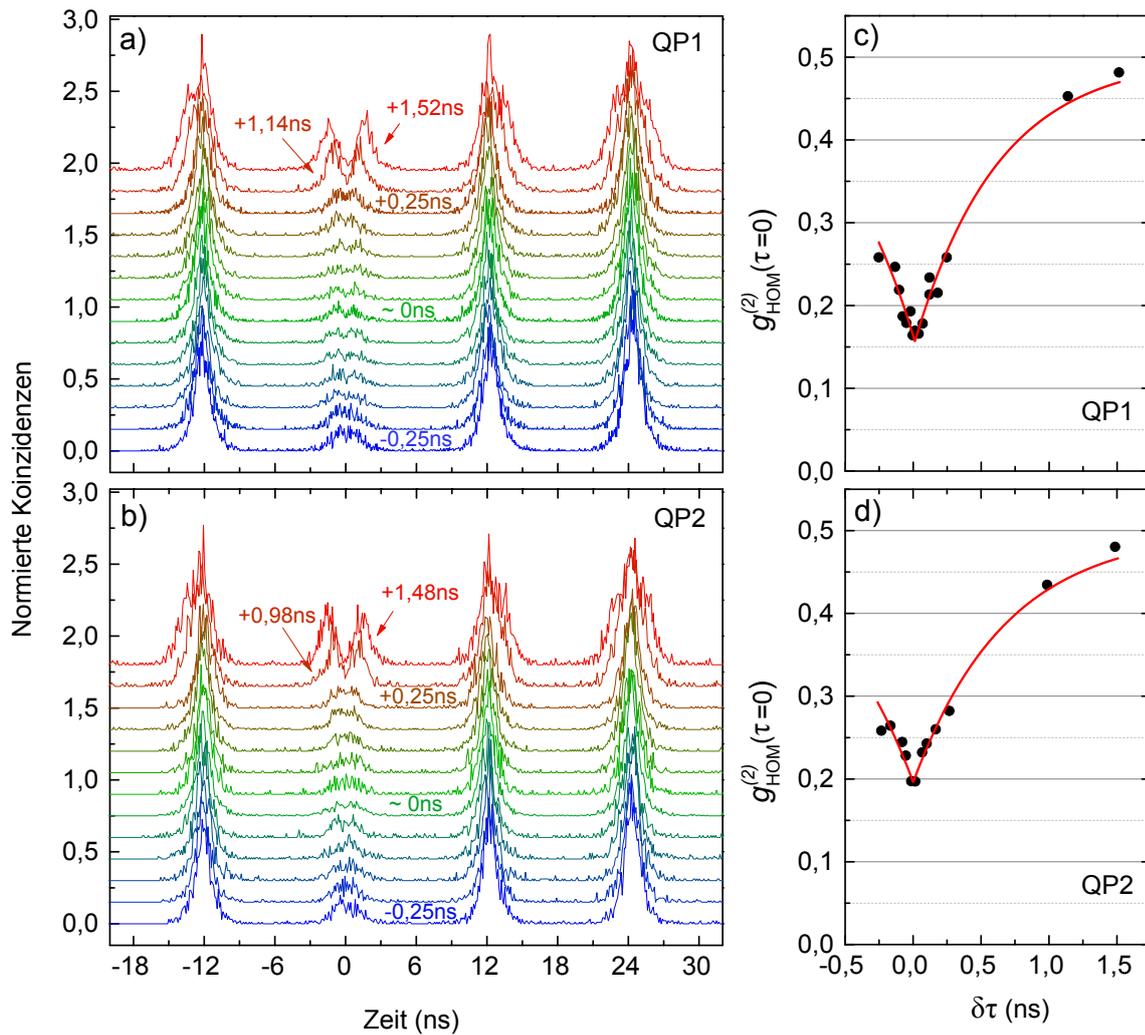
chen Ausgang, wodurch die gleichzeitige Detektion von zwei Photonen in unterschiedlichen Ausgängen des Strahlteilers reduziert wird. Folglich verringern sich die Koinzidenzen um  $\tau = 0$  mit einer Abnahme von  $\delta\tau$  und nehmen für  $\delta\tau = 0$  den minimalen Wert ein. Die verbleibenden Koinzidenzen für  $\delta\tau = 0$  kommen dadurch zustande, dass die Photonen nicht Fourier-Transformations-limitiert sind. Die tatsächliche Zeitdifferenz von zwei Photonenwellenpaketen, die am Strahlteiler zur Interferenz gebracht werden, kann selbst für  $\delta\tau = 0$  um die zweifache Lebensdauer schwanken. Sind die Photonen Fourier-Transformations-limitiert, so besitzen sie eine Kohärenzzeit die doppelt so lang ist wie ihre Lebensdauer und können selbst in diesem Fall noch am Strahlteiler interferieren. Ist die Kohärenzzeit jedoch geringer als die doppelte Lebensdauer, so kommt es nicht zur Interferenz und die Photonen verlassen den Strahlteiler in unterschiedliche Ausgänge.

Aus den Daten wurde für beide Quantenpunktexzitonen der nicht nachselektierte und nichtkorrigierte Wert  $g_{\text{HOM}}^{(2)}(\tau = 0, \delta t)$  entnommen und in Abhängigkeit der Verzögerung  $\delta\tau$  in Abbildung 6.10 c) und d) als schwarze Kreise aufgetragen. Es ist die charakteristische Hong-Ou-Mandel Abnahme der Zwei-Photonen-Interferenz für  $\delta\tau = 0$  zu erkennen. Die Daten können nach Referenz [San02] mit

$$g_{\text{HOM}}^{(2)}(\tau = 0, \delta\tau) = 0,5 \left[ 1 - v e^{-\frac{|\delta\tau|}{\tau_m}} \right] \quad (6.8)$$

angepasst werden, wobei die Weite der Koinzidenzabnahme um  $\delta\tau = 0$  durch  $\tau_m$  bestimmt wird. Aus der Anpassung, die in c) und d) als rote durchgezogene Linie dargestellt ist, ergibt sich für die Visibilität der Zwei-Photonen-Interferenz von QP1 bzw. QP2:  $v_{QP1} = (69 \pm 1) \%$  und  $v_{QP2} = (61 \pm 1) \%$ . Ein Vergleich zu den Zwei-Photonen-Interferenz Experimenten an QP1, die unter nichtresonanter Anregung durchgeführt wurden, zeigt eine starke Zunahme der Visibilität in  $p$ -Schalen-Anregung. Diese Erhöhung kann auf das verhinderte Wiederbefüllen des Quantenpunktes sowie die reduzierte Ladungsträgerkonzentration in der näheren Umgebung des Quantenpunktes für quasiresonante Anregung zurückgeführt werden. Für eine Einzelphotonenquelle die Fourier-Transformations-limitierte Photonen aussendet, würde  $\tau_m$  der Lebensdauer  $\tau_r$  entsprechen [San02]. Die Anpassung an die experimentellen Daten ergibt die Werte  $\tau_{m,QD1} = (630 \pm 60)$  ps und  $\tau_{m,QD2} = (680 \pm 60)$  ps, welche im Bereich der jeweiligen Lebensdauern der Exzitonen liegen.

Die unter  $p$ -Schalen-Anregung gemessenen Visibilitäten für QP1 und QP2 sind vergleichbar mit denen, die für Quantenpunkte in Mikrosäulenresonatoren erzielt wurden. In diesen Experimenten wurde der Purcell-Effekt ausgenutzt, um das Verhältnis  $\frac{\tau_r}{2\tau_c}$  durch eine Abnahme der Lebensdauer zu verbessern: 69% [San02], 75% [Var05], 60% [Wei11], 72% [Poo12] und 80% [Gaz13]. Die Anregung der Quantenpunkte fand in allen Referenzen ebenfalls quasiresonant in eine höhere Schale der Quantenpunkte oder bei der Energie des LO-Phonons statt. Eine ähnliche Visibilität von 60% wurde außerdem für eine elektrisch betriebene Quantenpunkt LED erzielt, bei der die Emission des Quantenpunktes über

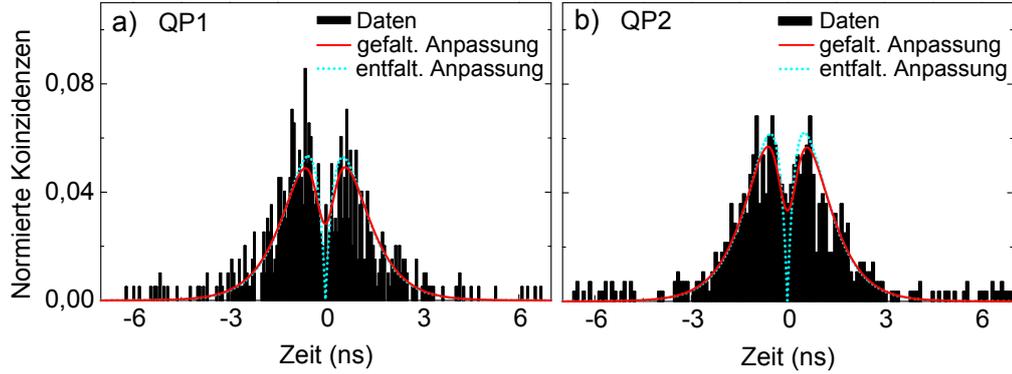


**Abbildung 6.10:** Messung der Korrelationsfunktion der Interferenz von zwei Photonen aus demselben Quantenpunkt unter gepulster  $p$ -Schalen-Anregung für unterschiedliche Zeitdifferenz  $\delta\tau$  zwischen den Pulsen für a) QP1 und b) QP2. Aus den Daten kann die für die Zwei-Photonen-Interferenz charakteristische Hong-Ou-Mandel Abnahme für c) QP1 und d) QP2 gewonnen werden. Eine Anpassung mit Gleichung (6.8) an die experimentellen Daten (schwarze Kreise) ergibt die Visibilitäten der Zwei-Photonen-Interferenz für QP1 und QP2 zu  $v_{QP1} = (69 \pm 1) \%$  und  $v_{QP2} = (61 \pm 1) \%$ .

die elektrischen Anregungspulse zeitlich selektiert wurde. Geringere Visibilitäten von 2% und 38% wurden bei einem Quantenpunkt in einem Mikroscheibenresonator ohne und mit zeitlichem Filtern der Emission über einen elektro-optischen Modulator erzielt [Ate13].

Um höhere Werte zu erreichen, ist eine strikt resonante Anregung in die  $s$ -Schale der Quantenpunkte nötig. Hierdurch konnten Visibilitäten von 92,6% für geringe Anregungsleistungen im Heitler-Regime [Mat13] und 93% [He13b] für Anregungsleistungen, bei denen der Quantenpunkt nahe der Sättigung betrieben wurde, erreicht werden.

Eine Nahansicht des  $\tau = 0$ -Peaks der Zweiphotonenkorrelationsmessung für eine Verzögerung von  $\delta\tau \approx 0$  ist in Abbildung 6.11 dargestellt. Für beide Quantenpunkte ist



**Abbildung 6.11:** Ausschnitt des  $\tau = 0$  Peaks aus Abbildung 6.9 für a) QP1 und b) QP2. Die rote durchgezogene Linie stellt die mit der Zeitauflösung der Detektoren gefaltete Anpassungsfunktion dar, während die blaue gepunktete Linie der entfalteten Kurve entspricht.

eine Abnahme der Koinzidenzen bei  $\tau = 0$  erkenntlich, die wie in Abschnitt 6.1.3 erläutert ein Zeichen für die Ununterscheidbarkeit der Photonen ist. Die Form und Höhe des  $\tau = 0$ -Peaks für homogen verbreiterte Photonen wird durch folgende Gleichung beschrieben [Byl03]:

$$g_{\text{HOM},\text{theor.}}^{(2)} = \left( (T^2 + R^2) e^{-\frac{|\tau|}{\tau_r}} - 2RT e^{-\frac{|\tau|}{\tau_r} - \frac{(2\tau_r - \tau_c)|\tau|}{\tau_c \tau_r}} \right) / \tau_r. \quad (6.9)$$

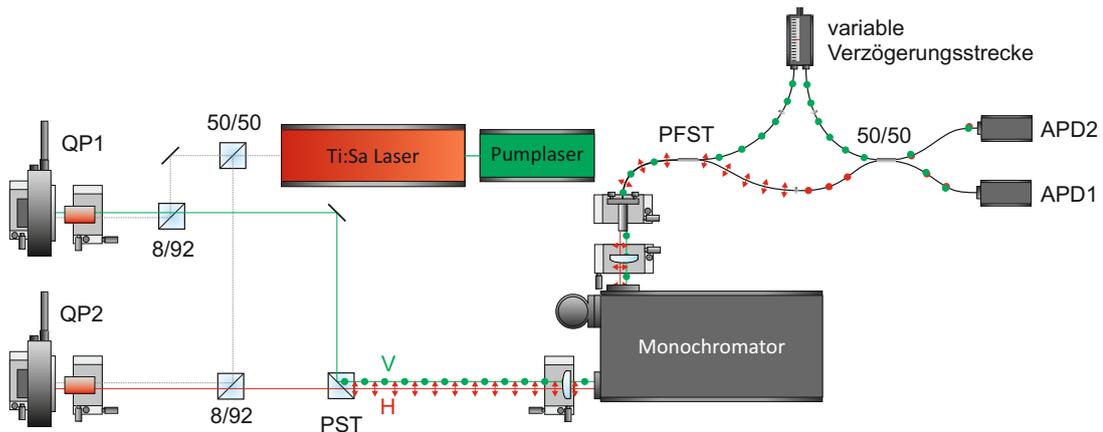
Dabei sind  $R = 0,5$  bzw.  $T = 0,5$  die Reflektivität bzw. Transmittivität des Strahlteilers. Faltet man Gleichung 6.9 mit der Zeitauflösung der Detektoren und passt die entstehende Kurve an die Messdaten an (rote durchgezogene Linie in Abbildung 6.11), so erhält man daraus die Kohärenzzeit sowie die Lebensdauer des exzitonischen Zustands. Für QP1 bzw. QP2 ergeben sich für die Kohärenzzeit  $\tau_{c,QP1} = (907 \pm 26)$  ps und für die Lebensdauer  $\tau_{r,QP1} = (664 \pm 24)$  ps bzw.  $\tau_{c,QP2} = (852 \pm 22)$  ps und  $\tau_{r,QP2} = (666 \pm 22)$  ps. Während die ermittelten Lebensdauern sehr gut mit den Werten aus den zeitabhängigen Photolumineszenzmessungen übereinstimmen (siehe Abbildung 6.8), sind die Kohärenzzeiten mehr als doppelt so groß wie die mithilfe des Michelson-Interferometers gemessenen Werte. Eine Erklärung hierfür kann ein überwiegend inhomogener Verbreiterungsprozess der Emissionslinien z. B. durch Ladungsschwankungen in unmittelbarer Umgebung des Quantenpunktes sein, der sich auf einer Zeitskala abspielt, die viel größer ist als der Abstand zwischen zwei Photonenpulsen 12,2 ns [San02]. In diesem Fall besitzen zwei aufeinanderfolgende Photonen mit sehr hoher Wahrscheinlichkeit die gleiche Emissionsenergie, während Photonen mit großem Zeitabstand leichte Energieunterschiede aufweisen. Dies ist ebenfalls der Grund, weswegen die gemessenen Visibilitäten höher sind als die aufgrund der gemessenen Lebensdauern und Kohärenzzeiten erwarteten.

## 6.2 Interferenz von zwei Photonen aus zwei räumlich getrennten Quellen

Während die Interferenz von Photonen aus derselben Quelle relativ leicht realisierbar ist, stellt die Interferenz von Photonen aus unterschiedlichen Quantenpunkten höhere Ansprüche an den experimentellen Aufbau sowie die Kontrolle der Emissionsenergie der Quantenpunkte. In Abbildung 6.12 ist der verwendete Messaufbau dargestellt. Die beiden Einzelphotonenquellen, die für die Zwei-Photonen-Interferenz verwendet werden, befinden sich in zwei Kryostaten, die auf dem optischen Tisch ca. 0,5 m voneinander getrennt befestigt sind. Zur Anregung der Quantenpunkte wird der Laserstrahl des Titan:Saphir Lasers über einen 50/50 Strahlteiler aufgespalten und über je einen 8/92 (Reflexion/Transmission) Strahlteiler in den Strahlengang zwischen Kryostat und Monochromator eingekoppelt. Beide Quantenpunkte werden also vom selben Laser angeregt. Da zum spektralen Filtern der Quantenpunktemission nur ein Monochromator zur Verfügung stand, mussten beide Emissionslinien mithilfe eines Spektrometers gefiltert werden: Die Emission aus dem ersten und zweiten Quantenpunkt (QP1 und QP2) wird über einen polarisierenden Strahlteiler (PST) zusammengeführt, sodass die Photonen aus QP1 den Monochromator in vertikaler und die Photonen aus QP2 in horizontaler Polarisation durchlaufen. Um die Photonen nach dem spektralen Filtern wieder zu trennen, wird die Emission in einen polarisierenden Faserstrahlteiler (PFST) eingekoppelt. Während in einem Arm des Interferometers die Polarisation der Photonen aus QP2 gedreht wird, durchlaufen die Photonen aus QP1 im anderen Arm eine variable Verzögerungsstrecke, sodass eine mögliche Zeitdifferenz zwischen den Photonen aus unterschiedlichen Quellen ausgeglichen werden kann. Auf diese Weise werden ununterscheidbare Photonen aus räumlich getrennten Quellen gleichzeitig am letzten Strahlteiler zur Interferenz gebracht.

Als Einzelphotonenquellen wurden die im vorhergehenden Abschnitt 6.1.3 untersuchten Quantenpunktexzitonen aus QP1 und QP2 verwendet. Für die Zwei-Photonen-Interferenz aus räumlich getrennten Quellen ist es wichtig, die Emissionsenergie der beiden Photonen mit hoher Präzision anzugleichen. Dazu wurde zunächst ein Quantenpunktexziton auf der Probe gesucht, das eine Emissionsenergie besitzt, die bei tiefen Temperaturen möglichst nah an der Emissionsenergie des bereits zuvor untersuchten QP1 liegt und gleichzeitig bei der gleichen Wellenlänge in die  $p$ -Schale angeregt werden kann. Es wurden ca. 1000 Aperturen einer Aluminium Lochmaske durchsucht, bevor QP2 gefunden wurde. Die Zeit, die dafür in Anspruch genommen wurde, betrug ca. 20 Stunden.

Bei einer Probentemperatur von 4,5 K unterscheiden sich die Emissionsenergien der beiden Exzitonlinien nur um 3  $\mu\text{eV}$ . Im Temperaturbereich unterhalb von 10 K haben Temperaturänderungen relativ geringe Auswirkung auf die Emissionsenergie eines Quantenpunktexzitons, sodass über eine vergleichsweise große Temperaturerhöhung eines Quantenpunktes von ca. 2 K die Energien der beiden Exzitonlinien angeglichen und somit die Pho-



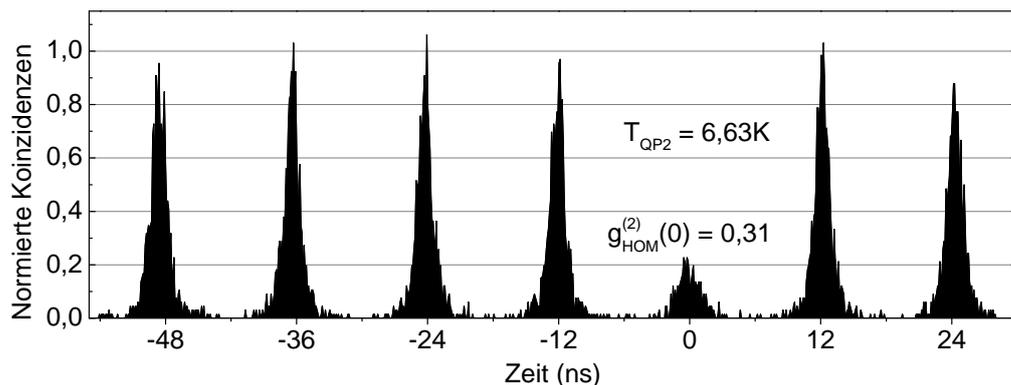
**Abbildung 6.12:** Aufbau zur Interferenz von zwei Photonen aus räumlich getrennten Quellen. Beide Quantenpunkte werden vom selben gepulsten Titan:Saphir Laser in die  $p$ -Schale angeregt. Über einen polarisierenden Strahlteiler (PST) wird die Emission von beiden Quantenpunkten mit unterschiedlicher Polarisation (QP1 vertikal (V) und QP2 horizontal (H)) zusammengeführt. Nach dem spektralen Filtern über einen Monochromator werden die Photonen in einen polarisierenden Glasfaser-Strahlteiler (PFST) eingekoppelt. Dieser trennt die Photonen nach ihrer Polarisation in zwei Arme auf. Während die Polarisation der Photonen von QP2 daraufhin von H nach V gedreht wird, durchlaufen die Photonen von QP1 eine variable Verzögerungsstrecke mit deren Hilfe der Ankunftszeitpunkt der Photonen abgestimmt werden kann. Somit ist sicher gestellt, dass die Photonen mit gleicher Polarisation zum selben Zeitpunkt am hinteren nichtpolarisierenden 50/50 Glasfaser-Strahlteiler zur Interferenz gebracht werden können.

tonen hinsichtlich ihrer Energie ununterscheidbar gemacht werden können. Dies hat den Vorteil, dass Temperaturschwankungen von wenigen 10 mK nicht zu störenden Schwankungen der Emissionsenergien führen. Trotzdem können die Messungen noch bei relativ tiefen Temperaturen durchgeführt werden, weswegen eine starke Verkürzung der Kohärenzzeit aufgrund von Phononen-Wechselwirkung ausgeschlossen werden kann [Bay02a].

Um die Korrelationsfunktion der Zwei-Photonen-Interferenz akkurat aufnehmen zu können, muss darauf geachtet werden, dass die Intensitäten von beiden Quantenpunkten am Strahlteiler gleich sind. Dazu wurde das hellere der beiden Quantenpunktexzitonen abgeschwächt und die jeweiligen Intensitäten anhand der Photonenzählraten<sup>8</sup> der APDs vor und während der Messung überprüft. Ungleiche Intensitäten der beiden Quantenpunkte würden dazu führen, dass der gemessene  $g_{\text{HOM}}^{(2)}(0)$ -Wert zu gering ausfällt. Beispielsweise würde die Korrelationsmessung im Extremfall einer völlig abgeschwächten ersten Einzelphotonenquelle einer Autokorrelationsmessung an der zweiten Einzelphotonenquelle entsprechen.

Die Korrelationsmessung zweiter Ordnung der Zwei-Photonen-Interferenz mit QP1 bei

<sup>8</sup> Die von beiden Eingängen des TCSPC-Moduls addierten Detektionsraten betragen ca. 6 kHz bei allen Messungen zur Interferenz aus zwei Quellen.



**Abbildung 6.13:** Korrelationshistogramm der Interferenz von zwei Photonen aus unterschiedlichen Quellen mit QP1 bei 5 K und QP2 bei 6,63 K. Aus den Daten ergibt sich  $g_{\text{HOM}}^{(2)}(0) = 0,31$  und eine Visibilität von  $v_{\text{exp}} = 39\%$ .

einer Temperatur von 5 K und QP2 bei 6,63 K ist in Abbildung 6.13 dargestellt. Die Peaks direkt neben dem  $\tau = 0$ -Peak erreichen aufgrund des geänderten Messaufbaus für die Zwei-Photonen-Interferenz aus getrennten Quellen nicht mehr wie im vorhergehenden Abschnitt 6.1.3 den Wert 0,75, sondern 1,00. Dadurch können diese Peaks zur Berechnung der Wahrscheinlichkeit, dass zwei Photonen auf den Strahlteiler treffen und diesen in unterschiedliche Ausgänge verlassen, mit einbezogen werden. Der nicht nachselektierte und nicht korrigierte  $g_{\text{HOM}}^{(2)}(0)$ -Wert setzt sich demnach aus den Koinzidenzen um  $\tau = 0$  geteilt durch die gemittelten Koinzidenzen für 5 Peaks bei  $\tau > 0$  zusammen. Für die in Abbildung 6.13 gezeigte Messung beträgt er  $g_{\text{HOM}}^{(2)}(0) = 0,31 < 0,5$ . Die Photonen, die aus räumlich getrennten Quantenpunkten auf dem Strahlteiler zum Überlapp gebracht werden, verlassen diesen also aufgrund ihrer Ununterscheidbarkeit bevorzugt in denselben Ausgang. Aus den experimentellen Daten lässt sich die Visibilität der Zwei-Photonen-Interferenz berechnen

$$v_{\text{exp}} = \frac{0,5 - g_{\text{HOM}}^{(2)}(0)}{0,5}. \quad (6.10)$$

Für QP1 bei 5 K und QP2 bei 6,63 K ergibt sich also eine Visibilität von  $v_{\text{exp}} = (39 \pm 2)\%$ . Dieser Wert ist doppelt so hoch, wie der in Referenz [Fla10] erzielte Wert 18,1 % für nichtresonant angeregte Quantenpunkte. Um noch höhere Visibilitäten zu erzielen ist eine resonante Anregung der Quantenpunkte in ihre  $s$ -Schale nötig. Dadurch konnte ein Wert von  $v = 80,2\%$  erzielt werden [Gao13]. Jedoch wurden hier über einen zeitlichen Filter nur Photonen untersucht, die im Zeitfenster von [0,8 ns, 2,0 ns] nach dem Anregungspuls von den Quantenpunkten emittiert wurden, um das Streulicht des 0,8 ns langen Anregungspulses herauszufiltern. Durch eine Einbeziehung des Anregungspulses in den untersuchten zeitlichen Bereich [0,0 ns, 2,0 ns], sinkt die Visibilität auf 52 %. Jedoch wurden in diesem Fall auch nicht Photonen der kompletten Periode [0,0 ns, 13,1 ns] betrachtet. Weiterhin wurden in [He13a] einzelne Photonen über einen Spin-Flip Raman Übergang

in einem Quantenpunkt erzeugt und mit den Photonen eines zweiten, räumlich getrennten und resonant angeregten Quantenpunktexzitons zur Interferenz gebracht. Die hierbei erzielte Visibilität betrug 77% (87%), wobei nur Photonen in einem Zeitfenster mit einer Spanne von 3 ns (0,75 ns) betrachtet wurden. Für ein effizientes lineares Quantencomputing werden Einzelphotonenquellen benötigt, von denen mindestens 2/3 der pro Puls generierten Photonen auch detektiert werden können [Var08]. Deshalb werden hohe Auskoppel-effizienzen der Quellen benötigt. Ein zeitliches Filtern der Emission verringert diese Effizienz.

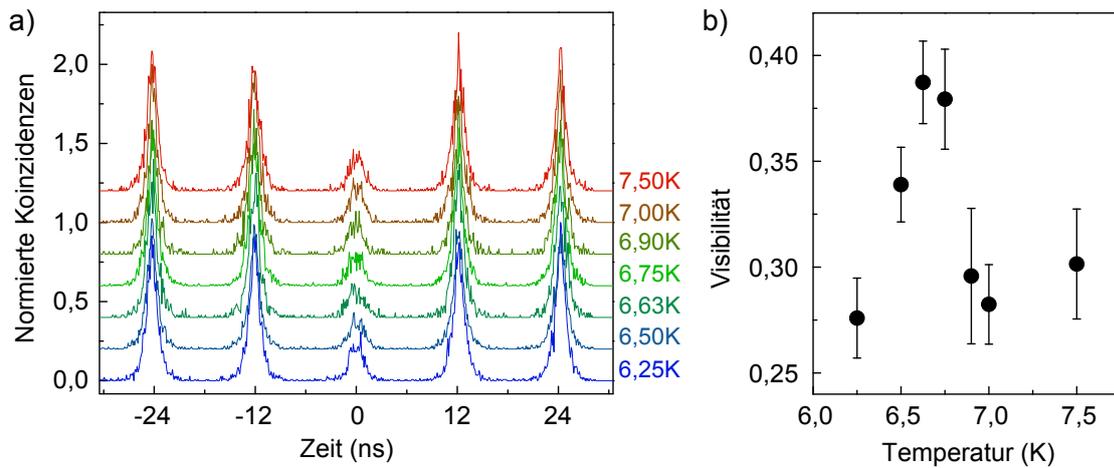
Die experimentell bestimmte Visibilität  $v_{exp} = (39 \pm 2)\%$  ist größer, als die aus den ermittelten Lebensdauern und Kohärenzzeiten maximal erwarteten Visibilitäten von  $v_{max} = 25\% - 32\%$  (siehe Gleichung 2.52). In diesem Fall kann die erhöhte Visibilität nicht über eine vergleichsweise „langsame“ spektrale Diffusion der Quantenpunktmission erklärt werden (vgl. Abschnitt 6.1.3), da die interferierenden Photonen aus unterschiedlichen Quantenpunkten stammen und nicht mit geringer Zeitverzögerung aus demselben Quantenpunkt. Trotzdem hat die spektrale Diffusion, die als inhomogener Verbreiterungsprozess einen Gaußschen Beitrag zur Linienbreite mit sich bringt, einen Einfluss auf die Visibilität der Zwei-Photonen-Interferenz aus unterschiedlichen Quellen. Wie in Abschnitt 2.4.3 beschrieben, können Photonen, die aus einem inhomogen verbreiterten Ensemble von Photonen stammen, eine höhere Visibilität bei gleicher Kohärenzzeit besitzen, als homogen verbreiterte Photonen.

Um die Visibilität für inhomogen verbreiterte Photonen aus Gleichung 2.52 zu berechnen, benötigt man  $\sigma_g = \sqrt{\sigma_1^2 + \sigma_2^2}$ , wobei  $\sigma_{1,2}$  den Anteil der Linienbreite der Exzitonen von QP1 und QP2 darstellt, der durch die inhomogene Verbreiterung verursacht wird. Das Spektrum eines Fourier-Transformations-limitierten Photons besitzt eine Lorentzform mit einer Halbwertsbreite von  $\Gamma_1 = \frac{1}{\tau_r}$ . Eine zusätzliche inhomogene Verbreiterung, die durch ein gaußförmiges Profil beschrieben wird, führt insgesamt zu einem Voigt-Profil mit einer Linienbreite (FWHM) von [Oli77]

$$\Gamma_V = 0,535\Gamma_1 + \sqrt{0,217\Gamma_1^2 + \Gamma_G^2}, \quad (6.11)$$

wobei  $\Gamma_G = 2\sqrt{2 \ln 2} \sigma_i$  ist und  $\Gamma_V = \frac{2}{\tau_c}$  experimentell über die Michelson-Interferometer Messung der Kohärenzzeit ermittelt wird. Aus Gleichung 6.11 wird zusammen mit  $\Gamma_1 = \frac{1}{\tau_r}$  auf den Gaußschen Anteil an der Linienverbreiterung zurückgerechnet. Daraus erhält man  $\sigma_g = 2,76 \text{ GHz} = 1,82 \text{ } \mu\text{eV}$ , was eine theoretische Visibilität von  $v_{inhom} = (36,4 \pm 1,5)\%$  ergibt. Der Fehler von 1,5 % setzt sich aus dem Fehler der experimentell bestimmten Kohärenzzeiten zusammen. Die erhöhte Visibilität kann also über eine inhomogene Verbreiterung erklärt werden. In Referenz [Gao13] wurde unabhängig zu dieser Arbeit ebenfalls eine erhöhte Visibilität auf ähnliche Weise beschrieben.

Des Weiteren wird die Zwei-Photonen-Interferenz für Photonen aus räumlich getrennten

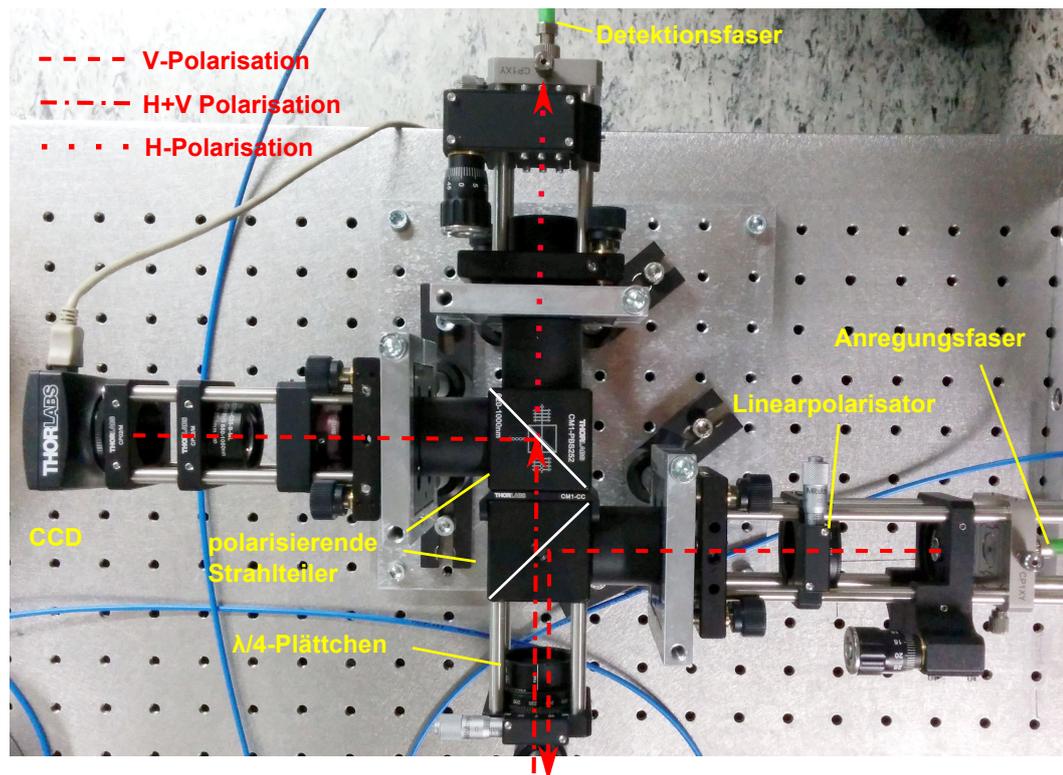


**Abbildung 6.14:** a) Korrelationshistogramme der Interferenz von zwei Photonen aus unterschiedlichen Quellen mit QP1 bei 5 K und QP2 bei unterschiedlichen Temperaturen. b) Aus den Daten in a) ermittelte Visibilitäten  $v_{exp}$ .

Quellen in Abhängigkeit der Temperatur von QP2 ermittelt. In Abbildung 6.14 a) sind die Korrelationshistogramme für unterschiedliche Temperaturen von QP2 dargestellt. Die Temperatur von QP1 wurde für alle Temperaturen konstant bei 5 K gehalten. Aus den gezeigten Diagrammen lässt sich, wie weiter oben beschrieben, der  $g_{\text{HOM}}^{(2)}(0)$ -Wert berechnen und daraus die Visibilität  $v_{exp}$  ableiten. Die ermittelten Visibilitäten in Abhängigkeit der Temperatur von QP2 sind in Abbildung 6.14 aufgetragen. Man kann ein Maximum der Visibilität in einem Bereich um 6,7 K erkennen. Für eine Änderung der Temperatur steigt die Energiedifferenz der Photonen aus den jeweiligen Quantenpunkten, was zu einer zunehmenden Unterscheidbarkeit der Photonen führt und damit zu einer Abnahme der Visibilität.

### 6.3 Ausblick: Resonanzfluoreszenz an Quantenpunkten

Bei der quasisresonanten Anregung in die  $p$ -Schale können Dephasierungsprozesse, wie eine homogene Verbreiterung des angeregten höheren Zustands sowie die unkontrollierbare Zeitunsicherheit bei der Relaxation vom höheren Zustand in die  $s$ -Schale [Ben05, San04, He13b], die Visibilität der Zwei-Photonen-Interferenz reduzieren. Diese Dephasierungsprozesse können bei strikt resonanter Anregung der  $s$ -Schale des Quantenpunktes und der damit einhergehenden resonanten Streuung und Resonanzfluoreszenz einzelner Photonen vermieden werden. Hierfür werden Experimentiertechniken benötigt, die es erlauben, das Streulicht des Anregungslasers von den bei der gleichen Wellenlänge erzeugten einzelnen Photonen zu trennen. Die Umsetzung erfolgt entweder über eine räumliche Trennung des optischen Anregungs- und Einsammelpfades oder über eine gekreuzte Polarisationsanordnung oder eine Kombination aus beidem [Mul07, Mel08, Ate09a, Vam09, Mat12, He13b]. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein konfokales Dunkelfeldmikroskop aufgebaut [Kuh13],



**Abbildung 6.15:** Aufbau des konfokalen Dunkelfeldmikroskops für Resonanzfluoreszenzexperimente. Eine hohe Unterdrückung des zurückgestreuten Laserlichtes wird über zwei polarisierende Strahlteiler ermöglicht.

das die Resonanzfluoreszenz von Quantenpunkten über eine gekreuzte Polarisationsanordnung ermöglicht.

In Abbildung 6.15 ist eine Aufnahme des Dunkelfeldmikroskops abgebildet. Das Laserlicht wird über die Anregungsfaser in den Messaufbau eingekoppelt und durchläuft zunächst eine Linse zur Kollimation. Daraufhin wird die Polarisation des kollimierten Laserlichts mit einem Linearpolarisator vertikal (V, gestrichelte Linie) eingestellt, sodass das Licht am unteren polarisierenden Strahlteiler reflektiert wird. Das Laserlicht wird nun über zwei Spiegel auf das vor dem Kryostaten befindliche Mikroskopobjektiv gelenkt und mit dessen Hilfe auf die Probenoberfläche fokussiert (nicht in Abbildung 6.15 enthalten). Nachdem das von der Probe zurückgestreute Laserlicht gemeinsam mit der vom Quantenpunkt stammenden Resonanzfluoreszenz wieder vom Mikroskopobjektiv eingesammelt wurde, wird es in das Dunkelfeldmikroskop eingekoppelt. Das Laserlicht kann nun aufgrund von Doppelbrechung an optischen Komponenten im Strahlengang elliptisch polarisiert sein. Um dies auszugleichen, befindet sich ein  $\lambda/4$ -Plättchen im Strahlengang, das die Polarisation des Laserlichtes wieder auf vertikal einstellt. Beide polarisierenden Strahlteiler sind so angeordnet, dass sie vertikal polarisiertes Licht reflektieren und horizontal polarisiertes Licht transmittieren. Dadurch wird beim Durchlaufen der Strahlteiler

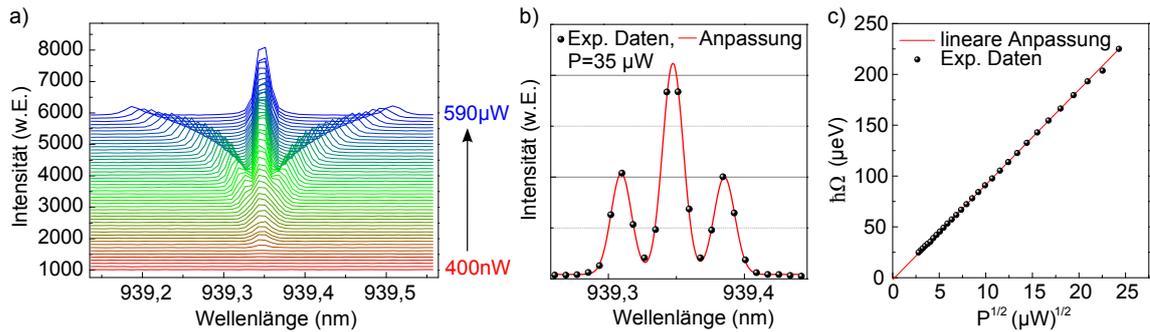
das Laserlicht zusammen mit dem vertikal polarisierten Anteil der Resonanzfluoreszenz aus dem Strahlengang gefiltert. Der horizontal polarisierte Anteil der Resonanzfluoreszenz kann jedoch über eine Linse in die Detektionsfaser eingekoppelt und mit einem Detektor analysiert werden. Da die erzielte Laserunterdrückung stark von den Winkelstellungen des  $\lambda/4$ -Plättchen und des Linearpolarisators abhängt, können beide mithilfe einer Mikrometerschraube mit einer Genauigkeit von ca.  $0,005^\circ$  justiert werden. Zur Orientierung auf der Probenoberfläche und um die Größe des Fokuspunktes zu überprüfen, ist am seitlichen Ausgang des oberen Strahlteilers eine CCD Kamera angebracht.

### 6.3.1 Experimenteller Nachweis des Mollowtriplets in Resonanzfluoreszenz

Für Resonanzfluoreszenzexperimente wurde eine planare Quantenpunktresonatorprobe verwendet, die ähnliche Strukturparameter aufweist (siehe Anhang A.3), wie die in Abschnitt 6.1.2 untersuchte. Jedoch befinden sich keine gaußförmigen Defekte auf der Probenoberfläche, die zwar eine höhere Auskoppelleffizienz der Quantenpunktmission ermöglichen, aber auch die Unterdrückung des Laserstreulichtes erschweren. Das vom Quantenpunkt stammende Resonanzfluoreszenzsignal wird mithilfe einer Monomodefaser eingesammelt und in einem Doppelmonochromator (siehe Kapitel 3.2.2) spektral zerlegt. In Abbildung 6.16 a) ist das Resonanzfluoreszenzspektrum eines Quantenpunktexzitons für unterschiedliche Anregungsleistungen zwischen 400 nW und 590  $\mu$ W bei einer Proben temperatur von  $T = 10$  K dargestellt. Mit steigender Anregungsleistung ist neben einem zentralen Übergang ein Auftreten von Seitenbändern zu erkennen, deren Aufspaltung mit der Anregungsleistung wächst. Die resonante Anregung eines Zwei-Niveau-Systems durch ein starkes optisches Feld führt zu einem charakteristischen Spektrum mit drei Linien, dem sogenannten Mollowtriplet, das zuerst von Mollow theoretisch vorhergesagt wurde [Mol69] und daraufhin erstmals an Natrium Atomen experimentell nachgewiesen wurde [Wu75].

In Abbildung 6.16 b) ist das Spektrum des Quantenpunktexzitons für eine Anregungsleistung von 35  $\mu$ W gezeigt. Die Breite der Linien im Spektrum ist aufgrund der limitierten Auflösung des Messaufbaus breiter als in Realität. Die einzelnen Linien wurden deshalb mit einem Gaußprofil angepasst. Beide Seitenlinien besitzen nahezu die Hälfte der Intensität der mittleren Linie, was auf eine sehr gute Unterdrückung des Laserstreulichtes schließen lässt. Die Aufspaltung zwischen den beiden äußeren Linien entspricht  $76 \text{ pm} \cong 110 \text{ } \mu\text{eV}$ .

Die Aufspaltung der Linien hängt von der Rabi Frequenz  $\Omega$  ab, die linear mit der elektromagnetischen Feldstärke ansteigt. Trägt man die Rabi-Frequenz als Funktion der Wurzel der Anregungsleistung auf, besteht also ein linearer Zusammenhang, wie in Abbildung 6.16 c) dargestellt. Die Steigung der linearen Anpassung beträgt  $(9,3365 \pm 0,0075) \text{ } \mu\text{eV}/\sqrt{\mu\text{W}}$ . Für eine maximale Anregungsleistung von 590  $\mu$ W beträgt die Aufspaltung  $\hbar\Omega = 225 \text{ } \mu\text{eV}$ .



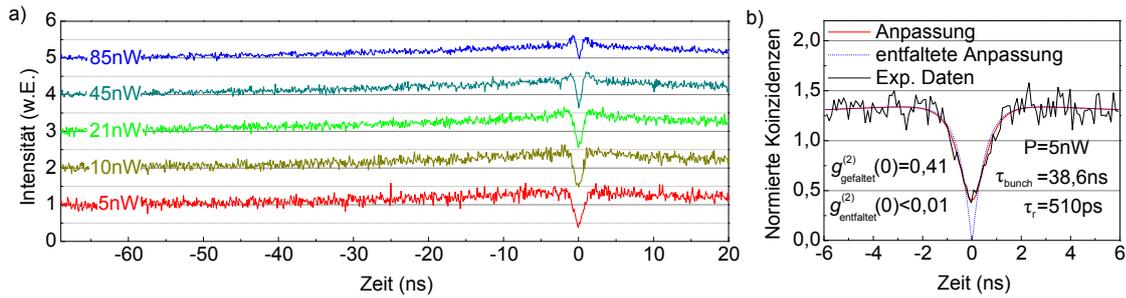
**Abbildung 6.16:** a) Resonanzfluoreszenzspektren eines Quantenpunktexzitons für unterschiedliche Anregungsleistung. Zu großen Anregungsleistungen hin kann das für die starke resonante Anregung charakteristische Mollowtriplet mit dem Spektrometer aufgelöst werden. b) Resonanzfluoreszenzspektrum für eine Anregungsleistung von  $35 \mu\text{W}$ . Die Seitenlinien besitzen ca. die Hälfte der Intensität der zentralen Linie. c) Rabi-Frequenz als Funktion der Wurzel der Anregungsleistung. Die experimentellen Daten zeigen eine lineare Abhängigkeit von der Wurzel der Anregungsleistung.

### 6.3.2 Einzelphotonenemission unter resonanter Anregung

Die grundsätzliche Herausforderung bei der Resonanzfluoreszenzspektroskopie besteht darin, das rückgestreute Licht des Anregungslasers möglichst gut von der Resonanzfluoreszenz der Einzelphotonenquelle zu trennen. Gelingt dies nicht ausreichend, so ist der  $g^{(2)}(0)$ -Wert erhöht, da sich das detektierte Licht aus Anteilen der Quantenpunktemission und des kohärenten Lichtes mit Poisson'scher Photonenstatistik zusammensetzt. Ein erhöhter  $g^{(2)}(0)$ -Wert führt wiederum zu einer Verminderung der nichtkorrigierten Visibilität der Zwei-Photonen-Interferenz. Ob die Streulichtunterdrückung des verwendeten Dunkel-feldmikroskops ausreicht, um Einzelphotonenemission des Quantenpunktes nachzuweisen ( $g^{(2)}(0) < 0,5$ ), wird im Folgenden in einer Autokorrelationsmessung in einem HBT-Aufbau überprüft.

Dazu wurde die Autokorrelationsfunktion der Resonanzfluoreszenz eines Quantenpunktexzitons bei einer Temperatur von  $T = 10 \text{ K}$  für unterschiedliche Anregungsleistungen des im Dauerstrichmodus betriebenen Lasers aufgenommen und in Abbildung 6.17 a) aufgetragen<sup>9</sup>. Für eine Anregungsleistung von  $P = 5 \text{ nW}$  ist ein antibunchendes Verhalten bei  $\tau = 0$  zu erkennen. Die Abnahme in der Korrelationsfunktion unterschreitet bei  $\tau = 0$  den Wert 0,5. Dadurch ist gezeigt, dass es sich bei dem in Resonanzfluoreszenz untersuchten Quantenpunkt um eine Einzelphotonenquelle handelt. Neben einem antibunchenden Verhalten bei  $\tau = 0$  ist für alle gezeigten Anregungsleistungen über einen größeren Zeitraum ein bunchendes Verhalten zu erkennen, welches auf „blinking“ des Quantenpunktes zurückgeführt wird und ebenfalls in weiteren Veröffentlichungen in Resonanzfluoreszenz

<sup>9</sup> Die von beiden Eingängen des TCSPC-Moduls addierten Detektionsraten betragen bei allen Messungen zwischen 25 kHz für eine Anregungsleistung von 5 nW und 130 kHz für 85 nW.



**Abbildung 6.17:** a) Autokorrelationsmessung an einem Quantenpunktexziton bei strikt resonanter  $s$ -Schalen-Anregung für unterschiedliche Anregungsleistungen. b) Ausschnitt der experimentellen Daten aus a) für eine Anregungsleistung von 5 nW. Während die rote Kurve die Anpassung der experimentellen Daten mit der gefalteten Autokorrelationsfunktion darstellt, zeigt die blaue gepunktete Kurve den entfalteten Verlauf. Für die gefaltete Kurve ergibt sich ein  $g_{gefaltet}^{(2)}(0)$ -Wert von 0,41 und für die entfaltete Kurve  $g_{entfaltet}^{(2)}(0) < 0,01$ .

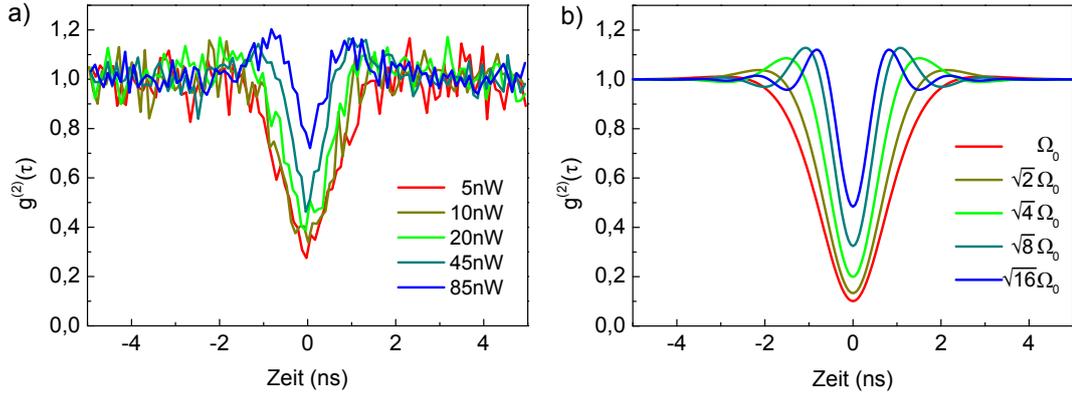
beobachtet wurde [Ngu12, Ngu13, Wei13]. In Abbildung 6.17 b) ist das Autokorrelationshistogramm für eine Anregungsleistung von  $P = 5$  nW im Bereich von  $|\tau| < 5$  ns dargestellt.

Die Daten können mit nachfolgender Gleichung angepasst werden

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - b \cdot e^{-\frac{|\tau|}{\tau_r}} + a \cdot e^{-\frac{|\tau|}{\tau_{bunch}}}, \quad (6.12)$$

wobei  $a$  und  $b$  Parameter zur Anpassung der Höhe des Bunchings und Antibunchings sind sowie  $\tau_{bunch}$  die Zeitkonstante des Bunchings berücksichtigt. Da die radiative Lebensdauer in der Größenordnung der Zeitauflösung der Detektoren liegt, muss Gleichung 6.12 zur Anpassung der Daten mit einer Gaußfunktion gefaltet werden, welche die endliche Zeitauflösung der Detektoren berücksichtigt. Aus der Anpassung an die Daten (rote Linie) erhält man die Zeitkonstante des Bunching-Verhaltens zu  $\tau_{bunch} = 38,6$  ns, die Lebensdauer des Zustandes zu  $\tau_r = 510$  ps und einen  $g_{gefaltet}^{(2)}(0)$ -Wert von 0,41. Die blaue gepunktete Linie in Abbildung 6.17 stellt den Verlauf der  $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion für eine unendlich hohe Zeitauflösung der Detektoren dar. Man kann erkennen, dass diese für  $\tau = 0$  einen Wert  $g^{(2)}(0) < 0,01$  annehmen würde. Dies zeigt, dass die Unterdrückung des Lasersignals durch den Dunkelfeldmikroskopaufbau ausreicht, um Quanteninterferenzexperimente unter resonanter Anregung durchzuführen. Bei einer unzureichenden Unterdrückung des Lasers wäre der  $g^{(2)}(0)$ -Wert um das Verhältnis  $I_{Laser}/I_{QP}$  erhöht, wobei  $I_{Laser}$  die verbleibende Intensität des ungenügend gefilterten Laserlichtes und  $I_{QP}$  die Intensität der Quantenpunkt-Resonanzfluoreszenz ist.

Weiterhin ist in Abbildung 6.17 zu erkennen, dass es mit steigender Anregungsleistung zu einer Ausbildung eines zusätzlichen Bunchings um  $\tau = 0$  kommt. Dies kann auf die in der  $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion auftretenden Oszillationen zurückgeführt werden, die bei Resonanzfluoreszenz auftreten [Fla09]. Die  $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion bei resonanter Anregung ist gegeben



**Abbildung 6.18:** a) Experimentelle Autokorrelationshistogramme der Resonanzfluoreszenz eines Quantenpunktexzitons für unterschiedliche Anregungsleistungen. Die experimentellen Daten wurden um ein Langzeit-Bunching korrigiert. b) Simulation der  $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion für resonante Dauerstrichanregung unter Variation der Rabi-Frequenz  $\Omega$ . Die begrenzte zeitliche Auflösung der Detektoren wurde durch eine Faltung mit einer Gaußkurve berücksichtigt.

über [Mül07]

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - e^{-\left(\frac{\tau}{2\tau_r} + \frac{\tau}{2\tau_c}\right)} \left( \cos(B\tau) + \frac{\frac{1}{2\tau_r} + \frac{1}{2\tau_c}}{B} \sin(B\tau) \right) \quad (6.13)$$

mit

$$B = \sqrt{\Omega^2 - \left( \frac{1}{2\tau_r} - \frac{1}{2\tau_c} \right)^2}. \quad (6.14)$$

Um die Auswirkung höherer Anregungsleistungen auf die Autokorrelationsfunktion bei resonanter Anregung zu überprüfen, wurde in Abbildung 6.18 a) der interessante Bereich der experimentellen Daten um  $\tau = 0$  abgebildet, wobei die Daten um das Bunching Verhalten durch blinking korrigiert wurden. Es ist neben der Erhöhung der Koinzidenzen um  $\tau = 0$  eine Zunahme des  $g^{(2)}(0)$ -Wertes mit steigender Anregungsleistung zu erkennen. Diese Zunahme ist bedingt durch eine Abnahme der Oszillationsperiode mit steigender Anregungsfrequenz. Dadurch wird die Breite der Antibunching-Abnahme schmaler, was letztlich bei gleicher Zeitauflösung der Detektoren zu einer höheren Anzahl an Koinzidenzen bei  $\tau = 0$  führt. In Abbildung 6.18 b) ist die berechnete und mit der Zeitauflösung der Detektoren gefaltete Autokorrelationsfunktion für unterschiedliche Rabi-Frequenzen  $\Omega_0$  dargestellt, wobei die Schrittweite analog zu der Schrittweite der Leistungsabstände der experimentellen Daten gewählt wurde ( $\sqrt{P} \propto \Omega_0$ ). Es besteht qualitativ eine sehr gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten.

Der nächste Schritt wäre nun den bestehenden Aufbau um einen gepulsten Laser zu erweitern und zunächst die Resonanzfluoreszenz unter gepulster resonanter Anregung durchzuführen. Daraufhin können dann Zwei-Photonen-Interferenz Experimente unter resonanter Anregung realisiert werden.

## 6.4 Zusammenfassung des Kapitels

In diesem Kapitel wurde der Einfluss der Anregungsbedingungen auf die Ununterscheidbarkeit von Photonen untersucht. Zum einen wurde die Ununterscheidbarkeit von Photonen aus demselben Quantenpunkt unter Dauerstrich- und gepulster Anregung betrachtet. Während man in Dauerstrichanregung nur den nachselektierten Wert der Visibilität der Zwei-Photonen-Interferenz erhalten kann, ist in gepulster Anregung die Messung des anwendungsrelevanten, nicht nachselektierten Wertes möglich. Dieser kann von der Anregungsart abhängen. Während für nichtresonante Anregung in die Benetzungsschicht die Visibilität über ein Wiederbefüllen und zusätzliche Dephasierungsprozesse durch Ladungsträger reduziert ist, konnten unter  $p$ -Schalen Anregung hohe Visibilitäten von 61 % bzw. 69 % erzielt werden. Die gemessenen Werte übertrafen die Visibilitäten, die anhand der in einem Michelson-Interferometer gemessenen Kohärenzzeiten erwartet wurden. Als Begründung hierfür wurde angeführt, dass der auftretende Verbreiterungsprozess der spektralen Diffusion sich auf einer größeren Zeitskala abspielt, als der Zeitabstand von zwei interferierenden Photonen (12,2 ns).

Zum anderen wurde in einem weiteren Experiment die Interferenz von Photonen aus räumlich getrennten Quantenpunkten unter quasiresonanter, gepulster Anregung untersucht. Dabei konnte die Ununterscheidbarkeit der Photonen mit einer Visibilität von  $v_{exp} = (39 \pm 2) \%$  nachgewiesen werden. Ein Wert, der wiederum über einen inhomogenen Verbreiterungsprozess, wie zum Beispiel die spektrale Diffusion, erklärt werden kann.

Für eine weitere Erhöhung der Visibilität der Zwei-Photonen-Interferenz ist eine resonante Anregung der Quantenpunktexzitonen vielversprechend. Vor diesem Hintergrund wurde ein entsprechender Messaufbau zur Unterdrückung des Laserstreulichtes konstruiert und erste Experimente an Quantenpunktexzitonen durchgeführt. Der Nachweis des Mollowtriplets und der Einzelphotonenemission in Resonanzfluoreszenz legen den Grundstein für weitere Experimente zur Quanteninterferenz von Photonen unter resonanter Anregung.

# Literaturverzeichnis

- [Aic04] T. Aichele, V. Zwiller und O. Benson, *Visible single-photon generation from semiconductor quantum dots*, New Journal of Physics, **6**, 90 (2004).
- [And99] L. C. Andreani, G. Panzarini und J.-M. Gérard, *Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities: Theory*, Physical Review B, **60**, 13276 (1999).
- [Arn12] C. Arnold, V. Loo, A. Lemaître, I. Sagnes, O. Krebs, P. Voisin, P. Senellart und L. Lanco, *Optical bistability in a quantum dots/micropillar device with a quality factor exceeding 200 000*, Applied Physics Letters, **100**, 111111 (2012).
- [Ash96] R. C. Ashoori, *Electrons in artificial atoms*, Nature, **379**, 413 (1996).
- [Ate09a] S. Ates, S. M. Ulrich, S. Reitzenstein, A. Löffler, A. Forchel und P. Michler, *Post-Selected Indistinguishable Photons from the Resonance Fluorescence of a Single Quantum Dot in a Microcavity*, Physical Review Letters, **103**, 167402 (2009).
- [Ate09b] S. Ates, S. M. Ulrich, A. Ulhaq, S. Reitzenstein, A. Löffler, S. Hofling, A. Forchel und P. Michler, *Non-resonant dot-cavity coupling and its potential for resonant single-quantum-dot spectroscopy*, Nature Photonics, **3**, 724 (2009).
- [Ate12] S. Ates, I. Agha, A. Gulinatti, I. Rech, M. T. Rakher, A. Badolato und K. Srinivasan, *Two-Photon Interference Using Background-Free Quantum Frequency Conversion of Single Photons Emitted by an InAs Quantum Dot*, Physical Review Letters, **109**, 147405 (2012).
- [Ate13] S. Ates, I. Agha, A. Gulinatti, I. Rech, A. Badolato und K. Srinivasan, *Improving the performance of bright quantum dot single photon sources using temporal filtering via amplitude modulation*, Scientific Reports, **3**, 1397 (2013).
- [Bar02] W. Barnes, G. Björk, J. Gérard, P. Jonsson, J. Wasey, P. Worthing und V. Zwiller, *Solid-state single photon sources: light collection strategies*, The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics, **18**, 197 (2002).

- [Bar09] R. J. Barbour, *A tunable microcavity for semiconductor quantum dots*, Doktorarbeit, Heriot-Watt University (2009).
- [Bay00] M. Bayer, O. Stern, P. Hawrylak, S. Fafard und A. Forchel, *Hidden symmetries in the energy levels of excitonic "artificial atoms"*, Nature, **405**, 923 (2000).
- [Bay02a] M. Bayer und A. Forchel, *Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in  $In_{0.60}Ga_{0.40}As/GaAs$  self-assembled quantum dots*, Physical Review B, **65**, 041308 (2002).
- [Bay02b] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. A. Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. L. Reinecke, S. N. Walck, J. P. Reithmaier, F. Klopff und F. Schäfer, *Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled  $In(Ga)As/(Al)GaAs$  quantum dots*, Physical Review B, **65**, 195315 (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**, 091107 (2008).
- [Beh01] E. Beham, A. Zrenner, F. Findeis, M. Bichler und G. Abstreiter, *Nonlinear ground-state absorption observed in a single quantum dot*, Applied Physics Letters, **79**, 2808 (2001).
- [Ben84] C. H. Bennett, G. Brassard et al., *Quantum cryptography: Public key distribution and coin tossing*, *Proceedings of IEEE International Conference on Computers, Systems and Signal Processing*, volume 175, 8, New York (1984).
- [Ben92] C. H. Bennett, F. Bessette, G. Brassard, L. Salvail und J. Smolin, *Experimental quantum cryptography*, Journal of Cryptology, **5**, 3 (1992).
- [Ben00] O. Benson, C. Santori, M. Pelton und Y. Yamamoto, *Regulated and Entangled Photons from a Single Quantum Dot*, Physical Review Letters, **84**, 2513 (2000).
- [Ben05] A. Bennett, D. Unitt, A. Shields, P. Atkinson und D. Ritchie, *Influence of exciton dynamics on the interference of two photons from a microcavity single-photon source*, Optics Express, **13**, 7772 (2005).
- [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**, 193503 (2008).

- [Bes04] L. Besombes, J. J. Baumberg und J. Motohisa, *Polarization-dependent Rabi oscillations in single InGaAs quantum dots*, Semiconductor Science and Technology, **19**, 148 (2004).
- [Bim99] D. Bimberg, M. Grundmann und N. N. Ledentsov, *Quantum Dot Heterostructures*, Wiley (1999).
- [Blo90] K. J. Blow, R. Loudon, S. J. D. Phoenix und T. J. Shepherd, *Continuum fields in quantum optics*, Physical Review A, **42**, 4102 (1990).
- [Bor02] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang und D. Bimberg, *Rabi oscillations in the excitonic ground-state transition of InGaAs quantum dots*, Physical Review B, **66**, 081306 (2002).
- [Bor05] P. Borri, W. Langbein, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter und A. D. Wieck, *Exciton dephasing via phonon interactions in InAs quantum dots: Dependence on quantum confinement*, Physical Review B, **71**, 115328 (2005).
- [Bri98] H.-J. Briegel, W. Dür, J. I. Cirac und P. Zoller, *Quantum Repeaters: The Role of Imperfect Local Operations in Quantum Communication*, Physical Review Letters, **81**, 5932 (1998).
- [Buz96] V. Buzek und M. Hillery, *Quantum copying: Beyond the no-cloning theorem*, Physical Review A, **54**, 1844 (1996).
- [Byl03] J. Bylander, I. Robert-Philip und I. Abram, *Interference and correlation of two independent photons*, The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics, **22**, 295 (2003).
- [Cam89] R. A. Campos, B. E. A. Saleh und M. C. Teich, *Quantum-mechanical lossless beam splitter:  $SU(2)$  symmetry and photon statistics*, Physical Review A, **40**, 1371 (1989).
- [Dua01] L.-M. Duan, M. D. Lukin, J. I. Cirac und P. Zoller, *Long-distance quantum communication with atomic ensembles and linear optics*, Nature, **414**, 413 (2001).
- [Eng06] D. Englund und J. Vučković, *A direct analysis of photonic nanostructures*, Optics Express, **14**, 3472 (2006).
- [Fan61] U. Fano, *Effects of Configuration Interaction on Intensities and Phase Shifts*, Physical Review, **124**, 1866 (1961).
- [Fas05] G. Fasching, F. F. Schrey, W. Brezna, J. Smoliner, G. Strasser und K. Unterrainer, *Photocurrent spectroscopy of single InAs/GaAs quantum dots*, physica status solidi (c), **2**, 3114 (2005).

- [Fas06] G. Fasching, F. Schrey, T. Roch, A. Andrews, W. Brezna, J. Smoliner, G. Strasser und K. Unterrainer, *Single InAs/GaAs quantum dots: Photocurrent and cross-sectional AFM analysis*, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures, **32**, 183 (2006).
- [Fea89] H. Fearn und R. Loudon, *Theory of two-photon interference*, Journal of the Optical Society of America B, **6**, 917 (1989).
- [Fin01] J. J. Finley, P. W. Fry, A. D. Ashmore, A. Lemaître, A. I. Tartakovskii, R. Oulton, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, P. D. Buckle und P. A. Maksym, *Observation of multicharged excitons and biexcitons in a single InGaAs quantum dot*, Physical Review B, **63**, 161305 (2001).
- [Fla09] E. B. Flagg, A. Muller, J. W. Robertson, S. Founta, D. G. Deppe, M. Xiao, W. Ma, G. J. Salamo und C. K. Shih, *Resonantly driven coherent oscillations in a solid-state quantum emitter*, Nature Physics, **5**, 203 (2009).
- [Fla10] E. B. Flagg, A. Muller, S. V. Polyakov, A. Ling, A. Migdall und G. S. Solomon, *Interference of Single Photons from Two Separate Semiconductor Quantum Dots*, Physical Review Letters, **104**, 137401 (2010).
- [Fox06] M. Fox, *Quantum Optics : An Introduction*, Oxford Master Series in Physics, OUP Oxford (2006).
- [Fry00] P. W. Fry, J. J. Finley, L. R. Wilson, A. Lemaître, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, G. Hill und J. C. Clark, *Electric-field-dependent carrier capture and escape in self-assembled InAs/GaAs quantum dots*, Applied Physics Letters, **77**, 4344 (2000).
- [Gal09] M. Galli, S. L. Portalupi, M. Belotti, L. C. Andreani, L. O’Faolain und T. F. Krauss, *Light scattering and Fano resonances in high-Q photonic crystal nanocavities*, Applied Physics Letters, **94**, 071101 (2009).
- [Gao13] W. Gao, P. Fallahi, E. Togan, A. Delteil, Y. Chin, J. Miguel-Sanchez und A. Imamoglu, *Quantum teleportation from a propagating photon to a solid-state spin qubit*, Nature Communications, **4**, 2744 (2013).
- [Gay03] B. Gayral und J.-M. Gérard, *Comment on “Single-Mode Spontaneous Emission from a Single Quantum Dot in a Three-Dimensional Microcavity”*, Physical Review Letters, **90**, 229701 (2003).
- [Gay08] B. Gayral und J. M. Gérard, *Photoluminescence experiment on quantum dots embedded in a large Purcell-factor microcavity*, Physical Review B, **78**, 235306 (2008).

- [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*, Nature Communications, **4**, 1425 (2013).
- [Ger11] B. D. Gerardot, R. J. Barbour, D. Brunner, P. A. Dalgarno, A. Badolato, N. Stoltz, P. M. Petroff, J. Houel und R. J. Warburton, *Laser spectroscopy of individual quantum dots charged with a single hole*, Applied Physics Letters, **99**, 243112 (2011).
- [Gis02] N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel und H. Zbinden, *Quantum cryptography*, Review of Modern Physics, **74**, 145 (2002).
- [Gla63] R. J. Glauber, *The Quantum Theory of Optical Coherence*, Physical Review, **130**, 2529 (1963).
- [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**, 1110 (1998).
- [Gre10] N. Gregersen, S. Reitzenstein, C. Kistner, M. Strauss, C. Schneider, S. Hofling, L. Worschech, A. Forchel, T. Nielsen, J. Mørk und J.-M. Gerard, *Numerical and Experimental Study of the Q Factor of High-Q Micropillar Cavities*, IEEE Journal of Quantum Electronics, **46**, 1470 (2010).
- [HB56] R. Hanbury Brown und R. Q. Twiss, *The Question of Correlation between Photons in Coherent Light Rays*, Nature, **178**, 1447 (1956).
- [He13a] Y. He, Y.-M. He, Y.-J. Wei, X. Jiang, M.-C. Chen, F.-L. Xiong, Y. Zhao, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, C.-Y. Lu und J.-W. Pan, *Indistinguishable Tunable Single Photons Emitted by Spin-Flip Raman Transitions in InGaAs Quantum Dots*, Physical Review Letters, **111**, 237403 (2013).
- [He13b] Y.-M. He, Y. He, Y.-J. Wei, D. Wu, M. Atatüre, C. Schneider, S. Hofling, M. Kamp, C.-Y. Lu und J.-W. Pan, *On-demand semiconductor single-photon source with near-unity indistinguishability*, Nature Photonics, **8**, 213 (2013).
- [Hen07] K. Hennessy, A. Badolato, M. Winger, D. Gerace, M. Atatüre, S. Gulde, S. Falt, E. L. Hu und A. Imamoglu, *Quantum nature of a strongly coupled single quantum dot-cavity system*, Nature, **445**, 896 (2007).
- [Hon87] C. K. Hong, Z. Y. Ou und L. Mandel, *Measurement of subpicosecond time intervals between two photons by interference*, Physical Review Letters, **59**, 2044 (1987).

- [Hou12] J. Houel, A. V. Kuhlmann, L. Greuter, F. Xue, M. Poggio, B. D. Gerardot, P. A. Dalgarno, A. Badolato, P. M. Petroff, A. Ludwig, D. Reuter, A. D. Wieck und R. J. Warburton, *Probing Single-Charge Fluctuations at a GaAs/AlAs Interface Using Laser Spectroscopy on a Nearby InGaAs Quantum Dot*, Physical Review Letters, **108**, 107401 (2012).
- [Hu08a] C. Y. Hu, W. J. Munro und J. G. Rarity, *Deterministic photon entangler using a charged quantum dot inside a microcavity*, Physical Review B, **78**, 125318 (2008).
- [Hu08b] C. Y. Hu, A. Young, J. L. O'Brien, W. J. Munro und J. G. Rarity, *Giant optical Faraday rotation induced by a single-electron spin in a quantum dot: Applications to entangling remote spins via a single photon*, Physical Review B, **78**, 085307 (2008).
- [Hu09] C. Y. Hu, W. J. Munro, J. L. O'Brien und J. G. Rarity, *Proposed entanglement beam splitter using a quantum-dot spin in a double-sided optical microcavity*, Physical Review B, **80**, 205326 (2009).
- [Hu11] C. Y. Hu und J. G. Rarity, *Loss-resistant state teleportation and entanglement swapping using a quantum-dot spin in an optical microcavity*, Physical Review B, **83**, 115303 (2011).
- [Hwa03] W.-Y. Hwang, *Quantum Key Distribution with High Loss: Toward Global Secure Communication*, Physical Review Letters, **91**, 057901 (2003).
- [Ino02] K. Inoue, E. Waks und Y. Yamamoto, *Differential Phase Shift Quantum Key Distribution*, Physical Review Letters, **89**, 037902 (2002).
- [Kam02] C. Kammerer, G. Cassabois, C. Voisin, M. Perrin, C. Delalande, P. Roussignol und J. M. Gérard, *Interferometric correlation spectroscopy in single quantum dots*, Applied Physics Letters, **81**, 2737 (2002).
- [Kha12] M. Khajavikhan, A. Simic, M. Katz, J. H. Lee, B. Slutsky, A. Mizrahi, V. Lomakin und Y. Fainman, *Thresholdless nanoscale coaxial lasers*, Nature, **482**, 204 (2012).
- [Kim08] H. J. Kimble, *The quantum internet*, Nature, **453**, 1023 (2008).
- [Kir05] A. Kiraz, M. Ehrl, T. Hellerer, O. E. Müstecaplıođlu, C. Bräuchle und A. Zumbusch, *Indistinguishable Photons from a Single Molecule*, Physical Review Letters, **94**, 223602 (2005).

- [Kis08] C. Kistner, T. Heindel, C. Schneider, A. Rahimi-Iman, S. Reitzenstein, S. Höfling und A. Forchel, *Demonstration of strong coupling via electro-optical tuning in high-quality QD-micropillar systems*, Optics Express, **16**, 15006 (2008).
- [Kis10] C. Kistner, K. Morgener, S. Reitzenstein, C. Schneider, S. Höfling, L. Worschech, A. Forchel, P. Yao und S. Hughes, *Strong coupling in a quantum dot micropillar system under electrical current injection*, Applied Physics Letters, **96**, 221102 (2010).
- [Kla02] E. Klarreich, *Quantum cryptography: Can you keep a secret?*, Nature, **418**, 270 (2002).
- [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*, Review of Modern Physics, **79**, 135 (2007).
- [Kro08] M. Kroner, A. O. Govorov, S. Remi, B. Biedermann, S. Seidl, A. Badolato, P. M. Petroff, W. Zhang, R. Barbour, B. D. Gerardot, R. J. Warburton und K. Karrai, *The nonlinear Fano effect*, Nature, **451**, 311 (2008).
- [Kuh13] A. V. Kuhlmann, J. Houel, D. Brunner, A. Ludwig, D. Reuter, A. D. Wieck und R. J. Warburton, *A dark-field microscope for background-free detection of resonance fluorescence from single semiconductor quantum dots operating in a set-and-forget mode*, Review of Scientific Instruments, **84**, 073905 (2013).
- [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**, 4726 (2004).
- [Leg06] T. Legero, T. Wilk, A. Kuhn und G. Rempe, *Characterization of Single Photons Using Two-Photon Interference*, volume 53 of *Advances In Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 253 – 289, Academic Press (2006).
- [Leo10] U. Leonhardt, *Essential Quantum Optics: From Quantum Measurements to Black Holes*, Cambridge University Press (2010).
- [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*, Physical Review Letters, **108**, 057402 (2012).
- [Löf06] A. Löffler, J.-P. Reithmaier, A. Forchel, A. Sauerwald, D. Peskes, T. Kummell und G. Bacher, *Influence of the strain on the formation of GaInAs/GaAs quantum structures*, Journal of Crystal Growth, **286**, 6 (2006).

- [Löf08] A. Löffler, *Selbstorganisiertes Wachstum von (Ga)InAs/GaAs-Quantenpunkten und Entwicklung von Mikroresonatoren höchster Güte für Experimente zur starken Exziton-Photon-Kopplung*, Doktorarbeit, Universität Würzburg (2008).
- [Li03] H. E. Li und K. Iga, *Vertical-cavity surface-emitting laser devices*, Springer Verlag Berlin (2003).
- [Lou00] R. Loudon, *The Quantum Theory of Light*, OUP Oxford (2000).
- [Mai14] S. Maier, P. Gold, A. Forchel, N. Gregersen, J. Mørk, S. Höfling, C. Schneider und M. Kamp, *Bright single photon source based on self-aligned quantum dot-cavity systems*, Optics Express, **22**, 8136 (2014).
- [Maj10] A. Majumdar, A. Faraon, E. D. Kim, D. Englund, H. Kim, P. Petroff und J. Vučković, *Linewidth broadening of a quantum dot coupled to an off-resonant cavity*, Physical Review B, **82**, 045306 (2010).
- [Mat12] C. Matthiesen, A. N. Vamivakas und M. Atatüre, *Subnatural Linewidth Single Photons from a Quantum Dot*, Physical Review Letters, **108**, 093602 (2012).
- [Mat13] C. Matthiesen, M. Geller, C. H. H. Schulte, C. Le Gall, J. Hansom, Z. Li, M. Hugues, E. Clarke und M. Atatüre, *Phase-locked indistinguishable photons with synthesized waveforms from a solid-state source*, Nature Communications, **4**, 1600 (2013).
- [Meh63] C. Mehta, *Coherence-time and effective bandwidth of blackbody radiation*, II Nuovo Cimento, **28**, 401 (1963).
- [Mel08] R. Melet, V. Voliotis, A. Enderlin, D. Roditchev, X. L. Wang, T. Guillet und R. Grousson, *Resonant excitonic emission of a single quantum dot in the Rabi regime*, Physical Review B, **78**, 073301 (2008).
- [Mic00] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu und A. Imamoglu, *A Quantum Dot Single-Photon Turnstile Device*, Science, **290**, 2282 (2000).
- [Mic09] P. Michler, *Single Semiconductor Quantum Dots*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg (2009).
- [Mül07] A. Müller, *Resonance Fluorescence and Cavity Quantum Electrodynamics with Quantum Dots*, Doktorarbeit, The University of Texas at Austin (2007).
- [Mol69] B. R. Mollow, *Power Spectrum of Light Scattered by Two-Level Systems*, Physical Review, **188**, 1969 (1969).

- [Mon13] L. Monniello, C. Tonin, R. Hostein, A. Lemaitre, A. Martinez, V. Voliotis und R. Grousson, *Excitation-Induced Dephasing in a Resonantly Driven InAs/GaAs Quantum Dot*, Physical Review Letters, **111**, 026403 (2013).
- [Mul04] A. Muller, Q. Q. Wang, P. Bianucci, C. K. Shih und Q. K. Xue, *Determination of anisotropic dipole moments in self-assembled quantum dots using Rabi oscillations*, Applied Physics Letters, **84**, 981 (2004).
- [Mul07] A. Muller, E. B. Flagg, P. Bianucci, X. Y. Wang, D. G. Deppe, W. Ma, J. Zhang, G. J. Salamo, M. Xiao und C. K. Shih, *Resonance Fluorescence from a Coherently Driven Semiconductor Quantum Dot in a Cavity*, Physical Review Letters, **99**, 187402 (2007).
- [Mun09] M. Munsch, A. Mosset, A. Auffèves, S. Seidelin, J. P. Poizat, J.-M. Gérard, A. Lemaître, I. Sagnes und P. Senellart, *Continuous-wave versus time-resolved measurements of Purcell factors for quantum dots in semiconductor microcavities*, Physical Review B, **80**, 115312 (2009).
- [Mus14] A. Musiał, P. Gold, J. Andrzejewski, A. Löffler, J. Misiewicz, S. Höfling, A. Forchel, M. Kamp, G. Sek und S. Reitzenstein, *Toward weak confinement regime in epitaxial nanostructures: Interdependence of spatial character of quantum confinement and wave function extension in large and elongated quantum dots*, Physical Review B, **90**, 045430 (2014).
- [Ngu12] H. S. Nguyen, G. Sallen, C. Voisin, P. Roussignol, C. Diederichs und G. Cassabois, *Optically Gated Resonant Emission of Single Quantum Dots*, Physical Review Letters, **108**, 057401 (2012).
- [Ngu13] H. S. Nguyen, G. Sallen, M. Abbarchi, R. Ferreira, C. Voisin, P. Roussignol, G. Cassabois und C. Diederichs, *Photoneutralization and slow capture of carriers in quantum dots probed by resonant excitation spectroscopy*, Physical Review B, **87**, 115305 (2013).
- [Nod06] S. Noda, *Seeking the Ultimate Nanolaser*, Science, **314**, 260 (2006).
- [O'B07] J. L. O'Brien, *Optical Quantum Computing*, Science, **318**, 1567 (2007).
- [Oli77] J. Olivero und R. Longbothum, *Empirical fits to the Voigt line width: A brief review*, Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, **17**, 233 (1977).
- [Oul02] R. Oulton, J. J. Finley, A. D. Ashmore, I. S. Gregory, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. J. Steer, S.-L. Liew, M. A. Migliorato und A. J. Cullis, *Manipulation of the homogeneous linewidth of an individual In(Ga)As quantum dot*, Physical Review B, **66**, 045313 (2002).

- [Oul04] R. Oulton, A. I. Tartakovskii, A. Ebbens, J. Cahill, J. J. Finley, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick und M. Hopkinson, *Temperature-induced carrier escape processes studied in absorption of individual  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  quantum dots*, Physical Review B, **69**, 155323 (2004).
- [Pan12] J.-W. Pan, Z.-B. Chen, C.-Y. Lu, H. Weinfurter, A. Zeilinger und M. Żukowski, *Multiphoton entanglement and interferometry*, Review of Modern Physics, **84**, 777 (2012).
- [Pat05] B. Patton, U. Woggon und W. Langbein, *Coherent Control and Polarization Readout of Individual Excitonic States*, Physical Review Letters, **95**, 266401 (2005).
- [Pat08] R. B. Patel, A. J. Bennett, K. Cooper, P. Atkinson, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Postselective Two-Photon Interference from a Continuous Nonclassical Stream of Photons Emitted by a Quantum Dot*, Physical Review Letters, **100**, 207405 (2008).
- [Pat10a] R. B. Patel, A. J. Bennett, K. Cooper, P. Atkinson, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Quantum interference of electrically generated single photons from a quantum dot*, Nanotechnology, **21**, 274011 (2010).
- [Pat10b] R. B. Patel, A. J. Bennett, I. Farrer, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Two-photon interference of the emission from electrically tunable remote quantum dots*, Nature Photonics, **4**, 632 (2010).
- [Pet07] E. Peter, S. Laurent, J. Bloch, J. Hours, S. Varoutsis, I. Robert-Philip, A. Beveratos, A. Lemaître, A. Cavanna, G. Patriarche, P. Senellart und D. Martrou, *Fast radiative quantum dots: From single to multiple photon emission*, Applied Physics Letters, **90**, 223118 (2007).
- [Poo12] M. A. Pooley, D. J. P. Ellis, R. B. Patel, A. J. Bennett, K. H. A. Chan, I. Farrer, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Controlled-NOT gate operating with single photons*, Applied Physics Letters, **100**, 211103 (2012).
- [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**, 117402 (2007).
- [Pur46] E. Purcell, *Spontaneous emission probabilities at radiofrequencies*, Physical Review, **69**, 681 (1946).

- [Rab37] I. I. Rabi, *Space Quantization in a Gyating Magnetic Field*, Physical Review, **51**, 652 (1937).
- [Ram10a] A. J. Ramsay, T. M. Godden, S. J. Boyle, E. M. Gauger, A. Nazir, B. W. Lovett, A. M. Fox und M. S. Skolnick, *Phonon-Induced Rabi-Frequency Renormalization of Optically Driven Single InGaAs/GaAs Quantum Dots*, Physical Review Letters, **105**, 177402 (2010).
- [Ram10b] A. J. Ramsay, A. V. Gopal, E. M. Gauger, A. Nazir, B. W. Lovett, A. M. Fox und M. S. Skolnick, *Damping of Exciton Rabi Rotations by Acoustic Phonons in Optically Excited InGaAs/GaAs Quantum Dots*, Physical Review Letters, **104**, 017402 (2010).
- [Rei04] J. P. Reithmaier, G. Sek, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke und A. Forchel, *Strong coupling in a single quantum dot-semiconductor microcavity system*, Nature, **432**, 197 (2004).
- [Rei06] S. Reitzenstein, A. Bazhenov, A. Gorbunov, C. Hofmann, S. Münch, A. Löffler, M. Kamp, J. P. Reithmaier, V. D. Kulakovskii und A. Forchel, *Lasing in high-Q quantum-dot micropillar cavities*, Applied Physics Letters, **89**, 051107 (2006).
- [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**, 251109 (2007).
- [Rei09] S. Reitzenstein, S. Münch, P. Franeck, A. Rahimi-Iman, A. Löffler, S. Höfling, L. Worschech und A. Forchel, *Control of the Strong Light-Matter Interaction between an Elongated In<sub>0.3</sub>Ga<sub>0.7</sub>As Quantum Dot and a Micropillar Cavity Using External Magnetic Fields*, Physical Review Letters, **103**, 127401 (2009).
- [Rei10] S. Reitzenstein und A. Forchel, *Quantum dot micropillars*, Journal of Physics D: Applied Physics, **43**, 033001 (2010).
- [Rem06] G. Rempe und M. Scully, *Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics*, Advances in atomic molecular and optical physics, Elsevier Science (2006).
- [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**, 911 (1999).
- [Rob00] H. D. Robinson und B. B. Goldberg, *Light-induced spectral diffusion in single self-assembled quantum dots*, Physical Review B, **61**, R5086 (2000).

- [Sal08] B. Saleh und M. Teich, *Grundlagen der Photonik*, Lehrbuch Physik, Wiley-VCH (2008).
- [San02] C. Santori, D. Fattal, J. Vuckovic, G. S. Solomon und Y. Yamamoto, *Indistinguishable photons from a single-photon device*, Nature, **419**, 594 (2002).
- [San04] C. Santori, D. Fattal, J. Vuckovic, G. S. Solomon und Y. Yamamoto, *Single-photon generation with InAs quantum dots*, New Journal of Physics, **6**, 89 (2004).
- [San07] N. Sangouard, C. Simon, J. c. v. Minář, H. Zbinden, H. de Riedmatten und N. Gisin, *Long-distance entanglement distribution with single-photon sources*, Physical Review A, **76**, 050301 (2007).
- [San11] N. Sangouard, C. Simon, H. de Riedmatten und N. Gisin, *Quantum repeaters based on atomic ensembles and linear optics*, Review of Modern Physics, **83**, 33 (2011).
- [San12] N. Sangouard und H. Zbinden, *What are single photons good for?*, Journal of Modern Optics, **59**, 1458 (2012).
- [Sch11] C. Schneider, *Konzepte zur skalierbaren Realisierung von effizienten, halbleiterbasierten Einzelphotonenquellen*, Doktorarbeit, Universität Würzburg (2011).
- [Scu97] M. Scully und S. Zubairy, *Quantum Optics*, Cambridge University Press (1997).
- [Sek06] G. Sek, 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**, 103529 (2006).
- [Sho93] B. W. Shore und P. L. Knight, *The Jaynes-Cummings Model*, Journal of Modern Optics, **40**, 1195 (1993).
- [Slu93] R. E. Slusher, A. F. J. Levi, U. Mohideen, S. L. McCall, S. J. Pearton und R. A. Logan, *Threshold characteristics of semiconductor microdisk lasers*, Applied Physics Letters, **63**, 1310 (1993).
- [Ste06] R. M. Stevenson, R. J. Young, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *A semiconductor source of triggered entangled photon pairs*, Nature, **439**, 179 (2006).
- [Ste12] 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*, Physical Review Letters, **108**, 040503 (2012).

- [Sti01] T. H. Stievater, X. Li, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi und L. J. Sham, *Rabi Oscillations of Excitons in Single Quantum Dots*, Physical Review Letters, **87**, 133603 (2001).
- [Str06] S. Strauf, K. Hennessy, M. T. Rakher, Y.-S. Choi, A. Badolato, L. C. Andreani, E. L. Hu, P. M. Petroff und D. Bouwmeester, *Self-Tuned Quantum Dot Gain in Photonic Crystal Lasers*, Physical Review Letters, **96**, 127404 (2006).
- [Sun09] F. W. Sun und C. W. Wong, *Indistinguishability of independent single photons*, Physical Review A, **79**, 013824 (2009).
- [Tro12] R. Trotta, E. Zallo, C. Ortix, P. Atkinson, J. D. Plumhof, J. van den Brink, A. Rastelli und O. G. Schmidt, *Universal Recovery of the Energy-Level Degeneracy of Bright Excitons in InGaAs Quantum Dots without a Structure Symmetry*, Physical Review Letters, **109**, 147401 (2012).
- [Ulh10] A. Ulhaq, S. Ates, S. Weiler, S. M. Ulrich, S. Reitzenstein, A. Löffler, S. Höfling, L. Worschech, A. Forchel und P. Michler, *Linewidth broadening and emission saturation of a resonantly excited quantum dot monitored via an off-resonant cavity mode*, Physical Review B, **82**, 045307 (2010).
- [Vah03] K. J. Vahala, *Optical microcavities*, Nature, **424**, 839 (2003).
- [Vam09] N. Vamivakas, Y. Zhao, C.-Y. Lu und M. Atatüre, *Spin-resolved quantum-dot resonance fluorescence*, Nature Physics, **5**, 198 (2009).
- [Var05] S. Varoutsis, S. Laurent, P. Kramper, A. Lemaître, I. Sagnes, I. Robert-Philip und I. Abram, *Restoration of photon indistinguishability in the emission of a semiconductor quantum dot*, Physical Review B, **72**, 041303 (2005).
- [Var08] M. Varnava, D. E. Browne und T. Rudolph, *How Good Must Single Photon Sources and Detectors Be for Efficient Linear Optical Quantum Computation?*, Physical Review Letters, **100**, 060502 (2008).
- [Vas02] A. Vasanelli, R. Ferreira und G. Bastard, *Continuous Absorption Background and Decoherence in Quantum Dots*, Physical Review Letters, **89**, 216804 (2002).
- [Vuc02] J. Vuckovic, M. Pelton, A. Scherer und Y. Yamamoto, *Optimization of three-dimensional micropost microcavities for cavity quantum electrodynamics*, Physical Review A, **66**, 023808 (2002).
- [Wan05] Q. Q. Wang, A. Müller, P. Bianucci, E. Rossi, Q. K. Xue, T. Takagahara, C. Piermarocchi, A. H. MacDonald und C. K. Shih, *Decoherence processes during optical manipulation of excitonic qubits in semiconductor quantum dots*, Physical Review B, **72**, 035306 (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**, 064313 (2006).
- [Wan12] T.-J. Wang, S.-Y. Song und G. L. Long, *Quantum repeater based on spatial entanglement of photons and quantum-dot spins in optical microcavities*, Physical Review A, **85**, 062311 (2012).
- [Wei11] S. Weiler, A. Ulhaq, S. M. Ulrich, S. Reitzenstein, A. Löffler, A. Forchel und P. Michler, *Highly indistinguishable photons from a quantum dot in a microcavity*, physica status solidi (b), **248**, 867 (2011).
- [Wei13] S. Weiler, D. Stojanovic, S. M. Ulrich, M. Jetter und P. Michler, *Postselected indistinguishable single-photon emission from the Mollow triplet sidebands of a resonantly excited quantum dot*, Physical Review B, **87**, 241302 (2013).
- [Wei14] Y.-J. Wei, Y.-M. He, M.-C. Chen, Y.-N. Hu, Y. He, D. Wu, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, C.-Y. Lu und J.-W. Pan, *Deterministic and Robust Generation of Single Photons On a Chip with 99.5% Indistinguishability Using Rapid Adiabatic Passage*, ArXiv e-prints (2014).
- [Woo82] W. K. Wootters und W. H. Zurek, *A single quantum cannot be cloned*, Nature, **299**, 802 (1982).
- [Wu75] F. Y. Wu, R. E. Grove und S. Ezekiel, *Investigation of the Spectrum of Resonance Fluorescence Induced by a Monochromatic Field*, Physical Review Letters, **35**, 1426 (1975).
- [Xu07] X. Xu, Y. Wu, B. Sun, Q. Huang, J. Cheng, D. G. Steel, A. S. Bracker, D. Gammon, C. Emary und L. J. Sham, *Fast Spin State Initialization in a Singly Charged InAs-GaAs Quantum Dot by Optical Cooling*, Physical Review Letters, **99**, 097401 (2007).
- [Xu08] X. Xu, *Coherent Optical Spectroscopy of a Single Semiconductor Quantum Dot*, Doktorarbeit, University of Michigan (2008).
- [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**, 200 (2004).
- [Zre02] A. Zrenner, E. Beham, S. Stuffer, F. Findeis, M. Bichler und G. Abstreiter, *Coherent properties of a two-level system based on a quantum-dot photodiode*, Nature, **418**, 612 (2002).

# A Anhang

## A.1 Probenaufbau des Wafers C1658

Bereich	Anzahl	Dicke (nm)	Material
oberer DBR	32×	71	GaAs
		78	AlAs
Kavität	1×	140,5	GaAs
aktive Schicht	1×	4	In <sub>0,7</sub> Ga <sub>0,3</sub> As
Kavität	1×	140,5	GaAs
unterer DBR	1×	78	AlAs
	36×	71	GaAs
		78	AlAs
Pufferschicht	1×	400	GaAs

**Tabelle A.1:** Alle Schichten des Wafers sind undotiert.

## A.2 Probenaufbau des Wafers C3297

Bereich	Anzahl	Dicke (nm)	Material	Dotierung
oberer DBR	5×	65,6	GaAs	intrinsisch
		79	AlAs	
Kavität	1×	115	GaAs	intrinsisch
aktive Schicht	1×	1,5 (cap)	InAs PCA	intrinsisch
Kavität	1×	10	GaAs	intrinsisch
	1×		Si	$\delta$ -dotiert
	1×	105	GaAs	intrinsisch
unterer DBR	1×	79	AlAs	intrinsisch
	18×	65,6	GaAs	intrinsisch
		79	AlAs	
Pufferschicht	1×	200	GaAs	intrinsisch

### A.3 Probenaufbau des Wafers M3569

Bereich	Anzahl	Dicke (nm)	Material	Dotierung
oberer DBR	5×	69	GaAs	intrinsisch
		75	Al <sub>0,9</sub> Ga <sub>0,1</sub> As	
Kavität	1×	147	GaAs	intrinsisch
aktive Schicht	1×	1,5 (cap)	InAs PCA	intrinsisch
Kavität	1×	10	GaAs	intrinsisch
	1×		Si	δ-dotiert
	1×	137	GaAs	intrinsisch
unterer DBR	1×	75	Al <sub>0,9</sub> Ga <sub>0,1</sub> As	intrinsisch
	24×	69	GaAs	intrinsisch
		75	Al <sub>0,9</sub> Ga <sub>0,1</sub> As	
Pufferschicht	1×	400	Al <sub>0,9</sub> Ga <sub>0,1</sub> As	intrinsisch

### A.4 Probenaufbau des Wafers M2883

Bereich	Anzahl	Dicke (nm)	Material	Dotierkonzentration (cm <sup>-3</sup> )
oberer DBR	2×	61	C:GaAs	2 × 10 <sup>19</sup>
		69	C:AlAs	
	9×	61	C:GaAs	3 × 10 <sup>18</sup>
		69	C:AlAs	
	5×	61	C:GaAs	2 × 10 <sup>18</sup>
		69	C:AlAs	
	7×	61	C:GaAs	1 × 10 <sup>18</sup>
		69	C:AlAs	
Kavität	1×	134	GaAs	intrinsisch
aktive Schicht	1×	1,4	In <sub>0,6</sub> Ga <sub>0,4</sub> As	intrinsisch
Kavität	1×	134	GaAs	intrinsisch
unterer DBR	1×	69	AlAs	intrinsisch
	4×	61	Si:GaAs	1 × 10 <sup>18</sup>
		69	Si:AlAs	
	5×	61	Si:GaAs	2 × 10 <sup>18</sup>
		69	Si:AlAs	
	17×	61	Si:GaAs	3 × 10 <sup>18</sup>
69		Si:AlAs		
Pufferschicht	1×	400	Si:GaAs	3 × 10 <sup>18</sup>

**Tabelle A.2:** An jeder Grenzfläche von GaAs zu AlAs befindet sich eine zusätzliche δ-Dotierung, die einer Flächendotierung von 1 × 10<sup>12</sup> cm<sup>-2</sup> entspricht.

## A.5 Probenaufbau des Wafers M2976

Bereich	Anzahl	Dicke (nm)	Material	Dotierkonzentration ( $\text{cm}^{-3}$ )
oberer DBR	2×	68	C:GaAs	$2 \times 10^{19}$
		77	C:AlAs	
	9×	68	C:GaAs	$3 \times 10^{18}$
		77	C:AlAs	
	5×	68	C:GaAs	$2 \times 10^{18}$
		77	C:AlAs	
	7×	68	C:GaAs	$1 \times 10^{18}$
		77	C:AlAs	
Kavität	1×	136	GaAs	intrinsisch
aktive Schicht	1×	4,5	$\text{In}_{0,7}\text{Ga}_{0,3}\text{As}$	intrinsisch
Kavität	1×	136	GaAs	intrinsisch
unterer DBR	1×	77	AlAs	intrinsisch
	4×	68	Si:GaAs	$1 \times 10^{18}$
		77	Si:AlAs	
	5×	68	Si:GaAs	$2 \times 10^{18}$
		77	Si:AlAs	
	17×	68	Si:GaAs	$3 \times 10^{18}$
		77	Si:AlAs	
	Pufferschicht	1×	400	Si:GaAs

**Tabelle A.3:** An jeder Grenzfläche von GaAs zu AlAs befindet sich eine zusätzliche  $\delta$ -Dotierung, die einer Flächendotierung von  $1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  entspricht.

## A.6 Probenaufbau des Wafers M3383

Bereich	Anzahl	Dicke (nm)	Material	Dotierkonzentration ( $\text{cm}^{-3}$ )
oberer DBR	2×	68	C:GaAs	$2 \times 10^{19}$
		81,6	C:AlAs	
	5×	68	C:GaAs	$3 \times 10^{18}$
		81,6	C:AlAs	
	3×	68	C:GaAs	$2 \times 10^{18}$
		81,6	C:AlAs	
	3×	68	C:GaAs	$1 \times 10^{18}$
		81,6	C:AlAs	
Kavität	1×	136	GaAs	intrinsisch
aktive Schicht	1×	2 (cap)	PCA InAs	intrinsisch
Kavität	1×	30	GaAs	intrinsisch
	1×		Si	$\delta$ -dotiert
	1×	106	GaAs	intrinsisch
unterer DBR	1×	81,6	AlAs	intrinsisch
	4×	68	Si:GaAs	$1 \times 10^{18}$
		81,6	Si:AlAs	
	5×	68	Si:GaAs	$2 \times 10^{18}$
		81,6	Si:AlAs	
	16×	68	Si:GaAs	$3 \times 10^{18}$
		81,6	Si:AlAs	
	Pufferschicht	1×	400	Si:GaAs

**Tabelle A.4:** An jeder Grenzfläche von GaAs zu AlAs befindet sich eine zusätzliche  $\delta$ -Dotierung, die einer Flächendotierung von  $1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  entspricht.

# Veröffentlichungen des Autors

## Veröffentlichungen als Erstautor

- P. Gold, M. Gschrey, C. Schneider, S. Höfling, A. Forchel, M. Kamp und S. Reitzenstein, *Single quantum dot photocurrent spectroscopy in the cavity quantum electrodynamics regime*, Physical Review B **86**, 161301(R) (2012)
- P. Gold, A. Thoma, S. Maier, S. Reitzenstein, C. Schneider, S. Höfling und M. Kamp, *Two-photon interference from remote quantum dots with inhomogeneously broadened linewidths*, Physical Review B **89**, 035313 (2014)

## Veröffentlichungen als Koautor

- S. Reitzenstein, S. Münch, P. Gold, P. Franeck, A. Rahimi-Iman, A. Löffler, S. Höfling, L. Worschech, I. V. Ponomarev, T. L. Reinecke und A. Forchel *Magneto-optical cavity quantum electrodynamics effects in quantum dot - micropillar systems*, Journal of Physics: Conference Series **334**, 012011 (2011)
- C. Schneider, A. Huggenberger, M. Gschrey, P. Gold, S. Rodt, A. Forchel, S. Reitzenstein, S. Höfling, and M. Kamp, *In(Ga)As/GaAs site-controlled quantum dots with tailored morphology and high optical quality*, physica status solidi (a) **209**, 2379 (2012)
- M. Lermer, N. Gregersen, M. Lorke, E. Schild, P. Gold, J. Mørk, C. Schneider, A. Forchel, S. Reitzenstein, S. Höfling und M. Kamp, *High beta lasing in micropillar cavities with adiabatic layer design*, Applied Physics Letters **102**, 052114 (2013)
- S. Maier, P. Gold, A. Forchel, N. Gregersen, J. Mørk, S. Höfling, C. Schneider und M. Kamp, *Bright single photon source based on self-aligned quantum dot-cavity systems* Optics Express **22**, 8136 (2014)
- S. Maier, P. Gold, A. Forchel, N. Gregersen, S. Höfling, C. Schneider und M. Kamp, *Bright quantum dot single photon source based on a low Q defect cavity*, High Intensity Lasers and High Field Phenomena, JW2A.75, Optical Society of America (2014)

- C. Schneider, P. Gold, A. Thoma, S. Maier, S. Reitzenstein, S. Höfling und M. Kamp, *Two Photon Interference from Semiconductor Quantum Dots*, Research in Optical Sciences, QW3B.7, Optical Society of America (2014)
- A. Musial, P. Gold, J. Andrzejewski, A. Löffler, J. Misiewicz, S. Höfling, A. Forchel, M. Kamp, G. Sek und S. Reitzenstein, *Toward weak confinement regime in epitaxial nanostructures: Interdependence of spatial character of quantum confinement and wave function extension in large and elongated quantum dots*, Physical Review B **90**, 045430 (2014)
- K. Winkler, P. Gold, B. Bradel, S. Reitzenstein, V.D. Kulakovskii, M. Kamp, C. Schneider und S. Höfling, *Photocurrent read out and electro-optical tuning of resonantly excited exciton polaritons in a trap*, zur Veröffentlichung eingereicht bei Physical Review B

## Eigene Konferenzbeiträge

- P. Gold, S. Reitzenstein, S. Münch, P. Franek, A. Löffler, S. Höfling, L. Worschech, I. Ponomarev, T. Reinecke und A. Forchel, *Spin mediated magneto-optical cavity quantum electrodynamics effects in quantum dot micropillar systems*, DPG Frühjahrstagung des Arbeitskreises Festkörperphysik mit anderen Fachverbänden und den Arbeitskreisen der DPG, 13.-18. März 2011, Dresden, (Deutschland)
- P. Gold, S. Reitzenstein, S. Münch, A. Rahimi-Iman, A. Löffler, S. Höfling, L. Worschech, I. V. Ponomarev, T. L. Reinecke, M. Kamp und A. Forchel, *Magneto-optical cavity quantum electrodynamics effects in quantum dot - micropillar systems* (Poster), 11th International Conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures 2011 (PLMCN11), 04.-08. April, Berlin (Deutschland)
- P. Gold, S. Münch, A. Rahimi-Iman, A. Löffler, S. Höfling, S. Reitzenstein, L. Worschech, I. V. Ponomarev, T. L. Reinecke und A. Forchel, *Magneto-optical cavity quantum electrodynamics effects in quantum dot - micropillar systems* (Poster), International Nano-Optoelectronic Workshop 2011 (iNow2011), 04. Juli - 06. August, Würzburg (Deutschland)
- P. Gold, M. Gschrey, A. Löffler, S. Höfling, M. Kamp, A. Forchel und S. Reitzenstein, *Micro-magneto-optics and photocurrent-spectroscopy of large  $In_{0.3}Ga_{0.7}As$  quantum dots*, DPG Frühjahrstagung des Arbeitskreises Festkörperphysik mit anderen Fachverbänden und den Arbeitskreisen der DPG, 25.-30. März 2012, Berlin (Deutschland)

- P. Gold, M. Gschrey, C. Schneider, M. Lerner, A. Löffler, S. Höfling, M. Kamp, A. Forchel und S. Reitzenstein, *Demonstration of cQED effects by single quantum dot photocurrent spectroscopy* (Poster), 7th International Conference on Quantum Dots 2012 (QD2012), 13.-18. Mai, Santa Fe (USA)
- P. Gold, M. Gschrey, C. Schneider, S. Höfling, A. Forchel, M. Kamp und S. Reitzenstein, *Single quantum dot photocurrent spectroscopy in the cavity quantum electrodynamics regime* (Poster), 11th International Workshop on Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors 2012 (NOEKS11), 23.-27. September, Stuttgart (Deutschland)
- P. Gold, M. Gschrey, M. Lerner, C. Schneider, S. Höfling, A. Forchel, M. Kamp und S. Reitzenstein *Photocurrent spectroscopy on single quantum dots in micropillar cavities - coherent optical manipulation and cavity quantum electrodynamics effects*, DPG Frühjahrstagung des Arbeitskreises Festkörperphysik mit anderen Fachverbänden und den Arbeitskreisen der DPG, 10.-15. März 2013, Regensburg (Deutschland)
- P. Gold, A. Thoma, S. Maier, S. Reitzenstein, C. Schneider, S. Höfling und M. Kamp, *Two Photon Interference from Remote Semiconductor Quantum Dots with 39% Visibility under p-Shell Excitation* (Poster), 1st Sino-German Solid State Quantum Information Symposium, 16.-21. September 2013, Würzburg (Deutschland)
- P. Gold, A. Thoma, S. Maier, S. Reitzenstein, S. Höfling, C. Schneider und M. Kamp, *Two Photon Interference from Remote Quantum Dots with Inhomogeneously Broadened Linewidths*, DPG Frühjahrstagung des Arbeitskreises Quantenoptik mit anderen Fachverbänden und Arbeitskreisen der DPG, 17.-21. März 2014, Berlin (Deutschland)
- C. Schneider, P. Gold, S. Maier, A. Thoma, S. Reitzenstein, S. Höfling und M. Kamp, *Two Photon Interference from Remote Cavity Enhanced Single Quantum Dots*, 15th International Conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures 2014 (PLMCN2014), 09.-13. Juni, Montpellier (Frankreich)



# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich ganz herzlich bei allen Personen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben:

- Besonderer Dank gilt meinem Doktorvater, Prof. Dr. Stephan Reitzenstein, für die Aufnahme in die Spektroskopiegruppe des Lehrstuhls, für die stets hervorragende Betreuung dieser Doktorarbeit nicht nur während der Zeit vor Ort in Würzburg, sondern auch später von Berlin aus, für die immer sehr schnelle und kompetente Hilfe und Unterstützung sowie für zahlreiche gute Ratschläge.
- Prof. Dr. Martin Kamp für die Aufnahme an den Lehrstuhl für Technische Physik mit seinen hervorragenden technologischen Möglichkeiten sowie für stets hilfreiche Antworten auf jegliche Fragen.
- Prof. Dr. Jean Geurts für die Übernahme des Zweitgutachtens dieser Arbeit sowie Prof. Dr. Wolfgang Kinzel für die Teilnahme als Prüfer im Promotionskolloquium.
- Dr. Christian Schneider und Prof. Dr. Sven Höfling für ihre ausgezeichnete Unterstützung und viele hilfreiche wissenschaftliche Diskussionen.
- Der MBE-Arbeitsgruppe, insbesondere Dr. Christian Schneider, Sebastian Maier und Matthias Lermer für die epitaktische Herstellung der erstklassigen Proben.
- Meinem ehemaligen Diplomanden Manuel Gschrey sowie meinen ehemaligen Masteranden Alexander Thoma und Pawel Mrowinski. Vielen Dank für Euer Engagement. Die Zusammenarbeit mit Euch hat mir immer Spaß gemacht und Freude bereitet.
- Monika Emmerling, Theresa Steinl, Adriana Wolf und allen anderen Assistenten des Support-Teams für die Prozessierung der Proben auf höchstem technologischen Niveau.
- Meinen ehemaligen Bacheloranden und Austauschstudenten Patrick Maier, Julian Schary, Ben Bradel, Christoph Böhm, Ricardo Helm, Koen op't Hoog und Marialena Akriotou für ihre Unterstützung.
- Meinen Kollegen aus der Spektroskopiegruppe, insbesondere Julian Fischer, Tobias Heindel, Ferdinand Albert, Tristan Braun, Caroline Kistner, Sebastian Unsleber und

Matthias Amthor, für das freundliche Arbeitsklima, die Hilfsbereitschaft und viele Diskussionen.

- Meinen Bürokollegen, insbesondere Stefan Kremling, für die stets gute Atmosphäre.
- Gerhard Heller für die Lösung von technischen Problemen.
- Allen weiteren Mitgliedern der TEP für ihre Hilfsbereitschaft und die schöne Zeit.
- Den Mitarbeitern der wissenschaftlichen Werkstätten für Reparaturen und Spezialanfertigungen sowie Roland Ebert und Cornelius Ziga für die ausgezeichnete Versorgung mit flüssigem Helium.
- Meiner Frau Julia und meiner Familie für die Unterstützung während des Studiums und der Doktorarbeit.

# Versicherung an Eides statt

**gemäß §5 Abs. 2 Ziff. 2 der Promotionsordnung der Fakultät für Physik und Astronomie der Universität Würzburg vom 22. September 2003**

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 07.01.2011 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 31.10.2014

Peter Gold