

Spektroskopie an positionierten III-V-Halbleiterquantenpunkten



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

vorgelegt von

Tristan Braun
aus Homberg (Efze)

Würzburg 2016

Eingereicht am: 23. März 2016
bei der Fakultät für Physik und Astronomie

1. Gutachter: Dr. Martin Kamp
2. Gutachter: Prof. Dr. Jean Geurts
3. Gutachter:
der Dissertation

1. Prüfer: Dr. Martin Kamp
2. Prüfer: Prof. Dr. Jean Geurts
3. Prüfer: Prof. Dr. Ronny Thomale
im Promotionskolloquium

Tag des Promotionskolloquiums: 24. Februar 2017

Doktorurkunde ausgehändigt am:

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	1
Summary	5
1. Einleitung	9
2. Grundlagen	15
2.1. Halbleiter-Quantenpunkte	15
2.1.1. Strukturelle, elektronische und optische Eigenschaften von Quantenpunkten	16
2.1.2. Mehrteilchenzustände	19
2.1.3. Feinstruktur	21
2.1.4. Biexziton-Exziton-Kaskade	27
2.2. Die Statistik des Lichts und Korrelationsfunktion zweiter Ordnung	30
2.3. Licht-Materie-Wechselwirkung in optischen Mikroresonatoren	35
2.3.1. Zerfallsrate eines Emitters und Purcell-Effekt	38
3. Experimentelle Techniken	43
3.1. Mikrophotolumineszenz-Spektroskopie	43
3.2. Photonen-Autokorrelationsmessung zweiter Ordnung	46
3.3. Photonen-Kreuzkorrelationsmessung zweiter Ordnung	48
3.4. Zeit aufgelöste Mikrophotolumineszenzspektroskopie	49
4. Einfluss eines RTA-Prozesses auf die elektronischen Eigenschaften von Quantenpunkten	51
4.1. Herstellungsverfahren und Ausheilroutine	52
4.2. Magnetfeldmessungen	53
4.2.1. Zeemanaufspaltung und effektiver Landé g-Faktor	55
4.2.2. Diamagnetische Verschiebung	57

4.3. Lebensdauermessungen	59
4.4. Oszillatorstärke	60
4.5. Zusammenfassung des Kapitels	64
5. Temperaturabhängigkeit der Emissionseigenschaften positionierter InAs/GaAs Quantenpunkte	67
5.1. Herstellungsverfahren positionierter InAs/GaAs-Quantenpunkte	68
5.2. Einfluss der Temperatur auf die optischen Eigenschaften der Quantenpunkte	69
5.3. Zusammenfassung des Kapitels	75
6. Optische Spektroskopie an positionierten InP/GaInP Quantenpunkten	77
6.1. Herstellungsverfahren positionierter InP/GaInP-Quantenpunkte	78
6.2. Grundcharakterisierung eines positionierten InP/GaInP-Quantenpunktes .	80
6.3. Photonenstatistik und Biexziton-Exziton-Kaskade	86
6.4. Lebensdauermessungen	89
6.5. Polarisations-eigenschaften und Feinstrukturaufspaltung verschiedener Quantenpunkte	91
6.6. Zusammenfassung des Kapitels	94
7. Realisierung einer Einzelphotonenquelle auf Basis einer Tamm-Plasmonen-Struktur	97
7.1. Probenstruktur und Tamm-Plasmonen-Zustände	98
7.1.1. Tamm-Plasmonen-Zustände	100
7.2. Spektroskopie an einem positionierten InP/GaInP-Quantenpunkt in einer planaren Tamm-Plasmonen-Struktur	103
7.2.1. Photonen-Korrelationsmessungen zweiter Ordnung an einem geladenen Quantenpunkt	106
7.3. Verstärkung der spontanen Emissionsrate eines positionierten InP/GaInP-Quantenpunktes	110
7.4. Effizienz der Tamm-Plasmonen-Struktur	115
7.5. Spontane Emissionsrate in Tamm-Plasmonen-Strukturen	119
7.6. Zusammenfassung des Kapitels	122
Literaturverzeichnis	125

A. Ratengleichungs-Modell der Korrelationsfunktionen 2. Ordnung	143
A.1. Photonen-Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung	145
A.2. Photonen-Kreuzkorrelationsfunktion zweiter Ordnung	146
A.3. Berücksichtigung der Detektorauflösung	147
B. Simulationen auf Basis des Fick'schen Gesetzes	149
Veröffentlichungen des Autors	151
Danksagung	155

Zusammenfassung

Viele Forschergruppen konzentrieren sich derzeit auf die Entwicklung von neuartigen Technologien, welche den Weg für die kommerzielle Nutzung einer Quantenkommunikation bereiten sollen. Erste Erfolge konnten dabei insbesondere auf dem Gebiet der Quantenschlüsselverteilung erzielt werden. In diesem Bereich nutzt man die Eigenschaft einzelner, ununterscheidbarer Photonen nicht kopiert werden zu können, um eine abhörsichere Übertragung sensibler Daten zu realisieren. Als Lichtquellen dafür eignen sich Halbleiter-Quantenpunkte. Diese Quantenpunkte lassen sich außerdem leicht in komplexe Halbleiter-Mikrostrukturen integrieren und sind somit besonders interessant für die Entwicklung solcher fortschrittlicher Technologien, welche für eine abhörsichere Kommunikation notwendig sind.

Basierend auf diesem Hintergrund wurden in der vorliegenden Arbeit Halbleiter-Quantenpunkte spektroskopisch hinsichtlich ihres Potentials als Quanten-Lichtquelle für die Quantenkommunikation untersucht. Dabei wurden die Quantenpunkte aus InAs/GaAs und InP/GaInP unter anderem in einem speziellen Verfahren deterministisch positioniert und letztendlich in eine photonische Mikrostruktur integriert, welche aus einer Goldscheibe und einem dielektrischen Spiegel besteht. Als Grundcharakterisierungsmittel kam hauptsächlich die Mikrophotolumineszenzspektroskopie zur Bestimmung der Emissionseigenschaften zum Einsatz. Weiterführend wurden Photonen-Korrelationsmessungen zweiter Ordnung durchgeführt, um den Nachweis einer Quanten-Lichtquelle zu erbringen.

Einfluss eines RTA-Prozesses auf die Emissionseigenschaften von InAs/GaAs-Quantenpunkten

Zur Untersuchung des Einflusses eines Rapid-Thermal-Annealing-Prozesses auf die elektronischen Eigenschaften und die Oszillatorstärke selbstorganisierter InAs/GaAs-Quantenpunkte wurden Mikrophotolumineszenzmessungen an verschiedenen Proben im externen Magnetfeld von bis zu 5 T durchgeführt. Die Quantenpunkte wurden dabei in einem besonderen Verfahren gewachsen, bei dem die nominelle Quantenpunkthöhe

durch eine bestimmte Bedeckungsschichtdicke vorgegeben wurde. Insgesamt wurden drei Proben mit Schichtdicken von 2 nm, 3 nm und 4 nm hergestellt, die jeweils nachträglich bei Temperaturen von 750° C bis 850° C für fünf Minuten ausgeheilt wurden. Anhand polarisationsaufgelöster Spektroskopie konnten aus den aufgenommenen Quantenpunktspektren die Zeemanaufspaltung und die diamagnetische Verschiebung extrahiert und damit der effektive Landé g-Faktor sowie der diamagnetische Koeffizient bestimmt werden. Die Auswertung der Zeemanaufspaltung zeigte, dass sowohl höhere Ausheiltemperaturen als auch dickere Bedeckungsschichten zu einer drastischen Abnahme der absoluten g-Faktoren sorgen. Dies lässt darauf schließen, dass eine dickere Bedeckungsschicht zu einer stärkeren Interdiffusion der Atome und einer steigenden Ausdehnung der Quantenpunkte für ex-situ Ausheilprozesse führt. Im Gegensatz dazu steigen die diamagnetischen Koeffizienten der Quantenpunkte mit zunehmender Ausheiltemperatur, was auf eine Ausdehnung der Exzitonwellenfunktion hindeutet. Außerdem wurden mittels zeitaufgelöster Mikrophotolumineszenzspektroskopie die Lebensdauern am Quantenpunktensemble bestimmt und eine Abnahme dieser mit steigender Temperatur festgestellt. Sowohl über die Untersuchungen des diamagnetischen Koeffizienten als auch über die Analyse der Lebensdauer konnte schließlich die Oszillatorstärke der Quantenpunkte ermittelt werden. Beide Messverfahren lieferten innerhalb der Fehlergrenzen ähnliche Ergebnisse. Die höchste Oszillatorstärke $f_{\chi} = 34,7 \pm 5,2$ konnte für eine Schichtdicke von $d = 3$ nm und einer Ausheiltemperatur von 850° C über den diamagnetischen Koeffizienten berechnet werden. Im Falle der Bestimmung über die Lebensdauer ergab sich ein maximaler Wert von $f_{\tau} = 25,7 \pm 5,7$. Dies entspricht einer deutlichen Steigerung der Oszillatorstärke im Vergleich zu den Referenzproben um einem Faktor größer als zwei. Des Weiteren konnte eine Ausdehnung der Schwerpunktwellenfunktion der Exzitonen um etwa 70 % festgestellt werden. Insgesamt betrachtet, lässt sich durch ex-situ Rapid-Thermal-Annealing-Prozesse die Oszillatorstärke nachträglich deutlich erhöhen, wodurch InAs/GaAs-Quantenpunkte noch interessanter für Untersuchungen im Regime der starken Kopplung werden.

Temperatur- und Leistungsabhängigkeit der Emissionseigenschaften positionierter InAs/GaAs Quantenpunkte

Um einen Einblick in den Ablauf des Zerfallsprozesses eines Exzitons in positionierten Quantenpunkten zu bekommen, wurden temperatur- und leistungsabhängige Messungen durchgeführt. Diese Quantenpunkte wurden in einem speziellen Verfahren deterministisch an vorher definierten Stellen gewachsen. Anhand der Temperaturserien konnten dann

Rückschlüsse auf die auftretenden Verlustkanäle in einem Quantenpunkt und dessen Emissionseigenschaften gezogen werden. Dabei wurden zwei dominante Prozesse als Ursache für den Intensitätsabfall bei höheren Temperaturen identifiziert. Die Anhebung der Elektronen im Grundzustand in die umgebende Barriere oder in delokalisierte Zustände in der Benetzungsschicht sorgt für die anfängliche Abnahme der Intensität bei niedrigeren Temperaturen. Der starke Abfall bei höheren Temperaturen ist dagegen dem Aufbruch der exzitonischen Bindung und der thermischen Aktivierung der Ladungsträger in das umgebende Substratmaterial geschuldet. Hierbei lassen sich exemplarisch für zwei verschiedene Quantenpunkte die Aktivierungsenergien $E_{2A} = 102,2 \pm 0,4$ meV und $E_{2B} = 163,2 \pm 1,3$ meV bestimmen, welche in etwa den Lokalisierungsenergien der Exzitonen in dem jeweiligen Quantenpunkt von 100 meV bzw. 144 meV entsprechen. Weiterhin deckte die Auswertung des Intensitätsprofils der Exzitonemission die Streuung der Exzitonen an akustischen und optischen Phononen als Hauptursache für die Zunahme der Linienbreite auf. Für hohe Temperaturen dominierte die Wechselwirkung mit longitudinalen optischen Phononen den Verlauf und es konnten für das InAs/GaAs Materialsystem typische Phononenenergien von $E_{LOA} = 30,9 \pm 4,8$ meV und $E_{LOB} = 32,2 \pm 0,8$ meV bestimmt werden. In abschließenden Messungen der Leistungsabhängigkeit der Linienbreite wurde festgestellt, dass spektrale Diffusion die inhärente Grenze für die Linienbreite bei niedrigen Temperaturen setzt.

Optische Spektroskopie an positionierten InP/GaInP-Quantenpunkten

Weiterhin wurden positionierte InP/GaInP-Quantenpunkte hinsichtlich der Nutzung als Quanten-Lichtquelle optisch spektroskopiert. Zunächst wurden die Emissionseigenschaften der Quantenpunkte in grundlegenden Experimenten analysiert. Leistungs- und polarisationsabhängige Messungen ließen dabei die Vermutung sowohl auf exzitonische als auch biexzitonische Zerfallsprozesse zu. Weiterhin brachten die Untersuchungen der Polarisation einen ungewöhnlich hohen Polarisationsgrad der Quantenpunktmission hervor. Aufgrund von lokalen Ordnungsphänomenen in der umgebenden GaInP-Matrix wurden im Mittel über 66 Quantenpunkte der Grad der Polarisation von Exziton und Biexziton zu $p_{Mittel} = 93_{-9}^{+7}$ % bestimmt. Des Weiteren wiesen die Quantenpunkte eine sehr hohe Feinstrukturaufspaltung von $\Delta_{FSS}^{Mittel} = 300 \pm 130$ μ eV auf, welche sich nur durch eine stark anisotrope Quantenpunktform erklären lässt. Durch Auto- und Kreuzkorrelationsmessungen zweiter Ordnung wurden dann sowohl der nicht-klassische Einzelphotonencharakter von Exziton und Biexziton als auch erstmalig für diese Strukturen der kaskadierte

Zerfall der Biexziton-Exziton-Kaskade demonstriert. Hierbei wurden $g^{(2)}(0)$ -Werte von bis 0,08 erreicht. Diese Ergebnisse zeigen das Potential von positionierten InP/GaInP-Quantenpunkten als Grundbausteine für Quanten-Lichtquellen, insbesondere in Bezug auf den Einsatz in der Quantenkommunikation.

Realisierung einer Einzelphotonenquelle auf Basis einer Tamm-Plasmonen-Struktur

Nachdem die vorangegangenen Untersuchungen die Eignung der positionierten InP/GaInP-Quantenpunkte als Emitter einzelner Photonen demonstrierten, befasst sich dieser Teil nun mit der Integration dieser Quantenpunkte in eine Tamm-Plasmonen-Struktur zur Realisierung einer effizienten Einzelphotonenquelle. Diese Strukturen bestehen aus einem dielektrischen Spiegel aus 30,5 AlGaAs/AlAs-Schichtpaaren und einer einigen Zehn Nanometer dicken Goldschicht, zwischen denen die Quantenpunkte eingebettet sind. Anhand von Messungen an einer planaren Tamm-Plasmonen-Struktur wurde das Bauteil charakterisiert und neben der Exziton- und Biexzitonemission der Zerfall eines Trions beobachtet, was durch Polarisations- und Korrelationsmessungen nachgewiesen wurde. Um eine Verstärkung der Einzelphotonenemission durch die Kopplung der Teilchen an eine lokalisierte Tamm-Plasmonen-Mode demonstrieren zu können, wurde ein Bereich der Probe mit mehreren Goldscheiben von Durchmessern von 3 – 6 μm abgerastert und die Lichtintensität aufgenommen. Unterhalb der untersuchten Goldscheiben konnte eine signifikante Erhöhung des Lumineszenzsignals festgestellt werden. Eine quantitative Analyse eines einzelnen Quantenpunktes mittels einer Temperaturserie lieferte dabei eine maximale Emissionsrate von $\eta_{EPQ}^{Max} = 6,95 \pm 0,76 \text{ MHz}$ und damit eine Effizienz von $6,95 \pm 0,76 \%$ solch einer Einzelphotonenquelle unter gepulster Anregung bei 82 MHz. Dies entspricht einer deutlichen Verbesserung der Effizienz im Vergleich zu Quantenpunkten im Volumenmaterial und sogar zu denen in einer planaren DBR-Resonatorstruktur. Positionierte InP/GaInP-Quantenpunkte in einer Tamm-Plasmonen-Struktur bilden somit eine vielversprechende Basis für die Realisierung hocheffizienter Einzelphotonenquellen.

Summary

At the moment, many scientific groups focus on the development of new technologies which are supposed to lead the way to the commercial use of quantum communication. Particularly in the field of quantum key distribution first success has been achieved. These experiments make use of the fact that it is not possible to generate a perfect copy of a quantum state (Non-cloning theorem). One way to emit non-classical particles is to use semiconductor quantum dots. Furthermore such quantum dots can be easily integrated in complex semiconductor microstructures and are thus especially interesting for the development such advanced technologies, which are mandatory for a secure communication. Based on this background, the objective of the work presented in this thesis was a spectroscopic analysis of semiconductor quantum dots, regarding their potential as a quantum light source for quantum communication. In a dedicated process, amongst others, InAs/GaAs and InP/GaInP quantum dots were positioned deterministically and eventual integrated in a photonic microstructure, which consists of a gold disc and a dielectric mirror. Micro photoluminescence spectroscopy was used as a basic instrument for identifying the emission characteristics. In addition second order photon correlation measurements were performed to provide proof of a quantum light source.

Impact of rapid thermal annealing on the emission characteristics of InAs/GaAs quantum dots

Micro photoluminescence measurements of different samples in external magnetic fields up to 5 T have been performed in order to analyze the impact of rapid thermal annealing on the electronic properties and the oscillator strength of self-assembled InAs/GaAs quantum dots. The quantum dots were grown in a special procedure whereby the nominal quantum dot height was defined by the thickness of a capping layer. In total, three samples with capping layer thicknesses of 2 nm, 3 nm and 4 nm were processed and afterwards annealed at temperatures of 750° C up to 850° C for five minutes. The Zeeman splitting and the diamagnetic shift could be derived from the taken quantum dot spectra by means of

polarization resolved spectroscopy. Hence, the effective Landé g-factors and the diamagnetic coefficient could be determined. The analysis of the Zeeman splitting demonstrated a drastic decrease of the absolute g-factors with increasing annealing temperature as well as thicker capping layers. This yield to the conclusion, that a thicker capping layer leads to a stronger interdiffusion of the atoms and an increasing elongation of the quantum dots for ex-situ annealing procedures. The diamagnetic coefficients of the quantum dots rose with higher temperatures, which indicates an expansion of the excitonic wavefunction. Furthermore time resolved micro photoluminescence spectroscopy has been performed in order to assess the lifetime of the quantum dot ensemble. The lifetime decreases clearly with increasing temperatures. Both the investigations of the diamagnetic coefficient and the quantum dot lifetime finally lead to a determination of the oscillator strength and reveal values agreeing within the error bars. The highest oscillator strength $f_{\chi} = 34.7 \pm 5.2$ (determined from the diamagnetic shift) could be determined for the sample with a capping layer of $d = 3$ nm anneald at a temperature of 850° C. In the case of the lifetime measurements the oscillator strength exhibits a maximum value of $f_{\tau} = 25.7 \pm 5.7$. This corresponds to a distinct enhancement of the oscillator strength of more than two compared to the reference samples. In addition an expansion of the center-of-mass wave function by about 70 % has been ascertained. Taken as a whole the oscillator strength of InAs/GaAs quantum dots can be increased significantly by ex-situ rapid thermal annealing, which makes them even more interesting for investigations in the strong coupling regime.

Temperature and power dependency of the emission characteristics of site-controlled InAs/GaAs quantum dots

In order to investigate the decay process of an exciton in site-controlled quantum dots, temperature and power dependent measurements were performed. Those quantum dots were grown deterministically in a specific procedure on predefined positions. Existing photonic loss channels in the quantum dot were studied by performing temperature series. Hereby two dominant processes causing the decrease of the intensity at higher temperatures were identified. Initially the activation of the electron in the ground state into the surrounding barrier or into delocalized states of the wetting layer leads to a decrease of the intensity in the low temperature regime. However, the strong decrease for higher temperatures is attributed to ionization of the exciton and the subsequent activation of the carriers into the surrounding substrate. The fit yields two different activation energies $E_{2A} = 102,2 \pm 0,4$ meV and $E_{2B} = 163,2 \pm 1,3$ meV for two exemplary quantum dots

A and B, respectively. Hence, both values correspond with the localization energies of the excitons in the respective quantum dot, which account for 100 meV and 144 meV respectively. Furthermore the analysis of the intensity profiles revealed that acoustical and optical phonons are the main reason for the broadening of the linewidth. The dependency of the linewidth for high temperatures is dominated by the interaction of the excitons with longitudinal optical phonons, where phonon energies of $E_{LOA} = 30,9 \pm 4,8$ meV for quantum dot A and $E_{LOB} = 32,2 \pm 0,8$ meV for quantum dot B were determined. Those values are typical for InAs/GaAs material system. In addition, the measurements indicate that the linewidth at low temperatures is caused by spectral diffusion.

Optical spectroscopy of site-controlled InP/GaInP quantum dots

In addition site-controlled InP/GaInP quantum dots were investigated by means of optical spectroscopy regarding their use as a quantum light source. At first the emission features of the quantum dots were analyzed in basic experiments. Power and polarization dependent measurements were used to identify excitonic as well as biexcitonic decay processes. Furthermore the investigations of the polarization were exhibiting an unusual high degree of polarization of the quantum dot emission. The excitonic and biexcitonic emission shows a very high degree of linear polarization ($p_{Mittel} = 93_{-9}^{+7} \%$), which is caused by local composition modulation phenomena in the surrounding GaInP matrix. For this calculation the average value was taken out of 66 quantum dots. In addition the quantum dots exhibited very large fine structure splittings of $\Delta_{FSS}^{Mittel} = 300 \pm 130$ μ eV, which can be explained only with a strong anisotropic quantum dot shape. Second order autocorrelation measurements revealed the non-classical emission character of the exciton and the biexciton. $g^{(2)}(0)$ values down to 0.08 have been reached. In addition, by performing crosscorrelation measurements the cascaded emission of the biexciton-exciton cascade has been demonstrated for the first time for those structures. These results show the potential of site-controlled InP/GaInP quantum dots as a basic module for quantum light sources especially regarding their use in quantum communication.

Realization of a single photon source based on a Tamm-plasmon structure

After the previous analysis revealed the potential of the site-controlled InP/GaInP quantum dots acting as a single photon emitter, the following part considers the integration

of those quantum dots into a Tamm-plasmon structure to realize an efficient single photon source. These structures consist of a distributed Bragg reflector (DBR) with 30.5 AlGaAs/AlAs mirror pairs and a gold disc with a thickness of only a few ten nanometers. The quantum dots are located between the DBR and the gold disc at an anti-node of the Tamm-plasmon mode. The device was characterized by photoluminescence investigations of a planar Tamm-plasmon structure. Besides excitonic and biexcitonic emission features, the experiments showed the decay of a trion state, which has been confirmed by polarization and correlation measurements. In order to demonstrate an enhancement of the single photon emission due to the coupling to a localized Tamm-plasmon mode, an array of gold discs with varying diameters from 3 – 6 μm was scanned and the light intensity recorded. At the positions of the gold discs a significant increase of the luminescence could be detected. Investigations in more detail on a single quantum dot tuned into the Tamm-plasmon resonance by adjusting the temperature revealed a maximum emission rate of $\eta_{EPQ}^{Max} = 6,95 \pm 0,76$ MHz and with it an efficiency of $6,95 \pm 0,76$ % of such a single photon source when taking the repetition rate of 82 MHz into account. This is a distinct enhancement of the efficiency compared to quantum dots in bulk material or even to those embedded in planar DBR-resonators. As a consequence of the experiments site-controlled InP/GaInP quantum dots embedded in a Tamm-plasmon structure can be considered as a promising base for the realization of highly efficient single photon sources.

1. Einleitung

Die in den vergangenen Jahren immer wieder auftretenden Spionage- und Überwachungsaffären, deren enormes Ausmaß im Jahr 2013 durch die Enthüllungen des ehemaligen National Security Agency Mitarbeiters Edward Snowden ans Licht gebracht wurden, verdeutlichen das Bedürfnis einer abhörsicheren Kommunikation mehr denn je. Weder große internationale Firmen und Organisationen, noch hochrangige Politiker können sich mit dem derzeitigen Stand der Technologie vor Lauschangriffen schützen. Bislang beruhen die Verschlüsselungsmethoden, wie das RSA¹- oder das AES²-Verfahren, auf dem hohen numerischen Aufwand für bestimmte mathematische Operationen, insbesondere der Faktorisierung großer Zahlen. Mit genügend Rechenleistung und entsprechendem Zeitaufwand ist daher ein Angriff und eine Entschlüsselung dennoch möglich. Aus diesem Grund beschäftigen sich Forschergruppen auf der ganzen Welt mit der Realisierung einer völlig sicheren Datenübertragung auf Basis der Quantenmechanik.

C. H. Bennett und G. Brassard stellten dafür im Jahr 1984 ein vielversprechendes Konzept vor und leiteten die Ära der Quanten-Schlüsselverteilung (QKD³) ein [Ben84]. Das nach den Autoren benannte BB84-Protokoll basiert auf dem sogenannten Non-Cloning Theorem, welches besagt, dass ein unbekannter Quantenzustand nicht exakt kopiert werden kann [Woo82]. Bei diesem Verfahren tauschen zwei Parteien einen geheimen Schlüssel über unterschiedlich polarisierte Zustände einzelner Photonen aus, wobei aufgrund des Non-Cloning Theorems ein Lauschangriff durch einen nachträglichen Abgleich zwischen Sender und Empfänger immer festgestellt und damit der Schlüssel verworfen werden kann. Erstmals konnte ein QKD-Experiment mit dem BB84-Protokoll im Jahr 1992 umgesetzt werden [Ben92]. Allerdings wurden hier und in den meisten anderen Fällen stark abgeschwächte Laserpulse verwendet, da effiziente Einzelphotonenquellen damals kaum verfügbar waren. Laser folgen der Poisson-Statistik, selbst wenn sich im Mittel

¹nach Rivest, Shamir und Adleman benanntes Kryptographie-Verfahren, dessen Sicherheit auf die Primfaktorzerlegung setzt.

²Akronym für „Advanced Encryption Standard“: eine sogenannte Blockverschlüsselung, die auf den von Daemen und Rijmen entwickelten Rijndael-Algorithmus basiert.

³Akronym für „Quantum Key Distribution“

lediglich etwa 0,4 Photonen in einem Puls befinden. Neben der Möglichkeit, kein Photon zu enthalten, existiert daher auch eine gewisse Wahrscheinlichkeit, dass sich mehrere in einem Puls befinden. Somit bleibt ein Restrisiko vorhanden. Zwar kann beispielsweise über sogenannte Decoy⁴-Zustände eine sichere Datenübertragung gewährleistet werden, jedoch wird dafür eine deutliche Reduzierung der Übertragungsrate in Kauf genommen [Wan05]. Um nun eine abhörsichere Übertragung bei hohen Raten zu ermöglichen, sind nicht-klassische Lichtquellen von Nöten, die idealerweise genau ein Photon pro Puls erzeugen. Solche Einzelphotonenquellen können beispielsweise durch einzelne Atome, organische Moleküle, Fehlstellen in Diamant-Nanokristallen oder durch Halbleiterquantenpunkte realisiert werden. Letztere stellen das grundlegende Element dieser Arbeit dar. Neben der Eigenschaft, deterministisch einzelne Photonen zu emittieren, können Quantenpunkte auch als Emittier ununterscheidbarer Photonen [San02, Gol14] oder polarisationsverschränkter Photonenpaare [Ako06, Dou10] dienen, mit denen weiterführend sogar die Teleportation einzelner Quanten-Bits demonstriert wurde [Nil13]. All diese Eigenschaften machen sie zu einem idealen Kandidaten in allen Bereichen der Quanteninformationstechnologie, ob QKD, Quanten-Repeater oder Quanten-Computing. Weiterhin können Quantenpunkte leicht in Wellenleiter und Mikroresonatoren integriert werden, um so eine Steigerung der Auskopplungseffizienz herbeizuführen oder gezielt die Emittiereigenschaften über die Licht-Materie-Wechselwirkung zu beeinflussen [Mor02, Pel02, Cla10, Dou10, Hei10b, Rei12]. Beispielsweise kann mittels des Purcell-Effekts die Emissionsrate eines Quantenpunktes deutlich erhöht werden, sodass ein Betrieb der Einzelphotonenquelle bis zu mehreren Gigahertz ermöglicht wird. Als mögliche Strukturen kommen dabei Mikroscheiben- sowie Mikrosäulenresonatoren oder Photonische Kristalle in Frage.

Ziel dieser Arbeit war es, eine Einzelphotonenquelle auf Basis einer neuartigen, sogenannten Tamm-Plasmonen-Struktur mit positionierten InP/GaInP-Quantenpunkten zu realisieren. Diese Quantenemitter bieten den Vorteil, dass sie deterministisch gewachsen werden und so gezielt in die gewünschten Bauteile integriert werden können. Dies reduziert nicht nur einen störenden Hintergrundbeitrag durch die Emission benachbarter Quantenpunkte, sondern ermöglicht auch die maximale Kopplung an die Lichtmode der photonischen Struktur. Des Weiteren emittieren InP/GaInP-Quantenpunkte im roten sichtbaren Spektralbereich und fallen damit genau in das Maximum der Detektionseffizienz kommerzieller Silizium-Einzelphotonendetektoren [Zwi03]. Durch die Emission der Emittier in die photonische Mode der Tamm-Plasmonen-Struktur kann dann eine Steigerung der Auskopplungseffizienz

⁴engl. für Köder

erzielt werden. Hinführend auf die Untersuchung der Einzelphotonenquelle werden die eingesetzten Quantenemitter auf InAs/GaAs- und InP/GaInP-Basis detailliert spektroskopisch analysiert und auf ihre Emissionseigenschaften hin charakterisiert. Neben der Mikrophotolumineszenzspektroskopie kommen dabei auch die zeitaufgelöste Spektroskopie, Magnetfeld- und auch Korrelationsmessungen zum Einsatz. Basierend auf diesem Hintergrund ist die Arbeit wie folgt gegliedert:

Zur Einführung in die Materie werden in **Kapitel 2** die notwendigen physikalischen und konzeptionellen Grundlagen erörtert. Hierbei wird auf den strukturellen Aufbau der Quantenpunkte sowie deren elektronische und optische Charakteristika und auf die statistischen Eigenschaften der von ihnen ausgesandten Lichtteilchen eingegangen. Weiterhin wird das Konzept der optischen Mikroresonatoren sowie die Licht-Materie-Wechselwirkung behandelt.

Kapitel 3 erläutert die zur Analyse der Emissionseigenschaften nötigen experimentellen Techniken. Die Mikrophotolumineszenzspektroskopie dient dabei als grundlegende Charakterisierungsmethode. Besonders hervorzuheben sind die Photonen-Auto- und die Photonen-Kreuzkorrelationsmessungen zweiter Ordnung, welche den Zugang zur Photonenstatistik eines einzelnen oder zweier spektral getrennter Quantenzustände ermöglichen. Weiterhin kommen zeitaufgelöste Techniken zum Einsatz, die einen direkten Zugang zur Lebensdauer der untersuchten Teilchen bieten.

Erste experimentelle Ergebnisse werden in **Kapitel 4** präsentiert, bei denen der Einfluss eines sogenannten Rapid-Thermal-Annealing-Prozesses auf die Emissionseigenschaften selbstorganisierter InAs/GaInAs Quantenpunkte untersucht wird. Durch diesen Prozess wird die Interdiffusion der In- und Ga-Atome angeregt und die Emissionseigenschaften der Quantenpunkte maßgeblich beeinflusst. Anhand von polarisationsaufgelöster Mikrophotolumineszenzspektroskopie innerhalb eines extern angelegten Magnetfeldes lassen sich dann Rückschlüsse auf die Landé-g-Faktoren sowie die diamagnetischen Koeffizienten der Quantenpunkte ziehen und damit systematisch ein Maß - die sogenannte Oszillatorstärke - für die Stärke des Zerfalls der Exzitonen bestimmt werden. Zusätzlich bietet die zeitaufgelöste Spektroskopie einen direkten Zugang zur Oszillatorstärke. Beide Methoden liefern gleichwertige Ergebnisse und zeigen, dass durch den Rapid-Thermal-Annealing-Prozess

nachträglich eine Optimierung der Exzitonübergänge in einem Quantenpunkt möglich ist.

Kapitel 5 beschäftigt sich mit der spektroskopischen Analyse des Einflusses der Temperatur und der Anregungsleistung auf die Emissionseigenschaften der Exzitonen in positionierten InAs/GaAs-Quantenpunkten. Diese können im Gegensatz zu selbstorganisierten Quantenpunkten durch eine gezielte Bearbeitung der Substratoberfläche deterministisch an bestimmten Positionen gewachsen werden. Durch eine sukzessive Erhöhung der Temperatur und die Auswertung des Intensitätsprofils werden zwei verschiedene Relaxationsprozesse als Ursache für den Intensitätsabfall bei höheren Temperaturen identifiziert. Zum einen überwiegt bei geringeren Temperaturen die Aktivierung in die umgebende Barriere oder delokalisierte Zustände in der Benetzungsschicht, zum anderen werden bei steigender Temperatur die exzitonischen Bindungen aufgebrochen und die Ladungsträger in das umgebende Substratmaterial aktiviert. Weiterhin lässt sich daraus die Wechselwirkung der Exzitonen mit akustischen und optischen Phononen als Grund für die auftretende spektrale Verbreiterung der Emissionslinien feststellen. In einer abschließenden Untersuchung der Emissionseigenschaften bei verschiedenen Anregungsleistungen wird gezeigt, dass spektrale Diffusion die inhärente Grenze für die Linienbreite bei niedrigen Temperaturen setzt.

Kapitel 6 widmet sich der Analyse der Emissionseigenschaften von positionierten InP/GaInP-Quantenpunkten hinsichtlich der Nutzung als aktives Medium in einer Quanten-Lichtquelle. Erste spektroskopische Untersuchungen der Emissionsenergie, der Intensität und der Linienbreite dienen als „Eignungstest“ und führen in die Thematik ein. Dabei legen leistungs- und polarisationsabhängige Messungen die Vermutung von exzitonischem und biexzitonischem Zerfall nahe. Außerdem decken die Betrachtungen der Polarisationsseigenschaften des emittierten Lichts enorme Feinstrukturaufspaltungen sowie einen ungewöhnlich hohen Polarisationsgrad der Emission der Quantenpunkte auf, welche ihre Ursachen in einer anisotropen Quantenpunktform sowie in Ordnungsphänomenen in der GaInP-Matrix haben. Weiterführenden Messungen der Auto- und Kreuzkorrelation zweiter Ordnung belegen den nicht-klassischen Charakter der untersuchten Teilchen und demonstrieren erstmalig den kaskadierten Zerfall der Biexziton-Exziton-Kaskade in solchen Strukturen. Somit bilden positionierte InP/GaInP-Quantenpunkte eine vielversprechende Basis als Baustein für effiziente Einzelphotonenquellen im roten sichtbaren Spektralbereich.

Folgend den vorangegangenen Untersuchungen behandelt **Kapitel 7** die Implementierung positionierter InP/GaInP-Quantenpunkte in eine sogenannte Tamm-Plasmonen-Struktur zur Realisierung einer effizienten Einzelphotonenquelle. Nach einer ausführlichen Einführung in die Thematik durch die Beschreibung des Herstellungsverfahrens und der Grundlagen solcher Strukturen werden diese grundlegend spektroskopisch charakterisiert. Neben der bekannten Exziton- und Biexzitonemission wird auch der Zerfall eines Trion beobachtet und analysiert. Anhand einer Rasteraufnahme des Lumineszenzsignals auf einer Probenfläche von etwa $1000 \mu\text{m}^2$ wird die Verstärkung der Emission durch die Kopplung an eine lokalisierte Tamm-Plasmonen-Mode demonstriert. Eine quantitative Analyse an einem einzelnen Quantenpunkt bestätigt dieses Ergebnis und es wird eine deutliche Steigerung der Effizienz im Vergleich zu anderen Strukturen erzielt. Abschließende Untersuchungen der Lebensdauer der Exzitonen lassen Rückschlüsse auf die Beeinflussung der Zerfallsrate durch eine veränderte lokale photonische Zustandsdichte zu. Diese Experimente demonstrieren, wie vielversprechend diese Strukturen zur Realisierung hoch effizienter Quanten-Lichtquellen sind.

2. Grundlagen

Dieses Kapitel behandelt die konzeptionellen und physikalischen Grundlagen, die zum Verständnis dieser Arbeit notwendig sind. Das zentrale Element dieser Arbeit stellen dabei Halbleiter-Quantenpunkte dar. In Abschnitt 2.1 werden zu Beginn die grundlegenden Charakteristika dieser Quantenpunkte auf Basis der elektronischen und optischen Eigenschaften sowie des strukturellen Aufbaus erläutert. Es folgt in Abschnitt 2.2 ein Einblick in die statistischen Eigenschaften der von den Quantenpunkten emittierten Lichtteilchen, bei dem unter anderem auf die Korrelation verschiedener Quasiteilchen untereinander eingegangen wird. Das Kapitel schließt in Abschnitt 2.3 mit der Vorstellung von optischen Mikroresonatoren und behandelt die Licht-Materie-Wechselwirkung zwischen Quantenpunkt-Exziton und dem Lichtfeld eines solchen Resonators.

2.1. Halbleiter-Quantenpunkte

Halbleiter-Quantenpunkte sind nanokristalline Cluster aus einigen hundert bis tausend Atomen, deren Ausdehnung sich im Bereich der de-Broglie Wellenlänge der in ihnen lokalisierten Ladungsträger befindet und die in eine Halbleitermatrix eines Materials mit größerer Bandlücke eingebettet sind [Bim06]. Wegen ihrer elektronischen und optischen Eigenschaften werden sie häufig auch als künstliche Atome bezeichnet. Mit ihrer Entdeckung durch Goldstein und Glas [Gol85] ist ihre Untersuchung ein wichtiges Forschungsthema auf dem Gebiet der Halbleiter-Optik. Seither bestimmen sie den Fortschritt in der Quanteninformationsverarbeitung. Insbesondere ihr Potential als Einzelphotonenquelle [Mic00, San01, Mor01], als Emitter ununterscheidbarer [San02, Gol14] oder sogar quantenmechanisch polarisationsverschränkter Photonen [Ako06, Dou10] veranlasst Forschergruppen, sie als Basis ihrer Arbeiten zu sehen.

2.1.1. Strukturelle, elektronische und optische Eigenschaften von Quantenpunkten

Wie bereits erwähnt bezeichnet man kristalline Atomcluster, die in einer Halbleitermatrix eines unterschiedlichen Materials eingebettet sind, als Quantenpunkte (QPe). Sie entstehen beim epitaktischen Wachstum eines Materials A auf einem Material B, wenn diese unterschiedliche Gitterkonstanten aufweisen.¹ Dabei entstehen die QPe allein aus der Fehlanpassung der Gitterkonstanten und werden daher auch als selbstorganisierte QPe bezeichnet. Generell gibt es drei verschiedene Wachstumsmodi [LeL78]: Das Frank-van-der-Merve, das Volmer-Weber und das bei den unter anderem hier verwendeten InAs/GaAs-QPen eingesetzte Stranski-Krastanow-Wachstum (vgl. Abbildung 2.1a). Bei letzterem bildet sich zunächst eine Benetzungsschicht (engl.: wetting-layer), in der sich die Gitterkonstante des aufgewachsenen Materials der des Substrats pseudomorph anpasst ($a_{GaAs} = 5,6532 \text{ \AA}$, $a_{InAs} = 6,0583 \text{ \AA}$). Ab einer gewissen, kritischen Schichtdicke von etwa 1,6 Monolagen [Sek06] relaxiert das Halbleitermaterial in einen energetisch günstigeren Zustand und es bilden sich Inseln, die Quantenpunkte, auf der Benetzungsschicht aus. Die einzelnen Energiebeiträge von Verspannungs- und Oberflächenenergie bestimmen dabei maßgeblich den Übergang von Monolagen zu Insel-Wachstum. Durch die Bildung der QPe wird dann die freie Enthalpie minimiert. Der Wachstumsvorgang ist schematisch in Abbildung 2.1a dargestellt. Abbildung 2.1b zeigt eine Rasterelektronenmikroskop- (REM-) Aufnahme einer unüberwachsenen Schicht von InAs-QPen. In dieser Arbeit werden sowohl selbstorganisierte InAs/GaAs-QPe als auch positionierte InAs/GaAs- und InP/GaInP-QPe untersucht. Die detaillierte Beschreibung der Herstellungsverfahren wird in den entsprechenden Kapiteln 4, 5 und 6 näher erläutert. Alle weiteren grundlegenden Betrachtungen werden am Beispiel von InAs/GaAs-QPen vollzogen.

Der Übergang von einem Volumenhalbleiter zu solch einer nieder-dimensionalen Struktur verändert die elektronischen und optischen Eigenschaften des Materials deutlich, welche nun durch Effekte der Quantenmechanik bestimmt werden. Da das QP-Material InAs eine geringere Bandlücke als das umgebende GaAs aufweist ($E_{gap}^{GaAs} = 1,42 \text{ eV}$, $E_{gap}^{InAs} = 0,36 \text{ eV}$) und die Ausdehnung der QPe nur wenige Nanometer (im Bereich der de-Broglie Wellenlänge λ_{dB}) beträgt, können sich die in ihnen befindlichen Ladungsträger nicht mehr wie im Volumenhalbleiter frei bewegen, sondern sind in dem vom QP-Material aufgestellten dreidimensionalen Potentialtopf gefangen. Die Folge ist die Quantisierung der Energie der

¹Zudem spielt die Kristallorientierung eine wesentliche Rolle, wobei hier aber von einem Substrat in $[1,0,0]$ -Richtung ausgegangen wird.

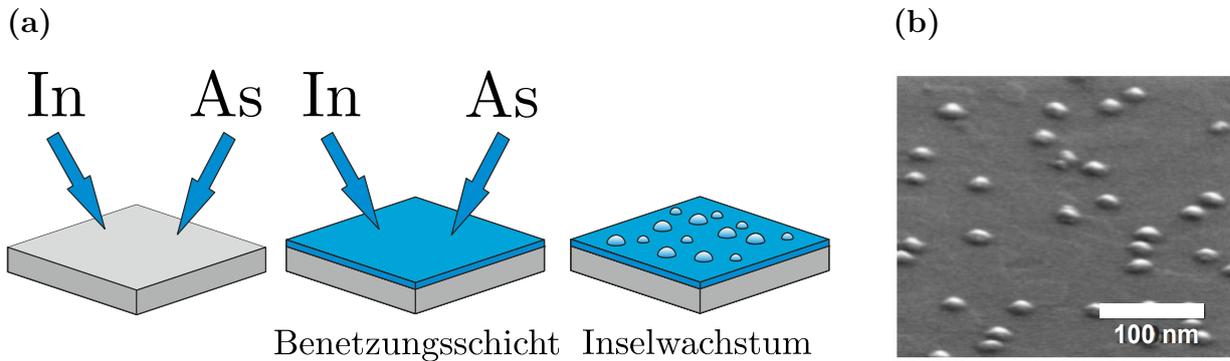


Abbildung 2.1.: (a) Schematische Darstellung des Stranski-Krastanow-Wachstums. Beim Aufwachsen von In und As entsteht zunächst die Benetzungsschicht und ab einer kritischen Schichtdicke von etwa 1,6 Monolagen geht das Schicht- in das Inselwachstum über [Sek06]. (b) Rasterelektronenmikroskop-Aufnahme einer unüberwachsenen InAs/GaAs-Quantenpunktschicht.

Elektronen und Löcher in diskrete Energieniveaus, deren Zustandsdichte $D(E)$ einer Reihe der Dirac'schen Deltafunktionen entspricht: $D(E) \propto \delta(E - E_i)$, wobei E_i das Energieniveau des quantisierten Zustands mit Quantenzahl i darstellt. Die absolute und relative Lage dieser Energieniveaus wird entscheidend durch die räumliche Struktur der Quantenpunkte, also von Größe, Form und Zusammensetzung, bestimmt. Aufgrund dieser quantisierten Energiestruktur werden QPe häufig auch als künstliche Atome bezeichnet [Mar94].

Werden nun freie Ladungsträger durch optische oder elektrische Anregung² in der Nähe des QPes erzeugt, so können die Elektronen und Löcher über das Leitungs- und Valenzband des Substratmaterials durch nicht-strahlende phononische Streuprozesse in den QP relaxieren. Im einfachsten Fall besetzen dann ein Elektron und ein Loch die Energieniveaus des QPes. Durch den Einschluss im QP-Potential sowie durch die Coulombwechselwirkung zwischen Elektron und Loch können beide Ladungsträger einen gebundenen Zustand eingehen. Das resultierende Quasiteilchen wird als Quantenpunkt-Exziton (X) bezeichnet. In Analogie zur Beschreibung des Wasserstoff-(H-)Atoms in der Atomphysik kann man für das Exziton auch einen Bohr-Radius a_B^X im Volumenhalbleiter angeben [Kli05]:

$$a_B^X = a_B^H \cdot \frac{\epsilon_r m_0}{\mu} = 0,53 \text{Å} \cdot \frac{\epsilon_r m_0}{\mu} , \quad (2.1)$$

²In dieser Arbeit wird ausschließlich optische Anregung verwendet

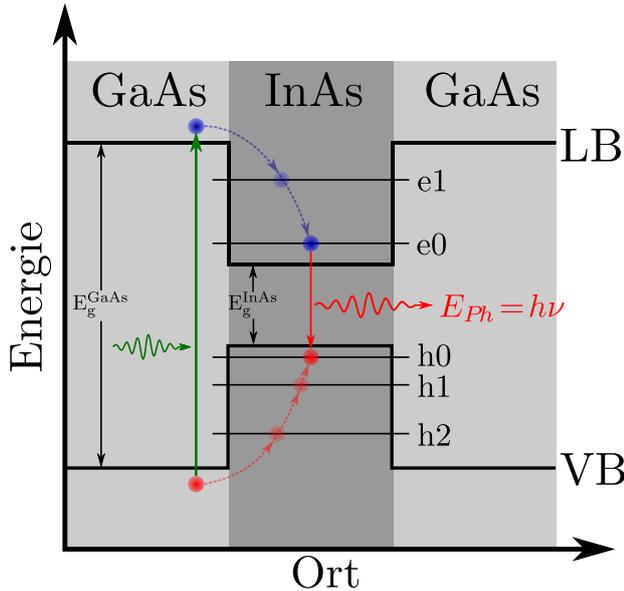


Abbildung 2.2: Schematischer Verlauf der Bandstruktur eines QPES entlang einer Raumrichtung (LB: Leitungsband, VB: Valenzband). Wegen der Niederdimensionalität bilden sich diskrete Energieniveaus aus. Dargestellt sind die Grundzustände e_0 und h_0 für Elektron und Loch sowie die höheren Niveaus e_1 , h_1 und h_2 . Aufgrund der geringeren effektiven Massen der Elektronen sind die Quantisierungsenergien im Leitungsband größer. Ein in den Grundzustand relaxiertes Elektron-Loch-Paar (Exziton) kann unter Aussendung eines Photons der Energie $E_{Ph} = h\nu$ strahlend rekombinieren, wobei zusätzlich die Exzitonbindungsenergie berücksichtigt werden muss (siehe Abschnitt 2.1.2).

wobei a_B^H dem Bohr-Radius des Wasserstoff-Atoms, ϵ_r der Dielektrizitätskonstante sowie m_0 und μ der freien Elektronen- beziehungsweise der reduzierten Masse des Elektron-Loch-Paares entspricht. Für GaAs und InAs ergeben sich $a_B^{GaAs} = 11,2 \text{ nm}$ und $a_B^{InAs} = 32,7 \text{ nm}$ ³ bei Raumtemperatur, welche im Bereich der thermischen De-Broglie Wellenlänge liegen ($\lambda_{dB}^{GaAs} = 32,2 \text{ nm}$ und $\lambda_{dB}^{InAs} = 51,7 \text{ nm}$)⁴.

In Abbildung 2.2 ist schematisch die Bandstruktur eines QPES in eine Raumrichtung abgebildet. Analog zum Atom sind hier neben dem Grundzustand (e_0 und h_0), der aufgrund der Symmetrie seiner Wellenfunktionen auch als S-Schale bezeichnet wird, auch höhere Energieniveaus für Elektronen (e_1) und Löcher (h_1 und h_2) dargestellt (wie bei Atomen werden die höheren Zustände auch mit p-,d-,...-Schale nummeriert). Wie viele und ob sich überhaupt diskrete Energieniveaus ausbilden, hängt, wie zuvor schon erwähnt, stark von der Struktur der QPe ab. Da Löcher generell eine höhere Masse als Elektronen aufweisen sind diese im Quantenpunkt stärker gebunden. Außerdem ist der schon oben erwähnte Prozess der Relaxation eines angeregten Ladungsträgerpaars in den QP in Abbildung 2.2 verdeutlicht. Durch die Absorption eines Photons, dessen Energie größer als die Bandlücke des Halbleitersubstrats GaAs ist, wird ein freies Elektron-Loch-Paar erzeugt. Durch die nicht-strahlenden Streuprozesse können beide Ladungsträger dann innerhalb weniger Pikosekunden [Hei97] über alle Energieniveaus in den Grundzustand relaxieren

³ $\epsilon_r^{GaAs} = 12,9$, $\epsilon_r^{InAs} = 15,15$, $\mu_{GaAs} = 0,06m_0$ und $\mu_{InAs} = 0,02m_0$

⁴mit $\lambda_{dB} = h/\sqrt{2m^*k_B T}$. Dabei bezeichnet h das Plancksche Wirkungsquantum, m^* die effektive Masse der Ladungsträger und k_B die Boltzmann Konstante

und das Exziton bilden. Das Exziton zerfällt dann typischerweise auf einer Zeitskala von wenigen Nanosekunden strahlend unter Aussendung eines Photons. Weiterhin können auch nicht-strahlende Rekombinationsprozesse, z.B. an Defekt- oder Oberflächenzuständen, auftreten, wodurch das zerfallende Exziton nicht mehr zur Lumineszenz beiträgt. Jedes Energieniveau kann wegen des Pauli-Prinzips lediglich mit zwei Ladungsträgern entgegengesetzten Spins besetzt werden. Befinden sich durch erhöhten Photoneneinfall mehrere Ladungsträger im QP, können sowohl höhere Energiezustände besetzt als auch komplexere Teilchen gebildet werden.

2.1.2. Mehrteilchenzustände

Bisher wurde als Quasiteilchen in der s-Schale des QPes nur das neutrale Exziton $(e+h)$ ⁵ erwähnt. Im Grundniveau sind jedoch noch weitere Ladungsträgerkombinationen möglich, wobei für die Besetzung das Pauli-Prinzip relevant ist (siehe Abbildung 2.3). Werden zwei Elektronen und ein Loch $(2e+h)$ oder zwei Löcher und ein Elektron $(e+2h)$ im Potentialtopf gefangen, so spricht man von einem einfach negativ (X^-) beziehungsweise von einem einfach positiv (X^+) geladenen Exziton. Diese geladenen Komplexe werden auch als Trionen bezeichnet. Befinden sich jeweils zwei Ladungsträger im Grundzustand $(2e+2h)$, handelt es sich um ein Biexziton (XX) . Diese Reihe kann beliebig auf höheren Schalen fortgesetzt werden, jedoch reicht für das Verständnis dieser Arbeit eine Betrachtung bis zum Biexziton aus. Aufgrund der starken Lokalisierung muss neben der Coulombwechselwirkung, wie schon beim neutralen Exziton, die Austauschwechselwirkung der Ladungsträger untereinander für eine genaue Beschreibung dieser Quasiteilchen berücksichtigt werden. Dadurch weist jedes Teilchen eine unterschiedliche Bindungsenergie auf. Resultierend treten im Emissions- und Absorptionsspektrum somit mehrere spektral getrennte Linien auf [Bay00, Fin01] (vgl. Abbildung 2.4b).

Die Quasiteilchen können quantenmechanisch durch folgenden Hamiltonoperator beschrieben werden:

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

wobei \mathcal{H}_e und \mathcal{H}_h den Einteilchen-Hamiltonoperatoren der Elektronen bzw. Löcher und \mathcal{H}_A die Austauschwechselwirkung, auf die näher im folgenden Kapitel 2.1.3 eingegangen

⁵e = Elektron (engl. electron), h = Loch (engl. hole)

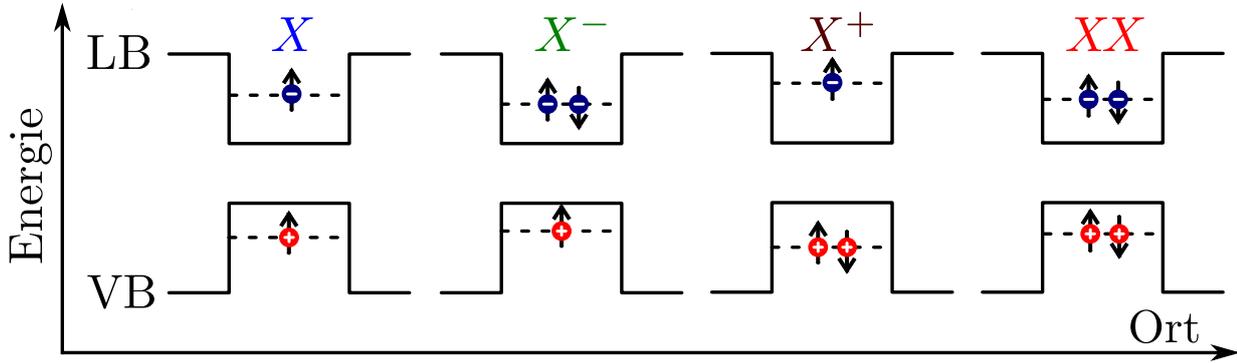


Abbildung 2.3.: Schematische Darstellung der Mehrteilchenkomplexe in einem Quantenpunkt. Von links nach rechts: neutrales Exziton X , einfach negativ geladenes Exziton X^- , einfach positiv geladenes Exziton X^+ und Biexziton XX . Außerdem sind für jedes Teilchen die Spin-Zustände angegeben.

wird, darstellen. Die Wechselwirkung zwischen den Ladungsträgern i und j wird durch die Coulombenergie C_{ij} beschrieben, deren Hamiltonoperator gegeben ist durch [War98]:

$$\mathcal{H}_{Coulomb} = \int \int \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_r\epsilon_0} \frac{|\psi_i(\vec{r}_1)|^2 |\psi_j(\vec{r}_2)|^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 . \quad (2.3)$$

Sie hängt also von folgenden Parametern ab: Ladung q der Teilchen, Überlapp der Wellenfunktionen $\psi(\vec{r})$ und die relative Position der Elektron- und Lochorbitale \vec{r} . Bei neutralen Exzitonen, also bei nur einem Elektron und einem Loch, ist die Coulombwechselwirkung C_{eh} rein attraktiv und liegt im Bereich einiger 10 meV [Sti99]. Vernachlässigt man zunächst die Austauschwechselwirkung, so lassen sich die Energien der Mehrteilchenzustände berechnen zu [Bar95]:

$$E_{X^-} = E_X + E_{e0} + C_{ee} + C_{eh} \quad (2.4a)$$

$$E_{X^+} = E_X + E_{h0} + C_{hh} + C_{eh} \quad (2.4b)$$

$$E_{XX} = 2E_X + C_{ee} + C_{hh} + 4C_{eh} . \quad (2.4c)$$

Zur Veranschaulichung sind alle Kombinationen in Abbildung 2.4a dargestellt. Ob diese Teilchen nun eine positive oder negative Bindungsenergie in Bezug auf die Exzitonenergie E_X aufweisen, hängt entscheidend von den effektiven Massen der beteiligten Ladungsträger ab. Wie im vorherigen Kapitel 2.1.1 erwähnt, weisen Löcher generell (und insbesondere für die in dieser Arbeit verwendeten Strukturen) eine höhere Masse als Elektronen ($m_h^* > m_e^*$)

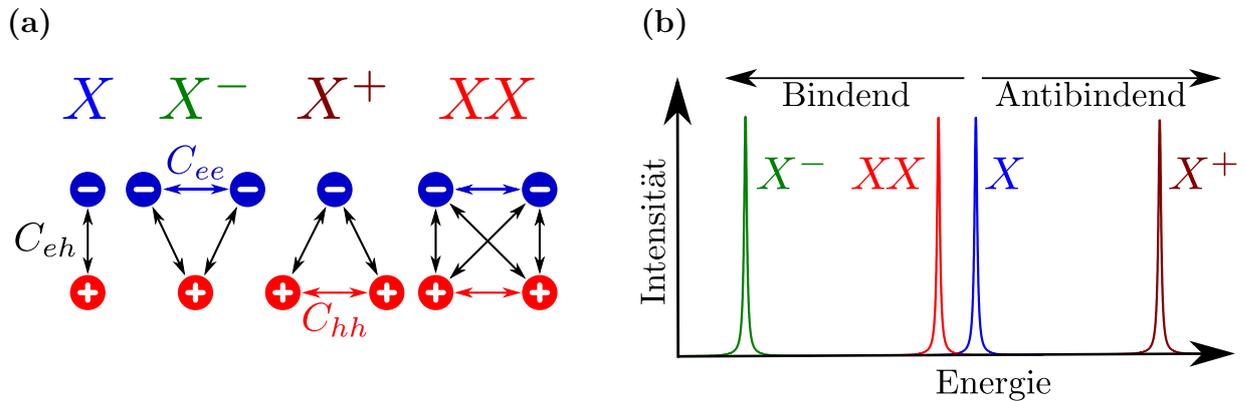


Abbildung 2.4.: (a) Schematische Darstellung der Coulombwechselwirkung C_{ij} zwischen den Ladungsträgern für Exziton X , Trionen X^\pm und Biexziton XX . Die Wechselwirkungen werden durch schwarze (attraktiv) und blaue bzw. rote (repulsiv) Pfeile dargestellt. (b) Schematische Darstellung eines Quantenpunktemissionsspektrums mit den Mehrteilchenkomplexen Exziton, Trionen und Biexziton. Die Coulomb- und Austausch-Wechselwirkungen zwischen den Ladungsträgern führen zu unterschiedlichen Rekombinationsenergien.

auf. Dies führt zu einer stärkeren Lokalisierung der Loch-Wellenfunktionen im QP und es gilt $|C_{hh}| > |C_{eh}| > |C_{ee}|$ [Sch07a]. Somit erhält man bei alleiniger Betrachtung der Coulombwechselwirkung eine positive Bindungsenergie für X^- und negative für X^+ sowie XX . Abbildung 2.4b stellt schematisch ein Emissionsspektrum eines QPes dar. Generell führt die Berücksichtigung der Austauschwechselwirkung zu einer Erniedrigung der Emissionsenergien. Da diese bei Biexzitonen besonders stark ausgeprägt ist, kann dies bei XX zu positiven Bindungsenergien führen. Ob sich ein positiv oder negativ gebundenes Biexziton ausbildet, hängt dabei von der Größe des jeweiligen QPes ab [Rod03, Sar06]. In kleineren QPen sind Biexzitonen tendenziell negativ, in größeren positiv gebunden. Die Bindungsenergien für die betrachteten Mehrteilchensysteme liegen alle im Bereich einiger meV [Rod05].

2.1.3. Feinstruktur

Berücksichtigt man nun neben der Coulombwechselwirkung auch die Austauschwechselwirkung, stellt man bei genauerer Betrachtung der Emissionslinien eines QPes eine komplexere Substruktur der Mehrteilchenkomplexe fest. Tatsächlich weisen Exziton und Biexziton in der Regel jeweils zwei um wenige μeV spektral separierte Linien auf, deren Abstand

identisch ist. Diese Aufspaltung in ein Liniendublett wird Feinstrukturaufspaltung genannt. Dagegen zeigen die Emissionslinien der beiden Trionenkomplexe keinerlei Aufspaltung. Um dieses Phänomen verstehen zu können, müssen die Spinkonfigurationen der beteiligten Ladungsträger beachtet werden, welche abhängig von der Symmetrie der Bandstruktur sind. Die gitterperiodischen Blochwellenfunktionen der Elektronen (Leitungsband) zeigen im Halbleiter einen s-artigen Charakter, während der Lochwellenzustand (Valenzband) eine p-artige Struktur besitzt [AK07]. Es bilden sich dadurch drei Valenzbänder aus: das Leichtlochband (lh), das Schwerlochband (hh) und das Split-Off-Band (so)⁶. Aufgrund der Spin-Bahn-Wechselwirkung ist das Split-Off-Band um einige hundert meV⁷ von den beiden anderen Bänder abgespalten. Zudem führen biaxiale Verspannungen im QP zu einer zusätzlichen Abspaltung⁸ des Leichtlochbandes. Daher spielt bei der Bildung der Exzitonen in kompressiv verspannten QPen lediglich das Schwerlochband eine Rolle [Bay02b] und die beiden anderen können in den weiteren Betrachtungen vernachlässigt werden. Für die folgenden Betrachtungen ist daher mit der Bezeichnung „Loch“ stets das Schwerloch gemeint. Für die relevanten Spinzustände⁹ ergibt sich:

$$|s, s_z\rangle = \left| \frac{1}{2}, \pm \frac{1}{2} \right\rangle \quad \text{für Elektronen im Leitungsband bzw.} \quad (2.5a)$$

$$|j, j_z\rangle_{hh} = \left| \frac{3}{2}, \pm \frac{3}{2} \right\rangle \quad \text{für Löcher im Valenzband.} \quad (2.5b)$$

Durch Addition können aus dieser Basis vier Exzitonen gebildet werden, welche durch ihre Projektion des Drehimpulses $M = J_z + s_z$ charakterisiert werden ($|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle$). Da für die optische Auswahlregel $\Delta J = \pm 1$ (Absorption oder Emission eines Photons mit Spin ± 1) gilt, sind nur Exzitonen mit $|M| = 1$ optisch aktiv. Sie werden auch helle Exzitonen genannt. Dagegen können Exzitonen, für die $|M| = 2$ gilt, nicht an das Lichtfeld koppeln und werden als dunkle Exzitonen bezeichnet. Ohne die Austauschwechselwirkung wären alle vier möglichen Zustände energetisch entartet.

Die Austauschwechselwirkung zwischen einem Elektron mit Spinoperator $\hat{s} = (\hat{s}_x, \hat{s}_y, \hat{s}_z)$ und einem Loch mit Spinoperator $\hat{j} = (\hat{j}_x, \hat{j}_y, \hat{j}_z)$ führt nun zu einem weiteren Term \mathcal{H}_A in

⁶aus dem Englischen: hh = heavy hole, lh = light hole, so = split-off

⁷InAs: 390 meV, InP: 108 meV bei Raumtemperatur [Vur01]

⁸mindestens 10 meV für InAs [Bay02b]

⁹|Gesamtdrehimpuls, z-Komponente des Gesamtdrehimpulses)

Gleichung 2.1, welcher für einen in z -Richtung¹⁰ gewachsenen QP folgende Gestalt annimmt [Kul99, Fin02]:

$$\mathcal{H}_A = a_z \hat{j}_z \hat{s}_z + \sum_{i=x,y,z} b_i \hat{j}_i^3 \hat{s}_i . \quad (2.6)$$

Hierbei sind a_x , b_x , b_y und b_z material- und symmetrieabhängige Parameter. Wählt man nun die schon oben erwähnten vier Exzitonzustände als Basis, lässt sich der Hamiltonoperator in Matrixform wie folgt darstellen [Bay02b]:

$$\mathcal{H}_A = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} +\delta_0 & +\delta_1 & 0 & 0 \\ +\delta_1 & +\delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\delta_0 & +\delta_2 \\ 0 & 0 & +\delta_2 & -\delta_0 \end{pmatrix} . \quad (2.7)$$

Zur besseren Übersicht wurden die Umformungen $\delta_0 = 1.5(a_z + 2.25b_z)$, $\delta_1 = 0.75(b_x - b_y)$ und $\delta_2 = 0.75(b_x + b_y)$ durchgeführt. Man erkennt, dass die Hauptdiagonalelemente der Matrix nur aus den z -Komponenten der Gleichung 2.6 gebildet werden, die Nebenelemente dagegen aus den anderen beiden Komponenten bestehen. Dies hat zur Folge, dass die ehemals vierfach entarteten Exzitonzustände (vgl. Abbildung 2.5 links) in ihre hellen ($|+1\rangle$, $|-1\rangle$) und dunklen ($|+2\rangle$, $|-2\rangle$) Anteile um δ_0 aufspalten, was im Bereich von etwa $10 - 200 \mu\text{eV}$ liegt [Bay99, Bay02a]. Die hellen Zustände liegen dabei energetisch über den dunklen (vgl. Abbildung 2.5 Mitte). Weist der QP nun zylindrische Symmetrie in Wachstumsrichtung ($b_x = b_y$) auf, spricht man von isotroper Austauschwechselwirkung. Dann bleiben die hellen Zustände entartet und weiterhin Eigenzustände des Systems. Aufgrund der Helizität von $|\pm 1\rangle$ sind die bei einer Rekombination ausgesandten Photonen zirkular (σ^\pm) polarisiert. Die dunklen Zustände hingegen erfahren eine Aufspaltung um δ_2 und müssen als Superposition mit $\frac{1}{\sqrt{2}}(|+2\rangle \pm |-2\rangle)$ beschrieben werden. Ein Symmetriebruch in der Wachstumsebene ($b_x \neq b_y$) und somit eine anisotrope Austauschwechselwirkung führt schließlich auch zu der Aufhebung der Entartung der hellen Zustände. Sie spalten um $\delta_1 = \Delta E_{FSS}$ ¹¹ - die Feinstrukturaufspaltung - auf und können als Linearkombination der hellen Exzitonzustände $\frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle \pm |-1\rangle)$ dargestellt werden. Im Emissionsspektrum des QPes tritt daher ein Liniendublett auf, dessen Komponenten senkrecht bzw. parallel zur

¹⁰QPe weisen in Wachstumsrichtung die kleinste Ausdehnung aus (vgl. auch Abb. 4.1)

¹¹Aus Gründen der Übersicht wird hier die Notation ΔE_{FSS} eingeführt: FSS engl. für finestructure splitting

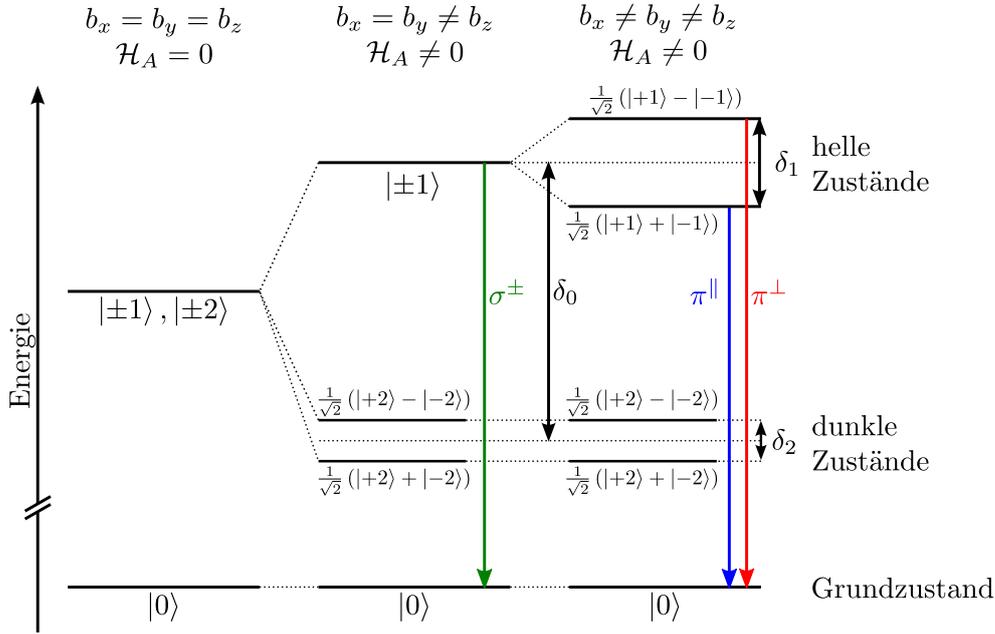


Abbildung 2.5.: Termschema der Energieniveaus der Exzitonenzustände für unterschiedliche Quantenpunktsymmetrien. Ohne Austauschwechselwirkung ($\mathcal{H}_A = 0$) sind alle vier Zustände entartet (links). Weist der QP zylindrischer Symmetrie in der Wachstumsebene auf, spalten die hellen Zustände mit Spin ± 1 und die dunklen Zustände mit Spin ± 2 um den Wert δ_0 auf. Zusätzlich erfahren die dunklen Zustände eine weitere Aufspaltung um δ_2 (Mitte). Optische Übergänge aus den hellen Zuständen sind rechts- bzw. links-zirkular polarisiert. Bei weiterem Symmetriebruch spalten auch die hellen Zustände um den Betrag δ_1 auf, der Feinstrukturaufspaltung genannt wird (rechts). Die emittierten Photonen sind dann linear π polarisiert.

Anisotropieachse polarisiert (π^\perp, π^\parallel) sind. Typische Werte für die Feinstrukturaufspaltung liegen für InAs/GaAs-QPe zwischen -20 und $100 \mu\text{eV}$ [Mic09]. Für InP/GaInP-QPe kann diese auch deutlich größer ausfallen (vgl. Kapitel 6). In Abbildung 2.5 ist der Einfluss der Austauschwechselwirkung in Abhängigkeit der Symmetrie des QP schematisch dargestellt. Die Feinstrukturaufspaltung muss nicht allein ihre Ursache in der Asymmetrie des QP-Potentials in der Wachstumsebene haben, selbst perfekt kreisrunde QPe können aufgrund intrinsischer Asymmetrien des Halbleitersubstrats eine Aufspaltung aufweisen. Betrachtet man die beiden Trionenkomplexe X^- und X^+ , so stellt man keinerlei Feinstrukturaufspaltung im Spektrum fest. Die Ursache hierfür liegt wiederum in der Spinkonfiguration der beteiligten Ladungsträger. Bei einem negativ geladenen Trion (X^-)

befinden sich beide Elektronen aufgrund des Pauli-Prinzips in einem Spin-Singulett, dessen Gesamtdrehimpuls $s_z^{X^-} = 0$ ist. Der Spin des Lochs wechselwirkt also mit einer verschwindenden Spindichte der Elektronen. Dies führt dazu, dass auch die Austauschwechselwirkung und somit eine Aufspaltung der Emissionslinien verschwindet. Analoge Argumentationen gelten auch für das positiv geladene Trion.

Für den Biexzitonkomplex lässt sich abermals ein Liniendublett im Emissionsspektrum, also eine Feinstrukturaufspaltung, feststellen. Zwar weist das Biexziton wegen der Spin-Singulett Konfigurationen sowohl der Elektronen als auch der Löcher keine Austauschwechselwirkung (jeweils zwei gepaarte Ladungsträger) auf, jedoch zerfällt es nach Rekombination eines Elektron-Loch-Paares strahlend in einen der beiden hellen Exzitonzustände. Daher bietet das durch die Austauschwechselwirkung aufgespaltene Exziton dem Biexziton zwei Zerfallswege an und prägt ihm damit die gleiche Feinstrukturaufspaltung auf. Weitere Folgen der Austauschwechselwirkung auf die Biexziton-Exziton-Kaskade werden in Abschnitt 2.1.4 erläutert.

Feinstruktur im Magnetfeld

Setzt man QPe einem äußeren Magnetfeld aus, muss zusätzlich zur Austausch- die auf die Spins der Ladungsträger wirkende Zeemanwechselwirkung berücksichtigt werden. In Gleichung 2.2 führt dies zu einer Erweiterung um den Zeemanterm \mathcal{H}_{Zeeman} , welcher im Falle der Faradaygeometrie¹² folgende Form annimmt [Bay02b]:

$$\mathcal{H}_{Zeeman}(B) = \mu_B \left(g_{e,z} \hat{s}_z - \frac{g_{h,z}}{3} \right) B . \quad (2.8)$$

Dabei sind μ_B das Bohrsche Magneton und $g_{e,z}$ bzw. $g_{h,z}$ der effektive Landé-g-Faktor für Elektronen bzw. Löcher. Mit Hilfe der Exzitonzustände $|+1\rangle$, $|-1\rangle$, $|+2\rangle$ und $|-2\rangle$ als Basis lässt sich der Hamiltonoperator wieder als Matrix schreiben:

$$\mathcal{H}_{Zeeman}(B) = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} +\beta_1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -\beta_1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\beta_2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & +\beta_2 \end{pmatrix} \quad (2.9)$$

¹²d.h. das Magnetfeld wird in Wachstumsrichtung der QPe angelegt: $\vec{B} = (0,0,B)$

Dabei wurden die Umformungen $\beta_1 = \mu_B B_z (g_{e,z} + g_{h,z})$ und $\beta_2 = \mu_B B_z (g_{e,z} - g_{h,z})$ verwendet. Addiert man den Zeemanterm 2.9 zum Term der Austauschwechselwirkung 2.7, erhält man den gesamten im Magnetfeld wirkenden Hamiltonoperator:

$$\mathcal{H}_{ges} = \mathcal{H}_{Austausch} + \mathcal{H}_{Zeeman} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} +\delta_0 + \beta_1 & +\delta_1 & 0 & 0 \\ +\delta_1 & +\delta_0 - \beta_1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\delta_0 - \beta_2 & +\delta_2 \\ 0 & 0 & +\delta_2 & -\delta_0 + \beta_2 \end{pmatrix}. \quad (2.10)$$

Die Folge ist eine Änderung der Energieaufspaltung der hellen und dunklen Zustände, die sogenannte Zeemanaufspaltung. Im Vergleich zur Energie der entarteten Zustände ohne Feinstrukturaufspaltung verschieben die hellen Zustände um $+\frac{1}{2}\delta_0 \pm \frac{1}{2}\sqrt{\delta_1^2 + \beta_1^2}$ und die dunklen um $-\frac{1}{2}\delta_0 \pm \frac{1}{2}\sqrt{\delta_2^2 + \beta_2^2}$ [Bay02b]. Die Zeemanaufspaltung steigt dabei linear mit dem Magnetfeld an. Außerdem geht die Polarisation der Emissionslinien der hellen Zustände von linearer bei $B = 0$ wieder in zirkulare für $B \neq 0$ über, sobald die Zeemanaufspaltung die Feinstruktur übersteigt. Die Auswirkungen des Magnetfelds auf die Exzitonzustände im QP sind in Abbildung 2.6 skizziert. Zusätzlich zur Zeemanaufspaltung induziert das äußere Magnetfeld ein magnetisches Moment, welches mit dem im QP von den Spins hervorgerufenen wechselwirkt und eine quadratisch vom Magnetfeld abhängende Energieverschiebung - die diamagnetische Verschiebung - hervorruft. Die Gesamtenergie eines Exzitons im Magnetfeld setzt sich dann wie folgt zusammen [RI11]:

$$\begin{aligned} E_X(B) &= E_0 + E_{Zeeman} + E_{Dia} \\ &= E_0 \pm \frac{1}{2}\mu_B g_X B + \chi B^2. \end{aligned} \quad (2.11)$$

Hier beschreiben $g_X = g_{e,z} + 3g_{h,z}$ den effektiven exzitonischen Landé-Faktor im Zeeman-Term und χ den diamagnetischen Koeffizienten [Bab06]:

$$\chi = \frac{e^2}{8} \left(\frac{\langle \rho_e^2 \rangle}{m_{e,eff}} + \frac{\langle \rho_h^2 \rangle}{m_{h,eff}} \right), \quad (2.12)$$

wobei $\langle \rho_i^2 \rangle = \langle x_i^2 + y_i^2 \rangle$ die mittlere quadratische Ausdehnung der Wellenfunktionen der Ladungsträger angibt.

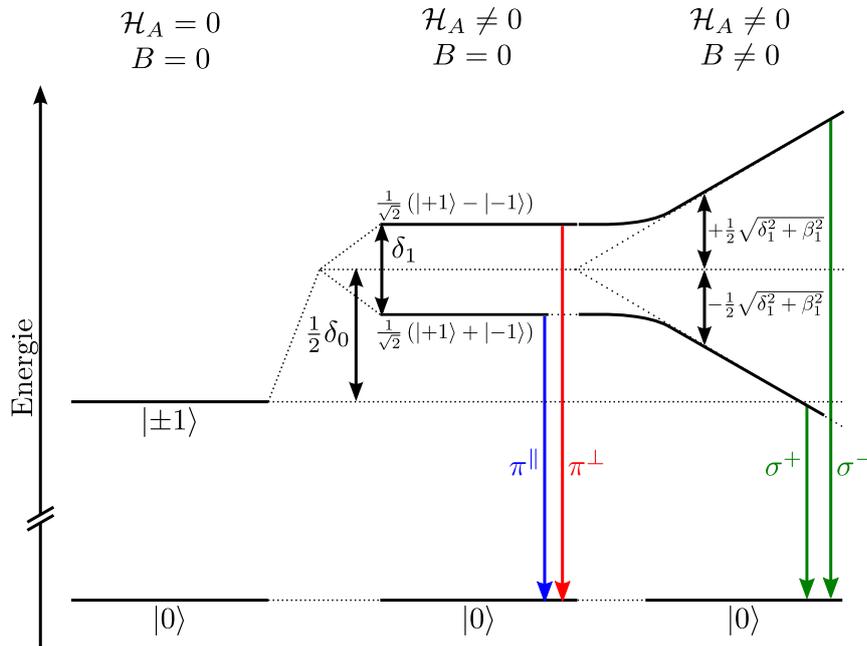


Abbildung 2.6.: Termschema der Energieniveaus der hellen Exzitonzustände unter Einwirkung eines äußeren Magnetfelds. Links sind die Zustände ohne Austauschwechselwirkung und ohne äußeres Magnetfeld gezeigt. Bei einem Symmetriebruch in der Wachstumsebene spalten, wie in Abschnitt 2.1.3 beschrieben, die beiden hellen Zustände auf. Rechts sind die Zustände im Magnetfeld dargestellt. Die separierten Zustände erfahren durch das Magnetfeld eine zusätzliche Aufspaltung. Dabei ergibt sich eine Verschiebung um $+\frac{1}{2}\delta_0 \pm \frac{1}{2}\sqrt{\delta_1^2 + \beta_1^2}$, welche linear abhängig vom Magnetfeld ist, und die Emission geht von linearer Polarisation ($B = 0$) in zirkuläre Polarisation ($B \neq 0$) über. Die diamagnetische Verschiebung wurde bei der Betrachtung der Aufspaltung im Magnetfeld vernachlässigt.

2.1.4. Biexziton-Exziton-Kaskade

In diesem Abschnitt soll näher auf die Auswirkungen der Feinstrukturaufspaltung auf die Biexziton (XX)-Exziton (X)-Kaskade eingegangen werden. Im Falle isotroper oder anisotroper Austauschwechselwirkung ergeben sich zwei grundlegend verschiedene Abläufe der Kaskade, welche in Abbildung 2.7 schematisch dargestellt sind.

Herrscht im QP eine isotrope Austauschwechselwirkung vor, ist der Exzitonzustand zweifach entartet und es existieren für das Biexziton zwei energetisch äquivalente Zerfallswege. Rekombiniert zunächst das Elektron mit Spin $-\frac{1}{2}$ mit dem Loch mit Spin $+\frac{3}{2}$, wird ein Photon mit rechtszirkularer Polarisation σ^+ (R-Photon) emittiert. Anschließend

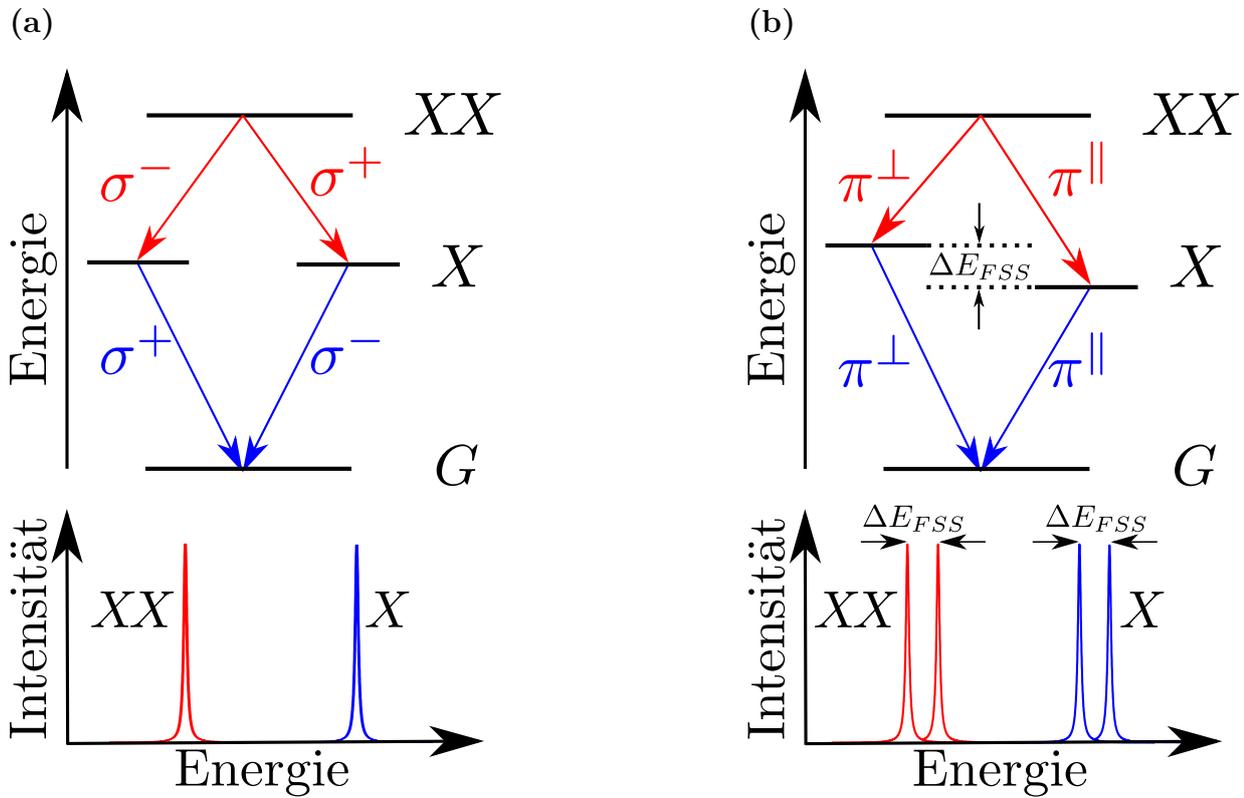


Abbildung 2.7.: Termschema der Biexziton-Exziton-Kaskade für einen Quantenpunkt ohne (a) und mit Feinstrukturaufspaltung Δ_{FSS} (b). Im Falle verschwindender Feinstrukturaufspaltung sind beide Zerfallskanäle energetisch ununterscheidbar (vgl. Emissionsspektrum in (a) unten) und es wird ein quantenmechanisch polarisationsverschränktes Photonenpaar $|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|L_{XX}R_X\rangle + |R_{XX}L_X\rangle)$ emittiert. Eine Aufhebung der Entartung ($\Delta_{FSS} \neq 0$) führt zur Emission zweier linear polarisierten Photonen und die Ununterscheidbarkeit ist aufgehoben (Abbildung (b) unten). Die Photonenpaare sind dann klassisch korreliert.

zerfällt das Exziton mit Elektronen- $+\frac{1}{2}$ und Lochspin $-\frac{3}{2}$ unter Aussendung eines σ^- - (links-)polarisierten Photons (L-Photon). Bei der zweiten möglichen XX - X -Kaskade emittiert zuerst das Biexziton ein L-Photon, gefolgt von einem R-Photon des Exzitons. Dieser Prozess ist in Abbildung 2.7a schematisch veranschaulicht. Ohne die Messung der Polarisation sind beide Zerfallskanäle ununterscheidbar und der Zweiphotonenzustand der Kaskade ist nicht als Produktzustand der einzelnen Kanäle darstellbar. Beide emittierten Photonen sind also quantenmechanisch polarisationsverschränkt und der Zustand der

Kaskade muss als Linearkombination der Zustände ($|R_{XX}L_X\rangle$ bzw. $|L_{XX}R_X\rangle$) beider Zerfallswege verstanden werden [Ben10]:

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|L_{XX}R_X\rangle + |R_{XX}L_X\rangle) . \quad (2.13)$$

Diese Gleichung impliziert, dass ein komplementär polarisiertes Photonenpaar entsteht, wobei die Wahrscheinlichkeit zuerst ein L- und dann ein R-Photon zu beobachten gleich der umgekehrten Folge ist. Der in der zirkularen (z) Basis dargestellte Zustand kann sowohl über die Transformation $|H\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|L\rangle + |R\rangle)$ und $|V\rangle = \frac{i}{\sqrt{2}}(|L\rangle - |R\rangle)$ in der rektilinearen (r) als auch über $|D\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|H\rangle + |V\rangle)$ und $|A\rangle = \frac{i}{\sqrt{2}}(|H\rangle - |V\rangle)$ in der diagonalen (d) Polarisationsbasis dargestellt werden. Der verschränkte Zustand transformiert sich dann zu:

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|L_{XX}R_X\rangle + |R_{XX}L_X\rangle) \quad (2.14a)$$

$$\equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(|H_{XX}H_X\rangle + |V_{XX}V_X\rangle) \quad (2.14b)$$

$$\equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(|D_{XX}D_X\rangle + |A_{XX}A_X\rangle) . \quad (2.14c)$$

Der Zustand der XX-X-Kaskade ist demnach in allen drei Basen verschränkt. Zudem lässt sich nach Gleichung 2.14b und 2.14c sowohl in der rektilinearen als auch der diagonalen Basis eine korrelierte, nach Gleichung 2.14a dagegen in der zirkularen Basis eine antikorrelierte Polarisation erwarten.

Im Falle anisotroper Austauschwechselwirkung sind die beiden Zerfallskanäle energetisch unterscheidbar und das Biexziton zerfällt unter Aussendung eines π^{\parallel} - (H-Photon) oder π^{\perp} - (V-Photon) polarisierten Photons in einen der beiden um ΔE_{FSS} aufgespaltenen Exzitonenzustände. Dies ist schematisch in Abbildung 2.7b dargestellt. Es ergeben sich die beiden möglichen Zweiphotonenzustände $|H_{XX}H_X\rangle$ und $|V_{XX}V_X\rangle$, die jeweils in ihrer Kaskade bezüglich ihrer Polarisation korreliert sind. Aufgrund der Feinstrukturaufspaltung tritt in dem emittierten XX-X-Zustand eine sich zeitlich entwickelnde Phasendifferenz $\phi = \frac{\Delta E_{FSS}}{\hbar}\tau$ zwischen den beiden einzelnen Zweiphotonenzuständen auf und es gilt [Ste08]:

$$|\psi_{FSS}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(|H_{XX}H_X\rangle + e^{i\frac{\Delta E_{FSS}}{\hbar}\tau} |V_{XX}V_X\rangle \right) . \quad (2.15)$$

Hierbei entspricht τ der Zeitdifferenz zwischen der Rekombination des Biexzitons und anschließendem Zerfall des Exzitons sowie $\hbar = \hbar/2\pi$. Dies hat zur Folge, dass bei Zeitintervallen $t > \tau$ der Grad der Verschränkung reduziert oder die Verschränkung gar ganz zerstört wird. In diesem Fall ist sowohl in der d - als auch der r -Basis keine Korrelation mehr messbar. Anhand von Gleichung 2.15 ist erkennbar, dass dieser Effekt durch den Wert der Feinstruktur beeinflusst wird. Liegt die Feinstrukturaufspaltung im Bereich der homogenen Linienbreite $\gamma_X = \hbar/\tau_X$ (wenige μeV), welche nur durch die strahlende Lebensdauer τ_X des Exzitons begrenzt ist, oder darunter, so wirkt sich der Phasenterm erst für Zeiten oberhalb der Exzitonlebensdauer aus und hat daher nur einen geringen Einfluss auf den Grad der Verschränkung.

2.2. Die Statistik des Lichts und Korrelationsfunktion zweiter Ordnung

Die Untersuchung der zeitlichen Abfolge der von einer Lichtquelle ausgesandten Photonen an einem bestimmten Ort ergibt Aufschlüsse über ihren zugrundeliegenden Emissionsprozess. Experimente, welche sowohl eine grundlegende Charakterisierung der Photonen ermöglichen als auch den Nachweis nicht-klassischer Emission erbringen, sind daher nicht nur für diese Arbeit, sondern allgemein in den Forschungsgebieten der Quanteninformatik unerlässlich. Mit Hilfe der von R. J. Glauber entwickelten Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ lässt sich eine quantitative Beschreibung der Photonenstatistik darstellen als [Gla63, Abr86]:

$$g^{(2)}(t_1, t_2) = \frac{\langle \psi | \hat{a}^\dagger(t_1) \hat{a}^\dagger(t_2) \hat{a}(t_2) \hat{a}(t_1) | \psi \rangle}{\langle \psi | \hat{a}^\dagger(t_1) \hat{a}(t_1) | \psi \rangle \langle \psi | \hat{a}^\dagger(t_2) \hat{a}(t_2) | \psi \rangle}. \quad (2.16)$$

Dabei beschreiben $\hat{a}^\dagger(t)$ sowie $\hat{a}(t)$ den Erzeugungs- und Vernichtungsoperator eines Photons und $\langle \rangle$ die Bildung eines quantenmechanischen Erwartungswertes. Geht man von einem stationären Zustand des Lichtes aus, ist lediglich die Zeitdifferenz der an einem bestimmten Ort auftreffenden Photonen $\tau = t_2 - t_1$ relevant und Gleichung 2.16 lässt sich umschreiben in:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}^\dagger(t + \tau) \hat{a}(t + \tau) \hat{a}(t) \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}(t) \rangle^2}, \quad (2.17)$$

wobei die vereinfachte Schreibweise für den Erwartungswert einer Observablen $\langle \hat{O} \rangle = \langle \psi | \hat{O} | \psi \rangle$ verwendet wurde. Anschaulich gibt Gleichung 2.17 die bedingte Wahr-

scheinlichkeit an, mit der ein Photon eines Emitters zur Zeit $t + \tau$ ausgesandt wird, nachdem bereits eines zur Zeit t erzeugt wurde. Führt man zudem den Erwartungswert der Photonenzahl $\langle \hat{n} \rangle = \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle$ bzw. die gemittelte normierte Intensität $\langle I \rangle$ ¹³ ein, kann Gleichung 2.17 im klassischen Bild einer elektromagnetischen Welle geschrieben werden als [Bec01]:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2}. \quad (2.18)$$

Wie zuvor erwähnt lässt die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung Rückschlüsse auf den Emissionsprozess der Lichtquelle zu. Hier ist besonders der Fall $\tau = 0$, bei dem zwei Photonen zur gleichen Zeit an einem Ort auftreten, von Interesse, womit sich Gleichung 2.17 vereinfachen lässt:

$$g^{(2)}(\tau = 0) = 1 + \frac{\sigma^2(\hat{n}) - \langle \hat{n} \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2}, \quad (2.19)$$

mit $\sigma(\hat{n})$ als Standardabweichung der mittleren Photonenzahl, welche über $\sigma^2(\hat{n}) = \langle \hat{n}^2 \rangle - \langle \hat{n} \rangle^2$ definiert ist. Je nach dem zugrundeliegenden Emissionsprozess, ob thermisch, kohärent oder nicht-klassisch, zeigt $g^{(2)}(\tau \rightarrow 0)$ ein unterschiedliches Verhalten. Zunächst soll auf den Fall von klassischem Licht eingegangen werden, bei dem das Licht durch elektromagnetische Wellen, die den Maxwell-Gleichungen gehorchen, beschrieben werden kann. Unter diesen Annahmen kann mittels der Cauchy-Schwartz'schen Ungleichung gezeigt werden, dass für $g^{(2)}(\tau = 0)$ folgende Kriterien gelten [Tho04]:

$$g^{(2)}(\tau) \geq 1 \quad (2.20a)$$

$$g^{(2)}(\tau) \leq g^{(2)}(0) \quad (2.20b)$$

Aus mathematischer Sicht spiegeln diese Relationen das für klassisches Licht typische Verhalten wider, ein lokales Maximum von $g^{(2)}(\tau)$ bei $\tau = 0$ aufzuzeigen. Dieses Kennzeichen wird auch als Bunching¹⁴ bezeichnet und beschreibt anschaulich, dass die Intensitätsfluktuation des Lichtfeldes durch in unregelmäßigen Intervallen aufeinanderfolgende Energiebündel beschrieben werden kann oder einfacher gesagt, dass Photonen vorzugsweise in Gruppen auftreten. Bei genauerer Betrachtung von thermischen Lichtquellen, die ein chaotisches Lichtfeld aufweisen, liefert Gleichung 2.19 einen Wert für die Korrelationsfunktion von $g_{thermisch}^{(2)}(0) = 2$. Denn diese folgen der Bose-Einstein Verteilung

¹³Hier stellt $\langle I \rangle$ die zeitliche Mittlung der Intensität dar

¹⁴engl. für bündeln

eines schwarzen Strahlers [Lou05] und es gilt bei einer mittleren Photonenzahl μ für den Erwartungswert $\langle \hat{n} \rangle = \mu$ sowie für die Standardabweichung $\sigma^2(\hat{n}) = \mu^2 - \mu$, woraus folgt:

$$g_{\text{thermisch}}^{(2)}(0) = 1 + \frac{\mu^2 - \mu + \mu}{\mu^2} = 2 . \quad (2.21)$$

Des Weiteren kann ein kohärentes Lichtfeld, wie es bei Lasern beobachtet wird, klassisch beschrieben werden. In diesem Fall wird die Verteilung der Photonenzahl durch eine Poisson-Statistik beschrieben. Daher entspricht das Quadrat der Standardabweichung der mittleren Photonenzahl und es ergibt sich als weiterer Grenzfall:

$$g_{\text{kohärent}}^{(2)}(0) = 1 + \frac{\mu - \mu}{\mu^2} = 1 . \quad (2.22)$$

Bei einer rein quantenmechanischen Betrachtungsweise nach Gleichung 2.17 kann auch ein nicht-klassischer Zustand auftreten, welcher die Gleichungen 2.20 verletzt und sich durch $g^{(2)}(0) < 1$ auszeichnet. Diese Tendenz der Photonen zeitlich separiert aufzutreten wird auch als Antibunching bezeichnet. Für diese Arbeit sind vor allem die nicht-klassischen Fock-Zustände $|n_i\rangle$ relevant, welche Eigenzustände des Besetzungszahloperators \hat{n}_i sind und somit wegen $\hat{n}_i |n_i\rangle = n_i |n_i\rangle$ genau n_i Photonen enthalten. Ein Fock-Zustand enthält also immer eine definierte Anzahl an Photonen, wodurch der Erwartungswert stets dem Eigenwert ($\mu = n_i$) entspricht und die Standardabweichung verschwindet ($\sigma(\hat{n}_i) = 0$). Demnach gilt für die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung für nicht-klassische Emittter bei $\tau = 0$:

$$g^{(2)}(0) = 1 + \frac{0 - n_i}{n_i^2} = 1 - \frac{1}{n_i} . \quad (2.23)$$

Enthält ein Zustand zu jeder Zeit lediglich ein einzelnes Photon ($|n_i\rangle = |1\rangle$), so ergibt sich der Extremfall $g^{(2)}(0) = 0$, wie er von idealen Einzelphotonenquellen zu erwarten ist. Bei zwei Photonen dagegen erhält man $g^{(2)}(0) = 0,5$, weshalb in Experimenten ein Messwert von $g^{(2)}(0) < 0,5$ als Nachweis für eine Einzelphotonenquelle angesehen wird. In Abbildung 2.8a ist der qualitative Verlauf der $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion einer idealen Einzelphotonenquelle dargestellt.

Eine ähnliche Betrachtung liefert die Kreuzkorrelationsfunktion zweiter Ordnung $g_{A \rightarrow B}^{(2)}(\tau)$, bei der die zeitliche Verteilung der Photonen von zwei verschiedenen Lichtquellen A und B an einem bestimmten Ort untersucht wird. Sie ist gegeben durch [Ger05]:

$$g_{A \rightarrow B}^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I_A(t) I_B(t + \tau) \rangle}{\langle I_A(t) \rangle \langle I_B(t) \rangle} \quad (2.24)$$

Analog zu $g^{(2)}(\tau)$ gibt die Kreuzkorrelation zweiter Ordnung die Wahrscheinlichkeit an, dass eine Lichtquelle B zum Zeitpunkt $t + \tau$ ein Photon emittiert, nachdem eine Lichtquelle A zum Zeitpunkt t bereits ein Photon ausgesandt hat. Diese Methode dient der Charakterisierung der XX-X-Kaskade, wobei Exziton und Biexziton jeweils einen unterschiedlichen Emitter darstellen. Der qualitative Verlauf der Kreuzkorrelationsfunktion der XX-X-Kaskade ist in Abbildung 2.8c abgebildet. Geht man davon aus, dass bei einer zeitintegrierten Messung¹⁵ das Biexziton den Start- und das Exziton den Stoppimpuls vorgibt, erwartet man für positive Verzögerungszeiten ein Bunching-Verhalten. Für negative Zeiten dagegen ein Antibunching. Dies liegt darin begründet, dass nach dem Zerfall des Biexzitons sofort der Zerfall des Exzitons zu erwarten ist, was die Wahrscheinlichkeit zur Detektion von mehreren Photonen erhöht (Bunching $g_{XX \rightarrow X}^{(2)}(\tau > 0) > 1$). Bei negativen Verzögerungszeiten jedoch ist die Reihenfolge umgekehrt und das Exziton startet die Messung, während das Biexziton stoppt. Da nach dem Zerfall des Exzitons zunächst wieder das Biexziton angeregt werden muss, ist die Wahrscheinlichkeit zur Detektion eines weiteren Photons verringert (Antibunching $g_{XX \rightarrow X}^{(2)}(\tau < 0) < 1$). Ein solch auftretendes Verhalten dient damit als Kriterium zum Nachweis von biexzitonischer und exzitonischer Emission in einem QP, wie es in Kapitel 6 dargestellt wird. Mathematisch werden die Korrelationsfunktionen über die Betrachtung eines Ratengleichungsmodells ermittelt. Dies wird in der Dissertation von T. Aichele [Aic05] ausführlich dargestellt, weshalb hier nur die Ergebnisse präsentiert werden. In Anhang A ist zum besseren Verständnis eine kurze Zusammenfassung der Herleitung gegeben. Man erhält für den Verlauf der idealen Autokorrelationsfunktionen $g_{X \rightarrow X}^{(2)}(t)$ des Exzitons und $g_{XX \rightarrow XX}^{(2)}(t)$ des Biexzitons sowie der Kreuzkorrelationsfunktion zweiter Ordnung $g_{XX \rightarrow X}^{(2)}(t)$ zwischen Biexziton und Exziton:

$$g_{X \rightarrow X}^{(2)}(t) \propto 1 + \frac{B_X}{A}(1 + \lambda_1 \tau_{XX})e^{\lambda_1 t} + \frac{C_X}{A}(1 + \lambda_2 \tau_{XX})e^{\lambda_2 t} \quad (2.25)$$

$$g_{XX \rightarrow XX}^{(2)}(t) \propto 1 + \frac{B_{XX}}{A}e^{\lambda_1 t} + \frac{C_{XX}}{A}e^{\lambda_2 t} . \quad (2.26)$$

$$g_{XX \rightarrow X}^{(2)}(t) \propto \begin{cases} 1 + \frac{B_{XX}}{A}(1 + \lambda_1 \tau_{XX})e^{\lambda_1 t} + \frac{C_{XX}}{A}(1 + \lambda_2 \tau_{XX})e^{\lambda_2 t} & \text{für } t > 0 \\ 1 + \frac{B_X}{A}e^{\lambda_1 t} + \frac{C_X}{A}e^{\lambda_2 t} & \text{für } t < 0 \end{cases} \quad (2.27)$$

Die nötigen Parameter werden in Anhang A erläutert. Um jedoch aussagekräftige Schlussfolgerungen ziehen zu können, muss die endliche Zeitaufösung t_{res} der Detektoren noch berücksichtigt werden, die eine Verschmierung des idealen Verlaufs bewirkt (vgl.

¹⁵Der Ablauf einer Kreuzkorrelationsmessung ist in Kapitel 3 in Abschnitt 3.3 näher beschrieben.

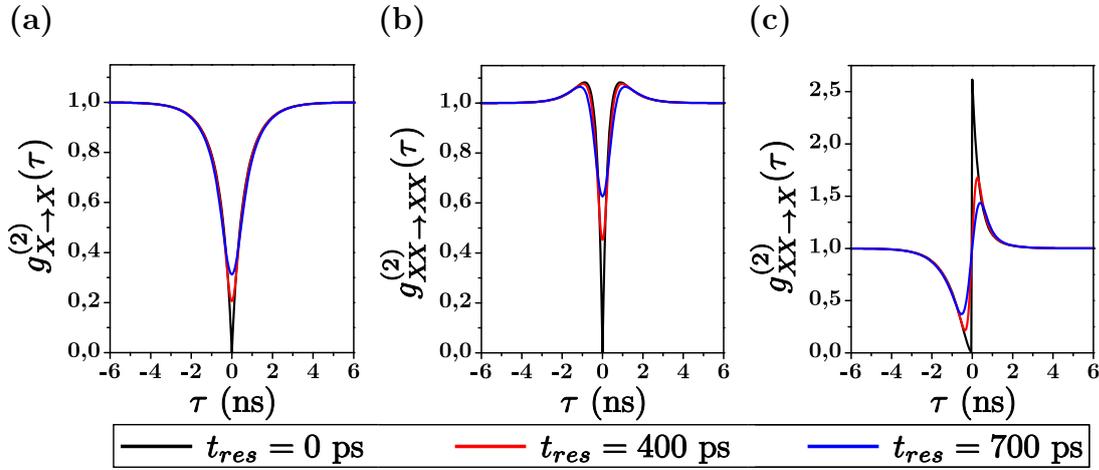


Abbildung 2.8.: Schematischer Verlauf der Autokorrelationsfunktionen von Exziton (a) und Biexziton (b) sowie die Kreuzkorrelationsfunktion zweiter Ordnung zwischen Biexziton und Exziton (c). Die schwarze Kurve zeigt die Korrelationsfunktion für perfekte Detektoren ($t_{res} = 0$ ps). Bei endlicher Zeitauflösung der Detektoren ($t_{res} = 400$ ps, rot; $t_{res} = 700$ ps, blau) tritt eine Verschmierung des idealen Verlaufs auf.

Abbildung 2.8). Dazu wird die Korrelationsfunktion mit einer Gaußverteilung $G(\sigma, t)$ mit der Standardabweichung $\sigma = t_{res}/2\sqrt{\ln 2}$ gefaltet und es ergibt sich:

$$\begin{aligned}
 g_{res}^{(2)}(t) &= g^{(2)}(t) \otimes G(\sigma, t) \\
 &= 1 + \sum_i \alpha_i E(-t, \lambda_i, \sigma) + \sum_i \beta_i E(t, \lambda_i, \sigma) ,
 \end{aligned} \tag{2.28}$$

mit

$$E(t, \lambda_i, \sigma) = \frac{1}{2} e^{\lambda_i t + \frac{\lambda_i^2 \sigma^2}{2}} \left(1 + \operatorname{erf} \left(\frac{t + \sigma^2 \lambda_i}{\sqrt{2} \sigma} \right) \right) . \tag{2.29}$$

Die Koeffizienten α_i und β_i müssen dabei entsprechend der jeweiligen Vorfaktoren aus den Gleichungen 2.25 bis 2.27 gewählt werden und $\operatorname{erf}(\sigma, t)$ stellt die Gauß'sche Fehlerfunktion dar. Gleichung 2.28 erlaubt nun eine Modellierung der experimentellen Daten, wodurch Rückschlüsse auf die Lebensdauern der beteiligten Teilchen gezogen und zudem der wahre $g^{(2)}(0)$ -Wert der Quelle angegeben werden können. In Abbildung 2.8 sind sowohl die Autokorrelationsfunktion für Exziton (2.8a) und Biexziton (2.8b) als auch die Kreuzkorrelationsfunktion 2.8c für verschiedene Detektorauflösungen t_{res} simuliert. Dabei wurde für die Exziton- und Biexzitonlebensdauern typische Werte von

$\tau_X = 1 \text{ ns}$ und $\tau_{XX} = 0,5 \text{ ns}$ gewählt. Für endliche Zeitaufösungen verschmiert das Korrelationssignal und die idealen Werte (für $t_{res} = 0$) werden nicht erreicht. Im Falle des Biexzitons (Abbildung 2.8b) können sich zusätzlich zum erwarteten Antibunching zwei zu $t = 0$ symmetrische Maxima ausprägen, da die $g_{XX \rightarrow XX}^{(2)}(t)$ -Funktion auch von der Besetzungsdichte des Exzitonzustandes abhängig ist [Kir02]. Diese ist nach dem Zerfall eines Biexzitons höher als zuvor, wodurch innerhalb einer charakteristischen Zeit eine erneute Anregung in den Biexzitonzustand wahrscheinlicher ist. Zudem steigt diese Wahrscheinlichkeit und damit auch die Ausprägung des Bunchings mit der Stärke der Anregungsleistung.

2.3. Licht-Materie-Wechselwirkung in optischen Mikroresonatoren

Ähnlich wie der im Abschnitt 2.1.1 diskutierte Einfluss einer Raumverkleinerung auf die elektronischen Eigenschaften der QPe, wirkt sich eine Einschränkung in drei Raumdimensionen ebenfalls auf die Zustandsdichte der Photonen aus. Lokalisiert man Licht in einem Bereich, bilden sich auch hier im Spektrum diskrete optische Moden aus. Im Gegensatz zu den Ladungsträgern spielt für Photonen die Bandlücke des Materials jedoch keine Rolle, sondern vielmehr muss der Verlauf des Brechungsindex betrachtet werden. Dennoch können Parallelen zwischen beiden Einschlussarten gezogen werden. In Analogie zu den Ladungsträgern stellt eine Brechungsindexvariation (z.B. Vakuum ($n = 1$), GaAs ($n = 3,54$), Vakuum) einen Potentialtopf dar, in welchem die Photonen lokalisiert werden. Klassisch betrachtet tritt beim Übergang vom optisch dichteren ins optisch dünnere Medium Totalreflexion auf, die zum Einschluss des Lichts führt. In Abbildung 2.9 sind die bekanntesten Vertreter solcher Mikroresonatoren aufgezeigt. Der Mikrosäulenresonator (engl. micropillar cavity) in Abbildung 2.9a besteht üblicherweise aus einer λ/n dicken Kavität, welche von zwei dielektrischen Bragg-Spiegeln (DBR¹⁶) umgeben ist. Während in der lateralen Ebene die Lokalisierung der Photonen durch Totalreflexion an dem Halbleiter-Vakuum-Übergang gewährleistet wird, sorgen in Wachstumsrichtung die beiden hochreflektierenden Bragg-Spiegel dafür. Dabei weist meist der obere DBR eine leicht geringere Reflektivität auf, sodass das Licht vorzugsweise in Wachstumsrichtung ausgekoppelt wird. Abbildung 2.9b zeigt Mikroscheibenresonatoren (engl. microdisc cavity) bei denen allein die Grenzfläche zwischen Halbleiter und Vakuum zum Lichteinschluss

¹⁶Akronym für „Distributed Bragg Reflector“

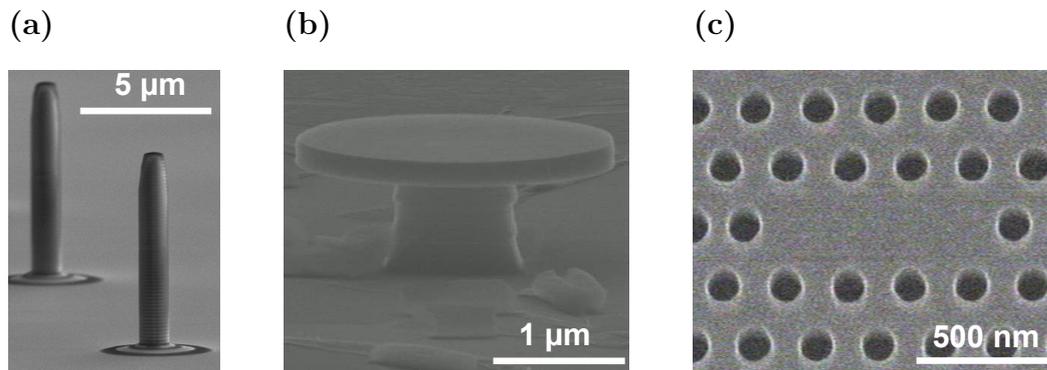


Abbildung 2.9.: REM-Aufnahmen der gängigsten Mikroresonatorstrukturen: (a) Mikrosäulen-, (b) Mikroscheiben und (c) photonischer Kristallresonator

führt. In Mikroscheibenresonatoren bilden sich sogenannte Flüster-Galerie-Moden (engl. whispering gallery modes) aus, welche nahe an der Grenzfläche kreisum in der lateralen Ebene propagieren und isotrop in dieser abstrahlen können. Weiterhin werden häufig photonische Kristallresonatoren (engl. photonic crystal cavity), wie sie in Abbildung 2.9c zu sehen sind, eingesetzt, welche sich durch einen hohen Gütefaktor und ein kleines Modenvolumen auszeichnen. Bei diesen wird durch eine Modulation des Brechungsindex im Bereich der Lichtwellenlänge eine photonische Bandlücke erzeugt, in der sich keine Photonen ausbreiten können. Eine Möglichkeit zur Realisierung einer solchen Struktur ist das Ätzen eines periodischen Lochgitters in eine dünne Halbleiterschicht, wobei im Zentrum einige Löcher zur Bildung der eigentlichen Kavität ausgelassen oder versetzt werden. Die Folge ist eine Bildung von Defektzuständen in der photonischen Bandlücke, die Resonatormoden. Die Propagation der Photonen ist in der lateralen Ebene dann durch die photonische Bandlücke und in Wachstumsrichtung durch den Halbleiter-Vakuum-Übergang gehindert. In dieser Arbeit wird zusätzlich ein neuartiges Resonatordesign, eine sogenannte Tamm-Plasmonen¹⁷-Struktur, vorgestellt und untersucht, welches aus einem DBR in Kombination mit einer metallischen Scheibe gebildet wird. Eine detaillierte Beschreibung dieser Struktur wird in dem entsprechenden Kapitel 7 gegeben.

Wird nun ein QP in das Zentrum eines Mikroresonators integriert, hat die veränderte optische Zustandsdichte des Resonators enorme Auswirkungen auf dessen Eigenschaften. Der Forschungsbereich, welcher sich mit der Wechselwirkung zwischen dem quantisierten

¹⁷benannt nach dem russischen Physiker I. J. Tamm

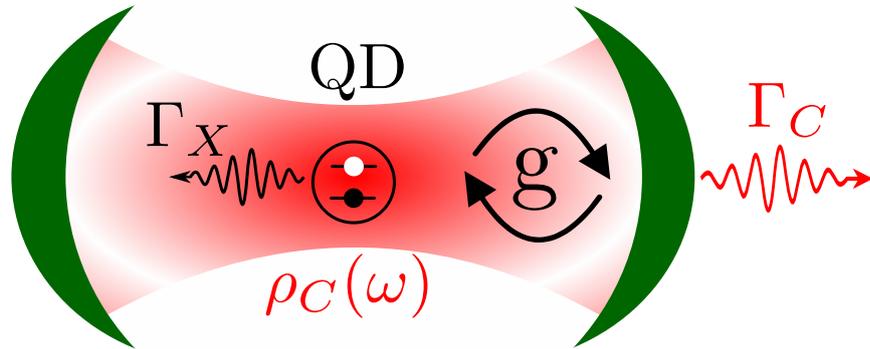


Abbildung 2.10.: Schematische Darstellung eines cQED-Systems. Die vom QP ausgesandten Photonen können an die durch die Resonatorspiegel (grün) definierte Modendichte $\rho_C(\omega)$ koppeln. Die Kopplungskonstante g gibt dabei die Stärke der Wechselwirkung an. Befindet sich das System im Regime der schwachen Kopplung, ist die Zerfallsrate $\Gamma_X = \frac{1}{\tau_X}$ des Quantenpunkt größer gegenüber der Rate $\Gamma_C = \frac{1}{\tau_C}$ durch die Resonatorverluste.

Lichtfeld in einem Resonator und den darin integrierten Quantenemittern beschäftigt, ist das sogenannte Gebiet der cavity quantum electrodynamics (cQED). Lag zu Beginn der Experimente der Fokus der Untersuchungen noch auf Atomen, welche durch Dipolfallen im Zentrum eines externen Resonators gehalten wurden [Mab02], wurde durch die Integration von QP in eine Mikrokavität die cQED auf den Festkörperbereich erweitert [Gér98, Rei04]. In einem idealisierten Modell kann ein solches QP-Resonator-System folgendermaßen beschrieben werden (vgl. Abbildung 2.10). Man betrachtet einen idealen QP, welcher als ein Zweiniveausystem mit dem Grundzustand $|G\rangle$ und dem angeregten Exzitonenzustand $|X\rangle$ beschrieben werden kann und resonant an die Grundmode $|0\rangle$ eines Mikroresonators der Güte $Q = E_C/\gamma_C$ koppeln soll. Dabei bezeichnet E_C die Energie und γ_C die Linienbreite der Resonatormode. Befindet sich der QP zunächst im angeregten Zustand $|X\rangle$, so geht er nach einer charakteristischen Zeit $\tau_X = h/\gamma_X$ durch spontane Emission eines Photons in seinen Grundzustand über. Das System wird dann durch den Zustand $|G,1\rangle$ beschrieben. Im Grenzfall eines verlustfreien Resonators ($Q \rightarrow \infty$) bewegt sich das System in dem ständig wiederkehrenden Vorgang der Emission und Absorption des Photons durch den QP, wobei sich abwechselnd ein oder kein Photon in der Kavität befindet. Die spontane Emission wird dann also zu einem reversiblen Prozess und man spricht bei diesem Phänomen der kohärenten Kopplung eines Emitters an das Vakuumfeld eines Resonators von sogenannten Vakuum-Rabi-Oszillationen, oder auch vom Regime der starken Kopplung. In diesem Regime kommt es zur quantenmechanischen Verschränkung der beiden Zustände $|X,0\rangle$ und

$|G,1\rangle$ zu einem neuen Quasiteilchen $|\psi_{Polariton}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|X,0\rangle + |G,1\rangle)$, welches zu gleichen Teilen aus Licht und Materie besteht und als Polariton bezeichnet wird. Ein Maß für die Intensität der Licht-Materie-Wechselwirkung stellt die Kopplungsstärke g dar [And99]:

$$g = \left(\frac{\hbar^2}{4\pi\epsilon_r\epsilon_0} \cdot \frac{\pi e^2 f}{m_0 V_m} \right)^{\frac{1}{2}}, \quad (2.30)$$

mit der Permittivität im Vakuum ϵ_0 , dem effektiven Modenvolumen V_m und der Oszillatorstärke f . Oft wird auch allein die dimensionslose Oszillatorstärke f als ein Maß für die Kopplung des Übergangs $|X\rangle \rightarrow |G\rangle$ herangezogen. Sie beschreibt die Absorptions- bzw. die Rekombinationswahrscheinlichkeit im Volumenhalbleiter und hängt mit der strahlenden Zerfallsrate $\Gamma(\omega) = \frac{1}{\tau}$ (vgl. auch Abschnitt 2.3.1) zusammen [Hou05]:

$$f(\omega) = \frac{6\pi m_0 \epsilon_0 c^3}{n(\omega) e^2 \omega^2} \Gamma(\omega), \quad (2.31)$$

wobei $n(\omega)$ den dispersiven Brechungsindex des Halbleitermaterials beschreibt. Eine Näherung für die Oszillatorstärke kann für QPe angegeben werden, deren Dimensionen im Bereich des Exziton-Bohr-Radius liegen [Sto10a]:

$$f(\omega, x) = \frac{2E_P(x)}{\hbar\omega} \left(\frac{L}{a_B} \right)^2. \quad (2.32)$$

$E_P(x)$ entspricht dabei der materialabhängigen Kane-Energie im Kane-Modell [Kan57] und L dem Durchmesser der Schwerpunktswellenfunktion des Exzitons in der Wachstumsebene. Im Allgemeinen weisen Mikroresonatoren eine endliche Güte auf, wodurch das Photon den Resonator nach einer gewissen Zeit $\tau_C = \hbar Q / E_C$ verlassen kann und die Rabi-Oszillationen gedämpft werden. Sind die Verluste im Resonator sogar so hoch, dass das Photon die Kavität vor der ersten Reabsorption verlässt, befindet sich das System im Regime der schwachen Kopplung. Im folgenden Abschnitt soll dieses Regime nun näher erläutert werden.

2.3.1. Zerfallsrate eines Emitters und Purcell-Effekt

Sind aufgrund der starken Dämpfung keine Rabi-Oszillationen mehr beobachtbar, ist die spontane Emission irreversibel und das System befindet sich im Regime der schwachen Kopplung. Dennoch wirkt sich die modifizierte Modendichte des Resonators stark auf die

Emissionscharakteristik des Emitters aus. Um dieses Regime näher zu verstehen, geht man von Fermis Goldener Regel

$$\Gamma = \frac{1}{\tau} = \frac{2\pi}{\hbar} \rho(\omega_0) \left| \langle \vec{d} \cdot \vec{f}(\vec{r}_0) \rangle \right|^2 \quad (2.33)$$

aus, welche die spontane Emissionsrate Γ eines Zwei-Niveau-Emitters reflektiert [Gér98]. Demnach ist die Emissionsrate direkt proportional zur Modendichte $\rho(\omega_0)$ an der Übergangsfrequenz ω_0 , mit dem Dipolmatrixelement $\left| \langle \vec{d} \cdot \vec{f}(\vec{r}_0) \rangle \right|$ des entsprechenden Übergangs. Für ein Vakuumfeld, das aus einem Kontinuum an Moden besteht, kann zwischen der Modendichte $\rho_{Vak}(\omega)$ und der Kreisfrequenz ω ein kontinuierlich parabolischer Zusammenhang festgestellt werden [AK07]:

$$\rho_{Vak}(\omega) = \frac{1}{\pi^2 c_0^3} \cdot \omega^2, \quad (2.34)$$

wobei c_0 die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum angibt. Befindet sich der Emitter jedoch nicht im freien Raum, kann die Modendichte je nach Lage stark variieren. Allein die Nähe des Emitters zu dielektrischen oder metallischen Grenzflächen hat einen Einfluss auf die Modendichte und damit auf die Emissionsrate des Emitters [Dre70, Joh08, Lei09]. Für die Zerfallsrate Γ_E eines Zweiniveau-Emitters gilt dann [Joh08]:

$$\Gamma_E(z) = \Gamma_{nstr} + \Gamma_{str} \cdot \frac{\rho_{lokal}(z)}{\rho_{Vak}}. \quad (2.35)$$

Dabei entspricht Γ_{nstr} der Zerfallsrate der dunklen Zustände und Γ_{str} der der hellen sowie $\rho_{lokal}(z)$ der lokalen photonischen Zustandsdichte am Ort des Emitters z . Da die Zerfallsrate der dunklen Zustände kaum von der Position des Emitters abhängt, wird sie nicht weiter betrachtet. Die Änderung der Modendichte wird durch Reflexionen der emittierten Photonen an der Grenzfläche hervorgerufen. Je nach Position des Emitters wird dann das elektrische Feld an dessen Ort entweder verstärkt (die Modendichte steigt) oder abgeschwächt (die Modendichte sinkt), was zu einer Erhöhung bzw. Verringerung der Zerfallsrate führt. Dabei ist die Stärke des Einflusses vom Material der Grenzschicht abhängig. Beispielsweise schwankt die Zerfallsrate eines QPes an einer Halbleiter-Luft-Grenzfläche um etwa $\pm 10\%$ in Abhängigkeit von der Entfernung zur Grenzfläche [Joh08]. Eine genaue Berechnung der lokalen Zustandsdichte und damit der Zerfallsrate kann über den Ansatz von Green-Funktionen erfolgen [Cha07], was aufgrund des Aufwandes im Rahmen dieser Arbeit nicht umsetzbar war. Ein speziellerer Fall ergibt sich für einen

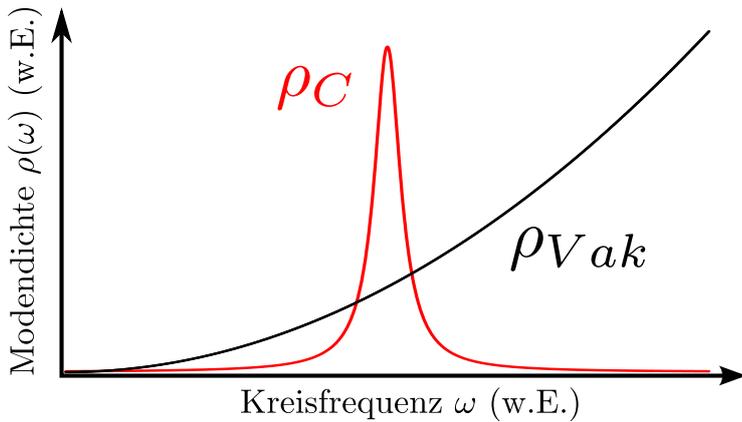


Abbildung 2.11: Photonendichte des Vakuums ρ_{Vak} (schwarze Linie) und eines Mikroresonators ρ_C (rote Linie) in Abhängigkeit der Kreisfrequenz ω . Die Modendichte ist im Falle des Resonators auf einen kleinen Frequenzbereich um die Übergangsfrequenz ω_0 begrenzt und weist einen lorentzförmigen Verlauf auf.

Resonator mit diskreten optischen Moden. Wenn man vereinfacht annimmt, dass die vom Resonator definierten Moden spektral weit separiert sind und dadurch der Emittor lediglich an eine einzelne diskrete Mode koppelt, kann für die Dichte der Photonmoden $\rho_C(\omega)$ in einem Resonator folgende Gleichung angegeben werden [AK07]:

$$\rho_C(\omega) = \frac{\gamma'_C}{2\pi V_m} \frac{1}{\left(\frac{1}{2}\gamma'_C\right)^2 + (\omega_0 - \omega)^2}. \quad (2.36)$$

Dabei beschreibt γ'_C die Linienbreite in Einheiten von ω und V_m das effektive Modenvolumen der Resonatormode. Zum Vergleich sind in Abbildung 2.11 die Modendichten für die Kopplung an das Vakuumfeld ρ_{Vak} bzw. an die Resonatormode ρ_C dargestellt. Vergleicht man diese beiden Zerfallsraten Γ_{Vak} und Γ_C direkt miteinander, stellt man für einen Emittor, dessen Übergangsfrequenz im freien Spektralbereich¹⁸ des Resonators liegt, eine deutliche Erniedrigung der Zerfallsrate ($\Gamma_C < \Gamma_{Vak}$) fest [Bay01]. Im Gegensatz dazu kann diese im Falle der spektralen Resonanz auch eine deutliche Steigerung aufzeigen ($\Gamma_C > \Gamma_{Vak}$) [Gér98]. Dieses Phänomen ist allgemein als Purcell-Effekt bekannt und wurde bereits 1946 durch seinen Namensgeber E. Purcell für Atome in Resonatoren vorhergesagt [Pur46]. Das Verhältnis der beiden Emissionsraten eines Emittors im Vakuum Γ_{Vak} und in Resonanz mit der Resonatormode Γ_C wird als Purcell-Faktor F_P bezeichnet. Da sich dieser Effekt in dieser Arbeit in einem Halbleitermaterial ereignet, wird der Purcell-Faktor nicht auf das Vakuum, sondern auf den unendlich ausgedehnten Festkörper bezogen, und dessen

¹⁸der Bereich, für den $\rho_C \approx 0$ gilt

Brechungsindex n muss mitberücksichtigt werden. In diesem Fall kann der Purcell-Faktor F_P wie folgt beschrieben werden [Gay03]:

$$F_P = \frac{\Gamma_C}{\Gamma_{\text{Vak}} \cdot n^3} = \frac{3Q (\lambda_C/n)^3}{4\pi^2 V_m} \cdot \frac{\gamma_C^2}{\gamma_C^2 + 4\Delta^2} \cdot \frac{|\vec{E}(\vec{r})|^2}{|\vec{E}_{\text{max}}|^2}. \quad (2.37)$$

Während der erste Term ausschließlich von den resonatorspezifischen Größen Güte Q , effektivem Modenvolumen V_m und Resonanzwellenlänge λ_C abhängt, beruhen die beiden anderen auf der Wechselwirkung mit dem Emitter. Der zweite Term berücksichtigt die spektrale Verstimmung $\Delta = \lambda_C - \lambda_X$ zwischen der Resonanzwellenlänge des Resonators und der Emissionswellenlänge des Exzitons λ_X , wohingegen der dritte die räumliche Verteilung des elektrischen Feldes $\vec{E}(\vec{r})$ mit einbezieht, welche am Ort des Emitters \vec{r} gegenüber dem Maximum \vec{E}_{max} reduziert sein kann. Geht man von spektraler Resonanz ($\Delta = 0$) und perfektem räumlichen Überlapp zwischen dem elektrischen Feld des Dipol-Emitters und dem der Resonatormode aus, gibt der erste Term zusätzlich die obere Grenze des Purcell-Faktors an:

$$F_P^{\text{max}} = \frac{3Q (\lambda_C/n)^3}{4\pi^2 V_m}. \quad (2.38)$$

Der Purcell-Effekt spielt besonders bei der Entwicklung effizienter Einzelphotonenquellen eine wichtige Rolle. Durch ihn ist es möglich, die spontane Zerfallsrate eines QPES in einem Resonator zu erhöhen und damit die Effizienz des Bauteils deutlich zu steigern.

3. Experimentelle Techniken

In diesem Kapitel werden die in dieser Arbeit verwendeten experimentellen Techniken vorgestellt. Abschnitt 3.1 führt mit dem Messaufbau für die Mikrophotolumineszenz- (μ PL-) Spektroskopie, welche die grundlegende Untersuchungsmethode darstellt, in die Thematik ein. Hierbei werden die Proben bei kryogenen Temperaturen unter optischer Anregung mit einer Ortsauflösung von wenigen Mikrometern auf ihre Emissionseigenschaften hin charakterisiert. Die folgenden Analysemethoden zur zeitlichen Untersuchung des Emissionsverhalten der Quantenemitter in Abschnitt 3.2 und 3.3 durch Autokorrelations- sowie Kreuzkorrelationsmessungen zweiter Ordnung sind für diese Arbeit von essentieller Bedeutung. Abschließend wird in Abschnitt 3.4 kurz auf die zeitaufgelöste μ PL-Spektroskopie zur Messung der Exzitonlebensdauer eingegangen.

3.1. Mikrophotolumineszenz-Spektroskopie

Die Messanordnung zur spektroskopischen Analyse von μ PL-Signalen ist schematisch in Abbildung 3.1 dargestellt. Die zu untersuchende Probe befindet sich auf dem Kältefinger im Inneren eines Durchflusskryostaten (Modell: Janis, Cryotech) und kann mit flüssigem Helium ($L^4\text{He}$) auf Temperaturen bis zu 6 K heruntergekühlt werden. Zusätzlich sind am Kältefinger nahe der Probe ein Thermoelement sowie eine Heizspule integriert, die eine Temperaturregelung von 6 K bis 300 K mit einer Genauigkeit von etwa 0,1 K über einen PID-Regler sowohl manuell als auch durch den Computer ermöglichen. Der Kryostat befindet sich auf einem 2D-Positioniertisch (Modell: M-511.DD, Physik Instrumente), welcher über Piezoelemente mit einer Genauigkeit von 0,1 μm über einen Bereich von 102 mm in der X-Y Ebene verfahrbar ist. Dies ermöglicht eine exakte Adressierung einzelner Mikrostrukturen auf der Probenoberfläche. Zur Anregung stehen fünf verschiedene Laser zu Verfügung: ein grüner, frequenzverdoppelter ND-YAG-Festkörperlaser bei einer Wellenlänge von 532 nm im Dauerstrichbetrieb (CW¹); ein roter Diodenlaser (Modell:

¹Akronym für „Continuous Wave“; Dauerstrichbetrieb

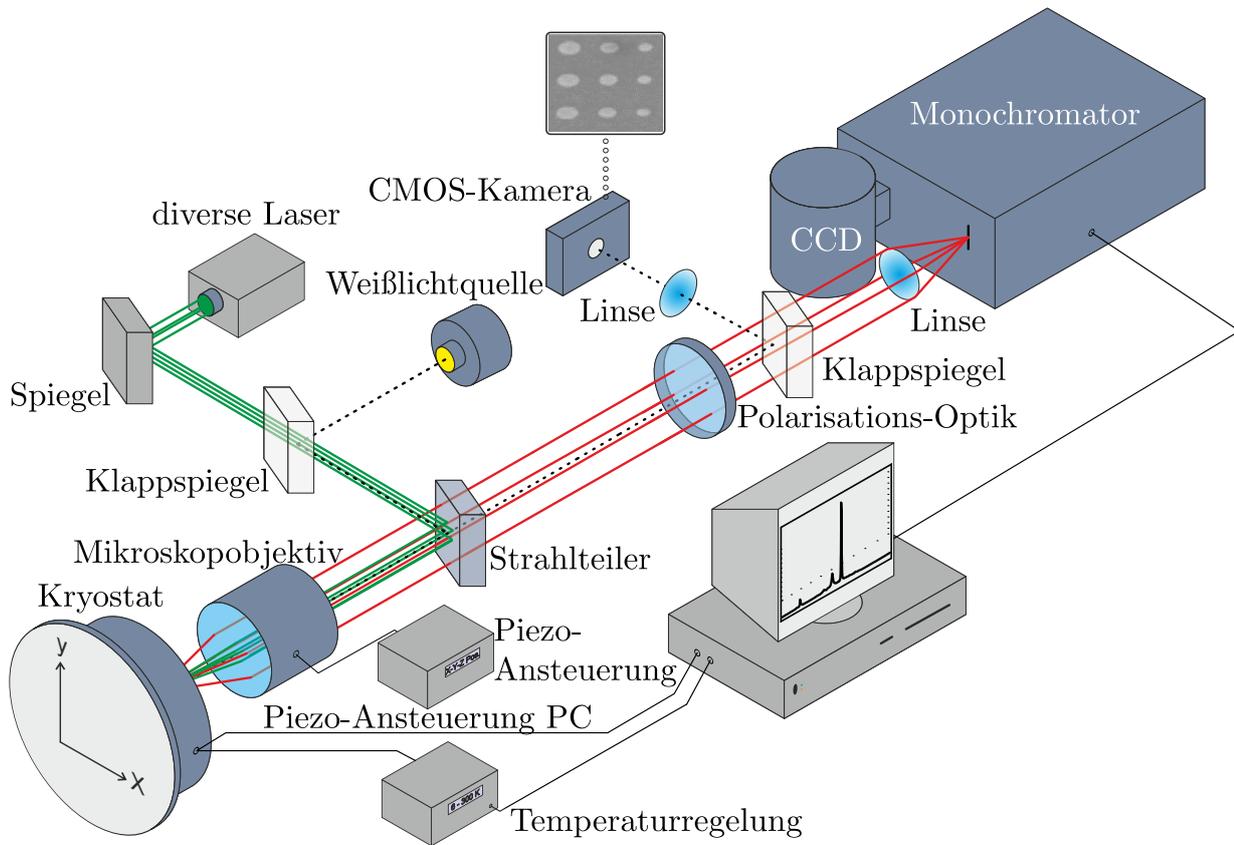


Abbildung 3.1.: Schematischer Aufbau des Messplatzes zur Mikrophotolumineszenz-Spektroskopie. Zur Anregung der Probe können diverse Laser auf die optische Achse über einen Strahlteiler eingekoppelt werden. Das von der Probe emittierte Signal kann von einem Mikroskopobjektiv kollimiert, durch einen Monochromator spektral aufgeweitet und dann von einer CCD-Kamera detektiert werden. Zur Orientierung wird die Oberfläche der Probe mit einer Weißlichtquelle beleuchtet und auf eine CMOS-Kamera abgebildet.

PhoxX, Omikron) mit $\lambda = 658 \text{ nm}$; ein ultravioletter Diodenlaser (Modell: PDL800-D, PicoQuant) bei 380 nm , der sowohl CW als auch gepulst bei Repetitionsraten von $31,25 \text{ kHz}$ bis 80 MHz betrieben werden kann; ein von etwa 720 nm bis 850 nm durchstimmbarer Titan-Saphir- (Ti:Sa-) Laser (Modell: Tsunami, Spectra Physics) der neben dem CW- auch im Pikosekundenmodus mit einer Repetitionsrate von 82 MHz arbeiten kann und dessen Ausgangsleistung durch einen Laserpowercontroller (Modell: RD40, Brockton Electro-Optics Corp.) stabilisiert wird; zu guter Letzt ein frequenzverdoppelter Ti:Sa-Laser (Modell: Tsunami, Spectra Physics) bei etwa 470 nm mit einer Pulsbreite von wenigen Pikosekunden und einer Repetitionsrate von abermals 82 MHz . Letzterer Ti:Sa-Laser wird

mit einem Diodenlaser (Modell: Millenium, Spectra Physics) mit einer Leistung von 10 W, ersterer dagegen von einem Laser (Modell: Verdi V 18, Coherent) mit 14 W bei 532 nm optisch gepumpt. Die jeweils benötigten Lasertypen können über ein Spiegel- oder ein Glasfasersystem sowie durch einen 92:8-Strahlteiler in den optischen Strahlengang eingekoppelt und von einem Mikroskopobjektiv (Modell: M Plan Apo NIR, Mitutoyo) auf die Oberfläche mit einem Strahldurchmesser von etwa 4 μm fokussiert werden. Dabei kann entweder ein Objektiv mit 20-facher Vergrößerung und einer numerischen Apertur (NA) von 0,40 oder eines mit einer NA von 0,42, welches das Abbild um einen Faktor 50 vergrößert, eingesetzt werden. Zur Optimierung des Strahlengangs, insbesondere zur genauen Justage der Fokusebene, befindet sich das Mikroskopobjektiv auf einem 3D-Positioniertisch, welcher durch Mikrometerschrauben und zur Feineinstellung mit Piezo-Aktuatoren mit einer Genauigkeit von etwa 100 nm bewegt werden kann. Das von der Probe emittierte Licht wird durch das Objektiv vor dem Glasfenster des Kryostaten aufgesammelt, kollimiert und anschließend mit einer Linse auf den 50 μm breiten Eingangspalt eines Gitter-Monochromators (Modell: Acton SP2750, Princeton Instruments) fokussiert. Innerhalb des Monochromators wird das Signal durch mehrere Spiegel und ein Reflexionsgitter spektral aufgeweitet und dann auf einer mit flüssigem Stickstoff (LN_2) gekühlten Silizium-CCD²-Kamera (Modell: SPEC-10, Princeton Instruments) mit 1340 Pixel \times 100 Pixel detektiert. Für das Reflexionsgitter stehen drei Varianten mit 300, 1200 oder 1500 Strichen/mm zur Verfügung, wobei mit letzterem eine maximale spektrale Auflösung von etwa 30 μeV erreicht wird. Zur Untersuchung der Polarisations-eigenschaften des Lichts kann zwischen Strahlteiler und Fokussierlinse ein manuell- und computeransteuerbares $\lambda/2$ -Wellenlängenplättchen in Kombination mit einem auf die präferierte Polarisationsachse des Monochromators fest eingestellten Linearpolarisator in den Strahlengang eingebracht werden.³

Ferner kann über den Strahlteiler das Signal einer Weißlichtquelle eingekoppelt und zur Beleuchtung der Probenoberfläche verwendet werden. Das von der Probenoberfläche reflektierte Licht wird über einen Klappspiegel vergrößert auf einer CMOS-Kamera abgebildet und ermöglicht so eine Orientierung auf der Probe.

²Akronym für „Charged Coupled Device“

³Je nach Polarisation des Lichts weist das Gitter des Monochromators unterschiedliche Reflektivitäten auf. Der Linearpolarisator wird mit 90° auf die Achse mit höherer Reflektivität eingestellt, um ein höheres Signal-zu-Rausch-Verhältnis zu erreichen.

3.2. Photonen-Autokorrelationsmessung zweiter Ordnung

Um die Statistik der Photonen messtechnisch zu erfassen ist eine sogenannte Hanbury-Brown und Twiss- (HBT-) Messanordnung notwendig, welche erstmalig von ihren Namensgebern im Jahr 1956 realisiert wurde [HB56] und im Folgenden näher erläutert werden soll. Schematisch ist der HBT-Messaufbau für ein glasfasergekoppeltes System in Abbildung 3.2 als Erweiterung zur μ PL-Messanordnung (vgl. Abbildung 3.1) dargestellt. Zunächst wird das vom Reflexionsgitter spektral aufgeweitete Lumineszenzsignal im Monochromator anstatt auf die CCD-Kamera über einen umklappbaren Spiegel auf den seitlichen Ausgangsspalt gelenkt. Dieser bewirkt eine Selektion eines gewissen spektralen Bereichs des Signals, welcher vom eingesetzten Gitter abhängig und über die Breite des Spalts einstellbar ist.⁴ Anschließend wird über zwei Linsen das gefilterte Signal kollimiert und auf eine Multimode-Glasfaser mit einem Kerndurchmesser von $50\ \mu\text{m}$ fokussiert. An diese Faser ist ein nicht-polarisierender 50:50-Strahlteiler angeschlossen, der das Signal in zwei separate Strahlen aufteilt und über $25\ \text{m}$ lange Glasfaserkabel⁵ auf zwei Silizium- (Si-) Lawinenphotodioden (APDs⁶) zur Detektion leitet. Als APDs stehen zwei unterschiedliche Modelle zur Verfügung. Zum einen zwei Module (Modell: SPCM-AQR-16-FC, Perkin Elmer), die eine zeitliche Auflösung von $t_{res} = 700\ \text{ps}$ aufweisen, zum anderen zwei APDs (Modell: τ -SPAD-100, PicoQuant), welche sich durch $t_{res} = 400\ \text{ps}$ auszeichnen. Die APDs wandeln die Detektionsereignisse in Spannungspulse um, welche über Koaxialkabel auf die beiden Eingänge eines Korrelators (ein TCSPC2-Modul des Modells: SPC-130, Becker & Hickl) gegeben werden. Die Einzelphotonen-Korrelationskarte ist im Wesentlichen aus zwei CFD⁷-Kanälen, einem Zeit-Amplituden-Wandler (TAC⁸) sowie einem Analog-Digital-Wandler (ADC⁹) aufgebaut und fungiert als Start-Stopp-Messung zur Erfassung der Zeitdifferenz τ zwischen zwei konsekutiven von den APDs detektierten Photonen. Weiterhin wird an den Stoppkanal (APD 2) ein Koaxialkabel zur elektrischen Verzögerung von mehreren zehn Nanosekunden installiert, um den Bereich negativer Verzögerungszeiten messtechnisch zu erfassen. Die gemessenen Koinzidenzen werden dann

⁴Beispielsweise ergibt sich für eine Spaltbreite von $250\ \mu\text{m}$ und unter Verwendung des Gitters mit $1200\ \text{Strichen/mm}$ ein selektierter spektraler Bereich von etwa $0,22\ \text{nm}$ für eine Wellenlänge von $900\ \text{nm}$

⁵Bei der Rekombination von heißen Ladungsträgern in den APDs können Photonen emittiert werden (sogenanntes Nachpulsen), welche durch die Glasfaser zur anderen APD gelangen und signifikante Messartefakte hervorrufen können [Ulu00, Kur01, Sto10b]. Die lange Faser sorgt dafür, dass die Artefakte zeitlich aus dem Messbereich geschoben werden.

⁶Akronym für „Avalanche Photo Diode“

⁷Akronym für „Constant Fraction Discriminator“

⁸Akronym für „Time to Amplitude Converter“

⁹Akronym für „Analog to Digital Converter“

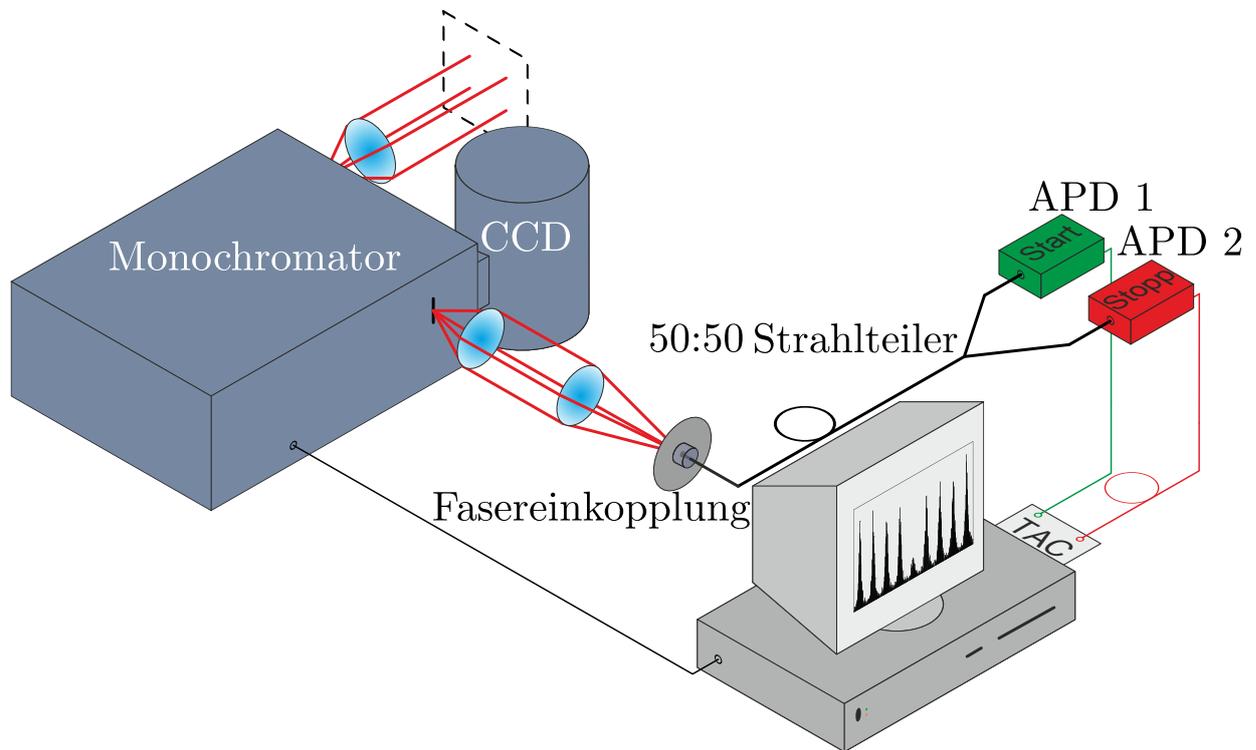


Abbildung 3.2.: Schematische Darstellung der Hanbury-Brown und Twiss Messanordnung zur Messung der Photonen-Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung. Das aufgeweitete Messsignal wird am Ausgang des Monochromators spektral selektiert, über zwei Linen in eine Glasfaser eingekoppelt und kann nach einem 50:50 Strahlteiler von zwei Lawinendiioden (APD) detektiert werden. Jedes Detektionsereignis einer APD dient als Start- bzw. Stoppimpuls einer Zeitmessung durch eine TAC-Karte.

als Funktion des zeitlichen Abstands in einem Histogramm dargestellt, welches direkt die Photonen-Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung widerspiegelt.

Die Photonen-Autokorrelationsmessung zweiter Ordnung stellt ein zentrales Element dieser Arbeit dar und dient dem Nachweis nicht-klassischer Emission eines QPes. Um aus solch einer Messung mit den detektierten Zählraten der APDs jedoch auch eine Aussage über die Effizienz eines Bauteils treffen zu können, muss der Messaufbau für die entsprechende Emissionswellenlänge kalibriert werden.

Kalibration zur Bestimmung der Effizienz der Messanordnung

Die Kalibration des μ PL-Messplatzes mit der HBT-Messanordnung, wie sie in den Abbildungen 3.1 und 3.2 dargestellt sind, erfolgt mit dem roten Laser (Modell: PhoxX, Omikron)

bei 658 nm, da dieser in etwa bei der Wellenlänge der untersuchenden Strukturen emittiert (siehe Kapitel 7). Am Versuchsaufbau werden keine Veränderungen vorgenommen, lediglich die Probe wird durch einen Goldspiegel ersetzt, welcher eine gemessene Reflektivität von $R = 0,94$ aufweist. Nun wird die Laserleistung P_{Laser} , die auf den Goldspiegel im Kryostaten fällt, mit einem Leistungsmesser (Messkopf LM-2, Coherent) bestimmt und anschließend der Strahlengang zur Erfassung der APD-Zählraten \dot{n}_{APD} freigegeben. Da aufgrund der hohen Laserleistung die APDs sättigen oder sogar beschädigt werden können, werden zusätzlich in den Strahlengang entsprechende optische Abschwächer mit einer Gesamtabschwächung von $\alpha = 1,99 \cdot 10^{-6}$ eingebracht. Daraufhin kann die Zählrate \dot{n}_{APD} gemessen werden. Der Kalibrationsfaktor η ergibt sich dann aus dem Verhältnis der detektierten \dot{n}_{APD} zu den vom Goldspiegel ausgesandten Photonennraten unter Berücksichtigung der optischen Abschwächer:

$$\eta = \frac{\dot{n}_{APD}}{\dot{n}_{Kryo}} \cdot \alpha = \dot{n}_{APD} \cdot \alpha \cdot R \frac{E_{Laser}}{P_{Laser}}, \quad (3.1)$$

wobei $\dot{n}_{Kryo} = \frac{1}{R} \frac{E_{Laser}}{P_{Laser}}$ die Anzahl der den Kryostaten verlassenden Photonen mit Energie E_{Laser} angibt. Für den in Abschnitt 7 verwendeten Versuchsaufbau lässt sich ein Kalibrationsfaktor von $\eta = (2,0 \pm 0,5) \%$ bestimmen.

3.3. Photonen-Kreuzkorrelationsmessung zweiter Ordnung

Um die Photonen-Kreuzkorrelationsfunktion zweiter Ordnung zwischen zwei spektral separierten Quantenemittern messen zu können, ist ein Versuchsaufbau von Nöten, wie er in Abbildung 3.3 schematisch präsentiert ist. Aus Gründen der Übersicht wird auf eine Darstellung des gesamten Aufbaus verzichtet und nur der wesentliche Teil gezeigt. Das Prinzip der Messanordnung folgt ebenfalls dem Modell nach Hanbury-Brown und Twiss, muss allerdings ein wenig abgeändert werden. Im Gegensatz zur vorherigen Messkonfiguration wird in den optischen Strahlengang ein nicht-polarisierender Strahlteiler vor den ersten Monochromator gebracht, sodass das Lumineszenzsignal bereits vor dem Durchgang durch den ersten Monochromator in zwei gleiche Teile aufgetrennt wird. Der transmittierte Strahl wird dann wie zuvor durch den ersten Monochromator spektral aufgeweitet, auf den Ausgangsspalt abgebildet und über die zwei Linsen in die Glasfaser eingekoppelt, welche lediglich mit einer einzelnen APD verbunden ist. Der reflektierte

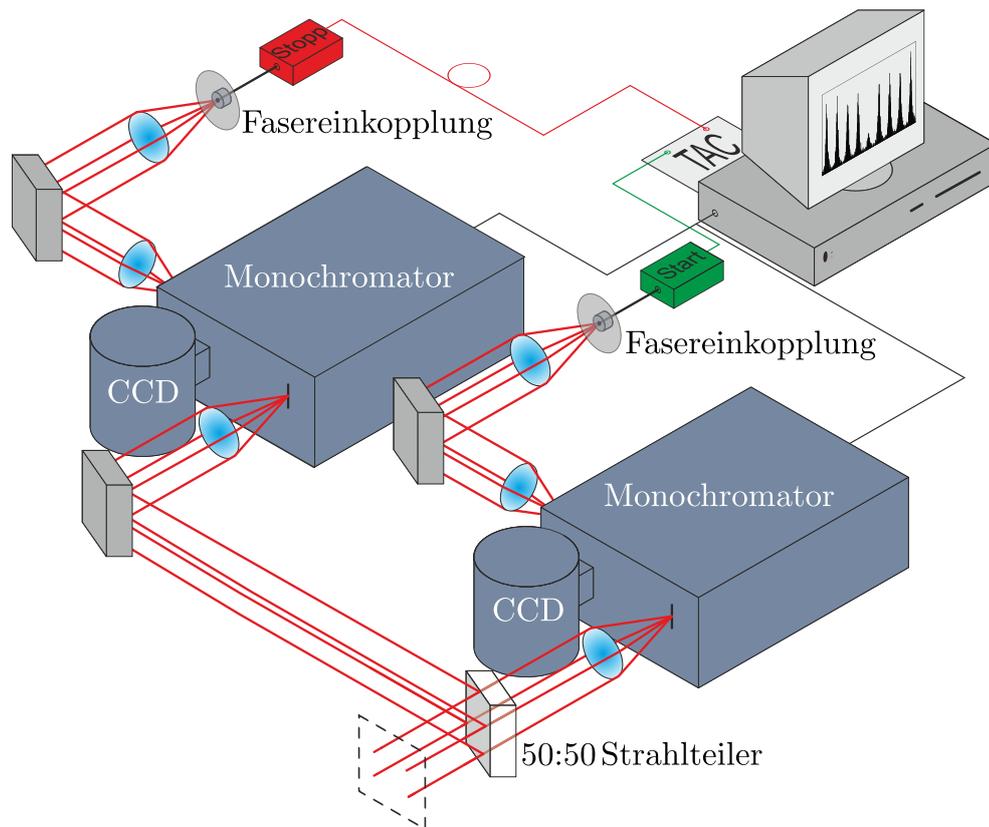


Abbildung 3.3.: Schematische Darstellung der Messanordnung zur Messung der Photonen-Kreuzkorrelationsfunktion zweiter Ordnung. Die Kombination von zwei Monochromatoren mit einem 50:50 Strahlteiler im optischen Strahlengang erlaubt die Erfassung der zeitlichen Korrelation zweier spektral separierter Emitter.

Teilstrahl wird über einen Spiegel und einer Linse auf den Eingangspalt eines zweiten baugleichen Monochromators fokussiert. In diesem kann die Emissionslinie des zweiten zu untersuchenden Emitters spektral gefiltert und mit der anderen APD detektiert werden. Wie bei der Autokorrelationsmessung gibt hier die eine APD den Start- und die andere den Stopp-Impuls zur Erfassung der zeitlichen Korrelation der beiden verschiedenen Emitter durch das TCSPC-Modul.

3.4. Zeitaufgelöste Mikrophotolumineszenzspektroskopie

Eine weitere Charakterisierungsmethode der Quantenemitter bedient sich der zeitaufgelösten μ PL-Spektroskopie. Der Aufbau dieser Messanordnung entspricht im Wesentlichen dem der Kreuzkorrelationsmessung (vgl. Abbildung 3.3), jedoch wird der 50:50 Strahlteiler

entfernt und somit lediglich ein Monochromator und eine APD zur Bestimmung der Lebensdauern der Emitter verwendet. Das Lumineszenzsignal wird von einer APD (Modell: id100-MMF50, ID QUANTIQUE) mit $t_{res} = 40$ ps detektiert, da die untersuchten Emitter Lebenszeiten deutlich unter 400 ps aufweisen können. Die hohe Zeitauflösung wird allerdings zu Ungunsten der Detektionseffizienz erzielt, welche bei 900 nm nur noch 4% beträgt. Die APD ist wie gewohnt mit einem Eingang des TCSPC-Moduls verbunden. Als Referenzpuls wird das Triggersignal eines im gepulsten Modus arbeitenden Lasers (vgl. Abschnitt 3.1) auf den anderen Eingang gegeben, der dadurch die Erfassung des statistischen Zerfalls des Teilchens ermöglicht.

4. Einfluss eines RTA-Prozesses auf die elektronischen Eigenschaften von Quantenpunkten

Die Erkenntnis über die elektronischen Eigenschaften von Quantenpunkten und die Auswirkungen auf diese durch äußere Einflüsse ist von grundlegendem Interesse in einigen Bereichen der Nanowissenschaften. Auch nach der epitaktischen Herstellung der Quantenpunkte können diese Eigenschaften durch thermische Ausheilprozesse verändert werden. Ein Beispiel dafür stellt die Oszillatorstärke als ein wichtiges Maß für die Kopplung des Exzitonübergangs an das Lichtfeld dar. Daher soll in diesem Kapitel der Einfluss eines sogenannten Rapid-Thermal-Annealing- (RTA-) Prozesses¹ auf die Eigenschaften von selbstorganisierten PCA² InAs/GaAs-QPen mit Hilfe von Magnetfeld- und zeitaufgelösten Messungen erstmalig systematisch untersucht werden. Diese Art von QPen können sehr gut reproduzierbar gewachsen werden [Wan06] und eignen sich deshalb besonders für solche systematische Untersuchungen. Durch die erhöhte Temperatur beim Ausheilprozess wird die Diffusion von Indiumatomen aus und von Galliumatomen in den QP angeregt, was zu einem effektiv größeren Quantenpunktvolumen und einer Erhöhung der Oszillatorstärke führen kann [Loo10]. Hierdurch wird eine stärkere Exziton-Photon-Kopplung erreicht, welche für Untersuchungen im Regime der starken Kopplung von großer Bedeutung ist [Rei04]. Weiterhin können durch den RTA-Prozess Einflüsse auf die Emissionseigenschaften, wie die Verringerung der Linienbreite des Quantenpunktensembles [Nis99] oder eine Einstellung der Dephasierungszeit der Exzitonen [Lan04], bewirkt werden.

Der folgende Abschnitt behandelt zunächst die Herstellung der selbstorganisierten PCA InAs/GaAs-Quantenpunktproben sowie die Vorstellung der Ausheilroutine. In Abschnitt 4.2 werden die Ergebnisse der Magnetfeldmessungen präsentiert und insbesondere auf den

¹engl. für schneller thermischer Ausheilprozess

²Akronym für „Partial Capping and Annealing“: engl. für partielles Bedecken und Ausheilen

effektiven Landé g -Faktor und den diamagnetischen Koeffizienten eingegangen. Daraufhin folgt in Abschnitt 4.3 eine Analyse der Exzitonlebensdauer anhand von zeitaufgelöster μ PL-Spektroskopie an Quantenpunktensembles. Die Auswirkung des RTA-Prozesses auf die Oszillatorstärke wird in Abschnitt 4.4 durch Abschätzungen über den diamagnetischen Koeffizienten und der Exzitonlebensdauer diskutiert. Abschließend wird eine Zusammenfassung der Ergebnisse in Abschnitt 4.5 gegeben.

4.1. Herstellungsverfahren und Ausheilroutine

Die in diesem Kapitel untersuchten QPe entstehen durch selbstorganisiertes, verpannungsinduziertes Wachstum im Stranski-Krastanow-Modus (vgl. Abschnitt 2.1.1) aufgrund der 7%igen Gitterfehlpassung von InAs und GaAs. Dabei bildet sich zunächst eine etwa 1,6 Monolagen hohe Benetzungsschicht aus [Leo94, Sek06], auf der dann die InAs/GaAs-QPe entstehen. Über Wachstumsparameter, wie die relativen Flussraten der einzelnen Halbleiterelemente und die Substrattemperatur, lassen sich Größe, Form und Flächendichte der QPe einstellen. Nach deren Wachstum werden die QPe mit einer Schicht der Dicke d bedeckt und anschließend für eine Minute in der Epitaxieanlage bei 560°C ausgeheilt. Dieser besondere Prozess wird als Partial Capping and Annealing (PCA) bezeichnet, bei dem die Interdiffusion von In- und Ga-Atomen sowie weitere Umordnungsprozesse angeregt und dadurch die QPe abgeflacht werden [Gar97, Son03, Wan06]. Die Höhe und daher auch die Emissionsenergie der QPe wird dabei maßgeblich durch die Dicke der Bedeckungsschicht beeinflusst (vgl. Abbildung 4.1). Die Wachstumsrichtung entspricht der Hauptquantisierungsrichtung, Schwankungen der Höhe wirken sich daher besonders stark auf die Emission der QPe aus. Um die Proben systematisch untersuchen zu können, wurden sie zusätzlich ex-situ durch einen Rapid-Thermal-Annealing-Prozess für fünf Minuten bei Temperaturen zwischen 750°C und 850°C ausgeheilt. Dadurch werden die Interdiffusionsprozesse abermals angetrieben, was zu einer weiteren Durchmischung der Halbleiteratome und dadurch zu größeren QPen führt. Außerdem erfährt die Quantenpunktemission durch das Absinken der Indiumkonzentration im QP eine Blauverschiebung [Faf99, Hsu00]. Zur detaillierten Analyse des Einflusses des RTA-Prozesses wurden drei Proben mit Bedeckungsschichten $d = 2\text{ nm}$, 3 nm und 4 nm hergestellt. Diese wurden jeweils nachträglich bei Temperaturen von $T = 750^\circ\text{C}$, 800°C sowie 850°C ausgeheilt und zusätzlich eine unausgeheilte Referenzprobe untersucht. Abbildung 4.1 zeigt die Rastertransmissions-Elektronenmikroskop- (STEM-) Aufnahme eines einzelnen

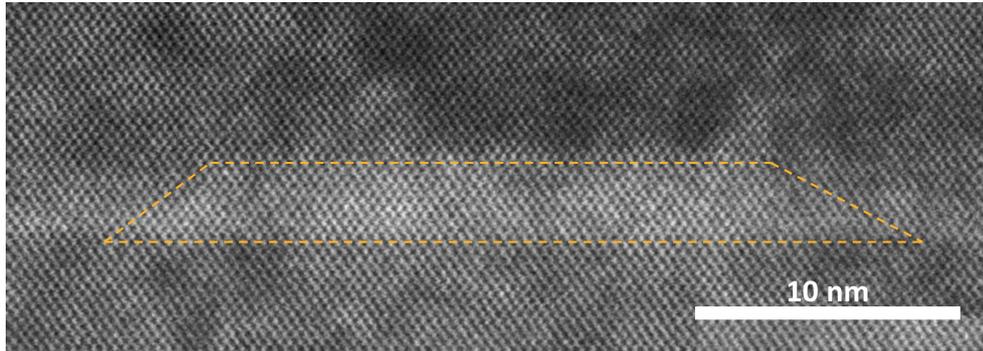


Abbildung 4.1.: Rastertransmissions-Elektronenmikroskop-Aufnahme eines einzelnen PCA InAs/GaAs-QPes der Referenzprobe mit einer Bedeckungsschicht von $d = 3$ nm. Die gestrichelte Linie deutet die Abmessungen des QPes an. Aus dem Bild lassen sich eine Breite von 25,8 nm und eine Höhe von 2,9 nm des QPes, welche damit der Dicke der Bedeckungsschicht entspricht, abschätzen.

PCA InAs/GaAs-QPes der Referenzprobe mit einer Bedeckungsschicht von $d = 3$ nm. Aus diesem Bild lassen sich eine Breite von 25,8 nm und eine Höhe des QPes von 2,9 nm abschätzen, woran zu erkennen ist, dass die Dicke der Benetzungsschicht die Quantenpunkthöhe mitbestimmt.

4.2. Magnetfeldmessungen

Die systematischen Untersuchungen der verschiedenen Proben wurden an dem Messplatz aus Abschnitt 3.1 durchgeführt. Allerdings wurde der Helium-Durchflusskryostat durch einen Magnetkryostat (Modell: Mikrostat MO, Oxford Instruments) ersetzt, in dem supraleitende Spulen ein Magnetfeld in Faraday-Geometrie (parallel zur Wachstumsrichtung der Probe) bis zu 5 Tesla erzeugen können. Durch eine Separation der Probenkammer von den Magnetfeldspulen wird eine dauerhafte Kühlung unter 6 K und damit der Erhalt des supraleitenden Zustands gewährleistet. Als Anregungsquelle diente der im rot/infraroten Bereich arbeitende Ti:Sa-Laser im CW-Modus, welcher auf eine Wellenlänge von 780 nm eingestellt wurde. Das Lumineszenzsignal wurde mit dem 50-fach Mikroskopobjektiv mit einer NA von 0,42 aufgesammelt und im Monochromator durch das Gitter mit 1200 Strichen/mm spektral zerlegt. Um die Zeemanaufspaltung zu messen, muss der zirkulare Anteil der Quantenpunktemission extrahiert werden. Dazu wurde ein $\lambda/4$ -Plättchen und dahinter ein fest auf 90° ³ eingestellter Linearpolarisator in den Strahlengang gebracht. Je nach

³Es wurden 90° gewählt, da auf dieser Achse der Monochromator eine höhere Effizienz aufweist.

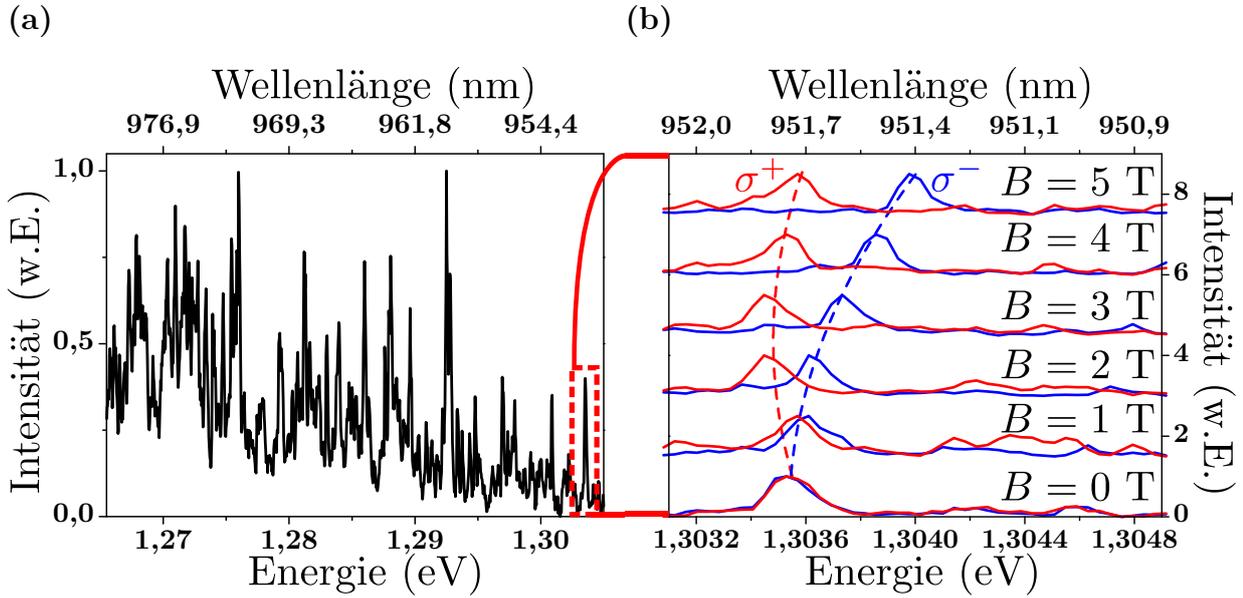


Abbildung 4.2.: (a) Übersichtsspektrum der untersuchten QPe der Referenzprobe mit Bedeckungsschicht $d = 3$ nm. (b) Exemplarischer Verlauf der normierten Intensitäten für die extrahierten rechts- (σ^+) bzw. linkszirkularen (σ^-) Anteile des gekennzeichneten QPes aus (a) bei verschiedenen magnetischen Flussdichten als Wasserfalldiagramm. Die mit dem Magnetfeld linear steigende Zeemanaufspaltung und die quadratisch zunehmende diamagnetische Verschiebung sind deutlich zu erkennen (vgl. Gleichung 2.11).

Stellung des $\lambda/4$ -Plättchen gegenüber der Polarisatorachse kann so der σ^+ - ($+45^\circ$) oder der σ^- -Anteil (-45°) detektiert werden (vgl. Abschnitt 2.1.3). Die Emissionsspektren wurden jeweils in $\pm 45^\circ$ -Stellung für Magnetfelder von 0 – 5 T in 0,5 T-Schritten aufgenommen. Abbildung 4.2 zeigt ein Übersichtsspektrum mehrerer QPe der Referenzprobe mit Bedeckungsschicht $d = 3$ nm bei 0 T (a) und für einen bestimmten, aus diesem Spektrum ausgewählten, QP jeweils den gemessenen σ^+ - und σ^- -Anteil für verschiedene magnetische Flussdichten (b). Das Übersichtsspektrum wurde dabei im hochenergetischen Ausläufer der Lumineszenz des Quantenpunktensembles aufgenommen, um einzelne Emissionslinien detektieren und auswerten zu können. Abbildung 4.2b demonstriert exemplarisch den Verlauf der Intensitäten für die extrahierten σ^\pm -Anteile der Quantenpunktemission bei verschiedenen Flussdichten in einem Wasserfalldiagramm, wobei alle Spektren zur besseren Darstellung auf das jeweilige Maximum normiert wurden. Die Feinstrukturaufspaltung (Spektren bei $B = 0$) des hier untersuchten QPes liegt unter der spektralen Auflösungsgrenze (etwa $35 \mu\text{eV}$) des verwendeten Messplatzes und kann daher nicht aufgelöst

werden. In der Abbildung sind beide nach Gleichung 2.11 erwarteten Einflüsse durch das externe Magnetfeld deutlich zu sehen. Zum einen ist eine mit dem Magnetfeld linear steigende Aufspaltung - die Zeemanaufspaltung - zwischen dem σ^+ - und σ^- -Anteil und zum anderen eine quadratisch zunehmende Blauverschiebung der Emissionsenergien - die diamagnetische Verschiebung - beobachtbar. Bei kleinen magnetischen Flussdichten ist der Einfluss des Zeemaneffekts stärker als die diamagnetische Verschiebung, weshalb der σ^+ -Anteil zunächst zu niedrigeren Energien schiebt. In den folgenden zwei Unterkapiteln sollen nun beide magnetfeldabhängigen Prozesse quantitativ für alle Proben untersucht und damit die effektiven Landé g-Faktoren und die diamagnetischen Koeffizienten bestimmt werden, wodurch Rückschlüsse auf die Auswirkung des RTA-Verfahrens gezogen werden können.

4.2.1. Zeemanaufspaltung und effektiver Landé g-Faktor

Zuerst wird auf die Ermittlung der Zeemanaufspaltung, welche aus der Wechselwirkung der Spins mit dem externen Magnetfeld herrührt, eingegangen und daraus die effektiven g-Faktoren berechnet. Dazu wird der energetische Abstand ($\Delta E = E(\sigma^+) - E(\sigma^-)$) zwischen dem rechts- und linkszirkularen Anteil durch die Anpassung eines Lorentzprofils an die Emissionslinie von jeweils bis zu neun verschiedenen QPens jeder Probe ermittelt und gegen die magnetische Flussdichte B aufgetragen. In den Abbildungen 4.3a bis 4.3c ist der daraus berechnete Mittelwert gegen B für alle Proben dargestellt. Für kleine Magnetfelder weisen die Zeemanaufspaltung und die Feinstrukturaufspaltung die gleiche Größenordnung auf (vgl. Abbildung 2.6), weshalb man in diesem Bereich weder von linearer noch von zirkularer Polarisation sprechen kann. Erst bei Messungen ab 1,5 T kann von zirkularer Emission der QPens ausgegangen werden [Bay02b]. Daher wurden die Messwerte unterhalb für die Auswertung nicht berücksichtigt. Nach Gleichung 2.11 lässt sich der effektive Landé g-Faktor g_X durch eine lineare Anpassung durch den Ursprung an die entsprechenden Daten extrahieren. Für jede Bedeckungsschichtdicke ist mit einer höheren Ausheiltemperatur ein Absinken der Zeemanaufspaltung und daher auch des absoluten g-Faktors $|g_X|$ beobachtbar.⁴ Zum Beispiel fällt der g-Faktor der QPens der Probe mit $d = 2$ nm von $|g_X| = 1,71 \pm 0,24$ bei der Referenzprobe auf $|g_X| = 0,86 \pm 0,17$ bei einer Temperatur von 800° C. Die Ursache dieses Abfalls liegt in der Ausdehnung des QPens [Bay95, Kot01], welche er während des RTA-Prozesses durch die Durchmischung von Ga und In erfährt [Son03, Wan06]. Weiterhin verändern sich die Materialzusammensetzung

⁴Wird im Folgenden von g-Faktoren gesprochen, ist immer der absolute Wert gemeint.

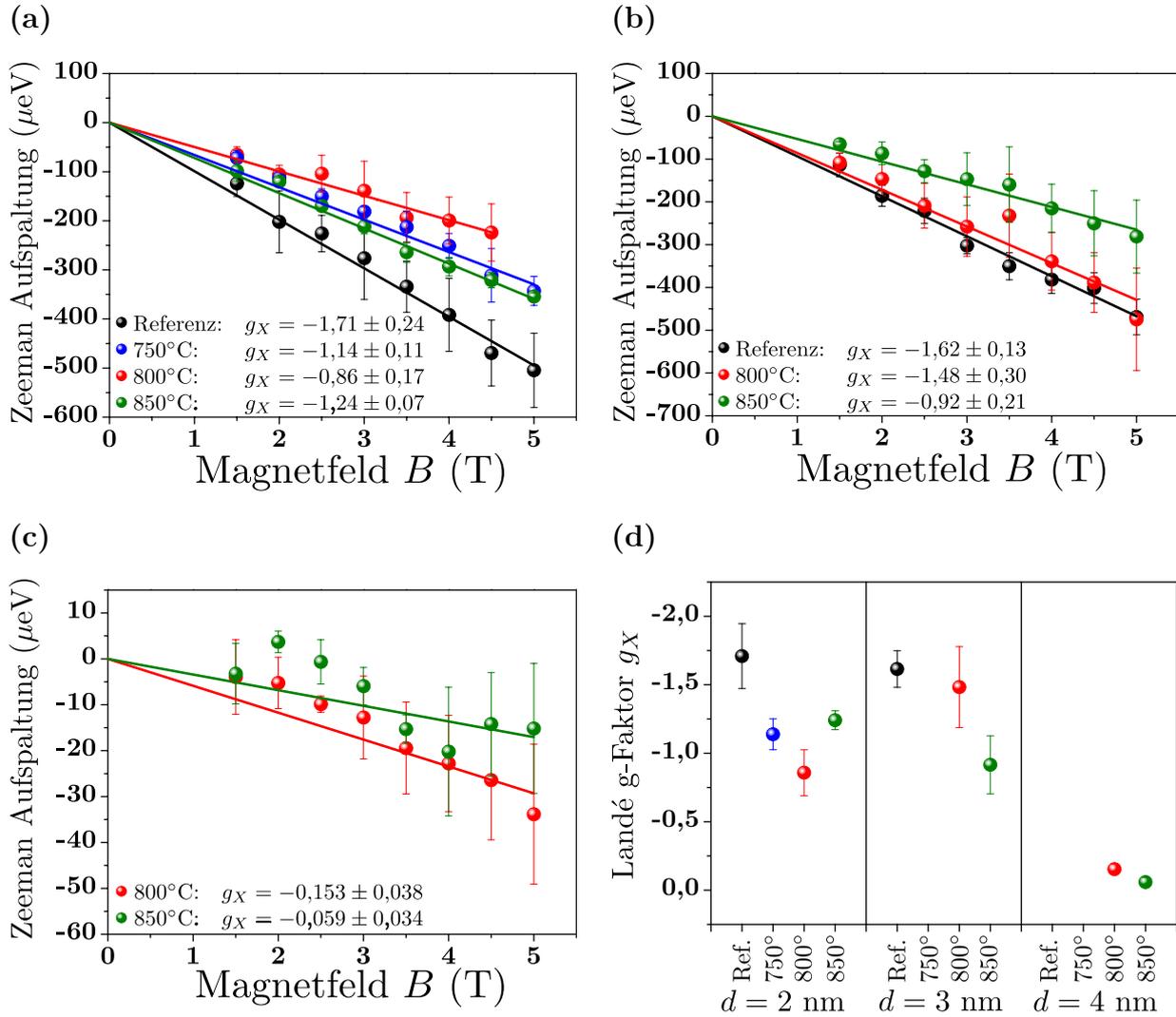


Abbildung 4.3.: Zeemanaufspaltung gegen das Magnetfeld aufgetragen für Bedeckungsschichten d von 2 nm (a), 3 nm (b) und 4 nm (c) sowie eine Übersicht der daraus berechneten Landé- g_X -Faktoren für alle drei Bedeckungsschichtdicken in Abhängigkeit der ex-situ Ausheiltemperatur (d). Die Abnahme von $|g_X|$ für steigende Ausheiltemperaturen lässt auf eine zunehmende laterale Ausdehnung der Quantenpunkte sowie eine Verringerung des Indiumgehalts in den Quantenpunkten schließen.

und die Verspannungen innerhalb des QPes stark durch den Ausheilprozess. Beide Einflüsse führen auch zu einem Absinken des resultierenden g-Faktors [Nak05]. Nicht nur die Ausheiltemperatur, sondern auch die Dicke der Bedeckungsschicht verursacht einen Abfall

des g-Faktors. Beispielsweise fällt $|g_X|$ von $1,00 \pm 0,13$ bei einer Dicke von 2 nm drastisch auf $0,127 \pm 0,058$ für $d = 4$ nm ab, wobei beide bei Temperaturen von 800°C ausgeheilt wurden. Dieses Verhalten lässt die Schlussfolgerung zu, dass eine dickere Bedeckungsschicht zu einer stärkeren Interdiffusion der Atome und einer steigenden Ausdehnung der QPe für ex-situ Ausheilprozesse führt. Abbildung 4.3d stellt alle ermittelten effektiven g-Faktoren zum Vergleich dar. Der höchste g-Faktor $|g_X|^{max} = 1,71 \pm 0,24$ wurde an der Referenzprobe mit $d = 2$ nm gemessen und der niedrigste $|g_X|^{min} = 0,059 \pm 0,034$ an der Probe mit einer Bedeckungsschicht von 4 nm, welche bei 850°C ausgeheilt wurde. Dies bekräftigt alle zuvor getroffenen Aussagen. Für die Referenz- und die 750°C -Probe mit $d = 4$ nm konnten keine Messungen durchgeführt werden, da für beide die QPe weit entfernt von $1\ \mu\text{m}$ im infraroten Spektralbereich emittierten und daher nicht durch die verwendete Si-CCD Kamera detektiert werden konnten.

4.2.2. Diamagnetische Verschiebung

Nachdem im vorherigen Unterabschnitt die Zeemanaufspaltung der nachträglich ausgeheilten InAs/GaAs-QPe diskutiert wurde, wird hier auf die diamagnetische Verschiebung χ eingegangen.

Das äußere magnetische Feld erzeugt in den QPen ein zusätzliches magnetisches Moment, welches mit den Ladungsträgern wechselwirkt und eine energetische Blauverschiebung verursacht (vgl. Abschnitt 2.1.3). Aus dieser Verschiebung lässt sich dann der diamagnetische Koeffizient χ bestimmen, indem die diamagnetische Verschiebung gegen das Quadrat des Magnetfeldes aufgetragen wird. Die Steigung einer linearen Anpassung entspricht genau dem diamagnetischen Koeffizienten (vgl. Gleichung 2.11). Die diamagnetische Verschiebung kann direkt aus der Messung der Zeemanaufspaltung durch Bildung des Mittelwertes aus den Emissionsenergien der σ^+ - und σ^- -polarisierten Anteile ermittelt werden. Die Ergebnisse sind in den Abbildungen 4.4 dargestellt, wobei Abbildung 4.4d diese zusammenfasst. Auch hier ist ein deutlicher Einfluss der ex-situ Ausheiltemperatur beobachtbar, welcher eine Steigerung der diamagnetischen Koeffizienten zur Folge hat. So nimmt χ beispielsweise für eine Bedeckungsschicht von 2 nm durch den Ausheilprozess um einen Faktor 3,2 zu. Eine etwas geringere Steigerung um 2,3 ist für $d = 3$ nm erkennbar. Da der diamagnetische Koeffizient proportional zur mittleren lateralen Ausdehnung der Exzitonwellenfunktion ist, lässt sich daraus schließen, dass sich die Exzitonwellenfunktion mit höheren Ausheiltemperaturen ausdehnt (vgl. Gleichung 4.1 in Abschnitt 4.4). Aus der Ausdehnung der Wellenfunktion lässt sich wiederum die Oszillatorstärke f berechnen,

womit auch ein Anstieg dieser mit höheren ex-situ Ausheiltemperaturen zu erwarten ist. Eine Abschätzung der Oszillatorstärke erfolgt in Abschnitt 4.4.

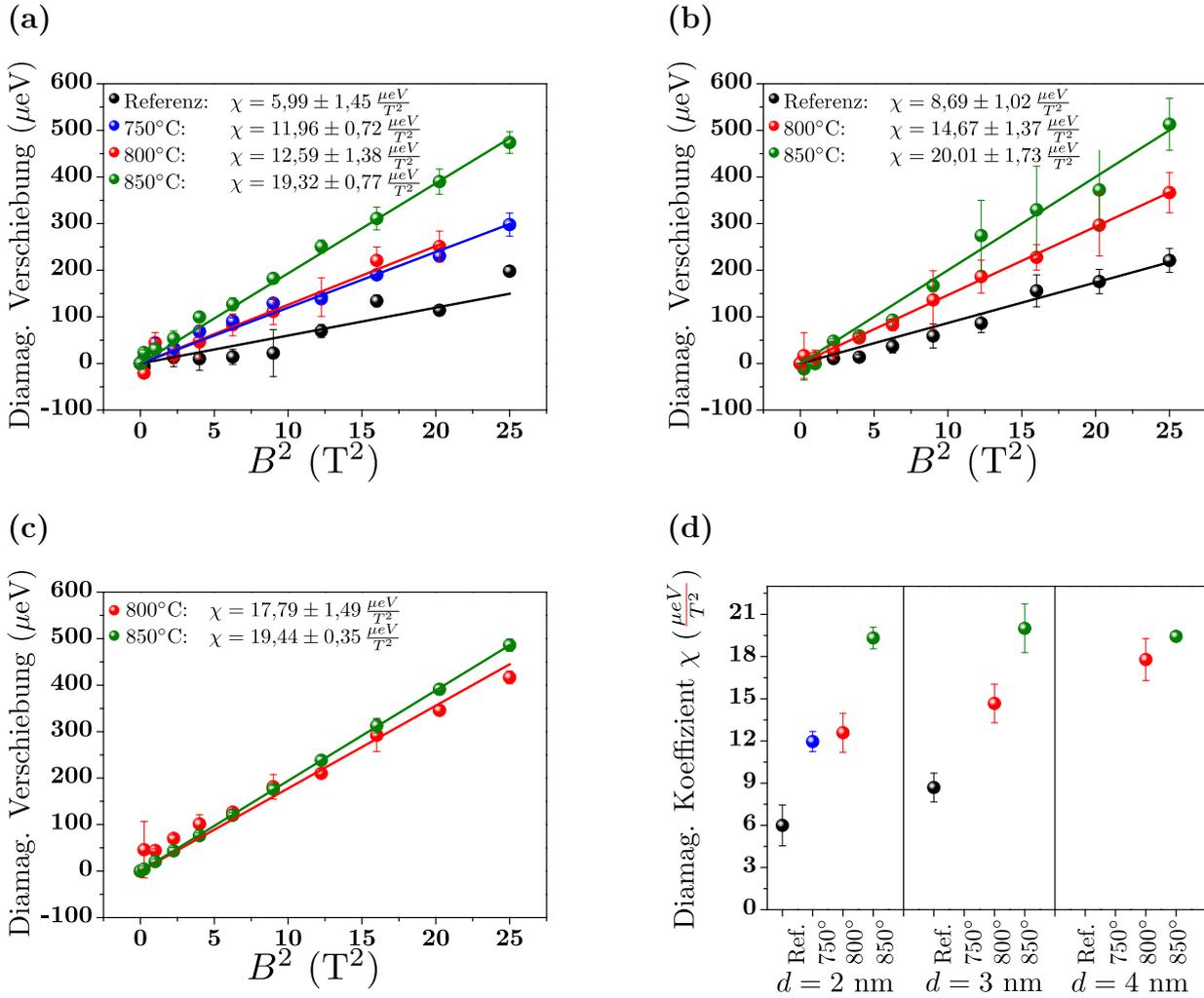


Abbildung 4.4.: Diamagnetische Verschiebung gegen das Quadrat des Magnetfelds aufgetragen für Bedeckungsschichten d von 2 nm (a), 3 nm (b) und 4 nm (c) sowie eine Übersicht der daraus berechneten diamagnetischen Koeffizienten χ für alle drei Bedeckungsschichtdicken in Abhängigkeit der ex-situ Ausheiltemperatur (d). Es ist jeweils eine Zunahme von χ für steigende Temperaturen zu erkennen, welche unter anderem auf eine Verringerung des Indiumgehalts zurückgeführt werden kann. Des Weiteren lässt sich durch den Anstieg von χ auf eine Ausdehnung der Exzitonwellenfunktion mit zunehmenden Ausheiltemperaturen schließen.

4.3. Lebensdauermessungen

Eine weitere Möglichkeit die Oszillatorstärke der QPe zu ermitteln, bietet nach Gleichung 2.31 eine Messung der Zerfallsrate Γ bzw. der Lebensdauer $\tau = 1/\Gamma$. Die Messungen werden dabei aber nicht an einzelnen Emissionslinien, sondern am Quantenpunktensemble durchgeführt. Dadurch werden in einem Spektralbereich von etwa $0,22 \text{ nm}^5$ alle Emissionslinien detektiert und somit eine über diesen Bereich gemittelte Lebensdauer bestimmt. Für diese Untersuchungen wird der Messaufbau aus Abschnitt 3.4 verwendet. Das Lumineszenzsignal des Ensembles wird anstatt auf die Si-CCD über einen Spiegel auf den Ausgangsspalt des Monochromators gelenkt, spektral gefiltert und mit der APD mit einer Zeitauflösung von $t_{res} = 40 \text{ ps}$ detektiert. Der Ti:Sa-Laser wird auf Pikosekundenbetrieb umgestellt und dient als Referenzsignalgeber für die Zeitmessung. Die Leistung des Laser betrug für jede Messung wenige μW .

Abbildung 4.5a zeigt exemplarisch die Emission des Quantenpunktensembles der Referenzprobe mit einer Bedeckungsschichtdicke von 2 nm . Im Gegensatz zur Emission einzelner QPe ergibt sich bei Ensemblesmessungen aufgrund der Vielzahl der gleichzeitig angeregten QPe ein stark verbreitertes, gaußförmiges Signal. Nun wurden Lebensdauermessungen des Ensembles durchgeführt, wobei die vom Monochromator ausgegebene Wellenlänge schrittweise über den Emissionsbereich verfahren wurde. Die einzelnen Ergebnisse für die Referenzprobe mit $d = 2 \text{ nm}$ sind ebenfalls in Abbildung 4.5a dargestellt.⁶ Abbildung 4.5b zeigt die Lebensdauer in Abhängigkeit der Ausheiltemperatur und der Bedeckungsschichtdicke aller Proben für den Energiebereich, in dem die diamagnetischen Koeffizienten ermittelt wurden. Es ist deutlich zu erkennen, dass mit der Erhöhung der Ausheiltemperatur ein Abfall der Lebensdauer einhergeht. Damit ist auch ein Anstieg der Oszillatorstärke verbunden, da diese antiproportional zu den Lebenszeiten ist. Diese Ergebnisse liegen im Einklang mit den vorangestellten Untersuchungen aus Abschnitt 4.2.2. Eine quantitative Analyse soll im folgenden Abschnitt durch die Abschätzung der Oszillatorstärke sowohl aus den Lebenszeiten als auch über den diamagnetischen Koeffizienten gegeben werden.

⁵Die Breite des Spektralbereichs kann über den Ausgangsspalt am Monochromator variiert werden. Hier wurde eine Spaltbreite von $250 \mu\text{m}$ verwendet.

⁶Eine detaillierte Beschreibung der Auswertung der Lebensdauer wird in Abschnitt 6.4 gegeben.

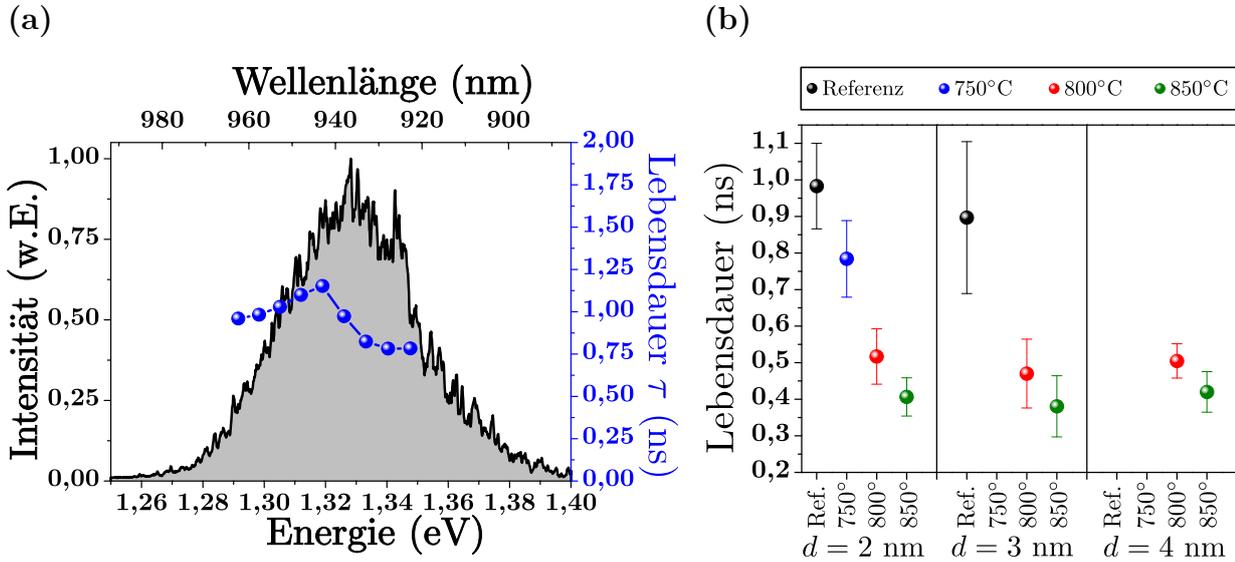


Abbildung 4.5.: (a) Exemplarisches Emissionsspektrum des Quantenpunktensembles der Referenzprobe mit einer Bedeckungsschichtdicke von $d = 2$ nm. Zusätzlich sind die gemessenen Lebensdauern für unterschiedliche Wellenlängen abgebildet. (b) Übersicht der bestimmten Lebensdauern des Quantenpunktensembles in Abhängigkeit von d und der Ausheiltemperatur für den Energiebereich, in dem die diamagnetischen Koeffizienten bestimmt wurden. Eine Erhöhung der Temperatur führt zu einem Absinken der Zerfallszeiten und damit zu größeren Oszillatorstärken.

4.4. Oszillatorstärke

Nachdem in den vorherigen Abschnitten qualitativ der Einfluss eines ex-situ RTA-Prozesses auf die Oszillatorstärke diskutiert wurde, soll diese im Folgenden quantitativ ermittelt werden. Nach Gleichung 2.32 lässt sich die Oszillatorstärke bei bekannter Ausdehnung der Schwerpunktswellenfunktion des Exzitons L berechnen. Bei den hier verwendeten QPen kann diese durch die laterale Wellenfunktion von Elektron und Loch mit $L \approx 2\sqrt{\langle \rho_{e,h}^2 \rangle}$ genähert werden [Rei09]. Dabei wurde zur Vereinfachung angenommen, dass die Ausdehnung der Wellenfunktionen von Elektron ρ_e^2 und Loch ρ_h^2 identisch sind $\rho_e^2 = \rho_h^2$. Danach lässt sich Gleichung 2.12 für den diamagnetischen Koeffizienten wie folgt umformen:

$$\chi = \frac{e^2}{8} \left(\frac{\langle \rho_e^2 \rangle}{m_{e,eff}} + \frac{\langle \rho_h^2 \rangle}{m_{h,eff}} \right) \Rightarrow \langle \rho_{e,h}^2 \rangle = \frac{8 m_{e,eff} m_{h,eff}}{e^2 (m_{e,eff} + m_{h,eff})} \cdot \chi. \quad (4.1)$$

An dieser Stelle sei noch erwähnt, dass L nicht zu der physikalischen Ausdehnung des QPes äquivalent ist, welche in Abbildung 4.1 zu sehen ist. Die im Folgenden ermittelten

Werte für die Ausdehnung der Schwerpunktswellenfunktion (vgl. Tabelle 4.1) weichen deutlich von den Daten der physikalischen Abmessungen aus der STEM-Messung ab (siehe Abbildung 4.1). Des Weiteren kann die Oszillatorstärke über Gleichung 2.31 direkt durch die gemessenen Zerfallszeiten bestimmt werden. Für die Berechnungen der Oszillatorstärke ist der Indiumgehalt in den QPen wichtig. Dieser wurde für die Referenzproben mit Hilfe von Simulationen mit dem Programm „nextnano“⁷ wie folgt bestimmt: Der Indiumgehalt wurde soweit angepasst, dass die simulierte Emissionsenergie des Quantenpunktensembles den experimentellen Daten entspricht. Die dafür nötigen geometrischen Parameter wurden aus der STEM-Analyse gewonnen. Diese Untersuchung zeigt, dass die eigentliche Höhe für den in Abbildung 4.1 gezeigten QP von 2,9 nm in etwa der nominellen Dicke der Bedeckungsschicht von 3 nm entspricht. Daher wurden bei den Simulationen der QPe für Schichtdicken von 2 nm und 4 nm die nominellen Werte als Ausgangspunkt für die Quantenpunkthöhe genommen. Bei allen Simulationen wurde eine Quantenpunktbreite von 25,8 nm als Startwert verwendet, da diese sich während des Bedeckungsprozesses nicht verändern sollte. In einem zweiten Schritt wurden in Kooperation mit A. Schliwa von der TU Berlin Simulationen auf Basis des Fick’schen Gesetzes zur Erfassung der Interdiffusion von In- und Ga-Atomen und der damit verbundenen Abnahme des Indiumgehalts in den QPen während der RTA-Prozesse durchgeführt. Details dazu befinden sich in Anhang B. Mit den daraus gewonnenen Indiumkonzentrationen können alle für die Berechnung der Oszillatorstärke nötigen Parameter bestimmt werden, welche für $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ aus der Literatur genommen wurden [Col95, Vur01]: Effektive Elektronenmasse $m_e^* = (0,0667 - 0,0419 \cdot x - 0,00254 \cdot x^2) \cdot m_e$, effektive Lochmasse $m_h^* = 0,41 \cdot m_e$, relative Permittivität $\epsilon_r = 13,18 + 1,42 \cdot x$, Kane-Energie $E_P = 28,8 - 7,3 \cdot x$ und Brechzahl $n = 3,55$. Hier ist x der relative Indiumgehalt. Die Oszillatorstärke kann dann für jede Probe mit den Gleichungen 2.31 und 2.32 unter Berücksichtigung von 4.1 für die beiden Verfahren ermittelt werden. Die Ergebnisse sind in der Tabelle 4.1 aufgelistet sowie in Abbildung 4.6 dargestellt.

Annähernd alle Werte der Oszillatorstärke, welche sowohl über den diamagnetischen Koeffizienten als auch über die Lebensdauer bestimmt wurden, stimmen innerhalb der Fehlergrenzen überein. Die höchste Oszillatorstärke $f_\chi = 34,7 \pm 5,2$ konnte für eine Schichtdicke von $d = 3$ nm und einer Ausheiltemperatur von 850° C über den diamagnetischen Koeffizienten ermittelt werden. Im Falle der Bestimmung über die Lebensdauer ergibt sich ein maximaler Wert von $f_\tau = 25,7 \pm 5,7$ für die selbe Probe. Für unausgeheilte

⁷Die Simulationen wurden von Herrn N. Lundt durchgeführt

InAs/GaAs-Quantenpunktproben berichten Warburton et. al von Oszillatorstärken um $f = 10$ [War97], was gut mit den hier untersuchten Referenzproben übereinstimmt. Ein weiterer Vergleich mit Literaturwerten von QPen unterschiedlicher Materialkomposition ist hier nicht weiter sinnvoll, da in der Literatur lediglich die nominelle und nicht die tatsächliche Materialzusammensetzung angegeben wird. Weiterhin kann ein Anstieg der Ausdehnung der Schwerpunktswellenfunktion von $L_{Ref} = 6,8 \pm 0,8$ nm der Referenzprobe mit einer Bedeckungsschicht $d = 2$ nm auf $L_{850^\circ} = 13,5 \pm 0,6$ nm der Probe mit $d = 3$ nm, welche bei einer Temperatur von 850° C ausgehilt wurde, festgestellt werden. Insgesamt betrachtet wurde gezeigt, dass die Ausdehnung die Schwerpunktswellenfunktion um etwa 70 % ansteigt und die Oszillatorstärke durch einen ex-situ RTA-Prozess mehr als verdoppelt wird.

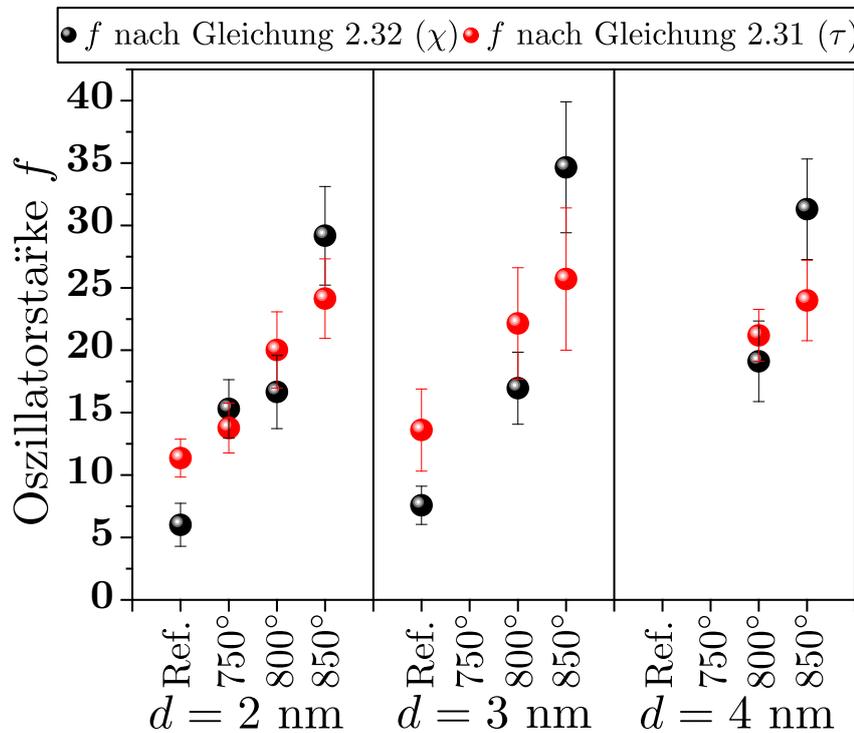


Abbildung 4.6.: Übersicht der nach Gleichung 2.32 über den diamagnetischen Koeffizienten (schwarz) und der nach Gleichung 2.31 über die Lebensdauer (rot) ermittelten Oszillatorstärken. Beide Methoden liefern ähnliche Ergebnisse innerhalb der Fehlergrenzen und ein deutlicher Anstieg für zunehmende Ausheiltemperaturen ist erkennbar. Die jeweils maximale Oszillatorstärke von $f_\chi = 34,7 \pm 5,2$ bzw. $f_\tau = 25,7 \pm 5,7$ kann für die Probe mit einer Bedeckungsschicht von $d = 3$ nm bei einer Ausheiltemperatur von 850° C bestimmt werden. Die entspricht mehr als einer Verdopplung im Vergleich zu den Referenzproben.

d	RTA-Temperatur	Indiumgehalt	$ g_x $	$\chi \left(\frac{\mu eV}{T^2} \right)$	$L \approx 2\sqrt{\langle \rho_{e,h}^2 \rangle}$ (nm)	f (aus χ)	τ (ns)	f (aus τ)
2 nm	Referenz	$45,0 \pm 5,0$	$1,71 \pm 0,24$	$5,99 \pm 1,45$	$6,80 \pm 0,84$	$6,0 \pm 1,7$	$0,98 \pm 0,12$	$11,4 \pm 1,5$
	750° C	$36,0 \pm 5,0$	$1,14 \pm 0,11$	$11,96 \pm 0,72$	$9,96 \pm 0,35$	$15,3 \pm 2,3$	$0,78 \pm 0,10$	$13,8 \pm 2,0$
	800° C	$34,0 \pm 5,0$	$0,86 \pm 0,17$	$12,59 \pm 1,38$	$10,29 \pm 0,60$	$16,7 \pm 2,9$	$0,52 \pm 0,08$	$20,0 \pm 3,1$
	850° C	$28,0 \pm 5,0$	$1,24 \pm 0,07$	$19,32 \pm 0,77$	$13,03 \pm 0,35$	$29,2 \pm 4,0$	$0,41 \pm 0,05$	$24,1 \pm 3,2$
3 nm	Referenz	$51,0 \pm 5,0$	$1,62 \pm 0,13$	$8,69 \pm 1,02$	$7,98 \pm 0,50$	$7,6 \pm 1,5$	$0,90 \pm 0,21$	$13,6 \pm 3,3$
	800° C	$39,0 \pm 5,0$	$1,48 \pm 0,30$	$14,67 \pm 1,37$	$10,91 \pm 0,55$	$17,0 \pm 2,9$	$0,47 \pm 0,09$	$22,1 \pm 4,5$
	850° C	$22,5 \pm 5,0$	$0,92 \pm 0,21$	$20,01 \pm 1,73$	$13,51 \pm 0,63$	$34,7 \pm 5,2$	$0,38 \pm 0,08$	$25,7 \pm 5,7$
4 nm	800° C	$42,0 \pm 5,0$	$0,153 \pm 0,038$	$17,79 \pm 1,49$	$11,87 \pm 0,55$	$19,1 \pm 3,2$	$0,50 \pm 0,05$	$21,2 \pm 2,1$
	850° C	$26,0 \pm 5,0$	$0,059 \pm 0,034$	$19,44 \pm 0,35$	$13,16 \pm 0,25$	$31,3 \pm 4,0$	$0,42 \pm 0,06$	$24,0 \pm 3,2$

Tabelle 4.1.: Übersicht über die gemessenen Werte des absoluten effektiven Landé g-Faktors $|g_x|$, des diamagnetischen Koeffizienten χ und der Lebensdauer τ sowie der daraus berechneten Oszillatorstärke f . Insgesamt ist für alle Bedeckungsschichtdicken d ein Anstieg der Oszillatorstärke für steigende RTA-Temperaturen beobachtbar. Dabei konnte die Oszillatorstärke durch ex-situ RTA-Prozesse für hohe Ausheiltemperaturen mehr als verdoppelt werden.

4.5. Zusammenfassung des Kapitels

Dieses Kapitel beschäftigte sich mit den Auswirkungen eines Rapid-Thermal-Annealing-Prozesses auf die magnetischen Eigenschaften und die Oszillatorstärke von selbstorganisierten InAs/GaAs-Quantenpunkten. Dabei lieferten zwei unterschiedliche Analysemethoden vergleichbare Ergebnisse und es konnte ein deutlicher Anstieg der Oszillatorstärke verzeichnet werden.

Nachdem kurz auf das Herstellungsverfahren von selbstorganisierten InAs/GaAs-QPEn und die Routine der Ausheilprozesse eingegangen wurde, fanden μ PL-Messungen in externen Magnetfeldern von bis zu 5 T statt. Es wurden insgesamt neun Proben untersucht, welche unterschiedliche Bedeckungsschichtdicken aufwiesen und bei Temperaturen zwischen 750° bis 850° C für fünf Minuten ausgeheilt wurden, wodurch unterschiedlich starke Interdiffusionen der In- und Ga-Atome zu erwarten waren. Die Auswertung der gewonnenen Daten ermöglichte die Bestimmung der effektiven Landé g-Faktoren und der diamagnetischen Koeffizienten der untersuchten QPe. Dabei musste zur Ermittlung der g-Faktoren die Zeemanaufspaltung erfasst werden. Insgesamt nehmen die ermittelten absoluten g-Faktoren mit steigender Ausheiltemperatur drastisch ab. Die Ursache liegt hierbei in der Ausdehnung der QPe [Bay95, Kot01], welche durch die Durchmischung von Ga und In hervorgerufen wird [Son03, Wan06]. Diese Veränderung der Materialzusammensetzung und eine dadurch bedingte Veränderung der Verspannungen im QP führen außerdem zum Absinken des g-Faktors [Nak05]. Weiterhin hat eine dickere Bedeckungsschicht Einfluss auf die Interdiffusion der Atome und führt damit zu einer weiteren Abnahme der g-Faktoren. Auch für die diamagnetischen Koeffizienten konnte ein deutlicher Einfluss des RTA-Verfahrens festgestellt werden. Diese nahmen deutlich mit Erhöhung der Temperatur zu, was auf eine Ausdehnung der Exzitonwellenfunktion schließen lässt. Weiterhin wurden zeitaufgelöste Messungen zur Bestimmung der Lebensdauern am Quantenpunktensemble durchgeführt. Eine höhere Ausheiltemperatur sorgte dabei für eine deutliche Abnahme der Zerfallszeiten. Zu guter Letzt wurde die Oszillatorstärke sowohl aus den Ergebnissen der diamagnetischen Koeffizienten als auch aus denen der Lebensdauern bestimmt. Beide Methoden lieferten vergleichbare Werte innerhalb der Fehlergrenzen. Alle Referenzproben zeigten Oszillatorstärken, die mit denen von unausgeheilten Proben ($f \approx 10$) der Gruppe Warburton et al. vergleichbar waren [War97]. Die Probe mit einer Bedeckungsschichtdicke von $d = 3$ nm, welche bei einer Temperatur von 850° C ausgeheilt wurde, zeigte für beide Bestimmungsmethoden die höchste Oszillatorstärke. Über den diamagnetischen Koeffizienten ergab sich $f_{\chi} = 34,7 \pm 5,2$ und im Falle der Lebensdauern $f_{\tau} = 25,7 \pm 5,7$.

Dies entspricht mehr als einer Verdopplung der Werte der Referenzproben. Außerdem konnte eine Zunahme der Ausdehnung der Wellenfunktion der Exzitonen um etwa 70% festgestellt werden. Abschließend betrachtet, kann mittels eines ex-situ RTA-Verfahrens die Oszillatorstärke von InAs/GaAs-QPen nachträglich deutlich gesteigert werden, welche sie deutlich interessanter für Untersuchungen im Regime starker Kopplung macht.

5. Temperaturabhängigkeit der Emissionseigenschaften positionierter InAs/GaAs Quantenpunkte

Im vorherigen Kapitel wurden selbstorganisierte InAs/GaAs-Quantenpunkte untersucht, welche wachstumsbedingt eine relativ hohe Dichte aufweisen und willkürlich auf dem Substrat verteilt sind. Dies führt bei Experimenten und der Realisierung von Bauteilen oft zu einer störenden Hintergrundemission und daher auch zur einer Reduzierung der spektralen Reinheit. Idealerweise sollte sich in einer Resonatorstruktur lediglich ein einzelner Quantenpunkt und dieser sich zusätzlich am Ort des maximalen elektrischen Feldes der Resonatormode befinden. Das Problem der unkorrelierten Hintergrundstrahlung wäre beseitigt und es könnte zudem die Wechselwirkung zwischen Licht und Materie maximiert werden. Aus diesem Grund wurden Verfahren entwickelt, die eine exakte Positionierung über eine große Anzahl von QPen ermöglichen [Sch07b, Sch08]. Allerdings zeigten erste Berichte, dass diese Technik zur Verbreiterung der Emissionslinien durch spektrale Diffusion [Sch08, Atk06] und zur Reduzierung der internen Quanteneffizienz durch nicht-strahlende Rekombinationsprozesse führt [Alb10]. Eine sorgfältige Optimierung des Wachstumsprozesses erlaubte schließlich positionierte QPe zu wachsen, die an die optischen Eigenschaften der selbstorganisierten heranreichen [Sch12, SS11, Hug11, Kir06] und Bauteile wie eine Einzelphotonenquelle [Sch09b] oder sogar Emission ununterscheidbarer Photonen ermöglichten [Jön13].

In diesem Kapitel wird ausführlich auf die Analyse der Ursache der spektralen Verbreiterung eingegangen. Zunächst wird in Abschnitt 5.1 kurz das Herstellungsverfahren solcher positionierter QPe erläutert und anschließend in Kapitel 5.2 der Einfluss der Temperatur auf die Emissionseigenschaften diskutiert. Das Kapitel schließt mit einer kurzen Zusammenfassung.

5.1. Herstellungsverfahren positionierter InAs/GaAs-Quantenpunkte

Das Verfahren zur Herstellung von positionierten InAs/GaAs-QPen basiert auf einer Kombination von Molekularstrahlepitaxie und Lithographie. Der schematische Aufbau der Probe ist in Abbildung 5.1a dargestellt. Eine detaillierte Prozessbeschreibung befindet sich in [Sch12], weshalb hier nur auf die wesentlichen Schritte eingegangen wird.

Wie bei selbstorganisierten QPen wird zunächst eine Pufferschicht auf das GaAs-Substrat aufgebracht. Danach wird aber nicht direkt mit dem Quantenpunktwachstum begonnen, sondern ein Elektronenstrahllack auf die Oberfläche aufgebracht, in den mittels Elektronenstrahllithographie Kreise mit 30 – 40 nm Durchmesser angeordnet in einem quadratischen Gitter belichtet werden. Ein anschließender Entwicklungsschritt entfernt den Lack an den belichteten Stellen. Nun wird das Muster entweder durch nasschemisches Ätzen mit einer Lösung aus Wasserstoffperoxid (H_2O_2) und Schwefelsäure (H_2SO_4) oder durch Elektronen-Zyklotron-Resonanz reaktives Ionenätzen (ECR-RIE¹) mittels eines Cl_2/Ar -Plasmas bis zu einer Tiefe von 15 – 20 nm in das Halbleitermaterial übertragen. Nach einer chemischen Reinigung zur Beseitigung von Lackresten wird die Probe erneut in die MBE eingebaut. Dort wird zunächst die Oxidschicht an der Oberfläche durch eine Behandlung mit atomarem Wasserstoff entfernt und anschließend eine 8 nm dicke GaAs-Schicht aufgewachsen. Darauf wird ein je nach Lochperiode nominell 0,75 – 1,5 nm dicker InAs Film aufgetragen, der als sogenannter Seeding Layer² bezeichnet wird und in Kombination mit den Nanolöchern ein Verspannungsfeld aufbaut. Es folgt eine etwa 10 nm dicke Abstandsschicht aus GaAs und AlGaAs, um die noch zu wachsenden QPe von der rauen Oberfläche der Nanolöcher und damit von Defektzuständen zu trennen. Erst jetzt beginnt das eigentliche Quantenpunktwachstum, indem etwa 1,5 – 2 nm InAs abgeschieden wird. Das Verspannungsfeld sorgt hierbei für eine gezielte Nukleation an den gewünschten, vordefinierten Stellen. Abschließend werden die QPe durch eine 100 nm dicke GaAs-Schicht versiegelt. Abbildung 5.1b zeigt eine Rasterkraftmikroskop- (AFM³-) Aufnahme einer unüberwachsenen Schicht von positionierten QPen mit einer Lochperiode von 2 μm . Es ist deutlich die periodische Ausrichtung der QPe zu erkennen.

¹Akronym für „Electron Cyclotron Resonance Reactive Ion Etching“

²engl. für Keimschicht

³Akronym für „Atomic Force Microscope“

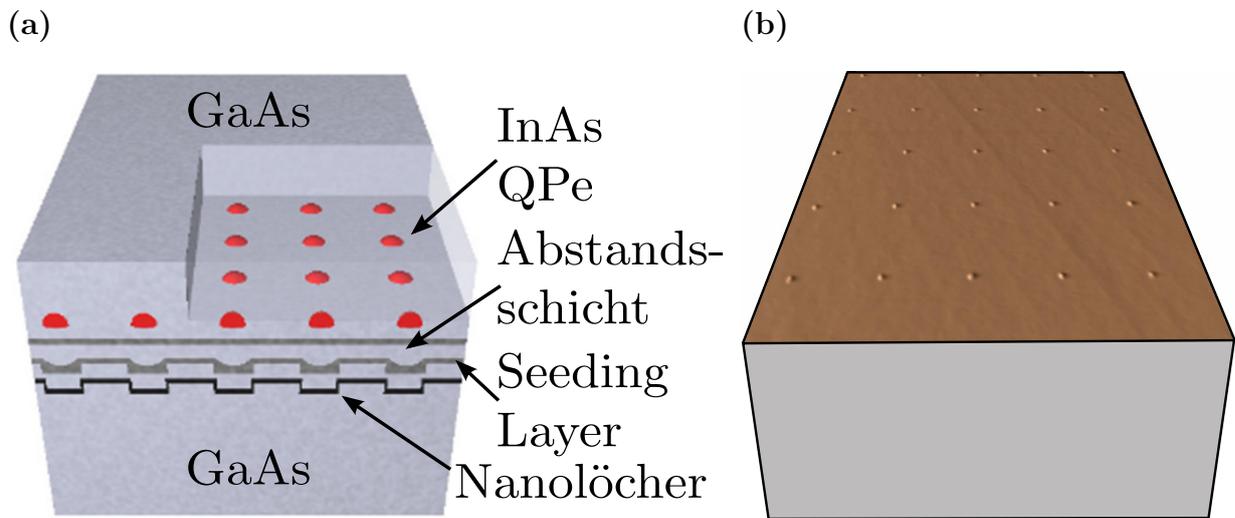


Abbildung 5.1.: (a) Schematische Darstellung des Herstellungsverfahrens der positionierten InAs/GaAs-QPe. Durch die Definition von Nanolöchern und das Aufbringen des sogenannten Seeding Layers entsteht ein Spannungsfeld, wodurch die QPe bevorzugt an diesen Positionen wachsen. Die Abstandsschicht separiert die QPe von möglichen Defektzuständen. Weitere Details können dem Text entnommen werden. (b) Rasterkraftmikroskop-Aufnahme einer unüberwachsenen Schicht positionierter InAs/GaAs-QPe. Die periodische Ausrichtung ist deutlich zu erkennen.

5.2. Einfluss der Temperatur auf die optischen Eigenschaften der Quantenpunkte

Um die QPe spektroskopisch zu untersuchen wurde der Messaufbau aus Abschnitt 3.1 mit dem grünen Nd-YAG-Laser bei einer Wellenlänge von 532 nm verwendet. Das Lumineszenzsignal wurde mit dem 50-fach Mikroskopobjektiv aufgesammelt und im Monochromator durch das Gitter mit 1200 Strichen/mm spektral zerlegt. Abbildung 5.2 zeigt zwei Photolumineszenzsignale von zwei verschiedenen Positionen auf der Probe mit einer Lochperiode von $2\ \mu\text{m}$ unter einer schwachen Anregungsleistung von 230 nW (a) sowie 95 nW (b) und bei einer Temperatur von 15 K. Die jeweils dominanten Linien, welche voraussichtlich der Exzitonemission zuzuordnen sind, sind mit QP A und QP B gekennzeichnet und sollen in diesem Kapitel präzise auf ihr Temperaturverhalten analysiert werden. Die anderen Lumineszenzsignale werden von geladenen bzw. Biexziton-Komplexen oder auch von benachbarten positionierten QPen beigetragen, welche simultan angeregt

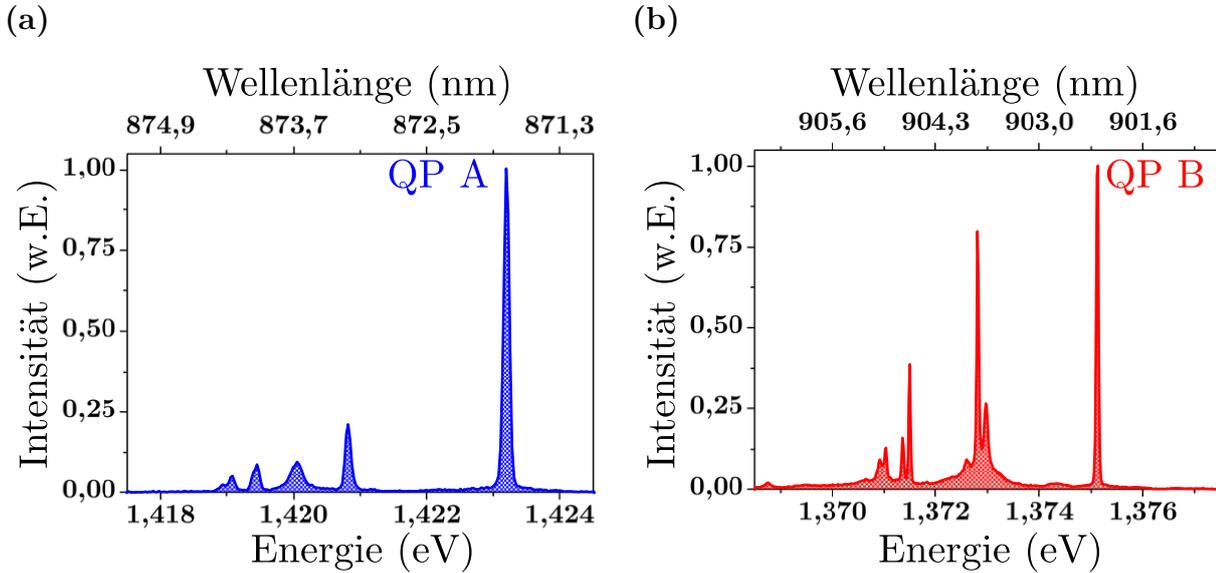


Abbildung 5.2.: Hochaufgelöste μ PL-Spektren der positionierten QPe A (a) und B (b) unter einer schwachen Anregungsleistung von 230 nW bzw. 95 nW und bei einer Temperatur von 15 K. Die geringe Liniendichte weist in beiden Fällen auf die gute Qualität der Probe hin.

werden.⁴ Beide Bilder weisen nur eine geringe Anzahl von Emissionslinien, also eine geringe Quantenpunktdichte, auf und spiegeln damit die gute Qualität der Probe wider. Die geringe Flächendichte von lediglich $2,5 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2}$ bei $2 \mu\text{m}$ Periodizität liegt etwa zwei bis drei Größenordnungen unter der von selbstorganisierten QPe ($\approx 10^9 - 10^{10} \text{ cm}^{-2}$) [CR10, Bom11] und zeichnet die positionierten QPe aus. Voruntersuchungen in [Sch12] mittels örtlich hochauflösender Kathodolumineszenz-Spektroskopie (vgl. Abschnitt 6.1) zeigen, dass die Emission von QPen auf Zwischenplätzen ausgeschlossen werden kann. QP A emittiert bei einer Energie von $E_{QDA} = 1,4232 \text{ eV}$ und besitzt eine Linienbreite von $\gamma_{QDA} = 98,8 \pm 0,9 \mu\text{eV}$, QP B dagegen bei $E_{QDB} = 1,3751 \text{ eV}$ mit $\gamma_{QDB} = 48,3 \pm 0,8 \mu\text{eV}$. Die geringe Linienbreite von QP B liegt in dem Bereich, der für hochwertige QPe von Huggenberger et al. zu minimal $43 \mu\text{eV}$ bestimmt wurde [Hug11], und bestätigt die gute Qualität der QPe.

Die Temperatur wird nun sukzessiv in Schritten von 1 K erhöht und jeweils ein Spektrum aufgenommen. Die Bandlücke der Halbleitermaterialien wird bei steigender Temperatur kleiner [Var67], was zu einer Verschiebung der Emission in Richtung von längeren

⁴Bei exakter Zentrierung über einem QP und bei einem Laserfokus mit etwa $4 \mu\text{m}$ können fünf QPe angeregt werden.

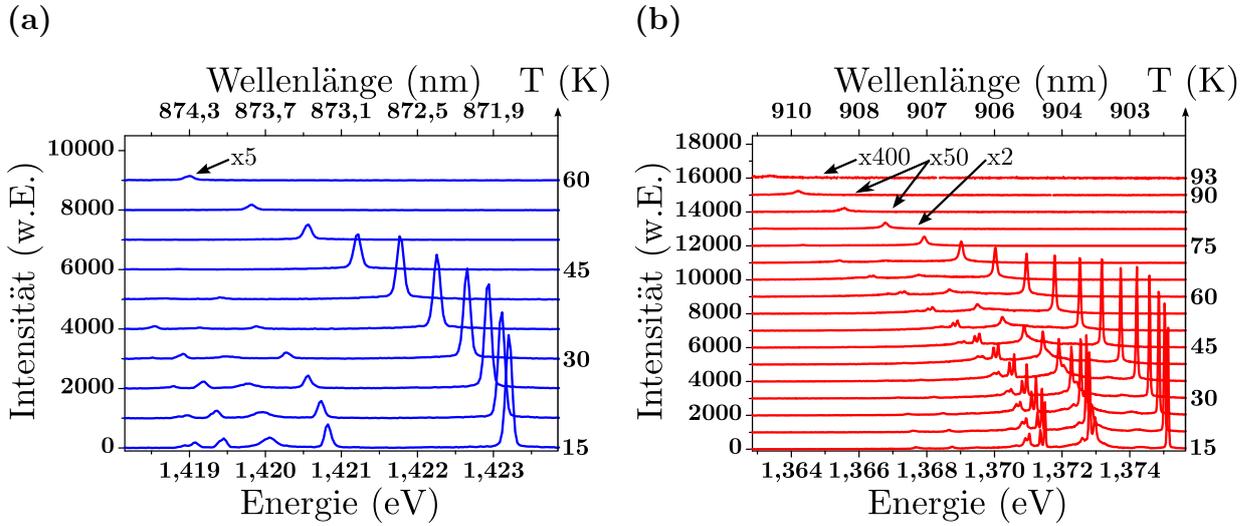


Abbildung 5.3.: Temperaturserie der QPe A (a) und B (b) aus Abbildung 5.2 als Wasserfalldiagramm dargestellt. Beide schieben aufgrund der Temperaturabhängigkeit der Bandlücke zu kleineren Energien. Während die Exzitonemission für QP A schon bei Temperaturen um 60 K zusammenbricht, emittiert QP B bis Temperaturen über 90 K. Aus Gründen der Übersicht sind die Spektren nur in 5 K-Schritten abgebildet.

Wellenlängen führt. Dieses Verhalten ist in den Wasserfalldiagrammen 5.3 für beide QPe abgebildet. Zur besseren Darstellung sind die Spektren für höhere Temperaturen entsprechend vergrößert worden. Der Grund für den starken Abfall der Intensität für höhere Temperaturen liegt in der relativ schwachen Lokalisierungsenergie⁵ der Exzitonen und der dadurch bedingten frühen thermischen Aktivierung der Ladungsträger begründet. Dabei stellt man fest, dass diese für QP A deutlich schneller als für QP B absinkt. Um dieses Verhalten genauer untersuchen zu können, wird die integrierte Intensität, welche man durch die Anpassung eines Lorentzprofils an die jeweilige Emissionslinie erhält, gegen $1/T$ in einer halblogarithmischen Darstellung aufgetragen. Abbildung 5.4 zeigt die Graphen für beide QPe. Bei der Betrachtung eines einfachen Ratenmodells [Bim71] kann der Verlauf der integrierten Intensität $I(T)$ in guter Übereinstimmung durch folgendes Modell beschrieben werden:

$$I(T) = \frac{I_0}{1 + C_1 \cdot e^{-\frac{E_1}{k_B T}} + C_2 \cdot e^{-\frac{E_2}{k_B T}}} . \quad (5.1)$$

⁵Bei einer Exzitonenergie von $E_{QDA} = 1,4232$ eV liegt die Bandlücke des umgebenden GaAs Materials $E_{GaAs} = 1,52$ eV bei $T = 15$ K [Vur01] lediglich 100 meV über dem Exzitonenzustand (s.a. weiter unten im Absatz)

Die erhaltenen Messdaten können über den gesamten Temperaturbereich nur bei der Berücksichtigung von zwei verschiedenen Verlustkanälen mit Aktivierungsenergien E_1 und E_2 akkurat reproduziert werden. Dabei ist I_0 die extrapolierte integrierte Intensität bei $T = 0\text{ K}$ und C_1 sowie C_2 geben den Anteil der beiden Verlustkanäle an. Die aus der Anpassung an die experimentellen Daten erhaltenen Parameter sind in der jeweiligen Grafik abgebildet. Die kleinere Aktivierungsenergie in Gleichung 5.1 verursacht den anfänglichen Abfall der Intensität und korreliert mit der Aktivierung eines Elektrons im Grundzustand in die umgebende Barriere oder in delokalisierte Zustände in der Benetzungsschicht. Die ermittelten Werte für beide QPe sind $E_{1A} = 30,7 \pm 1,1\text{ meV}$ für QP A und $E_{1B} = 17,4 \pm 1,2\text{ meV}$ für QP B. Der Wert für QP A stimmt mit berechneten Werten von $\approx 30\text{ meV}$ überein, die für einen InGaAs-QP mit einem Indiumgehalt von 50 % sowie einer Höhe von $\approx 2\text{ nm}$ und einer Ausdehnung von $\approx 25\text{ nm}$ bestimmt wurden.⁶ Die Abweichung von diesem Wert für QP B kann über die Asymmetrie zwischen verschiedenen QPen erklärt werden, die eine starke Verschiebung der Energielevel durch den quantisierten Einschluss bewirkt. Der zweite Term in Gleichung 5.1 beschreibt das Verhalten für den Bereich höherer Temperaturen. Hier ergibt sich für die Aktivierungsenergien $E_{2A} = 102,2 \pm 0,4\text{ meV}$ für QP A und $E_{2B} = 163,2 \pm 1,3\text{ meV}$ für QP B, welche in etwa den Lokalisierungsenergie⁷ der Exzitonen in dem jeweiligen QP entsprechen. Diese belaufen sich auf 100 meV für QP A und 144 meV für QP B.

Die Temperatur hat nicht nur auf die Intensität, sondern auch auf die Linienform der Einzelquantenpunktmission einen Effekt, und wurde schon von Bayer et al. [Bay02a] für qualitativ hochwertige, selbstorganisierte QPe diskutiert. Um nun das Verbreitungsverhalten der positionierten InAs/GaAs-QPe zu bestimmen, wird der Einfluss der Temperatur und der Laserleistung auf die Linienbreite der QP-Emission untersucht. Die Linienbreite kann wie bereits die integrierte Intensität über die Anpassung eines Lorentzprofils an die Emissionslinien ermittelt werden. Die beiden Graphen 5.5a und 5.5b bilden die Temperaturabhängigkeit der Linienbreite γ für QP A bzw. QP B ab. Der Anstieg von γ mit der Temperatur lässt sich unter Berücksichtigung von akustischer und optischer Phononenstreuung mit folgendem Modell beschreiben [Bay02a]:

$$\gamma(T) = \gamma_0 + \gamma_{ac}T + \frac{\gamma_{op}}{e^{\frac{E_{LO}}{k_B T}} - 1}, \quad (5.2)$$

⁶Diese Berechnungen wurden mit Hilfe des Programms nextnano++ von Herrn Dr. C. Schneider durchgeführt.

⁷Differenz zwischen Exzitonemissionsenergie und GaAs Bandkante

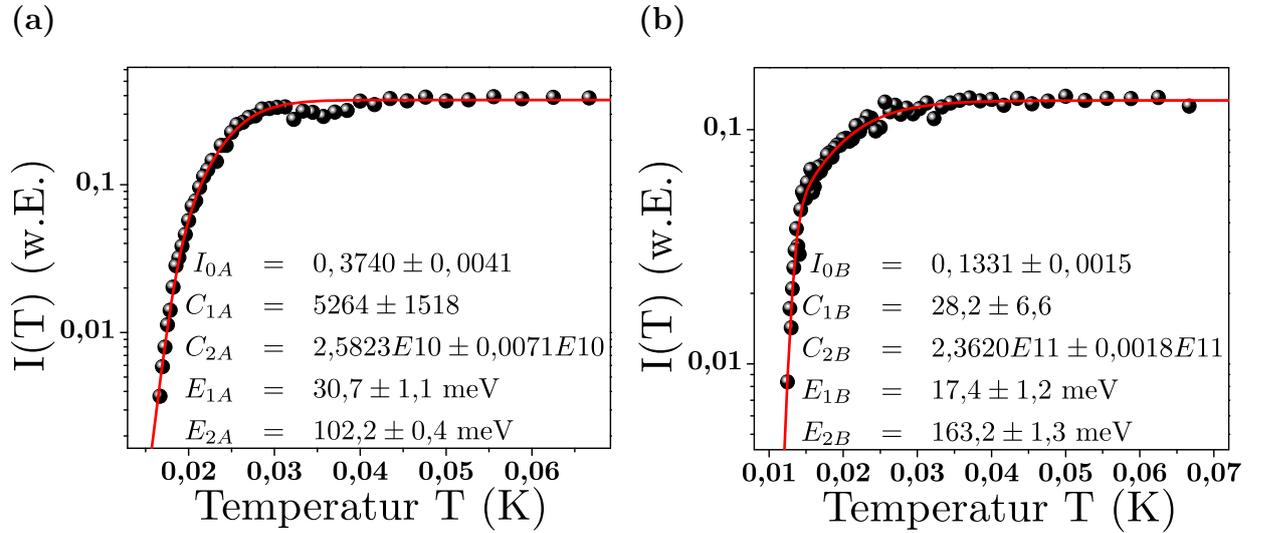


Abbildung 5.4.: (a) Integrierte Intensität $I(T)$ aufgetragen gegen $1/T$ in halblogarithmischer Darstellung für QP A und QP B (b). Die rote Linie stellt die Anpassung nach dem Modell 5.1 dar und gibt den experimentellen Verlauf in guter Übereinstimmung wieder. Die daraus erhaltenen Parameter sind in der jeweiligen Abbildung gezeigt.

wobei γ_0 die Linienbreite bei $T = 0$ ist und der zweite sowie dritte Term der akustischen bzw. optischen Phononenstreuung Rechnung tragen. E_{LO} stellt die Aktivierungsenergie der longitudinalen optischen Phononen dar. Wie in Abbildung 5.5 zu sehen, kann mit Gleichung 5.2 der experimentelle Verlauf akkurat wiedergegeben werden. Im Niedertemperaturbereich dominiert der lineare Term und die Anpassung liefert $\gamma_{acA} = 0,261 \pm 0,032 \mu\text{eV}$ und $\gamma_{acB} = 0,173 \pm 0,033 \mu\text{eV}$. Diese Werte sind in Übereinstimmung mit denen, die für selbstorganisierte InAs/GaAs-QPe ermittelt wurden [Kam02a]. Für Temperaturen über 50 K überwiegt der Einfluss der optischen Phononen, was zu einer merklichen Verbreiterung der Exzitonlinien führt. Die extrahierten Werte für die Aktivierungsenergie der optischen Phononen $E_{LOA} = 30,9 \pm 4,8 \text{ meV}$ für QP A und $E_{LOB} = 32,2 \pm 0,8 \text{ meV}$ für QP B stimmen innerhalb der Fehlergrenzen und mit denen aus Berichten für selbstorganisierte InAs/GaAs-QPe überein [Hei97], was die Annahme der phononischen Wechselwirkung als Ursache dieses Verbreiterungseffektes unterstützt. Die extrapolierten Werte der Linienbreite bei $T = 0$ liegen mit $\gamma_{0A} = 94,63 \pm 0,76 \mu\text{eV}$ und $\gamma_{0B} = 45,61 \pm 0,83 \mu\text{eV}$ deutlich oberhalb der homogenen Linienbreite selbstorganisierter QPe von wenigen μeV [Bor01, Bir01]. Der Grund hierfür sind zum einen Defektzustände, welche durch die Ätzmethode bei der Herstellung der QPe entstehen, und zum anderen die nicht-resonante Anregungsmethode

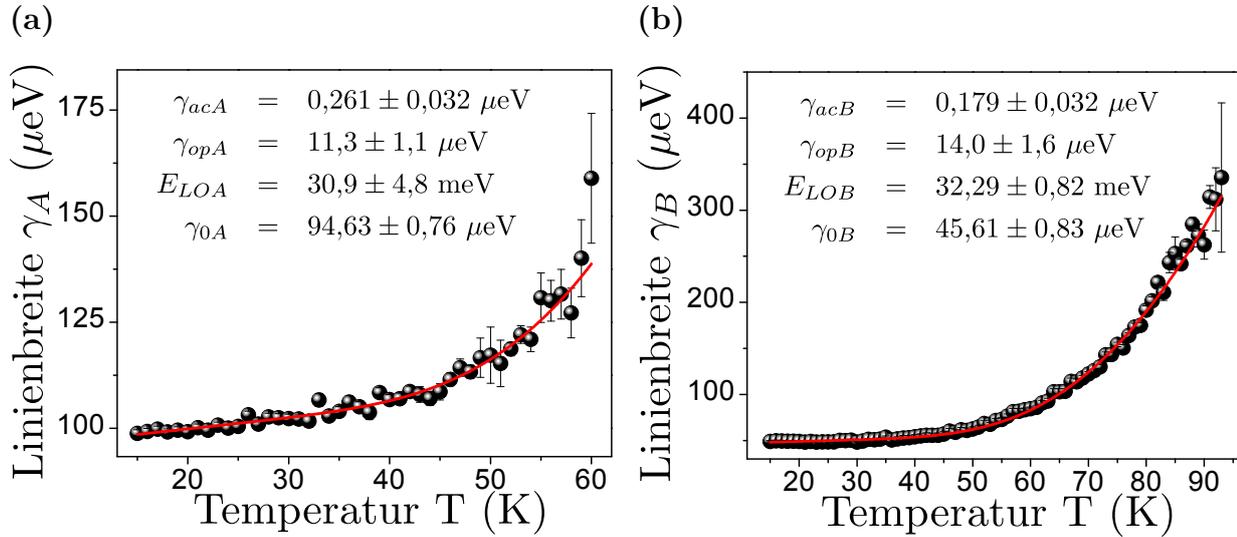


Abbildung 5.5.: Linienbreite γ_A für QP A (a) und γ_B für QP B (b) in Abhängigkeit der Temperatur T . Die experimentellen Daten wurden mit Gleichung 5.2 angepasst (rote Linie) und die entsprechend ermittelten Parameter sind in der jeweiligen Abbildung dargestellt.

der Ladungsträger, die zu einer elektrostatischen Fluktuation in der Umgebung führt und die Linienbreite negativ beeinflusst [Kam02b].

Um den Einfluss der Defektzustände näher zu betrachten, wird außerdem der Einfluss der Anregungsleistung auf die Linienbreite untersucht. Für beide QPe wird ein fundamental verschiedenes Verhalten der Breite der Emissionslinien beobachtet. QP B, welcher nach den bisherigen Experimenten eine optisch höherwertige Qualität aufweist, folgt dabei dem erwarteten Verlauf, der durch Ladungsträger in der Umgebung des QPes bestimmt wird [Bak12] und in Abbildung 5.6b gezeigt ist. Wie schon für die extrapolierte Linienbreite bei $T = 0$ bauen Ladungsträger in der Nähe ein zufälliges und sich zeitlich (im Bereich weniger ns [Tho16]) änderndes elektrisches Feld auf, welches eine Verschiebung der Exzitonlinie, also einen effektiven Anstieg der Linienbreite innerhalb der Integrationszeiten, bewirkt.⁸ Eine höhere Leistung hat mehr Ladungsträger und demnach eine zunehmende Breite der Emissionslinie zur Folge. Solche Verbreiterungsphänomene wurden auch für hochqualitative positionierte [Hug11] und selbstorganisierte QPe [Bak12, Ber06] kürzlich berichtet. Somit müssen nahegelegene Defektzustände die beobachteten Verbreiterungseffekte nicht

⁸Typischerweise werden Integrationszeiten zur Messung des QP-Spektrums von 1s gewählt. Würde das Signal mit einer deutlich höheren Zeitaufösung untersucht werden, könnten diese Effekte ausgeblendet werden.

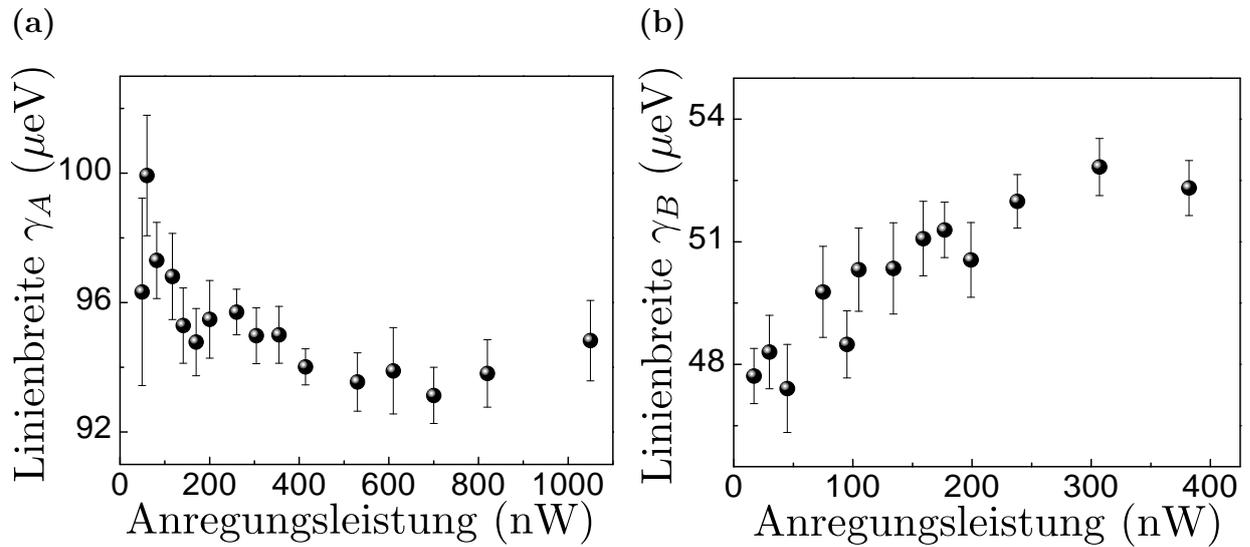


Abbildung 5.6.: Linienbreite in Abhängigkeit von der Anregungsleistung für QP A (a) und QP B (b). Während für QP B die Linienbreite, wie erwartet [Bak12], zunimmt, fällt diese für QP A. Die Ursache hierfür liegt in den Defektzuständen, die aufgrund der Herstellungsmethode der positionierten QPe entstehen.

verursachen, können jedoch einen Teil dazu beitragen. Im extremen Gegensatz sinkt die Linienbreite von QP A mit steigender Anregungsleistung, wie in Abbildung 5.6a zu sehen ist. Diese Besonderheit ist womöglich genau dem Einfluss der Nanolöcher zu schulden. Ein großes durch den Laser hervorgerufenen Ladungsträgerreservoir kann die Exzitonen im QP von den Ladungen, welche in den Defektzuständen lokalisiert sind, elektrostatisch abschirmen. Der Einfluss von geladenen Defekten würde also gemindert und eine Reduzierung der Linienbreite erwartet werden.

5.3. Zusammenfassung des Kapitels

Dieses Kapitel befasste sich mit der sorgfältigen, spektroskopischen Analyse des Einflusses der Temperatur und der Anregungsleistung auf die Emissionseigenschaften der Exzitonen in positionierten Quantenpunkten. Die Aufnahmen der Spektren zweier verschiedener Quantenpunkte für Temperaturen bis 93 K ließen dabei Einblicke in die zugrundeliegende Verbreiterungsmechanismen der spektralen Linienbreite zu.

Zunächst wurde der Einfluss der Temperatur auf die Intensität der Emissionslinien diskutiert. Dazu wurde die Temperatur sukzessiv in Schritten von 1 K erhöht und die

aus der Anpassung der Linien mit einem Lorentzprofil erhaltenen integrierten Intensitäten gegen $1/T$ in halblogarithmischer Darstellung aufgetragen. Dabei konnten zwei Prozesse als Ursache des Intensitätsabfalls identifiziert werden. Zum einem sorgt bei niedriger Temperatur die Aktivierung der Elektronen im Grundzustand in die umgebende Barriere oder in delokalisierte Zustände in der Benetzungsschicht für die anfängliche Abnahme. Den deutlich stärkeren Einfluss hat jedoch das Aufbrechen der exzitonischen Bindung und die thermische Aktivierung der Ladungsträger in das umgebende Substratmaterial. Die ermittelten Aktivierungsenergien $E_{2A} = 102,2 \pm 0,4 \text{ meV}$ für QP A und $E_{2B} = 163,2 \pm 1,3 \text{ meV}$ für QP B entsprechen in etwa den Lokalisierungsenergien der Exzitonen in dem jeweiligen QP von 100 meV bzw. 144 meV . Bei weiteren Untersuchungen konnte der Einfluss der akustischen und optischen Phononenstreuung als dominanter Mechanismus der Emissionslinienverbreiterung identifiziert werden. Im Bereich hoher Temperaturen beherrscht die Wechselwirkung mit longitudinalen optischen Phononen den Verlauf und es konnten Phononenenergien von $E_{LOA} = 30,9 \pm 4,8 \text{ meV}$ für QP A und $E_{LOB} = 32,2 \pm 0,8 \text{ meV}$ für QP B bestimmt werden. Diese Werte stimmen mit denen von selbstorganisierten InAs/GaAs-QPen gut überein [Hei97]. Zu guter Letzt wurde durch Messungen bei verschiedenen Anregungsleistungen festgestellt, dass spektrale Diffusion, welche sensitiv auf die Laserleistung reagiert, die inhärente Grenze für die Linienbreite bei niedrigen Temperaturen setzt. Die minimalen Linienbreiten unter den vorherrschenden Bedingungen ergaben sich durch Extrapolation auf $T = 0$ zu $\gamma_{0A} = 94,63 \pm 0,76 \text{ } \mu\text{eV}$ und $\gamma_{0B} = 45,61 \pm 0,83 \text{ } \mu\text{eV}$.

6. Optische Spektroskopie an positionierten InP/GaInP Quantenpunkten

Die wegweisende Demonstration der Einzelphotonenemission [Mic00] und die Einbettung der Halbleiterquantenpunkte in maßgeschneiderte Mikro-/Nanoresonatoren zur Untersuchung der Kopplungseffekte zwischen Licht und Materie [Rei04, Cla10] lösten umfangreiche Forschungsaktivitäten aus, die sich dem Charakter der nicht-klassischen Emission solcher Nanoelemente widmeten. So wurde im Folgenden sowohl die Erhöhung der spontanen Emissionsrate eines einzelnen Quantenpunktes innerhalb einer Mikrokavität für optisch [Pel02, Mor02] und elektrisch gepumpte Einzelphotonenquellen [Hei10a] als auch die Eigenschaft der einzelnen Photonen, ununterscheidbar zu sein, nachgewiesen [San02, Gol14]. Weiterhin konnten Quellen polarisationsverschränkter Photonen [Ako06, Dou10] entwickelt und weiterführend sogar die Teleportation einzelner Quanten-Bits demonstriert werden [Nil13]. Die meisten dieser Bauteile beruhen auf zufällig selbstorganisierten Quantenpunkten. Wie aber im vorherigen Kapitel schon erwähnt, sollte sich lediglich ein Quantenpunkt genau im Zentrum des Resonators befinden, um das volle Potential dieser Bauteile ausschöpfen zu können.

Weiterhin sollte die Emissionswellenlänge der Quantenpunkte in den Bereich höchster Sensitivität kommerzieller Einzelphotonendetektoren fallen. Dies ist für InAs/GaAs-Quantenpunkte, die Infrarotes Licht aussenden, offensichtlich nicht der Fall. Dagegen emittieren auf GaAs-Substrat gewachsene InP/GaInP-Quantenpunkte einzelne Photonen auf Abruf im sichtbaren roten Bereich, in dem Einzelphotonendetektoren auf Siliziumbasis die höchste Quanteneffizienz aufweisen [Zwi03]. Daher stellen positionierte InP/GaInP-Quantenpunkte von hoher optischer Güte ein vielversprechendes System dar, was vor Kurzem in ersten aussichtsvollen Experimenten von Baumann et al. [Bau12a, Bau12b] bereits demonstriert wurde.

Bis dato wurden hauptsächlich die Emissionseigenschaften selbstorganisierter InP/GaInP-Quantenpunkte studiert. Reischle et al. untersuchten die Photonenkorrelation zwischen Biexziton sowie Exziton und analysierten den Einfluss der dunklen Exzitonzustände auf die quanten-optischen Eigenschaften [Rei08]. Dagegen widmeten sich Sugisaki et al. [Sug99] und Schmidbauer et al. [Sch02] den Polarisationsseigenschaften dieser Quantenpunkte. Beide Gruppen beobachteten einen überraschend hohen Grad linearer Polarisation der Quantenpunktemission, was sie auf anisotrope Verspannungen und Schwankungen in der Materialzusammensetzung in der GaInP-Matrix [Sug99] oder auf Asymmetrien der Quantenpunktform zurückführen [Sch02]. Die erste Demonstration von Einzelphotonenemission der InP-Quantenpunkte im gepulsten Betrieb gelang 2003 Zwiller et al. [Zwi03] und konnte auch für positionierte von Baumann et al. [Bau12a] realisiert werden.

Dieses Kapitel beschäftigt sich nun mit der Weiterführung der Arbeiten von Baumann et al. [Bau12a, Bau12b] und konzentriert sich auf die Emissionseigenschaften der positionierten InP/GaInP-Quantenpunkte in Bezug auf die Nutzung als aktives Medium in einer Quanten-Lichtquelle. Das Kapitel beginnt in Abschnitt 6.1 mit dem Herstellungsverfahren positionierter InP/GaInP-Quantenpunkte. Anschließend führen erste spektroskopische Untersuchungen zu den optischen Eigenschaften eines QPes in Abschnitt 6.2 in die Thematik ein. Der folgende Abschnitt 6.3 behandelt die Eigenschaft der Quantenpunkte als nicht-klassische Emitter und demonstriert erstmalig den kaskadierten Zerfall von Biexziton und Exziton für dieses Materialsystem. Daraufhin werden die Exziton- und Biexzitonlebensdauern in Abschnitt 6.4 analysiert. In Abschnitt 6.5 werden Statistiken zur Polarisation und Feinstrukturaufspaltung der Emission präsentiert, bevor das Kapitel in Abschnitt 6.6 mit einer Zusammenfassung schließt.

6.1. Herstellungsverfahren positionierter InP/GaInP-Quantenpunkte

Die Prozessierung positionierter InP/GaInP-QPe gleicht dem gut entwickelten Verfahren für das InAs/GaAs-Materialsystem (vgl. Abschnitt 5.1), dennoch stellte das Wachstum jener QPe eine Herausforderung aufgrund von Temperatureffekten dar, die einen Kompromiss aus genauer Positionierung und hochwertigen QPen abfordert. Daher kam es erst in jüngster Zeit zu diesem Durchbruch [Bau12a]. In diesem Abschnitt soll nun diese Herstellungsmethode, welche im vollen Umfang in [Bau12b] nachvollzogen werden kann, kurz erläutert werden.

Auf das GaAs-Substrat wird zuerst eine 100 nm dicke GaAs-Pufferschicht aufgewachsen, auf welche 200 nm gitterangepasstes $\text{Ga}_{0,51}\text{In}_{0,49}\text{P}$ folgt. Die Definition der Nanolöcher erfolgt, wie in Abschnitt 5.1 beschrieben, durch Lithographie von 50 – 80 nm großen Kreisen und anschließendem ECR-RIE bis zu einer Tiefe von etwa 15 nm. Danach wird die Oberfläche durch nasschemische Reinigung und thermisches Ausheizen bei 300 °C von Kontaminationen befreit. Durch zusätzliches Überleiten von thermisch aufgespaltenem Phosphin-Gas bei 375 °C werden eventuelle Sauerstoffverunreinigungen entfernt. Zur Oberflächenebnung werden jetzt wieder 8 nm $\text{Ga}_{0,51}\text{In}_{0,49}\text{P}$ aufgebracht und im Anschluss etwa 1,4 Monolagen InP aufgetragen, welche den schon bekannten Seeding Layer darstellen. Es folgt eine Abstandsschicht aus $\text{Ga}_{0,51}\text{In}_{0,49}\text{P}$, deren Dicke von 30 nm essentiell für die QP-Bildung ist. Zum einen lässt diese Schicht die wachstumsnotwendige Temperatur von bis zu 415 °C ohne die Degradation der Nanolöcher zu, zum anderen werden die QPe von möglichen Defektzuständen getrennt. Nun können die QP durch Abscheidung von 1,5 bis 1,6 Monolagen InP gewachsen und mit 30 nm $\text{Ga}_{0,51}\text{In}_{0,49}\text{P}$ versiegelt werden. Die fertiggestellte Probe ist schematisch in Abbildung 6.1a dargestellt.

Um die Qualität der positionierten InP/GaInP-Quantenpunktprobe nach dem Wachstum zu überprüfen, wurde in Kooperation mit der TU Berlin auf Raster-Kathodolumineszenz-(KL-) Spektroskopie zurückgegriffen. Diese Technik hat sich für solche Untersuchungen als adäquat herausgestellt, da sie die Möglichkeit der Erfassung der Lumineszenzeigenschaften der Emitter mit einer besonders hohen örtlichen Auflösung kombiniert [Sch12, Rod05, Pel07]. Bei der KL-Spektroskopie wird ein auf wenige Nanometer fokussierter Elektronenstrahl über die Probe gerastert und Emissionsspektren alle 100 nm aufgenommen. Dabei wurden eine Beschleunigungsspannung der Elektronen von 7 kV und ein Strahlstrom von 0,8 nA eingestellt. Die resultierende Intensitätskarte für eine Probe mit einem Quantenpunkt-Abstand von 1,25 μm ist als Falschfarbendarstellung in Abbildung 6.1b gezeigt. Diese Messung demonstriert die hohe Güte der Probe, da über 90 % der Quantenemitter optisch aktiv sind und nur weniger als 3 % der QPe auf Zwischengitterplätzen nukleiert sind. Die starken Unterschiede in der Helligkeit der QPe (von 3 % bis 100 %) kann durch Variationen in der Quanteneffizienz begründet werden, welche vor allem aufgrund der herstellungsbedingten Defektzustände für positionierte QPe eine große Rolle spielt [Alb10]. Durch die Defektzustände werden den Exzitonen nicht-strahlende Zerfallsmöglichkeiten gegeben, womit diese nicht mehr zur Lumineszenz beitragen können.

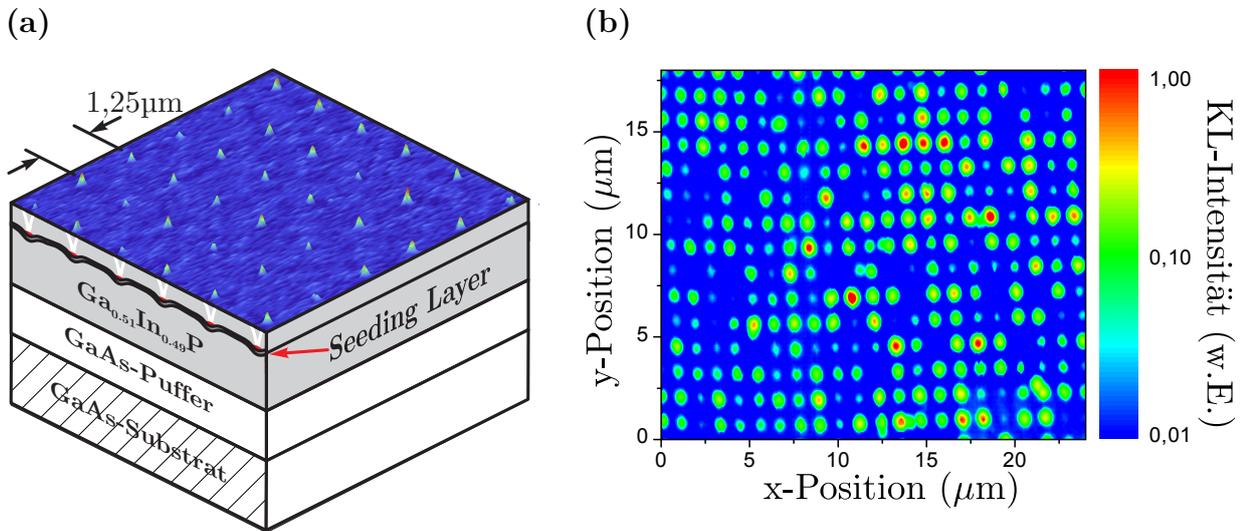


Abbildung 6.1.: (a) Schematischer Aufbau der InP/GaInP-Probe mit positionierten QPen ohne Deckschicht aus [Bau12a]. Die unüberwachsenen QPe sind als AFM-Aufnahme abgebildet, bei der man sehr gut die Positionen der QPe erkennen kann. Die einzelnen Wachstumsschritte und genauere Details können dem Text entnommen werden. (b) Gerasterte Kathodolumineszenz-Aufnahme einer Quantenpunktprobe mit $1,25 \mu\text{m}$ Lochperiode. Über 90 % der Emitter sind optisch aktiv und weniger als 3 % fehlplatziert. Die Probe bietet damit ideale Voraussetzung zu weiteren spektroskopischen Untersuchungen.

6.2. Grundcharakterisierung eines positionierten InP/GaInP-Quantenpunktes

Mit dem Wissen, dass 97 % der QPe positioniert sind, können weitere Untersuchungen durch μPL -Spektroskopie durchgeführt werden, welche allein nicht zwischen positioniertem oder fehlplatziertem QP unterscheiden kann. In diesem Abschnitt werden zunächst die grundlegenden Emissionseigenschaften des untersuchten QPes dargestellt. Die Messungen erfolgten an dem Messaufbau aus 3.1 mit dem grünen Nd-YAG-Laser und dem 20-fach Mikroskopobjektiv mit einer NA von 0,40 bei einer Temperatur von 18 K. Das Lumineszenzsignal wurde durch das Gitter mit 1200 Strichen/mm spektral zerlegt. Abbildung 6.2 zeigt das Spektrum eines positionierten InP/GaInP-QPes bei einer Anregungsleistung von $4,70 \mu\text{W}$. Die beiden dominanten Emissionslinien sind, wie es im Laufe des Kapitels gezeigt wird, dem Exziton und dem Biexziton zuzuordnen. Das Exziton emittiert bei einer Energie von $E_X = 1,8845 \text{ eV}$ mit einer Linienbreite von $\gamma_X = 281 \mu\text{eV}$ und das Biexziton

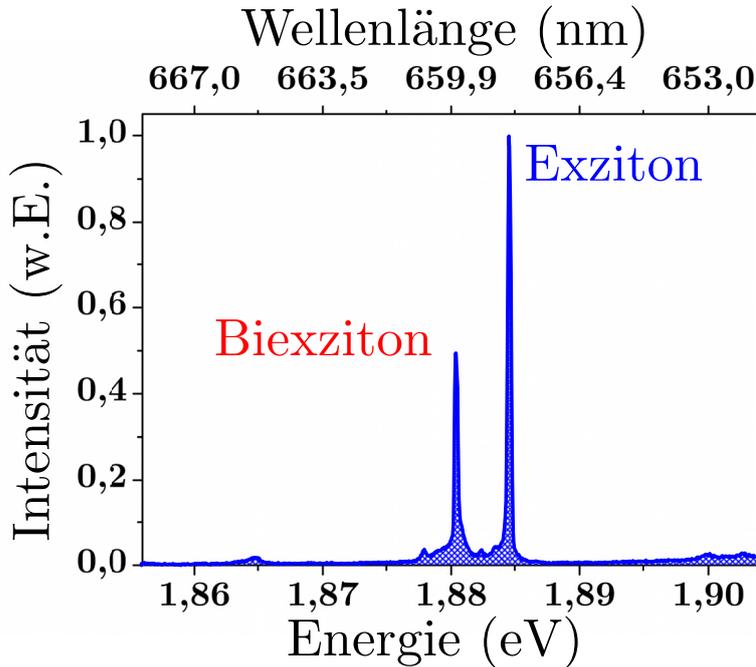


Abbildung 6.2: Hochauflöses μ PL-Spektrum eines positionierten InP/GaInP-QPes. Der QP wurde bei einer Wellenlänge von 532 nm mit einer Leistung von $4,70 \mu\text{W}$ angeregt. Die beiden dominanten Emissionslinien bei $E_X = 1,8845 \text{ eV}$ mit einer Linienbreite von $\lambda_X = 281 \mu\text{eV}$ und $E_{XX} = 1,8804 \text{ eV}$ mit $\lambda_{XX} = 270 \mu\text{eV}$ werden Exziton und Biexziton zugeordnet.

bei $E_{XX} = 1,8804 \text{ eV}$ mit $\gamma_{XX} = 270 \mu\text{eV}$. Die Bindungsenergie des Biexzitons ist damit positiv, die Austausch- überwiegt also der Coulombwechselwirkung (vgl. Abschnitt 2.1.2), und liegt mit $\Delta E_B = 4,15 \text{ meV}$ im selben Bereich, der für selbstorganisierte InAs- [Sar06] und InP-QPe [Sug01] berichtet wurde. Weiterhin ist das Spektrum weitestgehend frei von der Emission sonstiger Mehrteilchenkomplexe oder benachbarter QPe.

Zur Identifikation der Emissionslinien wurden an dem in Abbildung 6.2 gezeigten QP Leistungsserien durchgeführt. Dazu wird die Anregungsleistung P sukzessiv von $0,42 \mu\text{W}$ bis $42,1 \mu\text{W}$ erhöht und jeweils ein Spektrum aufgenommen, was in Abbildung 6.3a für ausgewählte Leistungen als Wasserfalldiagramm gezeigt ist. Man erkennt deutlich, dass die Intensität von sowohl Exziton (X) als auch Biexziton (XX) mit steigender Anregungsleistung zunimmt. Zudem setzt die Emission des Biexzitons erst später ein und steigt, wie zu erwarten [Kam98, Sar06], rascher als die des Exzitons an. Ab etwa $4,70 \mu\text{W}$ ist eine zusätzliche Emissionslinie zwischen Exziton und Biexziton ersichtlich, welche einem benachbarten QP zuzuweisen ist.¹ Um das leistungsabhängige Verhalten quantitativ auswerten zu können, werden die Emissionslinien mit einem Lorentzprofil angepasst und die integrierten Intensitäten I gegen P in doppelt-logarithmischer Darstellung aufgetragen (siehe Abbildung 6.3b). Hier zeigt sich, dass die Intensität des Biexzitons deutlich stärker

¹Da der QP nur teilweise im Anregungsbereich des Lasers liegt, wird eine Emission erst für höhere Leistungen beobachtet.

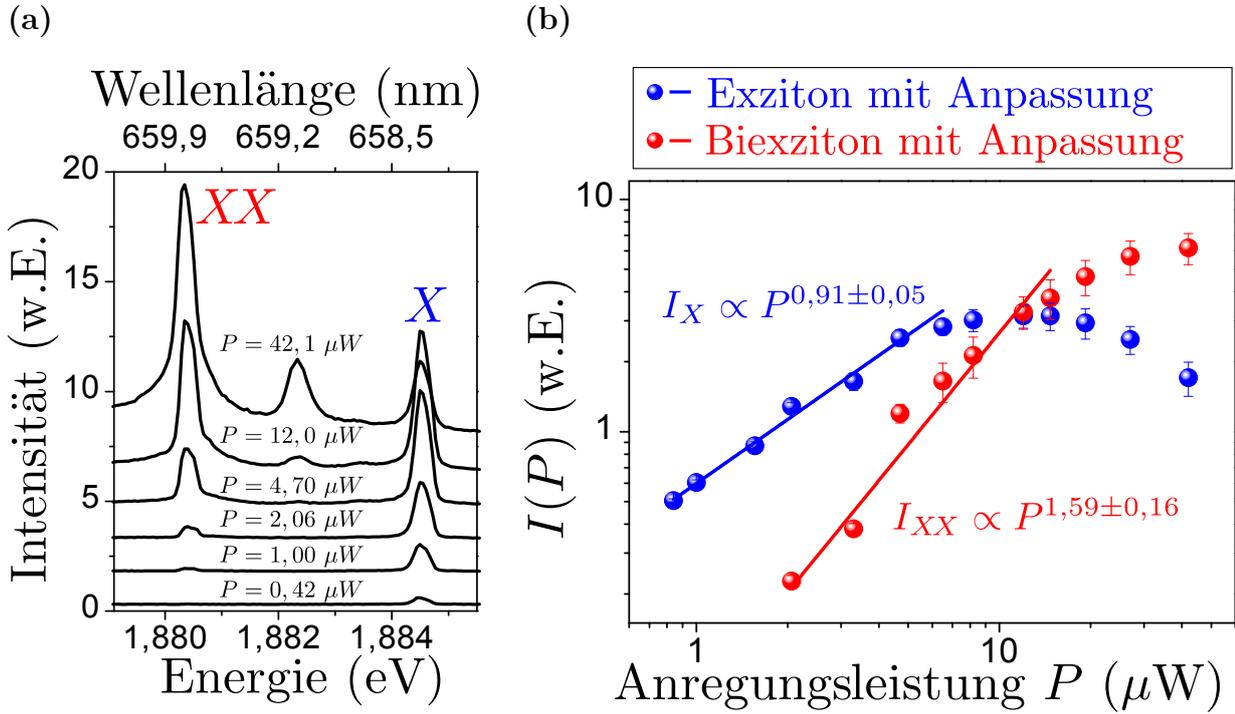


Abbildung 6.3.: (a) Emissionsspektren des QPes aus Abbildung 6.2 für mehrere Anregungsleistungen P und die ausgewertete integrierte Intensität in doppelt-logarithmischer Darstellung als Funktion von P aufgetragen (b). Während die lineare Steigung von $0,91 \pm 0,05$ den exzitonischen Charakter der Emission widerspiegelt, deutet der superlineare Verlauf mit einer Steigung von $1,59 \pm 0,16$ auf einen Biexzitonzerfall hin.

als die des Exzitons mit der Anregungsleistung anwächst. Dabei sättigt die Emission des Exzitons bereits bei einer Leistung von etwa $7 \mu\text{W}$ aufgrund der Limitierung durch die spontane Emissionsrate [Gér01, Ben05] und fällt darüber hinaus wieder ab, da für hohe Anregungsleistungen die Exzitonen vor dem Zerfall in höher gelegene Zustände angehoben werden können [Yua02]. So stehen also Biexziton und Exziton in Konkurrenz zueinander. Das Biexziton geht erst ab einer Leistung von über $42,1 \mu\text{W}$ in Sättigung über und strahlt dabei aufgrund der kürzeren Lebensdauer deutlich heller [Yua02] (vgl. Abschnitt 6.3 und 6.4). Die Anpassung zweier Geraden an die Messwerte liefert eine Steigung der Intensität mit der Leistung von $m_X = 0,91 \pm 0,05$ für das Exziton und $m_{XX} = 1,59 \pm 0,16$ für das Biexziton, woraus die polynomielle Abhängigkeiten zu $I_X \propto P^{0,91}$ und $I_{XX} \propto P^{1,59}$ bestimmt werden können. Diese liegen in Übereinstimmung mit den von Baumann et al. ermittelten Werten [Bau12a], weichen jedoch von den erwarteten Werten von $I_X \propto P^1$ für Exziton und $I_{XX} \propto P^2$ für Biexziton ab [Kam98, Sar06]. Diese

Abweichung kann durch nicht-strahlende Rekombinationskanäle für die Ladungsträger erklärt werden, die durch die Strukturierung der Nanolöcher entstehen und verhindern, dass jedes angeregte Ladungsträgerpaar zur Lumineszenz beitragen kann (vgl. Abschnitt 5.2). Die Defektzustände sind zudem die Ursache der relativ hohen Linienbreiten der QPe. Da sich die ermittelten Werte für die Leistungsabhängigkeit der integrierten Intensitäten von den idealen unterscheiden, dienen diese nur zu einer hinreichenden, aber nicht eindeutigen, Zuordnung der Emissionslinien zu Exziton und Biexziton.

Weiterhin wurden die optischen Eigenschaften mittels polarisationsabhängiger Messungen studiert. Dazu wird in den Strahlengang des μ PL-Messplatzes zusätzlich ein fest auf 90° eingestellter Linearpolarisator in den Strahlengang eingebracht, vor den ein computeransteuerbares $\lambda/2$ -Plättchen gestellt wird (vgl. Abschnitt 3.1). Die Drehung des $\lambda/2$ -Plättchen in beliebigen Winkeln bewirkt eine Mittlung der Polarisationsbeiträge der beiden aufgespaltenen Zerfallswege² in dem jeweiligen Spektrum und so oszilliert die Energie der Emissionslinie zwischen den beiden Extremwerten von rein horizontal (H) und vertikal (V) polarisiertem Licht (vgl. Abschnitt 2.1.3). Dadurch kann die Feinstrukturaufspaltung ΔE_{FSS} des QPes bestimmt werden, da der energetische Abstand zwischen H- und V-Polarisation genau ΔE_{FSS} entspricht.³ Die Feststellung der Feinstrukturaufspaltung und des Weiteren des Grades der Polarisation erlauben Rückschlüsse auf die Symmetrie der QPe, womit Polarisationsmessung ein hilfreiches Mittel zur Analyse der Quantenpunkteigenschaften sind. Um die Messungen auszuwerten, wird wieder ein Lorentzprofil an die jeweilige Emissionslinie angepasst und die integrierte Intensität bzw. die Emissionsenergie gegen den Polarisationswinkel⁴ aufgetragen. Abbildung 6.4a zeigt zwei Spektren des QPes aus Abbildung 6.2, bei denen für einen Polarisationswinkel von 0° lediglich die H- (schwarz) und für 90° nur die V-Mode (grün) detektierbar sind. Das Spektrum für 90° wurde aus Gründen der besseren Darstellung mit einem Faktor von 20 vergrößert. Sofort sticht der starke Kontrast und die unterschiedliche Energieposition beider senkrecht zueinander polarisierten Moden ins Auge, wobei die Differenz der Feinstrukturaufspaltung (vgl. Abbildung 6.4c) entspricht (angedeutet durch die gestrichelten Linien). Der Verlauf der integrierten Intensität ist daher in Abbildung 6.4b für Polarisationswinkel von 0° bis

²Dies gilt natürlich nur für QPe die tatsächlich eine Feinstruktur aufweisen. Ohne Feinstruktur ist zirkuläre Polarisation und damit kein Einfluss des $\lambda/2$ -Plättchen zu erwarten.

³Bei hinreichender spektraler Auflösung des Monochromators und entsprechend schmaler Linienbreite kann die Feinstrukturaufspaltung auch direkt im Spektrum festgestellt werden. Die Methode der Polarisationsmessung gibt jedoch mehr Sicherheit und erhöht zudem die Auflösung für diese Messung unter Umständen auf bis zu $\pm 0,5 \mu\text{eV}$ [You05].

⁴Dieser entspricht dem zweifachen Winkel des $\lambda/2$ -Plättchens, da ein $\lambda/2$ -Plättchen die Polarisation um den doppelten Winkel dreht.

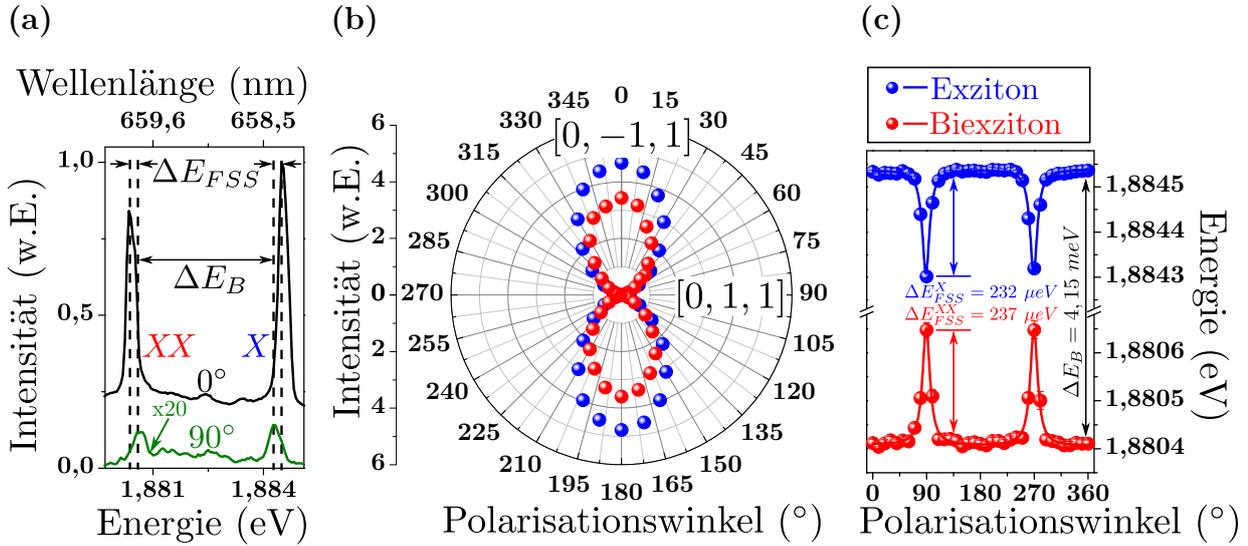


Abbildung 6.4.: (a) μPL -Spektren des QPES aus Abbildung 6.2 für zwei Polarisationswinkel von 0° und 90° , die die H- und V-Mode (20-fach vergrößert) zeigen. Die gestrichelten Linien indizieren die Feinstrukturaufspaltung ΔE_{FSS} . (b) Abhängigkeit der integrierten Intensität und der Energie (c) der Quantenpunktemission in Abhängigkeit des Polarisationswinkels. Die durchgezogenen Linien stellen eine Anpassung des Verlaufs nach Gleichung 6.1 dar. Sowohl Exziton als auch Biexziton weisen eine starke lineare Polarisation in $[0, -1, 1]$ -Kristallrichtung auf. Die Feinstrukturaufspaltung des QPES lässt sich zu $\Delta E_{FSS} = 234,5 \pm 3,5 \mu\text{eV}$ ermitteln.

350° in 10° -Schritten für Exziton (blau) und Biexziton (rot) aufgetragen, um jene Eigenart genauer zu untersuchen. Darin erkennt man deutlich, dass die Intensität zwischen dem Maximum (H-Mode) und dem Minimum (V-Mode) periodisch schwankt. Sowohl Exziton als auch Biexziton weisen eine interessanterweise stark ausgeprägte Linearpolarisation auf, bei der der orthogonal polarisierte Anteil um mehr als zwei Größenordnungen unterdrückt ist. Eine Auswertung der Intensitätsmaxima und -minima lassen den Grad der Polarisation $p = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}}$ für das Exziton zu $p_X = 0,982 \pm 0,001$ und für das Biexziton zu $p_{XX} = 0,98 \pm 0,01$ feststellen, welche deutlich höher als die für selbstorganisierte QPE in diesem Materialsystem (bis zu 44%) liegen [Sug99, Sch02]. Die Ursache der starken optischen Anisotropie liegt unter anderem in der Asymmetrie der mikroskopischen Struktur der positionierten QP und wird in Abschnitt 6.5 genauer diskutiert. Wie oben erwähnt, kann durch die Auftragung der Emissionsenergie gegen den Polarisationswinkel die Feinstrukturaufspaltung ermittelt werden. Der entsprechend erhaltene Verlauf ist

in Grafik 6.4c abgebildet. Da die hellere H-Mode, welche in $[0, -1, 1]$ -Richtung der Kristallachse polarisiert ist⁵, das Spektrum dominiert, kann die V-Mode in $[0, 1, 1]$ -Richtung allein nur detektiert werden, wenn die hellere komplett unterdrückt ist (vgl. Spektren für 0° und 90° in Abbildung 6.4a). Überhaupt ist ein Beitrag der schwächeren Mode lediglich für Winkel zwischen 80° und 100° beobachtbar. Dies erklärt das eigenartige Verhalten des Verlaufs in Abbildung 6.4c, bei der eine Verschiebung der Emissionsenergien für Exziton und Biexziton nur zwischen Winkeln $90 \pm 10^\circ$ bemerkbar ist. Bei QPen, deren orthogonal zueinander polarisierten Moden zu etwa gleichen Teilen zum Spektrum beitragen, würde ein sinusförmiger Verlauf zwischen minimaler und maximaler Energieposition erwartet werden [Abb08, You09]. Dennoch zeigen die Messungen für Exziton und Biexziton das typische gegenphasige Verhalten [Sar06], welches die Annahme, dass es sich um Exziton und Biexziton des selben QPes handelt, verstärkt, aber immer noch nicht eindeutig belegt. Die Auswertung (Differenzen der Energiepositionen für H- und V-Mode) der Messung liefert eine Feinstrukturaufspaltung des Exzitons von $\Delta E_{FSS}^X = 232 \pm 5 \mu\text{eV}$ sowie $\Delta E_{FSS}^{XX} = 237 \pm 5 \mu\text{eV}$, welche innerhalb der Fehlergrenzen übereinstimmen. Im Mittel ergibt sich somit eine Feinstrukturaufspaltung von $\Delta E_{FSS} = 234,5 \pm 3,5 \mu\text{eV}$. Berücksichtigt man den hohen Grad der Polarisation p , so kann dennoch der Verlauf der Energie E aus Abbildung 6.4c in Abhängigkeit des Polarisationswinkels ϕ modelliert werden:

$$E = m \cdot \phi + p \cdot E_{max} \frac{\cos^2\left(\phi \frac{\pi}{180} + w\right)}{p \cos^2\left(\phi \frac{\pi}{180} + w\right) + (1-p) \cos^2\left(\phi \frac{\pi}{180} - \frac{\pi}{2} + w\right)} + (1-p) \cdot E_{min} \frac{\cos^2\left(\phi \frac{\pi}{180} - \frac{\pi}{2} + w\right)}{p \cos^2\left(\phi \frac{\pi}{180} + w\right) + (1-p) \cos^2\left(\phi \frac{\pi}{180} - \frac{\pi}{2} + w\right)}. \quad (6.1)$$

Dabei kalkuliert der erste Term eine eventuelle lineare Verschiebung der Energie aufgrund von Temperaturänderungen während der Aufnahme der Polarisationsserie und w eine Abweichung der Polarisatorstellung vom Labor- zum idealen System mit ein. Die Anpassungen von Gleichung 6.1 an die Messdaten aus 6.4c liefern für das Exziton (blaue Kurve) und Biexziton (rote Kurve) einen Polarisationsgrad von $p_X = 0,984 \pm 0,001$ bzw. $p_{XX} = 0,983 \pm 0,002$ sowie für die Feinstruktur im Mittel $\Delta E_{FSS} = 235 \pm 10 \mu\text{eV}$. Diese Werte stimmen mit den manuell ermittelten sehr gut überein. Weitere Untersuchungen zur Feinstrukturaufspaltung werden in Abschnitt 6.5 durchgeführt. Zunächst soll sich jedoch

⁵Bei exakter Kenntnis der Probenorientierung im Kryostaten und der Polarisatorstellung kann die Achse der Polarisation auf die Kristallachse des Halbleitermaterials zurückgeführt werden.

der Quantennatur des emittierten Lichts von Exziton und Biexziton gewidmet und die Tatsache der Emission von Exziton und Biexziton bewiesen werden.

6.3. Photonenstatistik und Biexziton-Exziton-Kaskade

In diesem Abschnitt wird die Photonenstatistik der Emission von Exziton und Biexziton des im vorherigen Abschnitt vorgestellten QPs mit Photonen-Autokorrelations- und Kreuzkorrelationsmessungen zweiter Ordnung untersucht. Zum Nachweis der nicht-klassischen Lichtemission von Exziton sowie Biexziton wird der μ PL-Messplatz aus Abschnitt 3.1 in Kombination mit der HBT-Messanordnung aus Abschnitt 3.2 verwendet. Das Lumineszenzsignal wird spektral zerlegt, durch den Ausgangsspalt des Monochromators selektiert und mit den APDs mit einer Zeitauflösung von $t_{res} = 400$ ps detektiert. Der QP befindet sich auf einer Temperatur von 18 K und wurde mit einer Leistung von $9,4 \mu\text{W}$ angeregt, bei der Exziton und Biexziton vergleichbare Intensitäten vorweisen (vgl. Abbildung 6.3b). Abbildung 6.5 zeigt die Photonen-Autokorrelationsmessungen zweiter Ordnung für beide Emissionslinien (schwarze Kurve). Beide Graphen zeigen deutlich das für nicht-klassische Emittoren erwartete Antibunching-Verhalten. Weiterhin wurden die gemessenen Daten mit einem 3-Niveau-Model angepasst, wie es in Abschnitt 2.2 erläutert wurde. Die für die Anpassung nötigen Parameter sind Exzitonlebensdauer τ_X , Biexzitonlebensdauer τ_{XX} sowie eine charakteristische Anregungsdauer τ_A , wobei die endliche Detektorauflösung durch die Faltung der Autokorrelationsfunktion mit einer Gaußfunktion ($\sigma = t_{res}/\sqrt{2\sqrt{\ln 2}}$) mit berücksichtigt wurde (vgl. Anhang A). Weiterhin wurde, um eventuelle Hintergrundsignale zu berücksichtigen, die Anpassungsfunktion mit dem Vorfaktor $(1 - g^{(2)}(0))$ erweitert [Bec01]. Die gefaltete Funktion gibt den Verlauf für sowohl Exziton (rote Kurve Abbildung 6.5a) als auch Biexziton (rote Kurve Abbildung 6.5b) in guter Übereinstimmung wieder und liefert Autokorrelationswerte bei $\tau = 0$ von $g_X^{(2)}(0) = 0,37$ für das Exziton bzw. $g_{XX}^{(2)}(0) = 0,76$ für das Biexziton. Im Falle des Exzitons liegt der $g^{(2)}(0)$ -Wert deutlich unterhalb von 0,5, weshalb hier eindeutig von Einzelphotonenemission gesprochen werden kann (vgl. Abschnitt 2.2). Dagegen zeigt der Wert $g_{XX}^{(2)}(0) = 0,76$ für das Biexziton lediglich eine unterdrückte Wahrscheinlichkeit für Multiphotonen-Emissionsprozesse. In beiden Fällen spielen allerdings Hintergrundsignale und die endliche Zeitauflösung des Detektors eine Rolle. Um nun den Einfluss des Hintergrundsignals zu ermitteln und die Zeitauflösung zu eliminieren, wird die Anpassungsfunktion entfaltet. Die entsprechend gewonnenen Verläufe sind in Abbildung 6.5 als

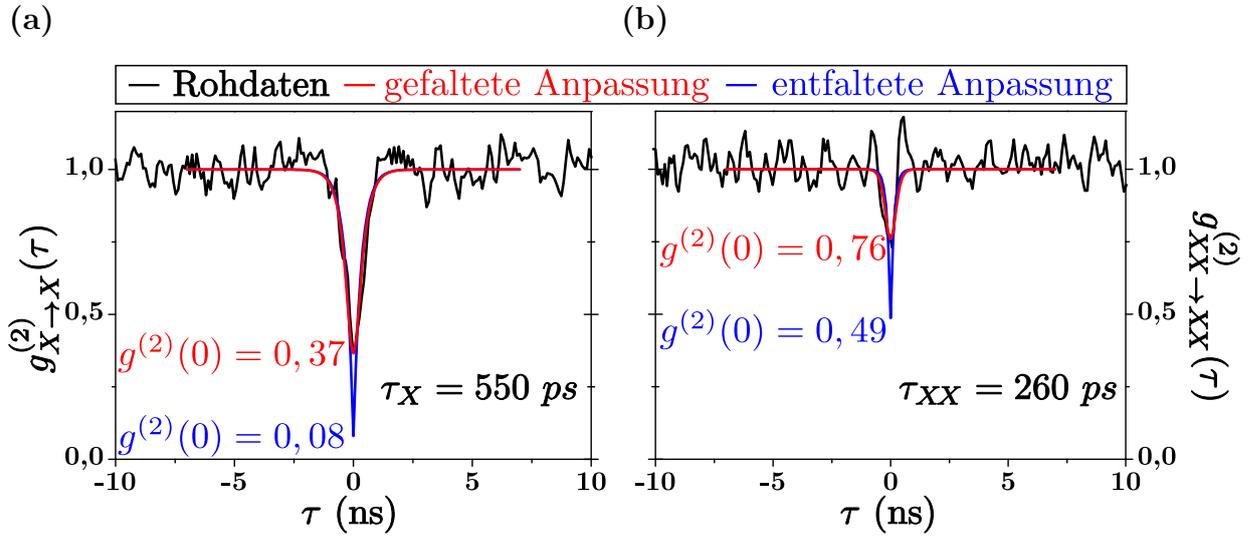


Abbildung 6.5.: (a) Photonen-Autokorrelationsmessung zweiter Ordnung für Exziton und Biexziton (b) des QPes aus Abschnitt 6.2 mit entsprechender Anpassungsfunktion (rote Kurve). Die Entfaltung der Anpassungsfunktion (blaue Kurve) deckt mit $g_{X,entf}^{(2)}(0) = 0,08$ den beinahe idealen Einzelphotonencharakter der Exzitonemission auf, während für das Biexziton mit $g_{XX,entf}^{(2)}(0) = 0,49$ die Grenze zur Einzelphotonemission unterschritten wird. Weiterhin lassen sich die Lebensdauern von Exziton und Biexziton zu $\tau_X = 550 \pm 81 \text{ ps}$ und $\tau_{XX} = 260 \pm 55 \text{ ps}$ bestimmen.

blaue Linien dargestellt. Aus der Entfaltung lassen sich die tatsächlichen $g^{(2)}(0)$ -Werte zu $g_{X,entf}^{(2)}(0) = 0,08$ für das Exziton und $g_{XX,entf}^{(2)}(0) = 0,49$ für das Biexziton ermitteln. Für beide Teilchen ist damit der Einzelphotonencharakter nachgewiesen. Der höhere $g^{(2)}(0)$ -Wert für das Biexziton lässt sich auf das im Verhältnis stärkere Hintergrundsignal zurückführen (vgl. Abbildung 6.3a), das aus nicht-korrelierter Emission von benachbarten QPen und der GaInP-Matrix herrührt. Des Weiteren können aus der Anpassung die Exziton- $\tau_X = 550 \pm 81 \text{ ps}$ und Biexzitonlebensdauer $\tau_{XX} = 260 \pm 55 \text{ ps}$ extrahiert werden. Das Verhältnis der beiden Lebensdauern entspricht mit $\tau_X/\tau_{XX} = 2,11 \pm 0,54$ sehr gut dem erwarteten Wert von 2, welcher sich aus der einfachen statistischen Annahme ergibt, dass das Biexziton aus zwei schwach gebundenen Exzitonen gebildet wird und somit die doppelte Zerfallswahrscheinlichkeit besitzt [Bac99, Feu08]. Anhand der Lebensdauern der Emitter lässt sich die theoretische maximale⁶ Photonenemissionsrate \dot{n} eines Bauteils abschätzen. Die Rate ergibt sich aus der inversen Lebensdauer und

⁶Ungeachtet möglicher Resonatoreffekte, die die Lebensdauer erniedrigen könnten.

entspricht $\dot{n}_X = 1/\tau_X = 1,85$ GHz für das Exziton bzw. $\dot{n}_{XX} = 1/\tau_{XX} = 3,85$ GHz für das Biexziton. Diese Werte und die Tatsache, dass InP/GaInP-QPe im Bereich der höchsten Detektionseffizienz der handelsüblichen Si-Einzelphotonendetektoren emittieren, demonstrieren das Potential dieser QPe als hocheffiziente nicht-klassische Emittier für Bereiche wie der Quantenkryptographie.

Sowohl die Messung der Leistungsserie (vgl. Abbildung 6.3b) als auch die Polarisationsserie (vgl. Abbildung 6.4c) aus Abschnitt 6.2 legten die Vermutung nahe, dass es sich bei der beobachteten Emission des QPes um Exziton und Biexziton handelt. Um diese Zuordnung weiter zu untermauern, wurden Photonen-Kreuzkorrelationsmessungen zweiter Ordnung an beiden Emissionslinien durchgeführt. Der dazu benötigte Messaufbau ist in Abschnitt 3.3 beschrieben. Um Exziton und Biexziton getrennt voneinander mit einer APD detektieren zu können, muss das Lumineszenzsignal mittels eines 50:50 Strahlteilers aufgetrennt und durch zwei Monochromatoren spektral zerlegt werden. Der eine Monochromator selektiert dann die Exzitonemission, während der andere das vom Biexziton emittierte Licht auf den Ausgangspalt abbildet. Die Messbedingungen entsprechen denen für die Autokorrelationsmessungen ($T = 18$ K, $P = 9,4$ μ W). Die Messung der Kreuzkorrelationsfunktion zweiter Ordnung, bei der das Biexziton den Start- und das Exziton den Stopp-Impuls gibt, ist in Abbildung 6.6 (schwarze Kurve) dargestellt. Das typische asymmetrische Antibunching- für ($\tau < 0$) und Bunching-Verhalten für ($\tau > 0$) demonstriert eindeutig den kaskadierten Zerfallsprozess von Exziton und Biexziton (vgl. Abschnitt 2.2). Für die negative Zeitachse spiegelt der Verlauf die Wahrscheinlichkeit wider, nach einem Exziton ein Biexziton zu detektieren. Das beobachtete Antibunching legt somit wieder den Einzelphotonencharakter der Exzitonemission dar. Für positive Verzögerungszeiten dagegen entspricht der Verlauf der Wahrscheinlichkeit nach der Biexzitonemission ein Exziton zu registrieren. Hierbei weist das zu erkennende Bunching darauf hin, dass nach dem Zerfall eines Biexzitons die Emission eines Exzitons zu erwarten ist. Dieses Verhalten zeigt also die vorhandene Korrelation zwischen Exziton und Biexziton. Wie schon für die Autokorrelationsuntersuchungen kann die Photonen-Kreuzkorrelationsmessung zweiter Ordnung mittels den Ratengleichungen eines 3-Niveau-Modells angepasst (rote Kurve) (vgl. Abschnitt 2.2) und der Verlauf gut wiedergegeben werden. Die Anpassung liefert für die Lebensdauern Werte von $\tau_X = 404 \pm 103$ ps und $\tau_{XX} = 207 \pm 78$ ps für Exziton bzw. Biexziton, welche innerhalb der Fehlergrenzen in Einklang mit den ermittelten Werte aus den Autokorrelationsmessungen sind. Das Verhältnis beider von $\tau_X/\tau_{XX} = 1,95 \pm 0,89$ ist ebenfalls mit den Werten der Messung der Autokorrelation konsistent. Weiterhin

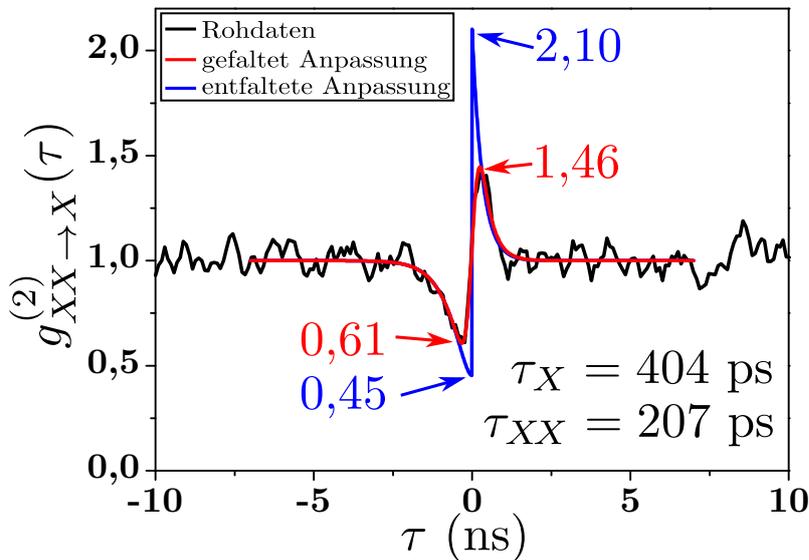


Abbildung 6.6: Photonen-Kreuzkorrelationsmessung zweiter Ordnung mit entsprechender gefalteter (rote Kurve) und entfalteter (blaue Kurve) Anpassungsfunktion zwischen Exziton und Biexziton. Der Wert von 0,45 für negative Verzögerungszeiten spiegelt deutlich den Einzelphotonencharakter des Exzitons wider, während auf der positiven Zeitachse der Wert von 2,10 die Korrelation zwischen Exziton und Biexziton demonstriert.

lassen sich für das Maximum (Bunching) und das Minimum (Antibunching) die Werte 1,46 und 0,61 bzw. 2,10 und 0,45 nach der Entfaltung extrahieren. Der entfaltete Antibunching-Wert von 0,45 zeigt abermals ein relativ hohes Hintergrundsignal, das in etwa dem der Autokorrelationsmessung für das Biexziton entspricht, demonstriert auf der anderen Seite aber auch den Einzelphotonencharakter von Exziton und Biexziton ($< 0,5$). Der Wert 2,10 für das Bunching zeigt eindeutig, dass die beiden Emissionslinien aus Abbildung 6.2 korreliert und dem kaskadierten Zerfall von Biexziton und Exziton zuzuordnen sind. Mit dieser Messung wurde erstmalig die Biexziton-Exziton-Kaskade für positionierte InP/GaInP-QPe demonstriert.

6.4. Lebensdauermessungen

Durch die Messung der Lebensdauern lässt sich nicht nur die Stärke des optischen Übergangs (siehe Kapitel 4) ermitteln, sondern auch ein Wert für die erzielbare Emissionsrate einer gepulst betriebenen Einzelphotonenquelle abschätzen. Daher sind solche Untersuchungen von generellem Interesse. Die Messungen wurden mit dem Messaufbau aus Abschnitt 3.4 durchgeführt. Der 50:50 Strahlteiler auf der optischen Achse wird entfernt und das Lumineszenzsignal lediglich auf eine APD ($t_{res} = 40$ ps) geleitet. Zur optischen Anregung und als Referenzsignalgeber wird der ultraviolette Laser mit $\lambda = 380$ nm im gepulsten Betrieb bei einer Repetitionsrate von 80 MHz verwendet. Ob die Emission von

einem Exziton oder einem Biexziton stammt, wird durch Leistungsserien (vgl. Abschnitt 6.2) ermittelt. Aus Gründen der Übersicht werden diese nicht aufgeführt. Abbildung 6.7 zeigt beispielhaft die Lebensdauerermessung von Exziton und Biexziton von ein und demselben QP. Beide Teilchen zeigen einen exponentiellen Zerfall, woraus sich durch die Anpassung der Funktion $y(t) = y_0 + A \cdot e^{-\frac{t-t_0}{\tau}}$ die Lebensdauern τ der Teilchen bestimmen lassen. Für die hier dargestellte Messung ergibt sich eine Lebensdauer von $\tau_X = 756 \pm 10$ ps für das Exziton und $\tau_{XX} = 349 \pm 20$ ps für das Biexziton. Auch liegt das Verhältnis beider Lebensdauern mit $\tau_X/\tau_{XX} = 2,17 \pm 0,13$ sehr nahe an dem Wert 2, welcher sich aus der Annahme ergibt, dass das Biexziton aus zwei schwach gebundenen Exzitonen besteht (siehe vorherigen Abschnitt). Wie auch die Emissionsenergie hängt die Lebensdauer von der Quantenpunktgröße ab und verändert sich von QP zu QP. Daher wurden die Lebensdauern von sieben⁷ verschiedenen Biexziton-Exziton-Paaren untersucht, welche in Abbildung 6.8a dargestellt sind. Die Zerfallszeiten von den Biexzitonen sind typischerweise deutlich schneller und betragen im Mittel $\tau_{XX}^{Mittel} = 536 \pm 139$ ps, wobei die kleinste $\tau_{XX}^{min} = 349 \pm 20$ ps und die größte Lebensdauer $\tau_{XX}^{max} = 760 \pm 29$ ps beträgt. Für die Exzitonen ergeben sich $\tau_X^{Mittel} = 1,13 \pm 0,37$ ns, $\tau_X^{min} = 741 \pm 17$ ps und $\tau_X^{max} = 1,802 \pm 0,027$ ns. Die aus den Korrelationsmessungen zweiter Ordnung extrahierten Zerfallszeiten für Exziton und Biexziton sind etwas kleiner als die hier gemessenen Werte, liegen aber in einem realistischen Bereich. In Abbildung 6.8b sind die jeweils

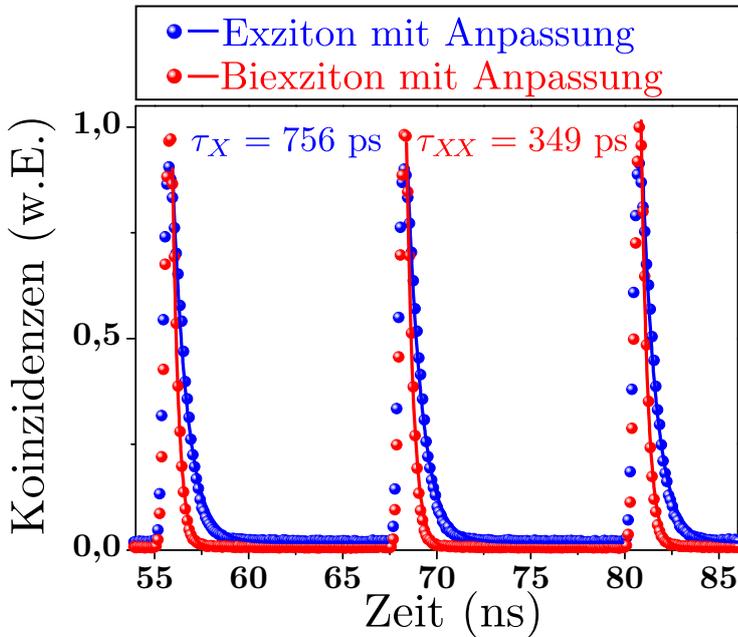


Abbildung 6.7: Exemplarische Messung der Lebensdauern von Exziton (blau) und Biexziton (rot). Durch die Anpassung der exponentiellen Zerfallsfunktion $y(t) = y_0 + A \cdot e^{-\frac{t-t_0}{\tau}}$ (durchgezogene Kurven) lässt sich die Lebensdauer beider Teilchen zu $\tau_X = 756 \pm 10$ ps und $\tau_{XX} = 349 \pm 20$ ps bestimmen. Wie erwartet zerfällt das Biexziton in etwa doppelt so schnell.

⁷Es ist anzumerken, dass nicht jeder QP sowohl ein Exziton als auch ein Biexziton emittiert.

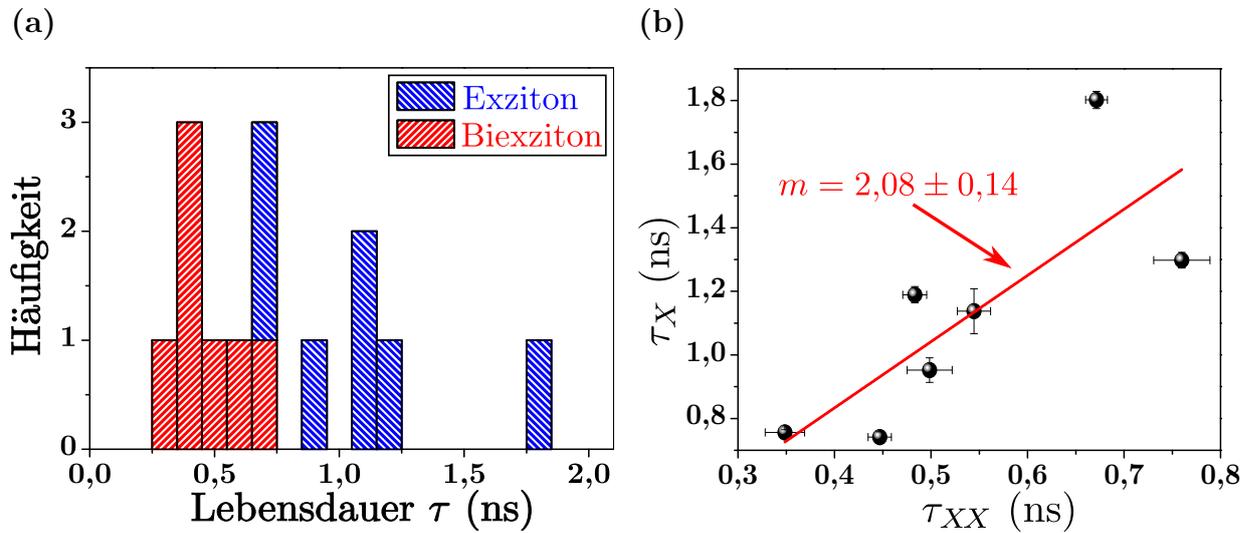


Abbildung 6.8.: (a) Statistische Verteilung der exzitonischen und biexzitonischen Lebensdauern von sieben verschiedenen positionierten InP/GaInP-QPen. Im Mittel ergeben sich Zerfallszeiten von $\tau_X^{Mittel} = 1,13 \pm 0,37$ ns und $\tau_{XX}^{Mittel} = 536 \pm 139$ ps. (b) Exzitonlebensdauer τ_X gegen die des Biexzitons τ_{XX} aufgetragen. Durch eine lineare Anpassung lässt sich das Verhältnis beider zu $m = \tau_X/\tau_{XX} = 2,08 \pm 0,14$ bestimmen, was dem zu erwartenden von 2 entspricht.

zueinander gehörenden exzitonischen und biexzitonischen Lebensdauern gegeneinander aufgetragen und durch eine Gerade angepasst. Daraus ergibt sich eine Steigung, deren Wert dem Verhältnis beider Lebensdauern entspricht, von $m = \tau_X/\tau_{XX} = 2,08 \pm 0,14$, was genau dem erwarteten Wert entspricht. Die Lebensdauer-messungen an den positionierten InP/GaInP-QPen demonstrieren deren Potential, als Einzelphotonenemitter zu fungieren. Schon ohne die Ausnutzung eines Kavitäts-effektes zur weiteren Erhöhung der Zerfallsraten können die Emitter bis in den Gigahertz-Bereich betrieben werden.

6.5. Polarisations-eigenschaften und Feinstrukturaufspaltung verschiedener Quantenpunkte

In Abschnitt 6.2 wurde gezeigt, dass sowohl Exziton als auch Biexziton eines bestimmten QPes eine sehr stark ausgeprägte lineare Polarisation von etwa 98% und ein Feinstrukturaufspaltung von $235 \mu\text{eV}$ aufweisen. Um festzustellen, ob es sich dabei

um einen willkürlichen Einzelfall oder um ein ausgeprägtes Phänomen handelt, wurden polarisationsabhängige Messungen an 66 verschiedenen QPen durchgeführt. Die Messungen liefen analog zu denen aus Abschnitt 6.2 ab, indem die Polarisation in 10° -Schritten mittels eines computeransteuerbaren $\lambda/2$ -Plättchens durchgeföhren, jeweils ein Spektrum aufgenommen und dieses mit einem Lorentzprofil angepasst wurde. Der aus diesen Messungen erhaltene Verlauf ist beispielhaft für die Exzitonemission von 10 verschiedenen QPen in Abhängigkeit des Polarisationswinkels in Abbildung 6.9a aufgetragen. Wieder ist eine stark ausgeprägte lineare Polarisation der H-Mode in $[0, -1, 1]$ -Richtung für alle Emissionslinien zu erkennen. Über alle QPe gemittelt ergibt sich durchschnittlich ein Polarisationsgrad von $p_{Mittel} = 93_{-9}^{+7} \%$. Der hohe Grad der Polarisation macht die positionierten InP/GaInP-QPe besonders interessant in Bereichen der Quantenkommunikation, da zum Beispiel für die Realisierung einer abhörsicheren Telekommunikationsleitung linear polarisierte Photonen zur Schlüsselübertagung geeignet sind [Ben84, Gis02]. Eine Beeinflussung der Polarisation des Lichts nach der Prozessierung mithilfe des Starkeffekts, wie sie bei InAs/GaAs-QPen zum Einsatz kommt [Str07, Rak08], entfällt damit. Eine Ursache für dieses Verhalten könnte in der Asymmetrie der mikroskopischen Struktur der positionierten QP liegen, ähnlich zu Berichten von Sugisaki et al. zu selbstorganisierten InP-QPen, die ein Polarisationsgrad der QP von 44% und der GaInP-Matrix von sogar 83% angeben [Sug99]. Aufgrund von lokalen Ordnungsphänomenen in der GaInP-Matrix bilden sich indiumreiche und galliumreiche Ebenen parallel zur $[0, -1, 1]$ -Richtung aus, die eine bevorzugte Emission in diese bewirken [Ren99, Sug00]. Auch die Emission der $\text{Ga}_{0,51}\text{In}_{0,49}\text{P}$ -Matrix bei der hier untersuchten Probe weist eine starke lineare Polarisation auf (nicht gezeigt). Dies und die Tatsache, dass die Emission aller QPe entlang der $[0, -1, 1]$ -Richtung polarisiert sind, spricht dafür, dass ähnliche Kristallordnungseffekte, welche sogar durch eine nicht perfekte Gitteranpassung von der $\text{Ga}_{0,51}\text{In}_{0,49}\text{P}$ -Matrix an das GaAs-Substrat verstärkt werden können, für dieses Verhalten sorgen.

Des Weiteren wurde die Feinstrukturaufspaltung für die untersuchten QPe ausgewertet. Wie zuvor (vgl. Abbildung 6.4c) zeigen die QPe eine ausgeprägte Feinstrukturaufspaltung, welche sich durch die starke Verschiebung der Emissionsenergie bei Winkeln von $90 \pm 10^\circ$ bemerkbar macht. Die Auswertung aller 66 Messungen ist in Abbildung 6.9b in Form eines Balkendiagramms dargestellt. Es ergibt sich im Mittel eine Feinstrukturaufspaltung von $\Delta_{FSS}^{Mittel} = 300 \pm 130 \mu\text{eV}$, wobei eine maximale von etwa $600 \mu\text{eV}$ und eine minimale Aufspaltung von $50 \mu\text{eV}$ festgestellt wurde. Diese Ergebnisse sind vergleichbar mit den Werten, die von Sugisaki et al. berichtet wurden [Sug99]. Außerdem wurden bei diesen

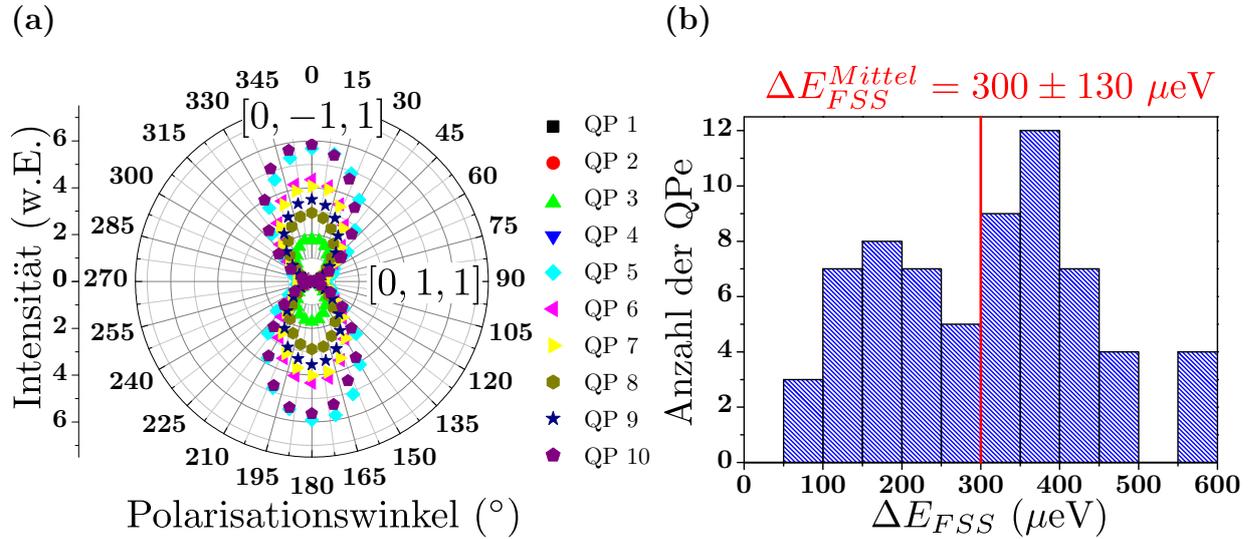


Abbildung 6.9.: (a) Abstrahlcharakteristik der Exzitonemission von 10 verschiedenen QPen. Alle weisen eine starke lineare Polarisation in der $[0, -1, 1]$ -Richtung auf, wobei der Grad der Polarisation im Mittel $p_{Mittel} = 93_{-9}^{+7} \%$ beträgt. Die Ursache liegt in lokalen Ordnungsphänomenen in der GaInP-Matrix begründet [Ren99, Sug00]. (b) Verteilung der Feinstrukturaufspaltung für 66 verschiedene QPe. Alle gemessenen Werte liegen zwischen $50 \mu\text{eV}$ und $600 \mu\text{eV}$ und im Mittel bei $\Delta E_{FSS}^{Mittel} = 300 \pm 130 \mu\text{eV}$.

Messungen Linienbreiten von $180 - 600 \mu\text{eV}$ beobachtet, welche im Einklang mit denen von Baumann et al. sind [Bau12a]. Diese großen Linienbreiten in Zusammenhang mit der starken Linearpolarisation setzen eine Grenze für die exakt extrahierbare Feinstrukturaufspaltung. So steigt der Fehler deutlich über 10% an, wenn die Aufspaltung kleiner als $90 \mu\text{eV}$ und ein Polarisationsgrad von 93% sowie die kleinste gemessenen Linienbreite von $180 \mu\text{eV}$ berücksichtigt wird.⁸ Die großen ermittelten Werte für die Feinstrukturaufspaltung können nur durch eine stark anisotrope Quantenpunktform begründet werden (vgl. Abschnitt 2.1.3 und [Sug99]). Da Strukturuntersuchungen an unüberwachten QPen symmetrische Quantenpunktformen aufzeigten [Bau12b], muss der Formübergang während des Überwachungsprozesses stattgefunden haben.

⁸Der Fehler ergibt sich aus der Anpassung eines Lorentzprofils an die Superposition einer theoretisch vorgegebenen H- und V-Mode mit einer Linienbreite von $180 \mu\text{eV}$ und einem Polarisationsgrad von 93%. Nur bei exakter Übereinstimmung des Polarisationswinkels mit der H- und V-Mode lässt sich die Feinstruktur sicher ermitteln. Schon bei wenigen Grad Unterschied erhöht sich der Fehler drastisch (abhängig von Linienbreite und Polarisationsgrad).

6.6. Zusammenfassung des Kapitels

In diesem Kapitel wurden die optischen Eigenschaften von positionierten InP/GaInP-Quantenpunkten spektroskopisch untersucht. Dabei wurde ein außergewöhnlich hoher Polarisationsgrad der Quantenemitter festgestellt und zum ersten Mal der kaskadierte Zerfall der Biexziton-Exziton-Kaskade in diesen Strukturen nachgewiesen.

Nachdem kurz auf die Herstellungsmethode der positionierten InP/GaInP-QPe eingegangen wurde, widmete sich der nächste Abschnitt der grundlegenden Spektroskopie eines einzelnen QPes. Zwei dominante Emissionslinien bestimmten das Spektrum, welche anhand von Leistungs- und Polarisationsserien die Vermutung von exzitonischem und biexzitonischem Zerfall nahe legten. Die polynomiellen Abhängigkeiten von Exziton und Biexziton konnten hierbei zu $m_X = 0,91 \pm 0,05$ bzw. $m_{XX} = 1,59 \pm 0,16$ bestimmt werden, was gut mit vorherigen Messungen an solchen QPen übereinstimmt [Bau12a]. Die polarisationsabhängigen Messungen deckten einen ungewöhnlich hohen Polarisationsgrad von sowohl Exziton und Biexziton von etwa 98% als auch im Mittel über 66 verschiedene QPe von $p_{Mittel} = 93_{-9}^{+7}\%$ auf, dessen Ursache aus lokalen Ordnungsphänomenen in der GaInP-Matrix herrührt [Ren99, Sug00]. Weiterhin lieferten die Polarisationsserien einen Einblick in die Feinstrukturaufspaltung der QPe, welche für den bestimmten QP $\Delta E_{FSS} = 234,5 \pm 3,5 \mu\text{eV}$ und über alle untersuchten $\Delta_{FSS}^{Mittel} = 300 \pm 130 \mu\text{eV}$ ergaben. Solch hohe Werte für die Feinstrukturaufspaltung lassen sich nur durch eine stark anisotrope Quantenpunktform erklären, welche sich während des Überwachungsprozesses vollzieht. Durch Photonen-Autokorrelations- und Kreuzkorrelationsmessungen zweiter Ordnung konnten zum einen der Nachweis für exzitonische $g_{X,entf}^{(2)}(0) = 0,08$ und biexzitonische $g_{XX,entf}^{(2)}(0) = 0,49$ Einzelphotonenemission als auch zum ersten Mal im InP/GaInP-Materialsystem der des kaskadierten Zerfalls der Biexziton-Exziton-Kaskade erbracht werden. Weiterhin konnten durch zeitaufgelöste Spektroskopie exzitonische und biexzitonische Zerfallszeiten im Mittel zu $\tau_X^{Mittel} = 1,13 \pm 0,37 \text{ ns}$ und $\tau_{XX}^{Mittel} = 536 \pm 139 \text{ ps}$ bestimmt werden. Dies und die Tatsache, dass die positionierten InP/GaInP-QPe im roten effizienten Spektralbereich herkömmlicher Si-Einzelphotonendetektoren emittieren, demonstrieren das Potential dieser QPe als nicht-klassische Lichtquellen zum Einsatz in den Gebieten der Quanteninformationstechnik. Der hohe Polarisationsgrad macht sie zudem besonderes interessant für Bereiche wie der Quantenkommunikation, in denen linear polarisierte, einzelne Photonen benötigt werden. Ihr Potential kann durch die Ausnutzung der Licht-Materie-Wechselwirkung in einer Mikroresonatorstruktur weiter erhöht werden und soll im nächsten Kapitel analysiert werden. Allerdings eignen sich die QPe aufgrund

der starken Linearpolarisation und außerdem der hohen Feinstrukturaufspaltung nicht für die Anwendung als Emitter polarisationsverschränkter Photonen (vgl. Abschnitt 2.1.4). Um diese Einschränkung zu umgehen, könnten Verstimmungsmethoden wie die externe Verspannung durch Piezoaktuatoren in Kombination mit einem elektrischen Feld verwendet werden, welche eine Reduzierung der Feinstruktur durch Verminderung der Kristallverspannung bei gleichzeitiger Kontrolle der Emissionswellenlänge über den Stark-Effekt ermöglichen [Tro12]. Weiterhin könnten Methoden, wie sie von Juska et al. entwickelt wurden [Jus13], angewandt werden, um periodische Felder mit rot-emittierenden QPen und verschwindender Feinstrukturaufspaltung zu realisieren. Dabei wird der hohe Grad der Symmetrie eines Halbleiters in $[1,1,1]$ -Kristallrichtung ausgenutzt, der das Wachstum isotroper QPe ermöglicht [Sch09a, Tre12, Jus13].

7. Realisierung einer Einzelphotonenquelle auf Basis einer Tamm-Plasmonen-Struktur

In den vorherigen beiden Kapiteln wurde die Möglichkeit gezeigt, optisch hochwertige Quantenpunkte gezielt an vordefinierten Positionen zu wachsen. Des Weiteren wurde die Emission einzelner Photonen von positionierten InP/GaInP-Quantenpunkten demonstriert. Sie eignen sich besonders für die Herstellung von Quanten-Lichtquellen, da sie im roten sichtbaren Spektralbereich emittieren, in dem kommerzielle Si-Einzelphotonendetektoren die höchste Effizienz aufweisen [Zwi03]. Da die Quantenpunkte jedoch ungerichtet in den Raum abstrahlen und da aufgrund des großen Brechungsindexunterschiedes das Licht durch Totalreflexion im Halbleiter gefangen bleibt, weisen Quantenpunkte in einer Halbleitermatrix lediglich eine maximale externe Quanteneffizienz von rund 3% auf [Bar02]. Damit Einzelphotonenquellen mit einer hohen Repetitionsrate realisiert werden können, ist eine effizientere Extraktion der Photonen unbedingt von Nöten. Deshalb konzentrierten sich in den vergangenen Jahren die Forschungsaktivitäten hauptsächlich auf die Integration von Quantenpunkten in Strukturen wie photonische Kavitäten (vgl. Abschnitt 2.3) oder Wellenleiter wie Nanodrähte, um die Effizienz der spontanen Emissionsrate zu steigern oder die Emission in Leckmoden¹ zu unterdrücken [Mor02, Pel02, Cla10, Dou10, Hei10b, Rei12]. Kürzlich wurde ein neuartiges Konzept vorgestellt, das auf einer Kopplung der Emitter an eine lokalisierte Tamm-Plasmonen-(TP-) Mode in einer hybride Metall/DBR-Struktur beruht. Mit diesem konnte sowohl eine Steigerung der Emissionsrate als auch eine Unterdrückung der Lichtemission von selbstorganisierten InAs/GaAs-Quantenpunkten aufgrund des Purcell-Effekts (siehe auch Abschnitt 2.3.1) demonstriert werden [Gaz11, Gaz12]. Tamm-Plasmonen-Zustände, die

¹Das sind Zustände in denen das Licht unerwünschterweise propagieren kann, wodurch es nicht mehr zur eigentlich Lumineszenz beiträgt und die Effizienz des Bauteils sinkt.

an der Grenzfläche zwischen einem DBR und der Metallschicht entstehen, wurden im Jahr 2007 von Kaliteevski et al. [Kal07] theoretisch vorgestellt und verdanken ihren Namen einer Analogie zu den von I. J. Tamm entdeckten elektronischen Zuständen an einer Kristalloberfläche. Sie gleichen optischen Fabry-Perot-Moden, da sie optisch direkt angeregt und als scharfe Resonanzen in Reflexions- und Transmissionsspektren beobachtet werden können [Sas08]. Die Resonanzfrequenz einer solchen Mode hängt sowohl von der Dicke der Metall- als auch der angrenzenden Halbleiterschicht ab, was eine präzise Einstellung der spektralen Position der Resonanz erlaubt [Kal07, Zho10]. Der laterale Einschluss der Mode wird bereits durch das bloße Aufbringen der Metallschicht einer definierten Größe erwirkt, wodurch eine einfache Bauteilherstellung gewährleistet und zudem die Möglichkeit zur elektrischen Anregung der Quantenpunkte oder die Verstimmbarkeit der Emissionsenergien durch ein elektrische Feld geboten wird.

Dieses Kapitel behandelt nun die Implementierung positionierter InP/GaInP-Quantenpunkte, welche einzelne Photonen im roten sichtbaren Spektralbereich emittierten, in eine hybride Metall/Halbleiter-Struktur und demonstriert die Verstärkung deren spontaner Emissionsrate durch das Koppeln an lokalisierte Tamm-Plasmonen-Moden. In Abschnitt 7.1 wird zu Beginn auf den Aufbau der Probe und die Tamm-Plasmonen-Zustände eingegangen. Es folgt in Abschnitt 7.2 eine ausführliche spektroskopische Analyse eines positionierten Quantenpunktes in einer planaren Tamm-Plasmonen-Struktur in Hinsicht auf Exziton-, Biexziton- sowie Trionemission samt zugehörigen Photonen-Korrelationen. Daraufhin wird in Abschnitt 7.3 mittels einer Temperaturserie die Verstärkung der spontanen Emissionsrate eines positionierten Quantenpunktes durch die Kopplung an eine lokalisierte Tamm-Plasmonen-Mode demonstriert bevor in Abschnitt 7.4 die Effizienz einer solchen Einzelphotonenquelle ermittelt wird. In Abschnitt 7.5 wird dann die spontane Emissionsrate in den Tamm-Plasmonen-Strukturen hinsichtlich auf Resonatoreffekte untersucht. Das Kapitel schließt mit einer Zusammenfassung.

7.1. Probenstruktur und Tamm-Plasmonen-Zustände

Der schematische Probenaufbau ist in Abbildung 7.1 dargestellt. Bevor die positionierten InP/GaInP-QPe gewachsen werden können, muss die DBR-Struktur gebildet werden (vgl. Abschnitt 2.3). Dazu wird auf Si-dotiertes GaAs-Substrat zunächst die 100 nm dicke GaAs-Pufferschicht aufgebracht, an die sich ein „Schmutzfänger“ aus insgesamt 10 GaAs/AlGaAs-Schichtpaaren mit einer Dicke von jeweils 5 nm und einer dazwischen-

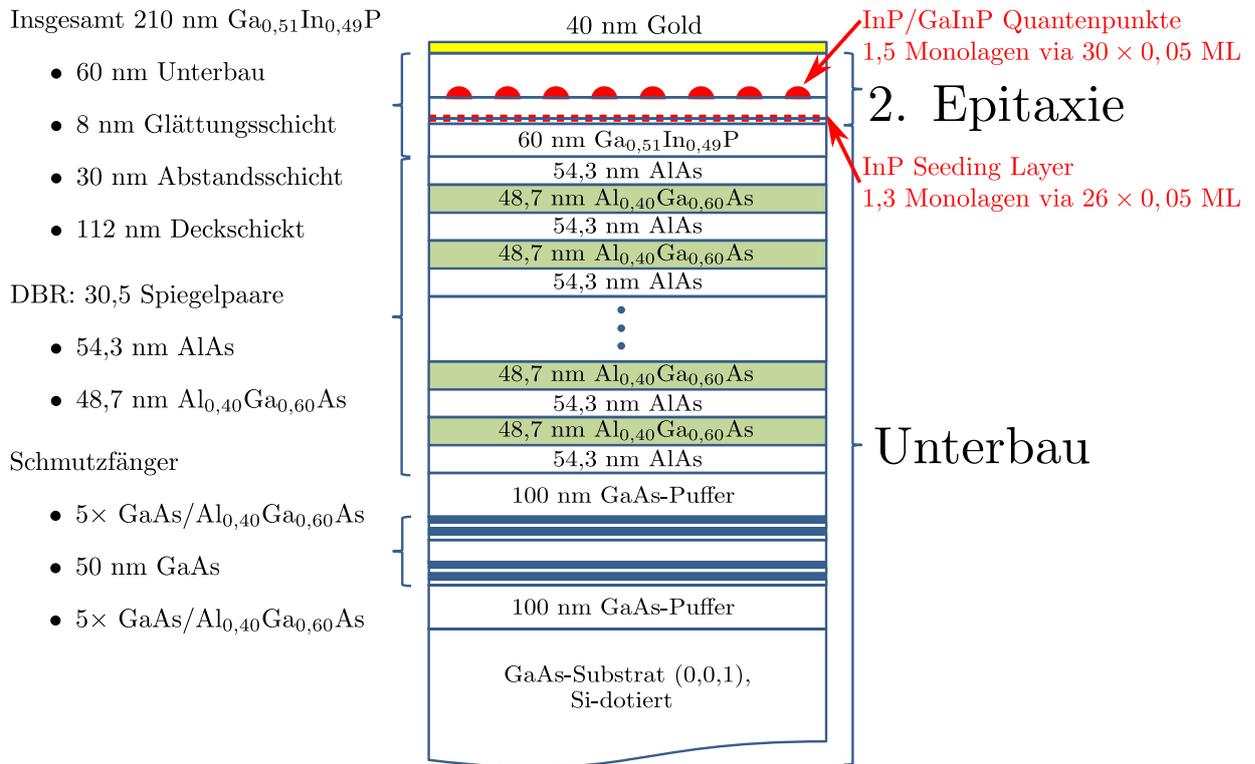


Abbildung 7.1.: Schematischer Aufbau der untersuchten Tamm-Plasmonen-Struktur. Zunächst wird der Unterbau gewachsen, der als wesentlichen Bestandteil den DBR enthält. Daraufhin können die QPe analog des Vorgangs aus Abschnitt 6.1 abgeschieden werden (Überwachsen). Abschließend vervollständigt eine 40 nm dicke Goldschicht die TP-Struktur.

liegenden, 50 nm breiten GaAs-Schicht anschließt. Es folgt abermals eine 100 nm dicke GaAs-Pufferschicht. Jetzt beginnt das eigentliche Wachstum der DBR-Struktur. Der DBR besteht aus 30,5 Spiegelpaaren, welche sich aus einer 53,3 nm dicken Schicht AlAs und einer 48,7 nm dicken Schicht $\text{Al}_{0,40}\text{Ga}_{0,60}\text{As}$ zusammensetzen. Dabei erfüllt jede Schicht der Dicke d_{Bragg} mit Brechungsindex n die Braggbedingung $d_{\text{Bragg}} = \lambda_{\text{Bragg}}/4n$ für die gewünschte Resonanzwellenlänge. Die Einhaltung dieser Bedingung sorgt dafür, dass alle an den Grenzflächen der Spiegelpaare reflektierten Teilstrahlen konstruktiv interferieren und somit für eine sehr hohe Gesamtrefektivität sorgen, welche von der Anzahl der Paare abhängt. Für den hier verwendeten DBR lässt sich durch eine Transfer-Matrix-Methode die Reflektivität zu über 99,9% abschätzen. Der Wellenlängenbereich, in welchem der DBR eine sehr hohe Reflektivität aufweist, wird als Stopband bezeichnet und ergibt sich hier zu etwa 45 nm. Nach der DBR-Struktur können die positionierten InP/GaInP-QPe als aktive Schicht gewachsen werden. Dieser Schritt läuft analog zu dem bereits aus Abschnitt 6.1

bekanntes ab. Lediglich die einzelnen Schichtdicken, welche Abbildung 7.1 entnommen werden können, müssen angepasst werden, damit die gewünschte Resonanzwellenlänge λ_C erreicht wird (siehe folgenden Unterabschnitt). Die QPe werden dann mit einer 112 nm dicken $\text{Ga}_{0,51}\text{In}_{0,49}\text{P}$ -Schicht versiegelt und die TP-Struktur durch das Aufdampfen von 40 nm Gold abgeschlossen. Um für einen lateralen Einschluss der photonischen Mode zu sorgen, wird das Gold nicht planar aufgedampft, sondern es werden mit Hilfe von Elektronenstrahl-Lithographie und einem Lift-Off-Prozess kreisrunde Goldscheiben mit verschiedenen Durchmessern von 1 μm bis 10 μm auf der Probenoberfläche definiert (vgl. Abbildung 7.8a).

7.1.1. Tamm-Plasmonen-Zustände

Damit lokalisierte Tamm-Plasmonen-Zustände an einer Metall/Halbleiter-Grenzfläche entstehen, muss für die Reflexionskoeffizienten der Metallschicht r_M und der DBR-Struktur r_{DBR} die Bedingung

$$r_M r_{DBR} = 1 \quad (7.1)$$

erfüllt sein, wobei r_{DBR} durch die Transfer-Matrix-Methode und $r_M = n_C^{-n_M}/n_C^{+n_M}$ über das Drude-Modell mit $n_M = \epsilon_b \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega+i\gamma)}\right)$ bezogen auf die Kreisfrequenz ω des Photons ermittelt werden [Kal07]. Hier entspricht ϵ_b der Hintergrunds-Dielektrizitätskonstanten, ω_p der Plasmafrequenz und γ der Plasma-Kollisionsrate. Dies gilt aber nur für eine Struktur, deren Kavität die Dicke $d_C = \lambda/n_C$ hat und einen Brechungsindex n_C wie die letzte DBR-Schicht besitzt. In der hier verwendeten Probenstruktur besteht die Kavität allerdings aus $\text{Ga}_{0,51}\text{In}_{0,49}\text{P}$ und die letzte DBR-Schicht aus AlAs, weshalb für die Beobachtung von TP-Moden folgende Bedingung an die Dicke d_C gestellt werden muss [Zho10]:

$$d_C = d_0 + N \frac{\lambda}{2n_C} . \quad (7.2)$$

Hier entspricht d_0 dem minimalen Wert von d_C , bei dem TP-Moden auftreten, und N einer natürlichen Zahl. In Abbildung 7.2 ist die Simulation² der Reflektivität $R(\lambda, d_C)$ einer planaren TP-Struktur in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ und der Kavitätstiefe d_C bei senkrechtem Lichteinfall dargestellt. Auch die Dicke der Goldschicht beeinflusst die Lage der TP-Mode, wurde aber in der Simulation fest auf 40 nm eingestellt, wie es für die hier untersuchte Probe der Fall ist. Wie zu erwarten steigt mit zunehmenden d_C die spektrale

²Die Simulation wurde mit einer Transfer-Matrix-Methode von Herrn V. Baumann durchgeführt.

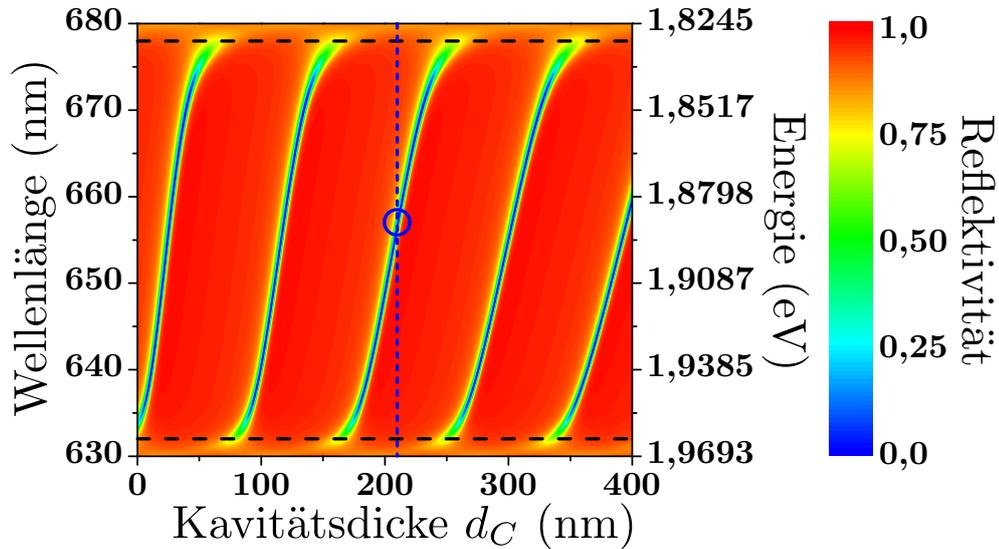


Abbildung 7.2.: Simulierte Reflexionskarte $R(\lambda, d_C)$ einer planaren TP-Struktur in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ und der Kavitätsdicke d_C bei einer 40 nm dicken Goldschicht und senkrechten Lichteinfall. Die schwarzen unterbrochenen Linien deuten das Stoppband des ursprünglichen DBR-Spiegels an. Die Resonanz bei der hier verwendeten Kavitätsdicke (blaue unterbrochene Linie) wird durch den blauen Kreis markiert.

Position der Reflexionsminima und es ist zu erkennen, dass im Bereich des Stoppbandes (etwa 632 nm bis 678 nm und angedeutet durch die schwarzen unterbrochenen Linien) erste TP-Moden bereits bei sehr geringen Schichtdicken anschwingen. Solche Kavitätsausdehnungen können aufgrund der Herstellungsmethode der positionierten InP/GaInP-QPe jedoch nicht erzielt werden. Für die hier verwendete Struktur mit einer Kavitätsdicke von insgesamt $d_C = 210$ nm (vgl. Abbildung 7.1) wird die Resonanzwellenlänge bei $\lambda_C = 657$ nm getroffen (blauer Kreis). Weiterhin ist aus Abbildung 7.2 ersichtlich, dass die spektrale Lage der Reflexionsminima mit zunehmender Schichtdicke weniger stark von dieser abhängt. Dies hat zur Folge, dass für sehr breite Kavitäten sogar mehrere Moden anschwingen können (hier nicht gezeigt).

Abbildung 7.3a zeigt den Verlauf des nominellen Brechungsindex (schwarz) durch den wesentlichen Teil der TP-Struktur zusammen mit dem nach der Transfer-Matrix-Methode berechneten Betragsquadrat des elektrischen Feldes für eine planare Struktur (blau). Die rote Linie deutet die Lage der Quantenpunktschicht an. Es ist deutlich der photonische Einschluss des Lichtfeldes anhand des exponentiellen Abfalls des Feldes in dem DBR-Spiegel und dem drastischen Abfall an der Goldschicht zu erkennen. Die lediglich 40 nm dicke

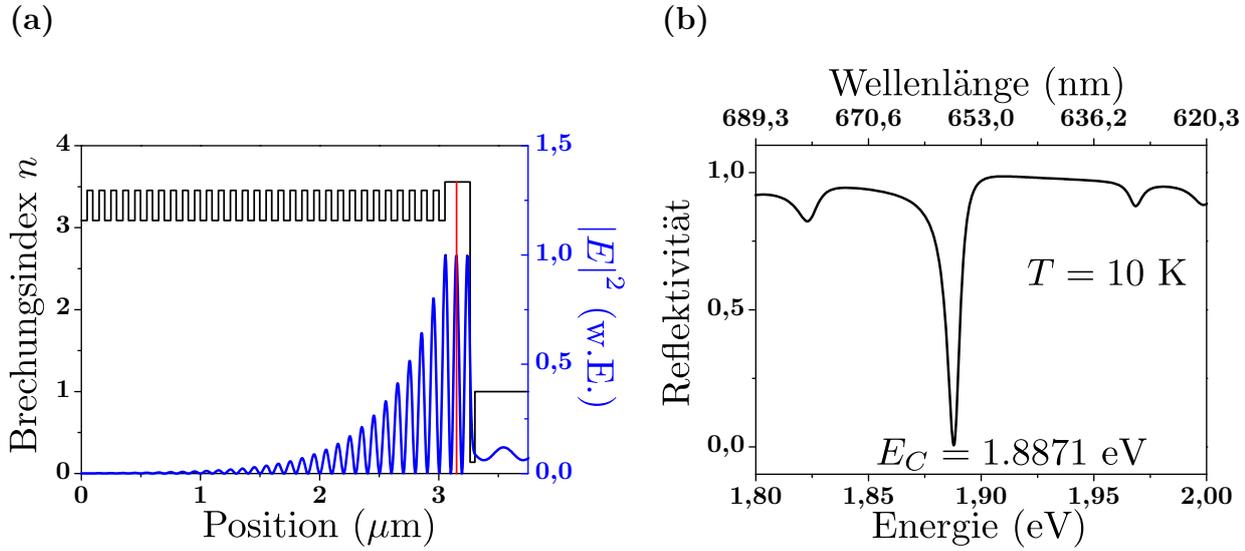


Abbildung 7.3.: (a) Brechungsindex-Profil (schwarz) der hier untersuchten TP-Struktur und das mittels der Transfer-Matrix-Methode berechnete Betragsquadrat des elektrischen Feldes (blau) für eine planare Struktur mit einer 40 nm dicken Goldschicht. Die rote Linie deutet die Lage der Quantenpunktschicht an, welche sich am Ort des maximalen elektrischen Feldes befindet. Der Verlauf des elektrischen Feldes zeigt den erzielten photonischen Einschluss. (b) Simuliertes Reflexionsspektrum bei einer Temperatur von 10 K. Bei einer Energie von 1.8871 eV ist ein deutlicher Einbruch der Reflektivität zu erkennen, der als TP-Mode zu identifizieren ist (vgl. Abbildung 7.2).

Goldschicht erlaubt dabei, dass ein Teil des Lichtes ausgekoppelt werden kann. An der Berechnung lässt sich außerdem die Position der aktiven Schicht begründen. Die einzelnen Schichten wurde so gewachsen, dass die QPe (angedeutet durch die rote Linie) im Maximum des elektrischen Feldes liegen und damit die höchste Licht-Materie-Wechselwirkung erzielen können. Weiterhin wird dadurch sichergestellt, dass die TP-Mode im Bereich der Quantenpunktemission, zwischen 650 nm und 710 nm [Bau12b], liegt. Dies wird durch das mit der Transfer-Matrix-Methode berechnete Reflexionsspektrum bei einer Temperatur von 10 K in Abbildung 7.3b bestätigt, wobei ein Brechungsindex für Gold von $n_{Au} = 0,147 + i3,65$ verwendet wurde [Joh72]. Das Reflexionsspektrum weist einen ausgeprägten Einbruch bei einer Wellenlänge von $\lambda_C = 657$ nm bzw. einer Energie von $E_C = 1.8871$ eV auf, welcher als TP-Mode identifiziert werden kann. Die TP-Mode besitzt einen Q-Faktor von $E_C/\gamma_C \approx 280$ (vgl. Abschnitt 2.3). Zudem ist deutlich das durch den DBR hervorgerufene Stoppband zwischen etwa 632 nm und 678 nm zu sehen (Bereich mit Reflektivität $\approx 100\%$).

7.2. Spektroskopie an einem positionierten InP/GaInP-Quantenpunkt in einer planaren Tamm-Plasmonen-Struktur

Bevor nun an eine lateral eingeschlossene Tamm-Plasmonen-Mode gekoppelte positionierte InP/GaInP-Quantenpunkte analysiert werden, soll in diesem Abschnitt eine Probe mit positionierten Quantenpunkten und einer flächendeckenden 50 nm Goldschicht spektroskopisch untersucht werden. Dazu wurde die Leistungsabhängigkeit, die Polarisation und die Korrelation der einzelnen Emissionslinien diskutiert.

Die μ PL-Untersuchungen werden an dem Standard-Messaufbau aus Abschnitt 3.1 mit dem Nd:YAG-Laser, dem 50-fach Mikroskopobjektiv und dem Gitter mit 1200 Strichen/mm bei einer Temperatur von 9,3 K durchgeführt. In Abbildung 7.4a ist ein Übersichtsspektrum bei einer Anregungsleistung von 7,1 μ W gezeigt. Die im Vergleich zu Abbildung 6.2 erhöhte Zahl der Emissionslinien liegt darin begründet, dass in dem untersuchten Quantenpunktfeld der Abstand der Nukleationslöcher nominell 0,50 μ m anstatt 1,25 μ m beträgt und somit mehr QPe durch den Laser angeregt werden können. Bei einer Energie von 1,9071 eV sticht eine dominante Emissionslinie ins Auge, welche dem Zerfall eines Exzitons zuzuordnen ist und bereits vermuten lässt, dass die Intensität der Emission durch die Kopplung an eine planare TP-Mode erhöht wurde. Die Resonanzenergie/-wellenlänge der TP-Mode liegt bei etwa 1,9074 eV bzw. 650 nm und fällt damit mit der Exzitonenergie zusammen.³ Der Unterschied zur Resonanzwellenlänge von 657 nm aus dem vorherigen Abschnitt wird durch die 10 nm dickere Goldschicht hervorgerufen, was eine Blauverschiebung der Mode verursacht [Bra09]. In dem vergrößerten Bereich in Abbildung 7.4a ist die Linie des zugehörigen Biexzitons bei 1,9027 eV und sogar eines Trions bei 1,9022 eV zu erkennen. Die eindeutige Zuordnung wird im Verlauf dieses Kapitels erörtert. Bei dem Trion handelt es sich aufgrund der positiven Bindungsenergie von 4,50 meV vermutlich um ein negativ geladenes (X^-). Solche geladenen Zustände sind aufgrund des intrinsischen Drehimpulses der überschüssigen Ladungsträger besonders interessant als Informationsträger in Quantencomputern [Lad10, Pre10]. Die Bindungsenergie des Biexzitons liegt bei 4,43 meV und ist damit mit der aus Abschnitt 6.2 vergleichbar. Die niedrigen Linienbreiten von $\gamma_X = 97,7 \pm 1,8 \mu\text{eV}$, $\gamma_{XX} = 97,6 \pm 16,7 \mu\text{eV}$ und $\gamma_{X^-} = 84,7 \pm 2,0 \mu\text{eV}$ liegen unterhalb

³Die Lage der TP-Mode wurde durch die Aufnahme eines Reflexionsspektrums ermittelt. Dazu wird das Licht einer thermischen Quelle auf die Probenoberfläche projiziert, das reflektierte Signal durch das Objektiv aufgesammelt und im Monochromator analysiert.

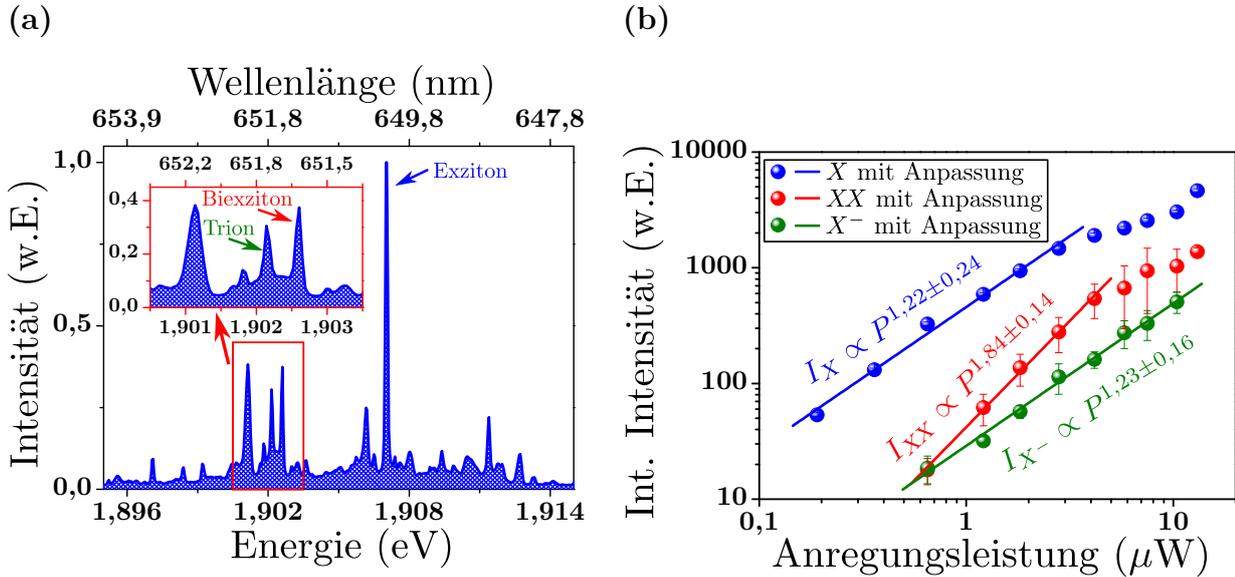


Abbildung 7.4.: (a) Übersichtsspektrum bei einer Anregungsleistung von $7,1 \mu\text{W}$ und einer Temperatur von $9,3 \text{K}$. Im Spektrum sind Exziton-, Biexziton- und Trionemission eines QPes gekennzeichnet. (b) Integrierte Intensitäten der drei in (a) markierten Linien gegen die Anregungsleistung aufgetragen in doppelt-logarithmischer Darstellung. Die Abhängigkeiten der Emissionsintensitäten der jeweiligen Teilchen von der Leistung entsprechen in etwa den zu erwarteten Werten.

derer, welche in Abschnitt 6.2 ermittelt wurden, und sind vergleichbar mit denen von Baumann et al. [Bau12a]. Wie bekannt, kann mittels einer Leistungsserie ein erstes Indiz für die Zuordnung der Emissionslinien gefunden werden. Der leistungsabhängige Verlauf der integrierten Intensität der jeweiligen Emissionslinien ist daher in Abbildung 7.4b doppelt-logarithmisch von $0,19 \mu\text{W}$ bis $10,41 \mu\text{W}$ dargestellt und mit einer linearen Funktion angepasst worden. Die Steigungen lassen sich dadurch zu $m_X = 1,22 \pm 0,24$, $m_{XX} = 1,84 \pm 0,14$ und $m_{X^-} = 1,22 \pm 0,16$ ermitteln. Wie in Abschnitt 6.2 zeigt das Biexziton ein deutliches superlineares und das Exziton ein etwa lineares Verhalten. Auch die Intensität des Trions weist einen linearen und dem Exziton sehr ähnlichen Verlauf auf, was nach der Theorie zu erwarten ist [Fin01]. Durch die leistungsabhängigen Messungen kann zwar zwischen dem Biexziton als Zweiteilchenkomplex und dem Exziton bzw. Trion, aber nicht zwischen den beiden Einteilchenkomplexen unterschieden werden. Eine Unterscheidung zwischen Exziton und Trion kann durch die Messung der Polarisierung erfolgen. In Abbildung 7.5a ist die energetische Position der Emissionslinie aller drei Teilchen gegen den Polarisationswinkel aufgetragen. Die Messung wurde analog zu

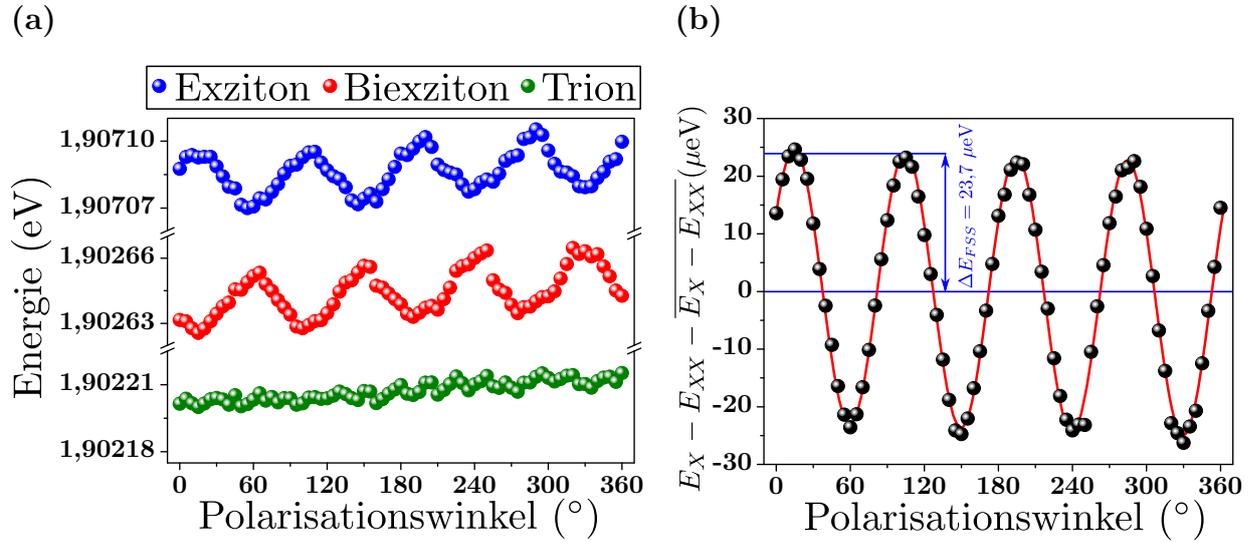


Abbildung 7.5.: (a) Energetische Positionen der Emissionslinien der in Abbildung 7.11a gezeigten Teilchen in Abhängigkeit des Polarisationswinkels. Wie zu erwarten zeigen Exziton und Biexziton ein gegenläufiges sinusförmiges Verhalten, während für die Emission des Trions keine Feinstrukturaufspaltung beobachtbar ist. (b) Differenz der energetischen Positionen von Exziton und Biexziton abzüglich der mittleren Bindungsenergie gegen den Polarisationswinkel aufgetragen. Eine sinusförmige Anpassung liefert eine Feinstrukturaufspaltung von $\Delta E_{FSS} = 23,7 \pm 0,5 \mu\text{eV}$.

Abschnitt 6.2 durchgeführt. Wie erwartet zeigen Exziton und Biexziton ein gegenphasiges Verhalten mit einer deutlichen Feinstrukturaufspaltung. Bei dem Trion dagegen ist keine Aufspaltung feststellbar, was in der Spin-Singulett-Konfiguration der beiden Elektronen begründet liegt (vgl. Abschnitt 2.1.3). Die beobachteten statistischen Schwankungen werden durch spektrale Diffusion verursacht [Tür00, Rod05]. Dies ist das erste, aber aufgrund der Möglichkeit einer verschwindenden Feinstruktur nicht eindeutige, Indiz für ein geladenes Exziton. Weiterhin ist bei allen Verläufen ein leichter linearer Anstieg zu verzeichnen, dessen Ursache in einer möglichen Temperaturerniedrigung während der Messung liegen kann. Um den Einfluss dieser systematisches Abweichung bei der Ermittlung der Feinstrukturaufspaltung von Exziton und Biexziton zu minimieren, wird die Differenz der Energiepositionen beider Teilchen gebildet, die mittlere Bindungsenergie $\overline{E_X - E_{XX}}$ davon abgezogen und erneut gegen den Polarisationswinkel aufgetragen. Der daraus erhaltene Verlauf ist in Abbildung 7.5b dargestellt. Im Gegensatz zu Abbildung 6.4c ist hier ein deutliches sinusförmiges Verhalten erkennbar und es ergibt sich aus der

Anpassung eine Feinstrukturaufspaltung von $\Delta E_{FSS} = 23,7 \pm 0,5 \mu\text{eV}$. Außerdem lässt sich durch die Polarisationsserie ein Polarisationsgrad von etwa $p = 23\%$ in $[0, -1, 1]$ -Richtung feststellen. Beide Werte liegen deutlich unterhalb der zuvor in Abschnitt 6.5 für positionierte InP/GaInP-QPe im Mittel von $p_{Mittel} = 93_{-9}^{+7}\%$ und $\Delta_{FSS}^{Mittel} = 300 \pm 130 \mu\text{eV}$ bestimmten. Dies lässt vermuten, dass während des Herstellungsprozesses dieser Probe im Vergleich zu der aus dem vorherigen Kapitel geänderte Wachstumstemperaturen und Flussraten für geringere Verspannungen in der $\text{Ga}_{0,51}\text{In}_{0,49}\text{P}$ -Matrix und damit für ein isotropes Quantenpunktwachstum sorgen (vgl. Abschnitt 6.5). Eine weitere Folge können weniger stark ausgeprägte Ordnungsphänomene in der Matrix sein. Beides führt zu einem niedrigeren Polarisationsgrad und einer reduzierten Feinstruktur. Dennoch liegt die Feinstrukturaufspaltung deutlich über der homogenen Linienbreite von wenigen μeV der Quantenpunktemission, wodurch keine Effekte der quantenmechanischen Verschränkung zu erwarten sind [You06, Hud07] (vgl. Abschnitt 2.1.4).

7.2.1. Photonen-Korrelationsmessungen zweiter Ordnung an einem geladenen Quantenpunkt

Um nun alle drei Teilchen endgültig identifizieren zu können, wurden Photonen-Korrelationsmessungen zweiter Ordnung zwischen allen Emissionslinien durchgeführt (vgl. Abbildung 7.4a). Selbst die Autokorrelationsmessungen wurden dabei an dem Messplatz aus Abschnitt 3.3 vorgenommen, um einen ständigen Umbau zu umgehen. Für die Photonen-Autokorrelationsmessung zweiter Ordnung wird dann an beiden Monochromatoren die gleiche Emissionslinie selektiert. Die Temperatur betrug bei der Messung 7,9 K und der QP wurde mit einer Leistung von 7,1 μW angeregt. Zur Aufnahme der Koinzidenzen werden die APDs mit einer Zeitauflösung von $t_{res} = 700 \text{ ps}$ verwendet. Alle Korrelationsmessungen sind in Abbildung 7.6 dargestellt. Eine Beschreibung der Verläufe mit dem bekannten 3-Niveau-Modell aus Abschnitt 2.2 ist in diesem Fall nicht mehr möglich, da zwei weitere Zustände unberücksichtigt bleiben. Aufgrund des Trions müssen zusätzlich der Zustand des geladenen Exzitons und der Zustand, bei dem sich lediglich ein Ladungsträger im QP befindet, einkalkuliert werden. Weiterhin muss mindestens eine weitere Zeitkonstante eingeführt werden, welche die Charakteristik des einzelnen Ladungsträgers beschreibt. Eine ausführliche Auswertung der Ratengleichungen verschiedenster Mehrteilchenkomplexe (es wird zwischen positiv und negativ geladenem Exziton unterschieden sowie ein positiv geladenes Biexziton betrachtet) wird zum Beispiel von Baier et al. diskutiert [Bai06]. Die Betrachtung der neuen Zustände und Zeitkonstanten

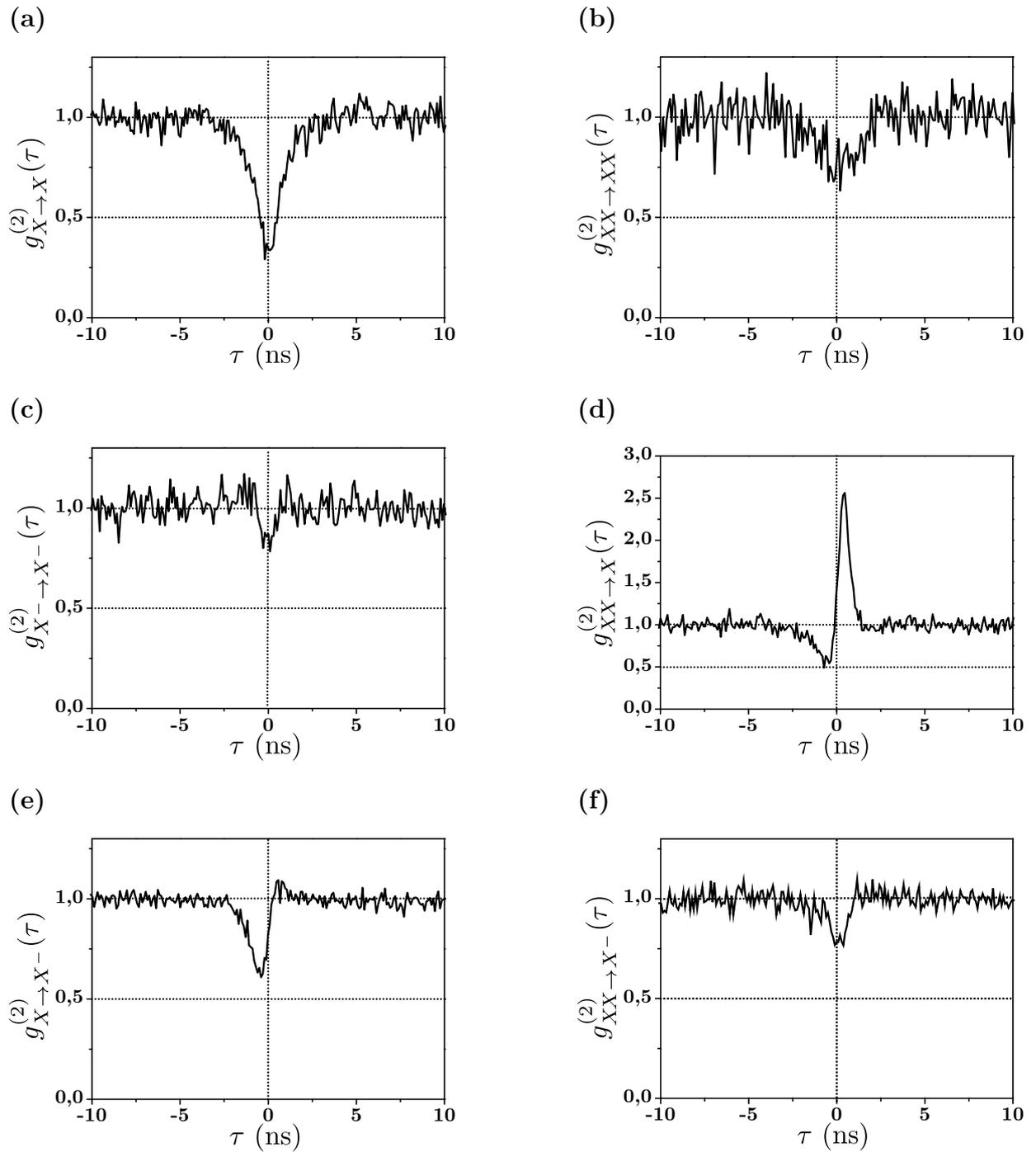


Abbildung 7.6.: Photonen-Autokorrelationsmessungen von (a) Exziton, (b) Biexziton und (c) negativ geladenem Trion sowie Kreuzkorrelationsmessungen zweiter Ordnung zwischen (d) Exziton und Biexziton, (e) Exziton und Trion und (f) Biexziton und Trion. Eine detaillierte Beschreibung der Verläufe wird im Text gegeben.

führt bei einer Anpassung zu weiteren freien Parametern, wodurch die Anpassung nur bei bekannten Lebensdauern der Teilchen sinnvoll wäre. Der qualitative Verlauf reicht jedoch für eine Diskussion und Identifizierung der Teilchen völlig aus. Zur Vollständigkeit ist die Betrachtung eines vereinfachten 5-Niveau-Modells anhand eines negativen Trions in Abbildung 7.7 gezeigt. Hierbei beschreiben τ_X die Lebenszeit des Trions und τ_e die Einfangzeit eines Elektrons bzw. eines Lochs. Die beobachteten Korrelationsmessungen lassen nun folgende Erkenntnisse zu und belegen damit die korrekte Zuordnung der einzelnen Teilchen aus ein und demselben QP:

- **Photonen-Autokorrelationsmessungen zweiter Ordnung des Exzitons (Abbildung 7.6a), des Biexzitons (Abbildung 7.6b) und des Trions (Abbildung 7.6c):**

Die Autokorrelationsmessungen an allen drei Zerfallskanälen zeigen ein deutliches Antibunching und damit nicht-klassisches Verhalten der dabei emittierten Photonen. Hierbei zeigt die Emission des Exzitons auch ohne eine Entfaltung der Ergebnisse klaren Einzelphotonencharakter. Für sowohl Biexziton als auch Trion ist lediglich eine Unterdrückung der Multiphotonenemissionsprozesse zu erkennen, was unter anderem durch das im Verhältnis größere Hintergrundsignal für beide Emissionslinien (vgl. Abbildung 7.4a) hervorgerufen wird. Eine Berücksichtigung der Zeitauflösung von $t_{res} = 700$ ps würde vermutlich für beide Teilchen einen $g^{(2)}(0)$ -Wert unterhalb der Multiphotonenemissionsgrenze von 0,5 liefern.

- **Photonen-Kreuzkorrelation zweiter Ordnung zwischen Exziton und Biexziton (Abbildung 7.6d):**

Der beobachtete Verlauf, bestehend aus einem Antibunching für negative sowie einem Bunching für positive Verzögerungszeiten, demonstriert eindeutig den kaskadierten Zerfall von Biexziton und Exziton (vgl. Abschnitt 6.3). Der Prozess kann auch über das 5-Niveau-Modell aus Abbildung 7.7 erläutert werden. Da sich der QP nach der Emission des Exzitons im Grundzustand (G) befindet und der Biexziton-Zustand erst nach einer gewissen Zeit präpariert wird, kommt es zu dem charakteristischen Antibunching auf der negativen Zeitachse. Die Anregungsdauer von Grundzustand G zum XX -Zustand beträgt in diesem einfachen Modell entweder $2\tau_E$ (also über den Exzitonzustand), $\tau_E + 2\tau_e$ (über G^- und X^-) oder $4\tau_e$ (über G^- , X und X^-). Da während dieser Anregungspfade auch andere strahlende Übergänge möglich sind, ist die Wahrscheinlichkeit des Biexzitonzerfalls nach dem Aussenden eines exzitonischen Photons stark unterdrückt. Das Bunching für die positive Zeitachse

kann, wie bekannt, dadurch erklärt werden, dass der Zerfall eines Biexzitons direkt die Präparation des Exzitonzustandes bewirkt.

- **Photonen-Kreuzkorrelation zweiter Ordnung zwischen Exziton und Trion (Abbildung 7.6e):**

Bei dieser Messung startet auf der negativen Zeitskala das Exziton die Messung, während das Trion diese stoppt. Der QP befindet sich nach dem Zerfall des Exzitons im Grundzustand, weshalb für diese Emissionsabfolge ein Antibunching beobachtet wird. Das Antibunching demonstriert außerdem, dass beide Emissionslinien demselben QP entstammen. Ist die Reihenfolge der Start-Stopp-Messung umgekehrt und gibt das Trion den Startimpuls, existiert eine gewisse Wahrscheinlichkeit, dass der QP ein Loch einfängt und von dem G^- -Zustand in den Exzitonzustand übergeht, welcher daraufhin strahlend zerfällt. Dies äußert sich in einem leichten Bunching für positive Verzögerungszeiten.

- **Photonen-Kreuzkorrelation zweiter Ordnung zwischen Biexziton und Trion (Abbildung 7.6f):**

Für diese Kreuzkorrelationsmessung, bei der für negative Zeiten das Trion und für positive das Biexziton den Start-Impuls vorgibt, ist auf beiden Zeitachsen ein Antibunching-Verhalten beobachtbar. Dies lässt darauf schließen, dass nach dem Zerfall eines bestimmten Zustandes, die Emission aus dem jeweils anderen Zustand unterdrückt ist und daher beide Teilchen im selben QP lokalisiert sind. Der beobachtete Verlauf deutet offensichtlich darauf hin, dass die Wahl der selben Zeitkonstante τ_e für den Übergang eines neutralen in ein geladenes Exziton und umgekehrt nicht angemessen ist [San04], da sonst für die Abbildungen 7.6e und 7.6f identisches Verhalten zu erwarten wäre. Das völlige Fehlen einer Erhöhung lässt darauf schließen, dass es deutlich wahrscheinlicher ist, nach der Emission eines Biexzitons den strahlenden Übergang eines Exzitons in den Grundzustand zu beobachten, als das der QP einen freien Ladungsträger einfängt [Bai06]. Da die negative Zeitachse die Wahrscheinlichkeit nach dem Trion das Biexziton zu detektieren widerspiegelt, zeigt die etwas flachere Flanke, dass der Biexzitonzustand langsamer präpariert wird als das Trion. Dies scheint logisch, wenn man die Anzahl der benötigten Ladungsträger berücksichtigt.

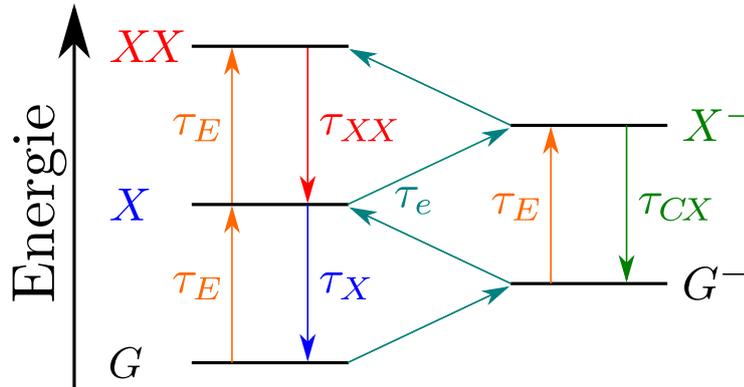


Abbildung 7.7.: Schematische Darstellung eines vereinfachten 5-Niveau-Systems zur qualitativen Beschreibung der in Abbildung 7.6 gezeigten Photonen-Korrelationsmessungen. Das in Abschnitt 2.2 beschriebene 3-Niveau-System wird um einen negativ geladenen Grundzustand G^- , einen Trionzustand X^- und eine charakteristische Zeitkonstante τ_e , die den Einfang einzelner Elektronen bzw. Löcher beschreibt, erweitert.

7.3. Verstärkung der spontanen Emissionsrate eines positionierten InP/GaInP-Quantenpunktes

Im vorherigen Abschnitt wurde ein positionierter InP/GaInP-Quantenpunkt in einer planaren Tamm-Plasmonen-Struktur untersucht und damit das Potential dieser Struktur demonstriert. Folgend sollen weiterführende Analysen durchgeführt und damit unter anderem die Auswirkung der Kopplung der Quantenpunkte an eine lokalisierte Tamm-Plasmonen-Mode auf die Emissionscharakteristiken gezeigt werden.

Zunächst wird daher der Einfluss der lokalisierten TP-Struktur auf die Emission der QPe im Gesamten betrachtet. Abbildung 7.8a zeigt eine REM-Aufnahme der Probenoberfläche der in Abschnitt 7.1 vorgestellten Struktur, auf welcher 40 nm dicke Goldscheiben mit Durchmessern im Bereich von $1\ \mu\text{m}$ bis $10\ \mu\text{m}$ zu sehen sind. Um eine entsprechende ortsaufgelöste Lumineszenzkarte der Probe zu bekommen, wurden an dem Messplatz aus Abschnitt 3.1 bei einer Temperatur von 6 K Spektren über eine Gesamtfläche von $32,5 \times 32,5\ \mu\text{m}^2$ mit einem $0,5\ \mu\text{m}$ Raster aufgenommen. Dazu wurde der Nd:YAG-Laser mit einer Leistung von 750 nW durch das 20-fach Mikroskopobjektiv ($\text{NA} = 0,40$) auf die Probe fokussiert und das Lumineszenzsignal durch das Gitter mit 1500 Strichen/mm spektral zerlegt. Abbildung 7.8b zeigt die aus den einzelnen Spektren zusammengestellte μPL -Karte in Falschfarbendarstellung. Die aufgetragene Intensität wurde in einem 6 nm Bereich um die Resonanzwellenlänge $\lambda_C = 655\ \text{nm}$ der TP-Mode, welche für einen

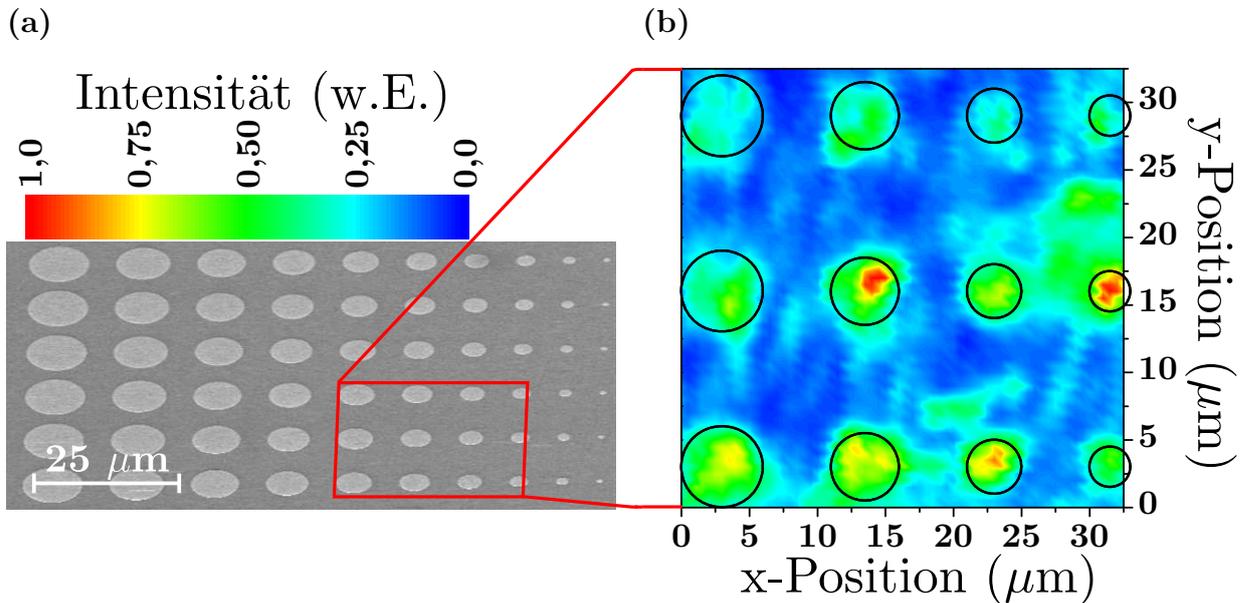


Abbildung 7.8.: (a) Die REM-Aufnahme der Probenoberfläche zeigt die Goldscheiben mit Durchmessern von $10\ \mu\text{m}$ bis $1\ \mu\text{m}$. (b) μPL -Karte des markierten Probenbereichs für Goldscheiben von $6\ \mu\text{m}$ bis $3\ \mu\text{m}$ in Falschfarbendarstellung. An den Positionen der Scheiben ist eine deutliche Verstärkung der Emissionsintensität der QPe festzustellen. Die schwarzen Kreise deuten die erwarteten Positionen und Durchmesser der Scheiben an.

Scheibendurchmesser von $4\ \mu\text{m}$ durch Reflexionsmessungen (nicht gezeigt) ermittelt wurde, aufintegriert. Die Abweichung der Resonanzwellenlänge vom theoretischen Wert (siehe Abschnitt 7.1) um etwa $2\ \text{nm}$ ist der Blauverschiebung aufgrund des lateralen Einschlusses der TP-Mode geschuldet [Gaz11]. Weiterhin lässt sich durch die Reflexionsmessung der Q-Faktor der TP-Mode zu etwa 250 abschätzen, welcher damit leicht unterhalb des simulierten Wertes von 280 der planaren Struktur liegt (vgl. Abschnitt 7.1). Für große Scheiben ($Q(10\ \mu\text{m}) \approx 280$) gleicht der ermittelte Q-Faktor dem der planaren Struktur, bei kleinen sinkt dieser jedoch rapide ab ($Q(2\ \mu\text{m}) \approx 175$), was im Einklang mit Beobachtungen von Gazzano et al. steht [Gaz11]. Die positionierten InP/GaInP-QPe liegen in dem untersuchten Feld wie im vorherigen Abschnitt nominell $500\ \text{nm}$ auseinander, was etwa einer Flächendichte von $4 \times 10^8\ \text{cm}^{-2}$ entspricht. Deshalb kann davon ausgegangen werden, dass sich QPe sowohl unterhalb der Goldscheiben als auch in den Bereichen dazwischen befinden. Die Lumineszenzkarte zeigt eine signifikante Verstärkung der Intensität an den

Positionen der Goldscheiben. Die schwarzen Kreise deuten die Lage der Goldscheiben an⁴, welche in guter Übereinstimmung mit den Intensitätsprofilen liegen. Dabei ist die Stärke der Emission für QPe unter einer Scheibe etwa eine Größenordnung höher als die von QPen in den Zwischenräumen. An einigen wenigen Stellen zwischen den Goldscheiben können auch helle Flecken beobachtet werden, welche der Emission besonders heller QPe zugeordnet werden können. Wie aus Abbildung 6.1b des vorherigen Kapitels ersichtlich, variiert die Helligkeit der Quantenpunktlumineszenz aufgrund der unterschiedlichen Quanteneffizienzen der einzelnen QPe stark (vgl. Abschnitt 6.1). Die im Vergleich zu den beiden anderen Reihen geringere Intensität der oberen Reihe kann einer allmählichen Verschiebung der Fokusebene des Mikroskopobjektivs während der Rasterung zugeordnet werden.

Um diese Verstärkung der Lumineszenz genauer untersuchen zu können, wurden temperaturabhängige Messungen, wie sie aus Kapitel 5 bekannt sind, an einem positionierten InP/GaInP-QP durchgeführt, welcher an eine lokalisierte TP-Mode unterhalb einer Goldscheibe mit 4 μm Durchmesser koppelt. Abbildung 7.9a zeigt die normierte Intensität der μPL -Spektren bei einer Anregungsleistung von 300 nW in Abhängigkeit von der Temperatur in Falschfarbendarstellung. Zwei dominante Emissionslinien sind bei einer Temperatur von 6 K sichtbar und können zwei verschiedenen QPen zugeordnet werden. QP A emittiert bei einer Energie von 1,8892 eV sowie einer Linienbreite von $\gamma_A = 105 \mu\text{eV}$ und QP B bei 1,8896 eV mit $\gamma_B = 168 \mu\text{eV}$. Beide Emissionslinien zeigen eine Verschiebung der Emission zu kleineren Energien (vgl. Abschnitt 5.2), was durch die Varshni-Gleichung $E = E_0 - \alpha \cdot \frac{T^2}{T+\beta}$ für die Temperaturabhängigkeit der Bandlücke eines Halbleiters beschrieben werden kann [Var67]. Dabei liefert eine Anpassung folgende Varshni Parameter (nicht dargestellt): $\alpha_A = 0,35 \text{ meV/K}$ und $\beta_A = 240 \text{ K}$ für QP A sowie $\alpha_B = 0,40 \text{ meV/K}$ und $\beta_B = 270 \text{ K}$ für QP B. Allerdings gibt die Varshni-Gleichung vor allem für niedrige Temperaturen den experimentellen Verlauf nicht akkurat wieder und liefert damit große Anpassungsungenauigkeiten. Das empirische Modell von O'Donnell et al., das von einer Elektronen-Phononen-Kopplung ausgeht, kann dagegen die Daten sehr genau wiedergeben [O'D91]:

$$E(T) = E_0 - S \langle \hbar\omega \rangle \left(\coth \frac{\langle \hbar\omega \rangle}{2k_B T} - 1 \right). \quad (7.3)$$

Dabei entspricht E_0 der Übergangsenergie bei 0 K, S einer dimensionslosen Kopplungskonstanten und $\langle \hbar\omega \rangle$ der mittleren Phononenenergie. Die Anpassung nach Gleichung 7.3 ist in Abbildung 7.9a als schwarze unterbrochene Linie dargestellt und liefert eine mittlere

⁴Die Positionen der Goldscheiben wurden anhand des Abbildes der Probenoberfläche auf einer Kamera bestimmt.

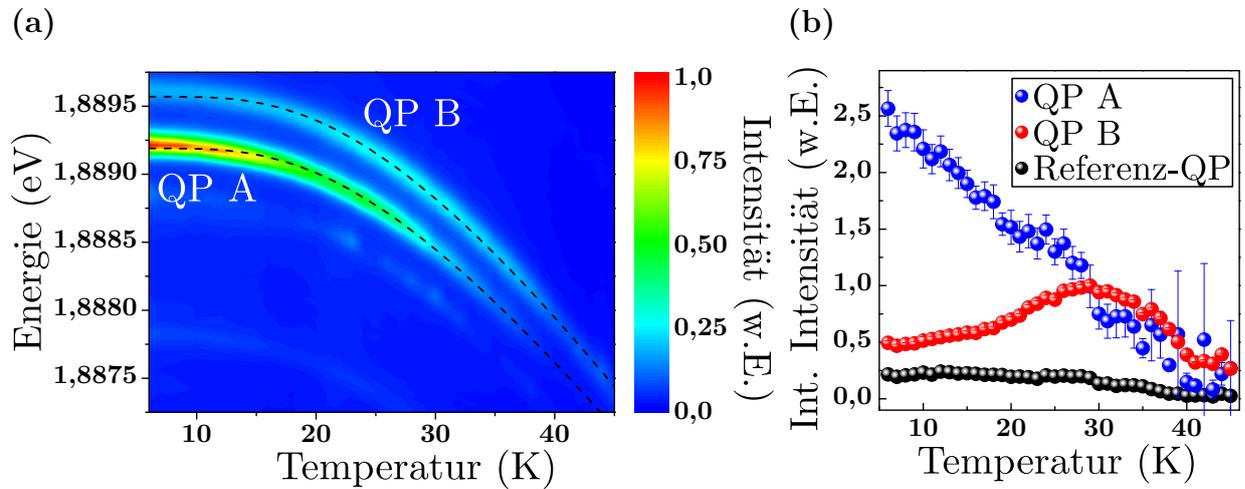


Abbildung 7.9.: (a) μ PL-Spektren einer 4 μ m Scheibe in Abhängigkeit von der Temperatur in Falschfarbendarstellung. Die Spektren zeigen zwei dominante Emissionslinien von zwei verschiedenen QP'en, welche als QP A und QP B gekennzeichnet sind. Die schwarzen unterbrochenen Linien stellen eine Anpassung nach O'Donnell et al. dar [O'D91] (siehe Text). (b) Integrierte Intensitäten der einzelnen Emissionslinien von QP A und QP B sowie einem Referenz-QP, der außerhalb der Resonanz der TP-Mode liegt, als Funktion der Temperatur. Während der anfänglich sich in Resonanz befindende QP A, ähnlich wie der Referenz-QP, stetig dunkler wird, erfährt QP B eine Verstärkung der Intensität, wenn er in Resonanz geschoben wird. Der Verstärkung ist ein Intensitätseinbruch aufgrund der erhöhten Temperatur überlagert.

Phononen-Energie von $\langle \hbar\omega \rangle_A = 7,10 \pm 0,10$ meV für QP A bzw. $\langle \hbar\omega \rangle_B = 7,37 \pm 0,12$ meV für QP B. Ähnliche Werte wurden auch von Schulz et al. für InP-QP'e in einer $(\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80})_{0,51}\text{In}_{0,49}\text{P}$ -Matrix berichtet [Sch09c]. Durch die Temperaturerhöhung werden beide Emissionslinien durch die Resonanz geschoben. In Abbildung 7.9b sind sowohl die ausgewerteten integrierten Intensitäten von QP A und QP B als Funktion der Temperatur als auch die eines spektral nicht-resonanten QP'es bei einer Energie von $E_{Ref} = 1,8777$ eV (in Abbildung 7.9a nicht gezeigt) als Referenz dargestellt. QP A (blau) befindet sich bereits bei 6 K in Resonanz mit der TP-Mode und schiebt mit zunehmender Temperatur aus dieser heraus. Dabei erfährt er eine Abnahme der Intensität, welche zum einen durch eine reduzierte Kopplung an die TP-Mode und zum anderen durch die thermische Aktivierung der Ladungsträger (vgl. Abschnitt 5.2) hervorgerufen wird. Dies kann auch anhand des Referenz-QP'es (schwarz) festgestellt werden. Schon bei diesen niedrigen Temperaturen bricht die Lumineszenzintensität drastisch ein und deutet damit

auf eine flache Lokalisierung der Ladungsträger hin. Der schwache Einschluss kann unter Berücksichtigung der Emissionsenergien, welche im hochenergetischen Ausläufer der QP-Ensembleemission liegen (1,7463 eV bis 1,9074 eV [Bau12b]) bestätigt werden und beträgt nur knapp über 60 meV bis zur umgebenden $\text{Ga}_{0,51}\text{In}_{0,49}\text{P}$ -Matrix ($E_{\text{Matrix}} = 1,9532$ eV) für QP A und QP B. Im Gegensatz zu QP A steigt die Intensität von QP B (rot) mit der Temperatur und erreicht ihr Maximum bei einer Temperatur von 29 K, wenn sich der QP in Resonanz mit der TP-Mode befindet. QP B demonstriert damit eindeutig eine Verstärkung des Lumineszenzsignals durch die Kopplung an eine lokalisierte TP-Mode. Bei weiterer Erhöhung der Temperatur sinkt die Intensität wieder ab. Das im Vergleich zu QP A schwächere Intensitätsmaximum von QP B, welcher aufgrund der höheren Emissionsenergie vermutlich etwas kleiner ist, kann dem drastischen Einbruch der Lumineszenz durch das thermische Aktivieren geschuldet werden.

Um nachzuweisen, dass beide QPe einzelne Photonen emittierten, wurden auch hier Photonen-Autokorrelationsmessungen zweiter Ordnung durchgeführt. Die aufgenommenen Histogramme sind für beide in Abbildung 7.10 dargestellt, wobei sich die QPe jeweils bei einer Temperatur von 6 K für QP A bzw. 29 K für QP B in Resonanz mit der TP-Mode befanden. Beide Histogramme zeigen ein eindeutiges Antibunching der Quantenemitter mit den gefalteten $g^{(2)}(0)$ -Werten von 0,44 für A und 0,48 für B aus der Anpassung mit dem 3-Niveau-Modell (vgl. Abschnitt 6.3). Aus der Anpassung können Zerfallszeiten von $\tau_A = 360 \pm 39$ ps für QP A und $\tau_B = 447 \pm 32$ ps für QP B ermittelt werden, welche vergleichbar mit den vorherig bestimmten Werten (vgl. Kapitel 6) sind. Wird zusätzlich die Zeitaufösung von $t_{res} = 700$ ps berücksichtigt, können die entfaltenen Werte $g_A^{(2)}(0) = 0,03$ und $g_B^{(2)}(0) = 0,16$ extrahiert werden, was deutlich den Einzelphotonencharakter beider QPe demonstriert. Da die Autokorrelationsmessung für QP B bei einer Temperatur von 29 K aufgenommen wurde, ist der etwas höhere $g_B^{(2)}(0)$ -Wert auf das geringere Signal-Hintergrund-Verhältnis aufgrund der schwächeren Lumineszenz zurückzuführen. Für beide kann die Abweichung vom idealen Wert $g^{(2)}(0) = 0$ durch ein Hintergrundsignal der GaInP-Barriere und umliegender QPe erklärt werden.

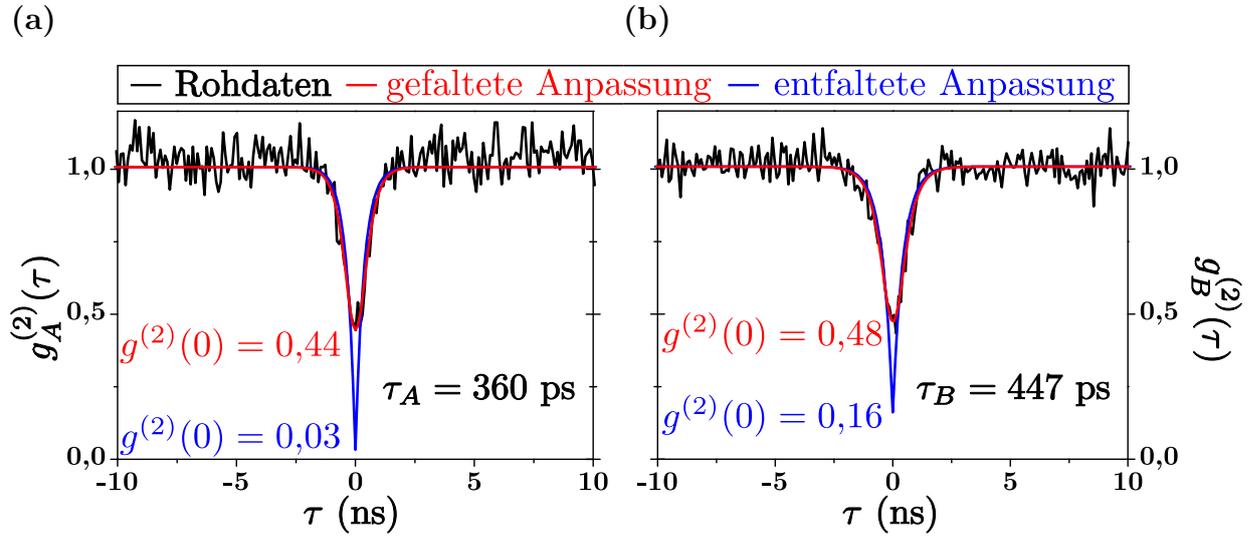


Abbildung 7.10.: (a) Photon-Autokorrelationsmessungen zweiter Ordnung von QP A bei einer Temperatur von 6 K und QP B bei 29 K (b) in Resonanz mit der TP-Mode. Beide weisen mit den entfaltenen Werten von $g_A^{(2)}(0) = 0,03$ und $g_B^{(2)}(0) = 0,16$ deutlichen Einzelphotonencharakter auf. Der höhere $g^{(2)}(0)$ -Wert für QP B wird durch das im Vergleich niedrigere Signal-Hintergrund-Verhältnis aufgrund der schwächeren Lumineszenz verursacht.

7.4. Effizienz der Tamm-Plasmonen-Struktur

Im vorherigen Abschnitt wurde die Verstärkung des Lumineszenzsignals eines positionierten InP/GaInP-Quantenpunktes durch die Kopplung an eine lokalisierte Tamm-Plasmonen-Mode unterhalb einer $4\ \mu\text{m}$ Goldscheibe mittels einer Temperaturserie demonstriert. In diesem Abschnitt wird direkt die Effizienz einer Einzelphotonenquelle auf Basis einer Tamm-Plasmonen-Struktur durch die Ermittlung der Photonemissionsrate \dot{n}_{EPQ} untersucht. Diese Rate und die gesamte Effizienz η_{EPQ} einer Einzelphotonenquelle ist ein wichtiger Parameter zum Erreichen hoher Bitraten bei der Erzeugung von Schlüsseln in der Quantenkryptographie.

Dazu wurde ein einzelner QP unterhalb einer Goldscheibe mit $4\ \mu\text{m}$ Durchmesser unter gepulster Anregung analysiert. Abbildung 7.11a zeigt bei einer Anregungsleistung von $1,85\ \mu\text{W}$ und einer Temperatur von 6 K das μPL -Spektrum des untersuchten QPes, welcher ein Exziton mit einer Linienbreite von $\gamma = 95\ \mu\text{eV}$ und einer Emissionsenergie von $1,8903\ \text{eV}$ in spektraler Resonanz mit der lokalisierten TP-Mode aufweist. Da der grüne Nd:YAG-Laser nicht gepulst betrieben werden kann, wurde für die folgenden

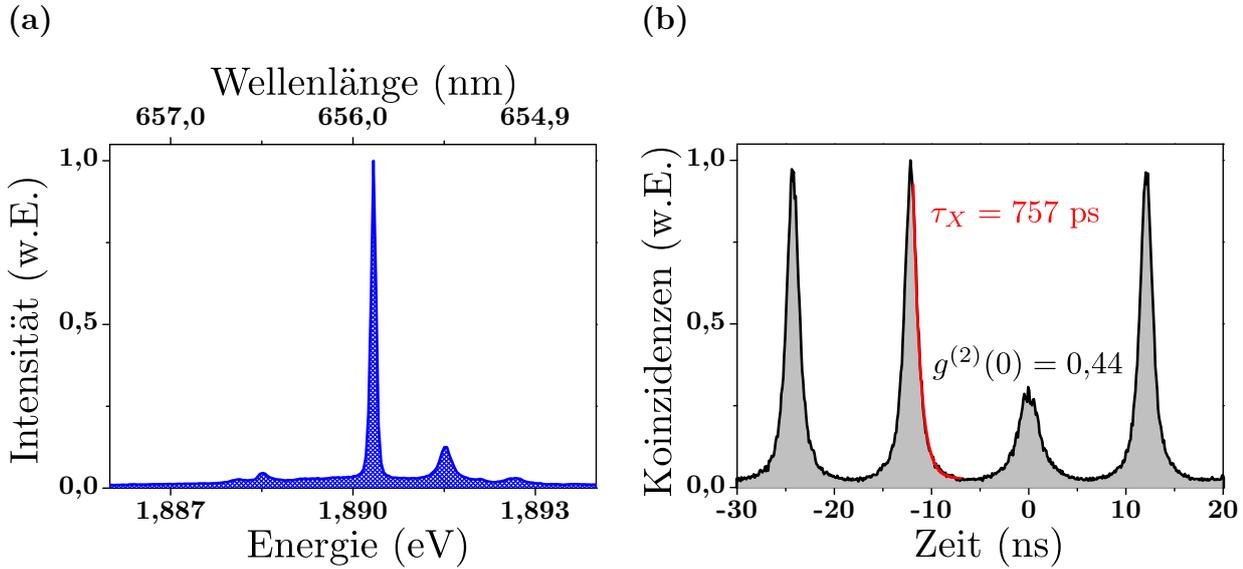


Abbildung 7.11.: (a) μ PL-Spektrum eines einzelnen QPs in Resonanz mit der lokalisierten TP-Mode unterhalb einer $4\ \mu\text{m}$ Goldscheibe bei einer Anreizungsleistung von $1,85\ \mu\text{W}$. (b) Photonen-Autokorrelationsmessung zweiter Ordnung der Emissionslinie aus (a) unter gleichen Bedingungen und gepulster Anregung. Die rote Kurve stellt eine monoexponentielle Anpassung dar und liefert eine Zerfallszeit des Exzitons von $757 \pm 26\ \text{ps}$. Der $g^{(2)}(0)$ -Wert von $0,44$ demonstriert den Einzelphotonencharakter.

Untersuchungen der frequenzverdoppelte Ti:Sa-Laser bei einer Wellenlänge von etwa $470\ \text{nm}$ und einer Repetitionsrate von $82\ \text{MHz}$ zur Anregung verwendet. Um die oben genannten Kenngrößen experimentell ermitteln zu können, wurde eine Kalibration des Messplatzes, wie in Abschnitt 3.2 dargestellt, vollzogen. Dadurch ist es möglich, aus den gemessenen Detektionsraten der APDs \dot{n}_{APD} bei einer Photonen-Autokorrelationsmessung zweiter Ordnung direkt auf die Photonenrate $\dot{n} = \dot{n}_{APD}/\eta$ der Probe zu schließen (siehe Gleichung 3.1). Abbildung 7.11b zeigt die Autokorrelationsmessung des QPs unter oben genannten Anreizungsbedingungen. Im Gegensatz zu den bisher durchgeführten Korrelationsmessungen ist bei dieser aufgrund der gepulsten Anregung eine periodische Abfolge der Korrelationsereignisse sichtbar. Der Abstand der Maxima von etwa $12,2\ \text{ns}$ entspricht dabei genau der Repetitionsrate des Laser. Für $\tau = 0$ erkennt man wie zuvor einen starken Einbruch der Koinzidenzen. Da hier die Korrelationsmessung zeitaufgelöst erfolgte, ist eine Anpassung mit dem 3-Niveau-Modell nicht von Nöten. Zur Ermittlung des $g^{(2)}(0)$ -Werts werden die Ereignisse in einem Bereich von $\pm 2\ \text{ns}$ um das Zentrum jedes

Maximums aufintegriert. Dabei werden die Flächen für alle Maxima bei $\tau \neq 0$ gemittelt und mit der bei $\tau = 0$ ins Verhältnis gesetzt. Der damit berechnete Wert beläuft sich auf $g^{(2)}(0) = 0,44$. Außerdem kann durch die Anpassung einer monoexponentiellen Funktion an die Flanke der Maxima (rote Kurve in Abbildung 7.11b) die Lebensdauer des Exzitons zu 757 ± 26 ps abgeschätzt werden. Der hohe Wert für der Autokorrelationsmessung bei $\tau = 0$ lässt sich hier nicht allein durch den Einfluss unkorrelierter Hintergrundstrahlung erklären (vgl. Abbildung 7.11a). Stattdessen ist eine Mehrfachanregung innerhalb eines Anregungspulses möglich, wodurch es zu Multiphotonenemission kommen kann. Außerdem könnte ein weiterer QP bei gleicher spektralen Lage emittieren, was bei gleicher Lumineszenzstärke zu $g^{(2)}(0) \approx 0,5$ führen würde. Ist die Quanteneffizienz einer der beiden QP geringer, so können auch $g^{(2)}(0)$ -Werte unterhalb von 0,5 erreicht werden. Da die hier untersuchte Einzelphotonenquelle einen endlichen $g^{(2)}(0)$ -Wert besitzt, muss die ermittelte Emissionsrate \dot{n} für Multiphotonenprozesse korrigiert werden und es ergibt sich für die echte Einzelphotonenemissionsrate [Pel02]:

$$\dot{n}_{EPQ} = \dot{n} \sqrt{1 - g^{(2)}(0)} = \frac{\dot{n}_{APD}}{\eta} \sqrt{1 - g^{(2)}(0)} . \quad (7.4)$$

Für den QP aus Abbildung 7.11a kann damit eine Photonenrate von $1,26 \pm 0,07$ MHz berechnet werden. In Abbildung 7.12a sind sowohl die $g^{(2)}(0)$ -Werte (schwarz) als auch die entsprechend berechneten Emissionsraten (rot) in Abhängigkeit der Anregungsleistung aufgetragen. Es zeigt sich, dass $g^{(2)}(0)$ im niedrigen Leistungsbereich leichten Schwankungen unterliegt, bevor der Wert aufgrund von zunehmender Hintergrundlumineszenz auf über 0,6 bei einer Leistung vom $9,00 \mu\text{W}$ steigt. Die Einzelphotonenemissionsrate steigt kontinuierlich und gleicht sich immer mehr dem Maximum von $7,45 \pm 0,54$ MHz aufgrund der Absättigung der Quantenpunktemission an. Die höchste Rate, bei der sich das System noch im Einzelphotonen-Regime befindet, beträgt $5,89 \pm 0,27$ MHz bei einer Leistung von $4,72 \mu\text{W}$. Dies entspricht in etwa einer Zählrate von 173 k s^{-1} pro APD. Aus der Emissionsrate kann nun die Effizienz der Einzelphotonenquelle η_{EPQ} unter Berücksichtigung der Repetitionsrate $f = 82$ MHz des Lasers über $\eta_{EPQ} = \dot{n}_{EPQ}/f$ bestimmt werden. Die Effizienz gibt die Wahrscheinlichkeit wieder, ein einzelnes Photon pro Anregungspuls in die erste Linse einzusammeln. Die leistungsabhängige Effizienz ist

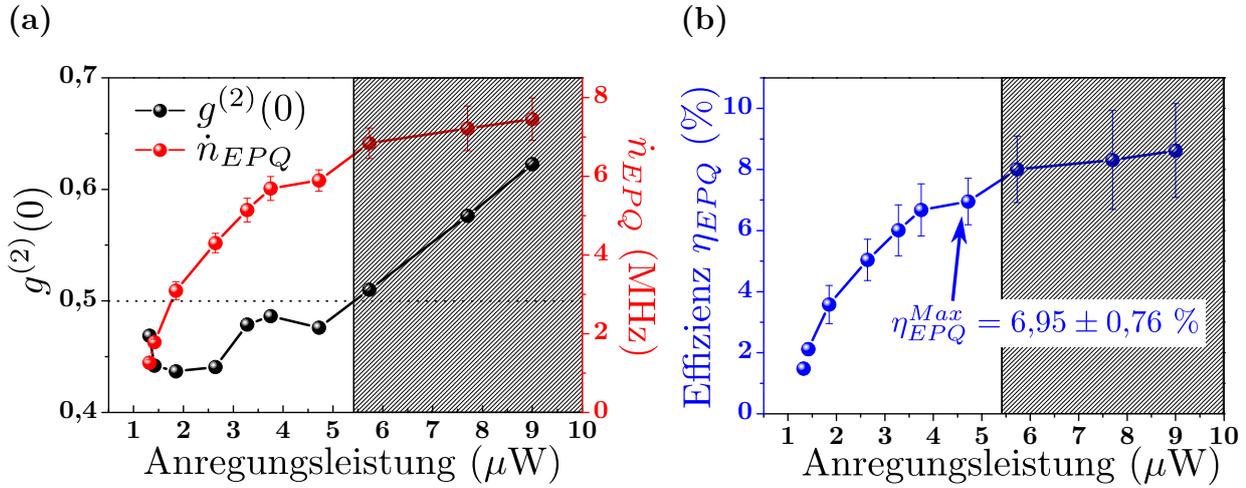


Abbildung 7.12.: (a) Echte Einzelphotonenemissionsrate \dot{n}_{EPQ} (rechte Achse) und der Wert der Photonen-Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung bei $\tau = 0$ (linke Achse) des QPes aus Abbildung 7.11a sowie die Gesamteffizienz der TP-Struktur in Abhängigkeit der Anregungsleistung. Die grau schraffierten Bereiche kennzeichnen die Region, bei der keine Einzelphotonenemission mehr beobachtbar ist. Die höchste Rate, bei der noch einzelne Photonen emittiert werden, beträgt $5,89 \pm 0,27$ MHz. Damit wird unter Berücksichtigung der Repetitionsrate eine Gesamteffizienz von $\eta_{EPQ}^{Max} = 6,95 \pm 0,76$ % erreicht.

in Abbildung 7.12b dargestellt. Wie die Emissionsrate steigt die Effizienz kontinuierlich, angefangen bei $1,48 \pm 0,19$ %, bis zum Maximum im Einzelphotonen-Regime von

$$\eta_{EPQ}^{Max} = \frac{\dot{n}_{EPQ}}{f} = 6,95 \pm 0,76 \%$$

an. Das ist eine deutliche Steigerung der Effizienz im Vergleich zu InP/GaInP-QPen im Volumenmaterial von 1,9 % [Ugu12] und entspricht fast einer Verdopplung im Vergleich zu 4,1 % von InP/GaInP-QPen in einer planaren DBR-Resonatorstruktur [Ro808]. Nichtsdestotrotz liegt dieser Wert weit unter dem Potential um die 60 % der TP-Strukturen mit InGaAs-QPen für ein optimiertes Konzept mit Q-Faktoren über 1000 [Gaz12], was vermutlich durch die im sichtbaren Spektralbereich auftretenden hohen Absorptionsverluste in der Goldscheibe hervorgerufen wird.

7.5. Spontane Emissionsrate in Tamm-Plasmonen-Strukturen

In den letzten beiden Abschnitten wurde die Verstärkung der Lumineszenz und damit die Erhöhung der Effizienz der positionierten InP/GaInP-Quantenpunkte durch die Kopplung an eine Tamm-Plasmonen-Mode eindeutig demonstriert. Ob und wie der Purcell-Effekt, wie er in Abschnitt 2.3.1 erläutert wurde, diese Verstärkung beeinflusst, soll folgend geklärt werden.

Für eine direkte Bestimmung des Purcell-Faktors $F_P = \tau_{Vak}/\tau_c$ kann für einen QP das Verhältnis der Lebenszeiten des Emitters in Resonanz und im Vakuum nicht verwendet werden, weshalb dieser üblicherweise durch das Durchstimmen der Emissionsenergie des Emitters durch die Resonanzmode des Resonators mittels einer Temperaturserie ermittelt wird [Mun09, Hei10b]. Die hier untersuchte Struktur weist jedoch einen relativ kleinen Q-Faktor und damit eine große spektrale Breite auf, welche für eine Durchstimmung hohe Temperaturänderungen notwendig und damit die Durchführung schwierig macht (vgl. Abschnitt 7.3). Aus diesem Grund muss über die Statistik der Lebenszeiten vieler QPe außerhalb eines Resonators und in Resonanz mit der TP-Mode eine Aussage getroffen werden. Allerdings hat sich bereits in Abschnitt 6.4 gezeigt, dass die Lebensdauern der Exzitonen sehr stark schwanken. Dies konnte durch Messungen an einzelnen QPen in Resonanz mit der TP-Mode (Abbildung 7.13b) und an Referenzpositionen ohne Goldscheibe (Abbildung 7.13a) auch hier bestätigt werden. Für beide Messungen wurden ähnliche Zerfallszeiten für die QPe im Mittel zu $\tau_{Ref}^{Mittel} = 647 \pm 126$ ps für die Referenzquantenpunkte und $\tau_{TP}^{Mittel} = 637 \pm 147$ ps für solche bestimmt, die sich in Resonanz mit der TP-Mode befinden, weshalb darüber keine Bestimmung über den Einfluss des Purcell-Effekts möglich ist. Betrachtet man den nach Gleichung 2.38 maximal zu erwarteten Purcell-Faktor, so erhält man für die 4 μm TP-Struktur mit einem Q-Faktor von 250 und einer Resonanzwellenlänge von 655 nm:

$$F_P^{max} = \frac{3Q(\lambda_C/n)^3}{4\pi^2 V_m} \approx 0,2 . \quad (7.5)$$

Dabei wurde das Modenvolumen [Gér98]

$$V_m = \frac{\oint \epsilon |E(r)|^2 dV}{\max[\epsilon |E(r)|^2]} \approx 0,59 \mu\text{m}^3 \quad (7.6)$$

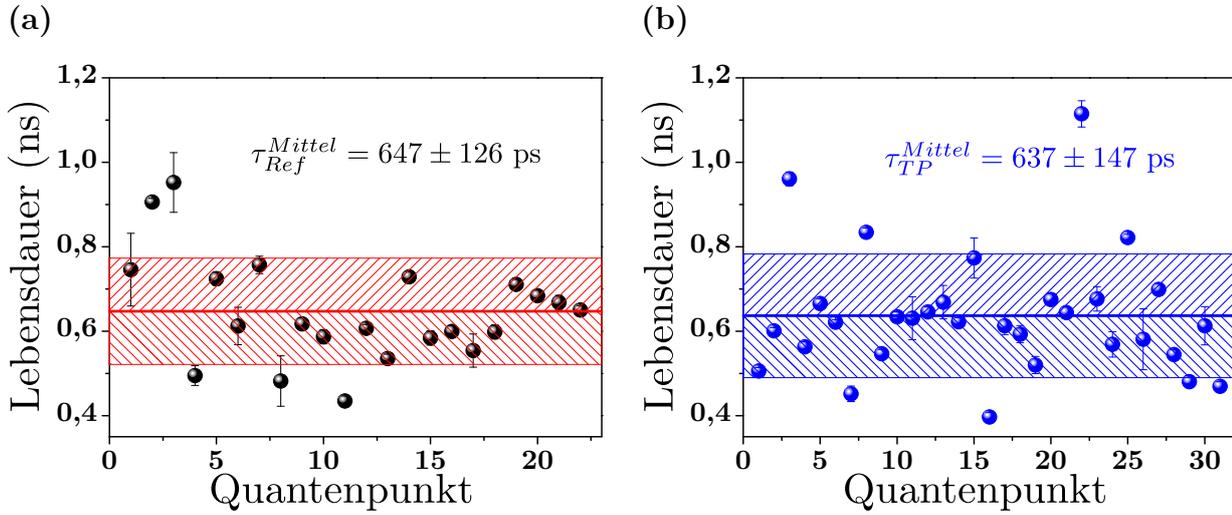


Abbildung 7.13.: (a) Lebensdauern der Emissionslinien von verschiedenen QPn für Referenzpositionen ohne Goldscheibe und mit Goldscheibe (b). Im Mittel ergeben sich Zerfallszeiten von $\tau_{Ref}^{Mittel} = 647 \pm 126$ ps für die Referenzquantenpunkte und $\tau_{TP}^{Mittel} = 637 \pm 147$ ps für die TP-Strukturen. Beide Werte streuen stark um einen ähnlichen Mittelwert und lassen daher eine Bestimmung über den Einfluss des Purcell-Effekts nicht zu.

in erster Näherung über das berechnete eindimensionale elektrische Feld aus Abbildung 7.3a und der Annahme einer gaußförmigen Feldverteilung in der lateralen Ebene abgeschätzt, bei der das elektrische Feld am Rand der Goldscheibe auf ein $1/e$ des Maximalwerts abgefallen ist. Aufgrund des geringen Q-Faktors sind keine großen Purcell-Faktoren zu erwarten, weshalb auch eine signifikante Erhöhung der Zerfallsrate der Quantenemitter nicht beobachtbar ist. Der eventuelle Effekt geht in der Streuung der Lebensdauern einzelner QPe unter. Um dennoch eine Aussage über den Einfluss der Goldoberfläche auf die Emissionsrate Γ der QPe treffen zu können, wurden daher vergleichbare Messungen an einer TP-Struktur mit selbstorganisierten InAs/GaAs-QPn hoher Dichte durchgeführt. Die Messung an einem Quantenpunktensemble liefert aufgrund der hohen Anzahl an Emissionslinien die nötige Statistik, um den Einfluss auf die Rate zu ermitteln. Die untersuchte Probe besteht aus einer DBR-Struktur mit 36 AlAs/GaAs-Spiegelpaaren und einer 40 nm-dicken Goldscheibe mit einem Durchmesser von $10 \mu\text{m}$, zwischen denen sich PCA-QPe befinden, welche bereits in Kapitel 4 vorgestellt wurden. Der große Scheibendurchmesser wurde gewählt, damit sichergestellt wird, dass nur die Emission von QPn unterhalb einer Scheibe aufgesammelt wird. Durch eine Reflexionsmessung

wurde die spektrale Lage der TP-Resonanz zu 906,5 nm mit einer Linienbreite von $\gamma \approx 4,62$ nm und damit der Q-Faktor zu knapp 200 bestimmt. Die Lebensdauermessungen wurde wie bisher an der Messanordnung aus Abschnitt 3.4 durchgeführt, wobei der Ti:Sa-Laser bei einer Wellenlänge von 770 nm im gepulsten Betrieb verwendet wurde. Die Laserleistung betrug während der gesamten Messung etwa $10 \mu\text{W}$. Nun wird in einem Bereich $\pm 5,5$ nm um die Resonanzwellenlänge die Ensemblelebensdauer in Schritten von 1 nm bzw. 0,5 nm von 905 nm bis 908 nm auf der Goldscheibe und als Referenz in einem benachbarten Bereich ohne Gold (vgl. Abbildung 7.8a) gemessen und wie gewohnt durch eine monoexponentielle Anpassung ermittelt. Die daraus erhaltenen Zeiten sind für die TP-Struktur $\tau_{10\mu\text{m}}$ (blau) und die Referenzposition τ_{Ref} (schwarz) in Abbildung 7.14a aufgezeigt. Während für die Referenzposition die Lebenszeiten des Ensembles innerhalb der Fehlergrenzen lediglich ein wenig für höhere Wellenlängen zunehmen, ist im Bereich der Resonanzmode der TP-Struktur deutlich ein Einbruch der Zeiten zu erkennen. Die Zerfallszeiten gleichen sich, je weiter man sich spektral von der Resonanzwellenlänge von 906,5 nm entfernt, immer mehr denen der Referenzposition an. Für Wellenlängen

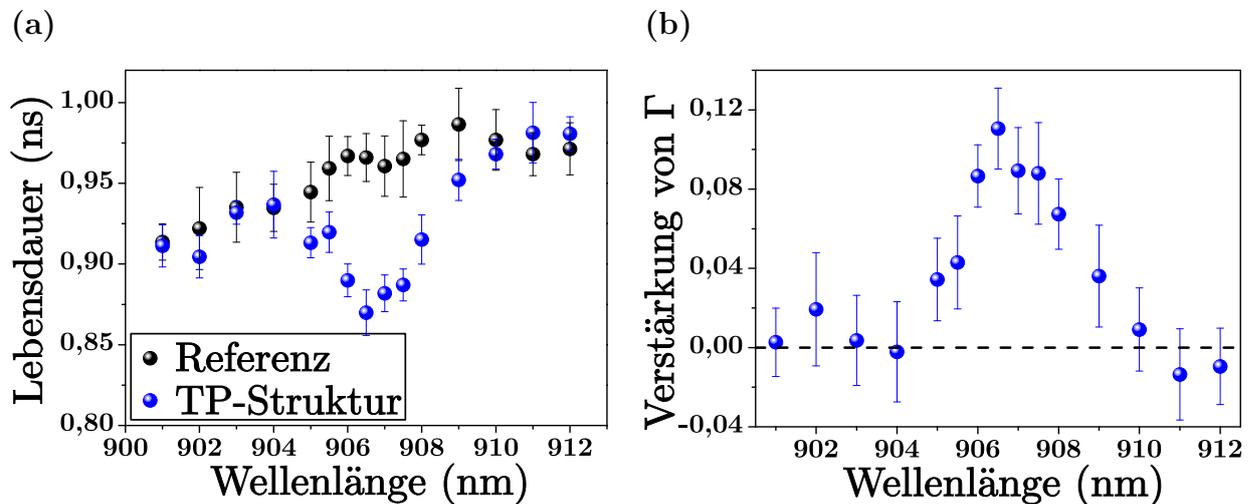


Abbildung 7.14.: (a) Vergleich der ermittelten Lebensdauern des Quantenpunktensembles in einem Wellenlängenbereich von 901 nm bis 912 nm in der $10 \mu\text{m}$ TP-Struktur (blau) und bei der benachbarten Referenzposition (schwarz). Im Wellenlängenbereich der TP-Mode ist deutlich eine Verminderung der Lebenszeiten zu erkennen. (b) Verhältnis der Lebenszeiten aus (a) zur Bestimmung des Einflusses der TP-Struktur auf die Zerfallsrate der QPe. Die Zerfallsrate konnte um $11 \pm 2\%$ für die Resonanzwellenlänge von 906,5 nm erhöht werden.

kleiner 905 nm und größer 909 nm ist innerhalb der Fehlergrenzen kein Unterschied mehr feststellbar. Der Bereich, in dem die Lebensdauern reduziert sind, entspricht in etwa der spektralen Breite der TP-Mode, was die Annahme eines vorhandenen Einflusses der TP-Struktur auf die Zerfallsrate unterstützt. Aus dem Verhältnis der beiden Lebensdauern wurde dann die Verstärkung von Γ ermittelt und für den untersuchten Messbereich in Abbildung 7.14b graphisch aufgetragen. Als maximaler Wert ergibt sich bei einer Wellenlänge von 906,5 nm genau im Zentrum der Resonanz eine Verstärkung von $11 \pm 2\%$. Da sich der Purcell-Effekt auf einen einzelnen Emitter in einer Resonatormode bezieht und hier ein Quantenpunktensemble betrachtet wurde, lässt sich dieser Effekt nur schwierig der schwachen Licht-Materie-Wechselwirkung zuordnen. Im Allgemeinen kann man den Effekt jedoch als Auswirkung einer geänderten lokalen photonischen Zustandsdichte durch die Goldoberfläche verstehen, wie es in Abschnitt 2.3.1 beschrieben wurde. Dies hat nach Gleichung 2.35 einen Einfluss auf die Zerfallsrate und in diesem Fall eine Steigerung dieser zur Folge. Zwar lässt der geringe Q-Faktor der Struktur keine eindeutige Bestimmung einer Licht-Materie-Wechselwirkung zu, jedoch führt die hohe spektrale Linienbreite zu einem positiven Nebeneffekt. Durch diese kann nicht nur die Exziton-, sondern auch die Biexzitonemission von einer gesteigerten Effizienz profitieren. Die TP-Strukturen mit positionierten InP/GaInP-QPen eröffnen damit neue Wege für effiziente Quellen sowohl für einzelne Photonen als auch für verschränkte Photonenpaare neben den bisher verbreiteten Mikrokavitäten und sind zudem mit herkömmlichen Si-basierten Einzelphotonendetektoren kompatibel.

7.6. Zusammenfassung des Kapitels

In diesem Kapitel wurde das Verhalten positionierter InP/GaInP-Quantenpunkte, welche an eine Tamm-Plasmonen-Mode in einer hybriden Metall/DBR-Struktur gekoppelt sind, ausführlich spektroskopisch analysiert und eine effiziente Einzelphotonenquelle auf dieser Basis mit Photonenemission im roten sichtbaren Spektralbereich demonstriert.

Nachdem der Aufbau der hier untersuchten TP-Struktur erläutert und in die TP-Zustände eingeführt wurde, wurden spektroskopische Voruntersuchungen an einem positionierten QP in einer planaren Struktur durchgeführt. Dabei wurde neben dem Auftreten der kaskadierten Emission von Exziton und Biexziton auch die Trionemission beobachtet. Anhand von Leistungs- und Polarisationsserien konnten erste Indizien dafür ermittelt werden. Die eindeutige Zuordnung brachten Photonen-Kreuzkorrelationsmessungen zweiter

Ordnung zwischen allen drei Teilchen. Es folgte die Demonstration der Verstärkung der Einzelphotonenemission der QPe durch die Kopplung an eine lokalisierte TP-Mode unterhalb einer Goldscheibe mit 4 μm Durchmesser. Dazu wurde die Probe auf einer Fläche von etwa 1000 μm^2 abgerastert, wodurch eine signifikante Erhöhung des Lumineszenzsignals an Positionen festgestellt werden konnte, an denen sich Goldscheiben befinden. Eine quantitative Analyse der Verstärkung konnte mittels einer Temperaturserie durchgeführt werden, indem die Emissionslinien zweier QPe durch die sukzessive Erhöhung der Temperatur durch die Resonanz der TP-Mode geschoben wurden. Während sich die Linie von QP A zu Beginn bei einer Temperatur von 6 K in spektraler Resonanz befand und das Spektrum dominierte, konnte bei 29 K der QP B durch die resonante Kopplung an die TP-Mode seine Lichtemission verstärken. Jedoch war dem Effekt der Lichtverstärkung ein Einbruch der Intensitäten aufgrund thermischer Aktivierung der Ladungsträger überlagert, weshalb QP B die Intensität von QP A nicht erreichte. Weiterhin konnte direkt die Emissionsrate zu $\eta_{EPQ}^{Max} = 6,95 \pm 0,76$ MHz und dadurch eine Effizienz von $6,95 \pm 0,76$ % solch einer Einzelphotonenquelle unter gepulster Anregung ermittelt werden. Dies stellt eine deutliche Steigerung im Vergleich zu InP/GaInP-QPen im Volumenmaterial von 1,9 % [Ugu12] und sogar fast eine Verdopplung im Vergleich zu 4,1 % von solchen in einer planaren DBR-Resonatorstruktur [Roß08] dar. Allerdings erreicht die hier untersuchte Struktur noch nicht ihr gesamtes Potential, welches für eine optimierte Struktur bei rund 60 % liegt [Gaz12].

Da die Lebensdauer der Teilchen in InP/GaInP-QPen großen Schwankungen unterliegt, konnte der Purcell-Effekt als eine Ursache für die Verstärkung der Einzelphotonenrate an dieser Struktur nicht nachgewiesen werden. Vergleichbare Messungen an einer TP-Struktur mit selbstorganisierten PCA InAs/GaAs-QPen hoher Dichte ließen jedoch eine Abschätzung über die Auswirkungen auf die Zerfallsrate eines QPes zu, welche auf eine Änderung der lokalen photonischen Zustandsdichte zurückzuführen waren. Es ergab sich eine Steigerung der Zerfallsrate um 11 ± 2 % für eine TP-Struktur mit 10 μm Durchmesser. Somit stellen positionierte InP/GaInP-QPe, welche an die lokalisierte Resonanzmode einer TP-Struktur koppeln, eine aussichtsvolle Basis für die Realisierung hocheffizienter Einzelphotonenquellen dar. Der geringe Q-Faktor der TP-Struktur ermöglicht zudem die gleichzeitige Lumineszenzverstärkung von Exziton und Biexziton, sodass auch die Entwicklung effizienter Quellen verschränkter Photonenpaare angestrebt werden kann. Die Emission im roten Spektralbereich, in dem kommerzielle Einzelphotonendetektoren die höchste Detektionseffizienz aufzeigen, unterstreicht das Potential solcher Strukturen.

Literaturverzeichnis

- [Abb08] M. Abbarchi, C. A. Mastrandrea, T. Kuroda, T. Mano, K. Sakoda, N. Koguchi, S. Sanguinetti, A. Vinattieri und M. Gurioli, *Exciton fine structure in strain-free GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As quantum dots: Extrinsic effects*, Phys. Rev. B **78**, S. 125321 (2008).
- [Abr86] I. Abram, R. K. Raj, J. L. Oudar und G. Dolique, *Direct Observation of the Second-Order Coherence of Parametrically Generated Light*, Phys. Rev. Lett. **57**, S. 2516 (1986).
- [Aic05] T. Aichele, *Detection and Generation of Non-Classical Light States from Single Quantum Emitters*, Dissertation, Humboldt-Universität zu Berlin (2005).
- [AK07] G. M. A. Kavokin, J. Baumber und F. Laussy, *Microcavities*, Oxford University Press (2007).
- [Ako06] N. Akopian, N. Lindner, E. Poem, Y. Berlatzky, J. Avron, D. Gershoni, B. Gerardot und P. Petroff, *Entangled Photon Pairs from Semiconductor Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **96**, S. 130501 (2006).
- [Alb10] F. Albert, S. Stobbe, C. Schneider, T. Heindel, S. Reitzenstein, S. Höfling, P. Lodahl, L. Worschech und A. Forchel, *Quantum efficiency and oscillator strength of site-controlled InAs quantum dots*, Applied Physics Letters **96**(15), S. 151102 (2010).
- [And99] L. C. Andreani, G. Panzarini und J.-M. Gérard, *Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities: Theory*, Phys. Rev. B **60**, S. 13276 (1999).
- [Atk06] P. Atkinson, M. B. Ward, S. P. Bremner, D. Anderson, T. Farrow, G. A. C. Jones, A. J. Shields und D. A. Ritchie, *Site-Control of InAs Quantum Dots using Ex-Situ Electron-Beam Lithographic Patterning of GaAs Substrates*, Japanese Journal of Applied Physics **45**(4R), S. 2519 (2006).

- [Bab06] A. Babinski, G. Ortner, S. Raymond, M. Potemski, M. Bayer, W. Sheng, P. Hawrylak, Z. Wasilewski, S. Fafard und A. Forchel, *Ground-state emission from a single InAs/GaAs self-assembled quantum dot structure in ultrahigh magnetic fields*, Phys. Rev. B **74**, S. 075310 (2006).
- [Bac99] G. Bacher, R. Weigand, J. Seufert, V. D. Kulakovskii, N. A. Gippius, A. Forchel, K. Leonardi und D. Hommel, *Biexciton versus Exciton Lifetime in a Single Semiconductor Quantum Dot*, Phys. Rev. Lett. **83**, S. 4417 (1999).
- [Bai06] M. H. Baier, A. Malko, E. Pelucchi, D. Y. Oberli und E. Kapon, *Quantum-dot exciton dynamics probed by photon-correlation spectroscopy*, Phys. Rev. B **73**, S. 205321 (2006).
- [Bak12] W. Bak, H. Noh, C. Stambaugh, Y. Arakawa und W. Jhe, *Spectral fluctuations of excitonic transitions of InGaAs single quantum dots*, Applied Physics Letters **100**(2), S. 022105 (2012).
- [Bar95] A. Barenco und M. A. Dupertuis, *Quantum many-body states of excitons in a small quantum dot*, Phys. Rev. B **52**, S. 2766 (1995).
- [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**(2), S. 197 (2002).
- [Bau12a] V. Baumann, F. Stumpf, C. Schneider, S. Kremling, L. Worschech, A. Forchel, S. Höfling und M. Kamp, *Site-controlled InP/GaInP quantum dots emitting single photons in the red spectral range*, Applied Physics Letters **100**(9), S. 091109 (2012).
- [Bau12b] V. Baumann, F. Stumpf, T. Steinl, A. Forchel, C. Schneider, S. Höfling und M. Kamp, *Site-controlled growth of InP/GaInP quantum dots on GaAs substrates*, Nanotechnology **23**(37), S. 375301 (2012).
- [Bay95] M. Bayer, V. Timofeev, T. Gutbrod, A. Forchel, R. Steffen und J. Oshinowo, *Enhancement of spin splitting due to spatial confinement in $In_xGa_{1-x}As$ quantum dots*, Phys. Rev. B **52**, S. R11623 (1995).

- [Bay99] M. Bayer, A. Kuther, A. Forchel, A. Gorbunov, V. B. Timofeev, F. Schäfer, J. P. Reithmaier, T. L. Reinecke und S. N. Walck, *Electron and Hole g Factors and Exchange Interaction from Studies of the Exciton Fine Structure in $In_{0.60}Ga_{0.40}As$ Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **82**, S. 1748 (1999).
- [Bay00] M. Bayer, A. Kuther, A. Forchel und T. Reinecke, *Effects of Confinement Potential Asymmetries on the Fine Structure of Excitons in Self-Assembled $In_{0.60}Ga_{0.40}As$ Quantum Dots*, physica status solidi (a) **178**(1), S. 297 (2000).
- [Bay01] M. Bayer, T. L. Reinecke, F. Weidner, A. Larionov, A. McDonald und A. Forchel, *Inhibition and Enhancement of the Spontaneous Emission of Quantum Dots in Structured Microresonators*, Phys. Rev. Lett. **86**, S. 3168 (2001).
- [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*, Phys. Rev. B **65**(4), S. 041308 (2002).
- [Bay02b] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. Reinecke, S. Walck, J. Reithmaier, F. Klopff und F. Schäfer, *Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled $In(Ga)As/(Al)GaAs$ quantum dots*, Phys. Rev. B **65**, S. 195315 (2002).
- [Bec01] C. Becher, A. Kiraz, P. Michler, A. Imamoğlu, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang und E. Hu, *Nonclassical radiation from a single self-assembled $InAs$ quantum dot*, Phys. Rev. B **63**, S. 121312 (2001).
- [Ben84] C. H. Bennett und G. Brassard, *Quantum Cryptography: Public Key Distribution and Coin Tossing*, in *Proceedings of the IEEE International Conference on Computers, Systems and Signal Processing*, S. 175–179, IEEE Press, New York (1984).
- [Ben92] C. Bennett, F. Bessette, G. Brassard, L. Salvail und J. Smolin, *Experimental Quantum Cryptography*, Journal of Cryptology **5**, S. 3 (1992).
- [Ben05] A. J. Bennett, D. C. Unitt, P. See, A. J. Shields, P. Atkinson, K. Cooper und D. A. Ritchie, *Microcavity single-photon-emitting diode*, Applied Physics Letters **86**(18), S. 181102 (2005).

- [Ben10] O. Benson, *Entangled Photons from a Light-Emitting Diode*, ChemPhysChem **11**(16), S. 3395 (2010).
- [Ber06] A. Berthelot, I. Favero, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, P. Roussignol, R. Ferreira und J. M. Gerard, *Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantum dot*, Nat Phys **2**(11), S. 759 (2006).
- [Bim71] D. Bimberg, M. Sondergeld und E. Grobe, *Thermal Dissociation of Excitons Bounds to Neutral Acceptors in High-Purity GaAs*, Phys. Rev. B **4**, S. 3451 (1971).
- [Bim06] D. Bimberg, *Der Zoo der Quantenpunkte*, Physik Journal **9**, S. 43 (2006).
- [Bir01] D. Birkedal, K. Leosson und J. M. Hvam, *Long Lived Coherence in Self-Assembled Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **87**, S. 227401 (2001).
- [Bom11] M. Bommer, W.-M. Schulz, R. R. bach, M. Jetter, P. Michler, T. Thomay, A. Leitenstorfer und R. Bratschitsch, *Triggered single-photon emission in the red spectral range from optically excited InP/(Al,Ga)InP quantum dots embedded in micropillars up to 100 K*, Journal of Applied Physics **110**(6), S. 063108 (2011).
- [Bor01] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang und D. Bimberg, *Ultralong Dephasing Time in InGaAs Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **87**, S. 157401 (2001).
- [Bra09] S. Brand, M. A. Kaliteevski und R. A. Abram, *Optical Tamm states above the bulk plasma frequency at a Bragg stack/metal interface*, Phys. Rev. B **79**, S. 085416 (2009).
- [Cha07] R. R. Chance, A. Prock und R. Silbey, *Molecular Fluorescence and Energy Transfer Near Interfaces*, S. 1–65, John Wiley & Sons, Inc. (2007).
- [Cla10] J. Claudon, J. Bleuse, N. S. Malik, M. Bazin, P. Jaffrennou, N. Gregersen, C. Sauvan, P. Lalanne und J.-M. Gerard, *A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire*, Nat Photon **4**(3), S. 174 (2010).
- [Col95] L. Coldren, S. Corzine und M. Mashanovitch, *Diode Lasers and Photonic Integrated Circuits*, Wiley Series in Microwave and Optical Engineering, Wiley (1995).

- [CR10] T. E. J. Campbell-Ricketts, N. A. J. M. Kleemans, R. Nötzel, A. Y. Silov und P. M. Koenraad, *The role of dot height in determining exciton lifetimes in shallow InAs/GaAs quantum dots*, Applied Physics Letters **96**(3), S. 033102 (2010).
- [Dou10] A. Dousse, J. Suffczynski, A. Beveratos, O. Krebs, A. Lemaitre, I. Sagnes, J. Bloch, P. Voisin und P. Senellart, *Ultrabright source of entangled photon pairs*, Nature **466**(7303), S. 217 (2010).
- [Dre70] K. Drexhage, *Influence of a dielectric interface on fluorescence decay time*, Journal of Luminescence **1–2**, S. 693 (1970).
- [Faf99] S. Fafard und C. N. Allen, *Intermixing in quantum-dot ensembles with sharp adjustable shells*, Applied Physics Letters **75**(16), S. 2374 (1999).
- [Feu08] M. Feucker, R. Seguin, S. Rodt, A. Hoffmann und D. Bimberg, *Decay dynamics of neutral and charged excitonic complexes in single InAs/GaAs quantum dots*, Applied Physics Letters **92**(6), S. 063116 (2008).
- [Fin01] J. J. Finley, A. D. Ashmore, A. Lemaitre, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, I. E. Itskevich, P. A. Maksym, M. Hopkinson und T. F. Krauss, *Charged and neutral exciton complexes in individual self-assembled InGaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **63**, S. 073307 (2001).
- [Fin02] J. Finley, D. Mowbray, M. Skolnick, A. Ashmore, C. Baker, A. Monte und M. Hopkinson, *Fine structure of charged and neutral excitons in InAs-Al_{0.6}Ga_{0.4}As quantum dots*, Phys. Rev. B **66**, S. 153316 (2002).
- [Gar97] J. M. García, G. Medeiros-Ribeiro, K. Schmidt, T. Ngo, J. L. Feng, A. Lorke, J. Kotthaus und P. M. Petroff, *Intermixing and shape changes during the formation of InAs self-assembled quantum dots*, Applied Physics Letters **71**(14), S. 2014 (1997).
- [Gay03] B. Gayral und J. M. Gerard, *Comment on “Single-Mode Spontaneous Emission from a Single Quantum Dot in a Three-Dimensional Microcavity”*, Phys. Rev. Lett. **90**, S. 229701 (2003).
- [Gaz11] O. Gazzano, S. M. de Vasconcellos, K. Gauthron, C. Symonds, J. Bloch, P. Voisin, J. Bellessa, A. Lemaître und P. Senellart, *Evidence for Confined Tamm*

- Plasmon Modes under Metallic Microdisks and Application to the Control of Spontaneous Optical Emission*, Phys. Rev. Lett. **107**, S. 247402 (2011).
- [Gaz12] O. Gazzano, S. Michaelis de Vasconcellos, K. Gauthron, C. Symonds, P. Voisin, J. Bellessa, A. Lemaître und P. Senellart, *Single photon source using confined Tamm plasmon modes*, Applied Physics Letters **100**(23), S. 232111 (2012).
- [Ger05] B. D. Gerardot, S. Strauf, M. J. A. de Dood, A. M. Bychkov, A. Badolato, K. Hennessy, E. L. Hu, D. Bouwmeester und P. M. Petroff, *Photon Statistics from Coupled Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **95**, S. 137403 (2005).
- [Gis02] N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel und H. Zbinden, *Quantum cryptography*, Rev. Mod. Phys. **74**, S. 145 (2002).
- [Gla63] R. J. Glauber, *The Quantum Theory of Optical Coherence*, Phys. Rev. **130**, S. 2529 (1963).
- [Gol85] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse und G. L. Roux, *Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices*, Applied Physics Letters **47**(10), S. 1099 (1985).
- [Gol14] P. Gold, A. Thoma, S. Maier, S. Reitzenstein, C. Schneider, S. Höfling und M. Kamp, *Two-photon interference from remote quantum dots with inhomogeneously broadened linewidths*, Phys. Rev. B **89**, S. 035313 (2014).
- [Gér98] J. M. Gérard, B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard und V. Thierry-Mieg, *Enhanced Spontaneous Emission by Quantum Boxes in a Monolithic Optical Microcavity*, Phys. Rev. Lett. **81**, S. 1110 (1998).
- [Gér01] J. Gérard und B. Gayral, *InAs quantum dots: artificial atoms for solid-state cavity-quantum electrodynamics*, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures **9**(1), S. 131 (2001).
- [HB56] R. Hanbury-Brown und R. Q. Twiss, *Correlation between Photons in two Coherent Beams of Light*, Nature **177**, S. 27 (1956).
- [Hei97] R. Heitz, M. Veit, N. N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev und Z. I. Alferov, *Energy relaxation by multiphonon processes in InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **56**, S. 10435 (1997).

- [Hei10a] T. Heindel, C. Schneider, M. Lerner, S. Höfling, S. Reitzenstein, L. Worschech und A. Forchel, *Highly efficient electrically triggered quantum dot micropillar single photon source*, Journal of Physics: Conference Series **245**(1), S. 012005 (2010).
- [Hei10b] T. Heindel, C. Schneider, M. Lerner, S. H. Kwon, T. Braun, S. Reitzenstein, S. Höfling, M. Kamp und A. Forchel, *Electrically driven quantum dot-micropillar single photon source with 34% overall efficiency*, Applied Physics Letters **96**(1), S. 011107 (2010).
- [Hou05] J. Hours, P. Senellart, E. Peter, A. Cavanna und J. Bloch, *Exciton radiative lifetime controlled by the lateral confinement energy in a single quantum dot*, Phys. Rev. B **71**, S. 161306 (2005).
- [Hsu00] T. M. Hsu, Y. S. Lan, W.-H. Chang, N. T. Yeh und J.-I. Chyi, *Tuning the energy levels of self-assembled InAs quantum dots by rapid thermal annealing*, Applied Physics Letters **76**(6), S. 691 (2000).
- [Hud07] A. J. Hudson, R. M. Stevenson, A. J. Bennett, R. J. Young, C. A. Nicoll, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Coherence of an Entangled Exciton-Photon State*, Phys. Rev. Lett. **99**, S. 266802 (2007).
- [Hug11] A. Huggenberger, S. Heckelmann, C. Schneider, S. Höfling, S. Reitzenstein, L. Worschech, M. Kamp und A. Forchel, *Narrow spectral linewidth from single site-controlled In(Ga)As quantum dots with high uniformity*, Applied Physics Letters **98**(13), S. 131104 (2011).
- [Jön13] K. D. Jöns, P. Atkinson, M. Müller, M. Heldmaier, S. M. Ulrich, O. G. Schmidt und P. Michler, *Triggered Indistinguishable Single Photons with Narrow Line Widths from Site-Controlled Quantum Dots*, Nano Letters **13**(1), S. 126 (2013).
- [Joh72] P. B. Johnson und R. W. Christy, *Optical Constants of the Noble Metals*, Phys. Rev. B **6**, S. 4370 (1972).
- [Joh08] J. Johansen, S. Stobbe, I. S. Nikolaev, T. Lund-Hansen, P. T. Kristensen, J. M. Hvam, W. L. Vos und P. Lodahl, *Size dependence of the wavefunction of self-assembled InAs quantum dots from time-resolved optical measurements*, Phys. Rev. B **77**, S. 073303 (2008).

- [Jus13] G. Juska, V. Dimastrodonato, L. O. Mereni, A. Gocalinska und E. Pelucchi, *Towards quantum-dot arrays of entangled photon emitters*, Nat Photon **7**(7), S. 527 (2013).
- [Kal07] M. Kaliteevski, I. Iorsh, S. Brand, R. A. Abram, J. M. Chamberlain, A. V. Kavokin und I. A. Shelykh, *Tamm plasmon-polaritons: Possible electromagnetic states at the interface of a metal and a dielectric Bragg mirror*, Phys. Rev. B **76**, S. 165415 (2007).
- [Kam98] H. Kamada, H. Ando, J. Temmyo und T. Tamamura, *Excited-state optical transitions of excitons and biexcitons in a single $In_xGa_{1-x}As$ quantum disk*, Phys. Rev. B **58**, S. 16243 (1998).
- [Kam02a] 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**(15), S. 2737 (2002).
- [Kam02b] C. Kammerer, C. Voisin, G. Cassabois, C. Delalande, P. Roussignol, F. Klopff, J. P. Reithmaier, A. Forchel und J. M. Gérard, *Line narrowing in single semiconductor quantum dots: Toward the control of environment effects*, Phys. Rev. B **66**, S. 041306 (2002).
- [Kan57] E. O. Kane, *Band structure of indium antimonide*, Journal of Physics and Chemistry of Solids **1**(4), S. 249 (1957).
- [Kir02] A. Kiraz, S. Fälth, C. Becher, B. Gayral, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu und A. Imamoglu, *Photon correlation spectroscopy of a single quantum dot*, Phys. Rev. B **65**, S. 161303 (2002).
- [Kir06] S. Kiravittaya, A. Rastelli und O. G. Schmidt, *Photoluminescence from seeded three-dimensional InGa/GaAs quantum-dot crystals*, Applied Physics Letters **88**(4), S. 043112 (2006).
- [Kli05] C. Klingshirn, *Semiconductor optics*, Advanced texts in physics, Springer-Verlag GmbH (2005).
- [Kot01] R. Kotlyar, T. Reinecke, M. Bayer und A. Forchel, *Zeeman spin splittings in semiconductor nanostructures*, Phys. Rev. B **63**, S. 085310 (2001).

- [Kul99] V. D. Kulakovskii, G. Bacher, R. Weigand, T. KÜmmell, A. Forchel, E. Borovitskaya, K. Leonardi und D. Hommel, *Fine Structure of Biexciton Emission in Symmetric and Asymmetric CdSe/ZnSe Single Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **82**, S. 1780 (1999).
- [Kur01] C. Kurtsiefer, P. Zarda, S. Mayer und H. Weinfurter, *The breakdown flash of silicon avalanche photodiodes-back door for eavesdropper attacks?*, Journal of Modern Optics **48**(13), S. 2039 (2001).
- [Lad10] T. D. Ladd, D. Press, K. De Greve, P. L. McMahon, B. Friess, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, A. Forchel und Y. Yamamoto, *Pulsed Nuclear Pumping and Spin Diffusion in a Single Charged Quantum Dot*, Phys. Rev. Lett. **105**, S. 107401 (2010).
- [Lan04] W. Langbein, P. Borri, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter und A. D. Wieck, *Radiatively limited dephasing in InAs quantum dots*, Phys. Rev. B **70**, S. 033301 (2004).
- [Lei09] M. D. Leistikow, J. Johansen, A. J. Kettelarij, P. Lodahl und W. L. Vos, *Size-dependent oscillator strength and quantum efficiency of CdSe quantum dots controlled via the local density of states*, Phys. Rev. B **79**, S. 045301 (2009).
- [LeL78] G. LeLay und R. Kern, *Selforganized quantum dots*, J. Cryst. Growth **44**, S. 197 (1978).
- [Leo94] D. Leonard, K. Pond und P. M. Petroff, *Critical layer thickness for self-assembled InAs islands on GaAs*, Phys. Rev. B **50**(16), S. 11687 (1994).
- [Loo10] V. Loo, L. Lanco, A. Lemaître, I. Sagnes, O. Krebs, P. Voisin und P. Senellart, *Quantum dot-cavity strong-coupling regime measured through coherent reflection spectroscopy in a very high-Q micropillar*, Applied Physics Letters **97**(24), S. 241110 (2010).
- [Lou05] B. Lounis und M. Orrit, *Single-photon sources*, Reports on Progress in Physics **68**(5), S. 1129 (2005).
- [Mab02] H. Mabuchi und A. C. Doherty, *Cavity Quantum Electrodynamics: Coherence in Context*, Science **298**(5597), S. 1372 (2002).

- [Mar94] J. Y. Marzin, J. M. Gérard, A. Izraël, D. Barrier und G. Bastard, *Photoluminescence of Single InAs Quantum Dots Obtained by Self-Organized Growth on GaAs*, Phys. Rev. Lett. **73**(5), S. 716 (1994).
- [Mic00] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu und A. Imamoglu, *A Quantum Dot Single-Photon Turnstile Device*, Science **290**(5500), S. 2282 (2000).
- [Mic09] P. Michler, *Single semiconductor quantum dots*, Nanoscience and technology, Springer, Berlin (2009).
- [Mor01] E. Moreau, I. Robert, L. Manin, V. Thierry-Mieg, J. M. Gérard und I. Abram, *Quantum Cascade of Photons in Semiconductor Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **87**, S. 183601 (2001).
- [Mor02] E. Moreau, I. Robert, L. Manin, V. Thierry-Mieg, J. M. Gérard und I. Abram, *A single-mode solid-state source of single photons based on isolated quantum dots in a micropillar*, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures **13**(2-4), S. 418 (2002).
- [Mun09] M. Munsch, A. Mosset, A. Auffèves, S. Seidelin, J. P. Poizat, J.-M. Gérard, A. Lemaître, I. Sagnes und P. Senellart, *Continuous-wave versus time-resolved measurements of Purcell factors for quantum dots in semiconductor microcavities*, Phys. Rev. B **80**(11), S. 115312 (2009).
- [Nak05] T. Nakaoka, T. Saito, J. Tatebayashi, S. Hirose, T. Usuki, N. Yokoyama und Y. Arakawa, *Tuning of g-factor in self-assembled In(Ga)As quantum dots through strain engineering*, Phys. Rev. B **71**, S. 205301 (2005).
- [Nil13] J. Nilsson, R. M. Stevenson, K. H. A. Chan, J. Skiba-Szymanska, M. Lucamarini, M. B. Ward, A. J. Bennett, C. L. Salter, I. Farrer, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Quantum teleportation using a light-emitting diode*, Nat Photon **7**(4), S. 311 (2013).
- [Nis99] K. Nishi, H. Saito, S. Sugou und J.-S. Lee, *A narrow photoluminescence linewidth of 21 meV at 1.35 μm from strain-reduced InAs quantum dots covered by $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}$ grown on GaAs substrates*, Applied Physics Letters **74**(8), S. 1111 (1999).

- [O'D91] K. P. O'Donnell und X. Chen, *Temperature dependence of semiconductor band gaps*, Applied Physics Letters **58**(25), S. 2924 (1991).
- [Pel02] M. Pelton, C. Santori, J. Vučković, B. Zhang, G. S. Solomon, J. Plant und Y. Yamamoto, *Efficient Source of Single Photons: A Single Quantum Dot in a Micropost Microcavity*, Phys. Rev. Lett. **89**(23), S. 233602 (2002).
- [Pel07] E. Pelucchi, S. Watanabe, K. Leifer, Q. Zhu, B. Dwir, P. De Los Rios und E. Kapon, *Mechanisms of Quantum Dot Energy Engineering by Metalorganic Vapor Phase Epitaxy on Patterned Nonplanar Substrates*, Nano Letters **7**(5), S. 1282 (2007).
- [Pre10] D. Press, K. De Greve, P. L. McMahon, T. D. Ladd, B. Friess, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, A. Forchel und Y. Yamamoto, *Ultrafast optical spin echo in a single quantum dot*, Nat Photon **4**(6), S. 367 (2010).
- [Pur46] E. M. Purcell, *Proceedings of the American Physical Society: Spontaneous Emission Probabilities at Radio Frequencies*, Phys. Rev. **69**, S. 674 (1946).
- [Rak08] M. T. Rakher, N. G. Stoltz, L. A. Coldren, P. M. Petroff und D. Bouwmeester, *Polarization-switchable single photon source using the Stark effect*, Applied Physics Letters **93**(9), S. 091118 (2008).
- [Rei04] J. P. Reithmaier, G. Sek, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke und A. Forchel, *Strong coupling in a single quantum dot-semiconductor microcavity system*, Nature **432**(7014), S. 197 (2004).
- [Rei08] M. Reischle, G. J. Beirne, R. Roßbach, M. Jetter und P. Michler, *Influence of the Dark Exciton State on the Optical and Quantum Optical Properties of Single Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **101**, S. 146402 (2008).
- [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 $In_{0.3}Ga_{0.7}As$ Quantum Dot and a Micropillar Cavity Using External Magnetic Fields*, Phys. Rev. Lett. **103**, S. 127401 (2009).

- [Rei12] M. E. Reimer, G. Bulgarini, N. Akopian, M. Hocevar, M. B. Bavinck, M. A. Verheijen, E. P. Bakkers, L. P. Kouwenhoven und V. Zwiller, *Bright single-photon sources in bottom-up tailored nanowires*, Nat Commun **3**, S. 737 (2012).
- [Ren99] H.-W. Ren, M. Sugisaki, S. Sugou, K. Nishi, A. Gomyo und Y. Masumoto, *Lateral Composition Modulation Induced Optical Anisotropy in InP/GaInP Quantum Dot System*, Japanese Journal of Applied Physics **38**(4S), S. 2438 (1999).
- [RI11] A. Rahimi-Iman, C. Schneider, J. Fischer, S. Holzinger, M. Amthor, S. Höfling, S. Reitzenstein, L. Worschech, M. Kamp und A. Forchel, *Zeeman splitting and diamagnetic shift of spatially confined quantum-well exciton polaritons in an external magnetic field*, Phys. Rev. B **84**, S. 165325 (2011).
- [Roß08] R. Roßbach, M. Reischle, G. J. Beirne, M. Jetter und P. Michler, *Red single-photon emission from an InP/GaInP quantum dot embedded in a planar monolithic microcavity*, Applied Physics Letters **92**(7), S. 071105 (2008).
- [Rod03] S. Rodt, R. Heitz, A. Schliwa, R. L. Sellin, F. Guffarth und D. Bimberg, *Repulsive exciton-exciton interaction in quantum dots*, Phys. Rev. B **68**, S. 035331 (2003).
- [Rod05] S. Rodt, A. Schliwa, K. Pötschke, F. Guffarth und D. Bimberg, *Correlation of structural and few-particle properties of self-organized InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **71**, S. 155325 (2005).
- [San01] C. Santori, M. Pelton, G. Solomon, Y. Dale und Y. Yamamoto, *Triggered Single Photons from a Quantum Dot*, Phys. Rev. Lett. **86**, S. 1502 (2001).
- [San02] C. Santori, D. Fattal, J. Vuckovic, G. S. Solomon und Y. Yamamoto, *Indistinguishable photons from a single-photon device*, Nature **419**(6907), S. 594 (2002).
- [San04] C. Santori, D. Fattal, J. Vučković, G. S. Solomon, E. Waks und Y. Yamamoto, *Submicrosecond correlations in photoluminescence from InAs quantum dots*, Phys. Rev. B **69**, S. 205324 (2004).
- [Sar06] D. Sarkar, H. van der Meulen, J. Calleja, J. Becker, R. Haug und K. Pierz, *Exciton fine structure and biexciton binding energy in single self-assembled InAs/AlAs quantum dots*, Journal of Applied Physics **100**(2), S. 023109 (2006).

- [Sas08] M. E. Sasin, R. P. Seisyan, M. A. Kalitchevski, S. Brand, R. A. Abram, J. M. Chamberlain, A. Y. Egorov, A. P. Vasil'ev, V. S. Mikhlin und A. V. Kavokin, *Tamm plasmon polaritons: Slow and spatially compact light*, Applied Physics Letters **92**(25), S. 251112 (2008).
- [Sch02] M. Schmidbauer, F. Hatami, M. Hanke, P. Schäfer, K. Braune, W. T. Masselink, R. Köhler und M. Ramsteiner, *Shape-mediated anisotropic strain in self-assembled $InP/In_{0.48}Ga_{0.52}P$ quantum dots*, Phys. Rev. B **65**, S. 125320 (2002).
- [Sch07a] A. Schliwa, M. Winkelkemper und D. Bimberg, *Impact of size, shape, and composition on piezoelectric effects and electronic properties of $InGaAs/GaAs$ quantum dots*, Phys. Rev. B **76**, S. 205324 (2007).
- [Sch07b] O. G. Schmidt, *Lateral alignment of epitaxial quantum dots*, Springer Science & Business Media (2007).
- [Sch08] C. Schneider, M. Strauss, T. Süner, A. Huggenberger, D. Wiener, S. Reitzenstein, M. Kamp, S. Höfling und A. Forchel, *Lithographic alignment to site-controlled quantum dots for device integration*, Applied Physics Letters **92**(18), S. 183101 (2008).
- [Sch09a] A. Schliwa, M. Winkelkemper, A. Lochmann, E. Stock und D. Bimberg, *$In(Ga)As/GaAs$ quantum dots grown on a (111) surface as ideal sources of entangled photon pairs*, Phys. Rev. B **80**, S. 161307 (2009).
- [Sch09b] C. Schneider, A. Huggenberger, T. Sunner, T. Heindel, M. Strauss, S. Gopfert, P. Weinmann, S. Reitzenstein, L. Worschech, M. Kamp, S. Höfling und A. Forchel, *Single site-controlled $In(Ga)As/GaAs$ quantum dots: growth, properties and device integration*, Nanotechnology **20**(43), S. 434012 (2009).
- [Sch09c] W.-M. Schulz, R. Roßbach, M. Reischle, G. J. Beirne, M. Bommer, M. Jetter und P. Michler, *Optical and structural properties of InP quantum dots embedded in $(Al_xGa_{1-x})_{0.51}In_{0.49}P$* , Phys. Rev. B **79**, S. 035329 (2009).
- [Sch12] C. Schneider, A. Huggenberger, M. Gschrey, P. Gold, S. Rodt, A. Forchel, S. Reitzenstein, S. Höfling und M. Kamp, *$In(Ga)As/GaAs$ site-controlled quantum dots with tailored morphology and high optical quality*, physica status solidi (a) **209**(12), S. 2379 (2012).

- [Sek06] G. Sek, P. Poloczek, K. Ryczko, J. Misiewicz, A. Löffler, J. P. Reithmaier und A. Forchel, *Photoreflectance determination of the wetting layer thickness in the $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ quantum dot system for a broad indium content range of 0.3–1*, Journal of Applied Physics **100**(10), S. 103529 (2006).
- [Son03] R. Songmuang, S. Kiravittaya und O. Schmidt, *Shape evolution of InAs quantum dots during overgrowth*, Journal of Crystal Growth **249**(3-4), S. 416 (2003).
- [SS11] J. Skiba-Szymanska, A. Jamil, I. Farrer, M. B. Ward, C. A. Nicoll, D. J. P. Ellis, J. P. Griffiths, D. Anderson, G. A. C. Jones, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Narrow emission linewidths of positioned InAs quantum dots grown on pre-patterned GaAs(100) substrates*, Nanotechnology **22**(6), S. 065302 (2011).
- [Ste08] R. M. Stevenson, A. J. Hudson, A. J. Bennett, R. J. Young, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Evolution of Entanglement Between Distinguishable Light States*, Phys. Rev. Lett. **101**, S. 170501 (2008).
- [Sti99] O. Stier, M. Grundmann und D. Bimberg, *Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band $k\cdot p$ theory*, Phys. Rev. B **59**(8), S. 5688 (1999).
- [Sto10a] S. Stobbe, T. W. Schlereth, S. Höfling, A. Forchel, J. M. Hvam und P. Lodahl, *Large quantum dots with small oscillator strength*, Phys. Rev. B **82**, S. 233302 (2010).
- [Sto10b] E. Stock, T. Warming, I. Ostapenko, S. Rodt, A. Schliwa, J. A. Töfflinger, A. Lochmann, A. I. Toropov, S. A. Moshchenko, D. V. Dmitriev, V. A. Haisler und D. Bimberg, *Single-photon emission from InGaAs quantum dots grown on (111) GaAs*, Applied Physics Letters **96**(9), S. 093112 (2010).
- [Str07] S. Strauf, N. G. Stoltz, M. T. Rakher, L. A. Coldren, P. M. Petroff und D. Bouwmeester, *High-frequency single-photon source with polarization control*, Nat Photon **1**(12), S. 704 (2007).
- [Sug99] M. Sugisaki, H.-W. Ren, S. V. Nair, K. Nishi, S. Sugou, T. Okuno und Y. Masumoto, *Optical anisotropy in self-assembled InP quantum dots*, Phys. Rev. B **59**, S. R5300 (1999).

- [Sug00] M. Sugisaki, H.-W. Ren, K. Nishi, S. Sugou und Y. Masumoto, *Excitons at a single localized center induced by a natural composition modulation in bulk Ga_{0.5}In_{0.5}P*, Phys. Rev. B **61**, S. 16040 (2000).
- [Sug01] M. Sugisaki, H.-W. Ren, S. Nair, K. Nishi und Y. Masumoto, *Many carrier effects in self-assembled InP quantum dots*, Solid State Communications **117**(7), S. 435 (2001).
- [Tho04] J. J. Thorn, M. S. Neel, V. W. Donato, G. S. Bergreen, R. E. Davies und M. Beck, *Observing the quantum behavior of light in an undergraduate laboratory*, American Journal of Physics **72**(9), S. 1210 (2004).
- [Tho16] A. Thoma, P. Schnauber, M. Gschrey, M. Seifried, J. Wolters, J.-H. Schulze, A. Strittmatter, S. Rodt, A. Carmele, A. Knorr, T. Heindel und S. Reitzenstein, *Exploring Dephasing of a Solid-State Quantum Emitter via Time- and Temperature-Dependent Hong-Ou-Mandel Experiments*, Phys. Rev. Lett. **116**, S. 033601 (2016).
- [Tür00] V. Türck, S. Rodt, O. Stier, R. Heitz, R. Engelhardt, U. W. Pohl, D. Bimberg und R. Steingrüber, *Effect of random field fluctuations on excitonic transitions of individual CdSe quantum dots*, Phys. Rev. B **61**, S. 9944 (2000).
- [Tre12] J. Treu, C. Schneider, A. Huggenberger, T. Braun, S. Reitzenstein, S. Höfling und M. Kamp, *Substrate orientation dependent fine structure splitting of symmetric In(Ga)As/GaAs quantum dots*, Applied Physics Letters **101**(2), S. 022102 (2012).
- [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*, Phys. Rev. Lett. **109**, S. 147401 (2012).
- [Ugu12] A. Ugur, S. Kremling, F. Hatami, S. Höfling, L. Worschech, A. Forchel und W. Ted Masselink, *Single-photon emitters based on epitaxial isolated InP/InGaP quantum dots*, Applied Physics Letters **100**(2), S. 023116 (2012).
- [Ulu00] G. Ulu, A. V. Sergienko und M. S. Ünlü, *Influence of hot-carrier luminescence from avalanche photodiodes on time-correlated photon detection*, Opt. Lett. **25**(10), S. 758 (2000).

- [Var67] Y. P. Varshni, *Temperature dependence of the energy gap in semiconductors*, Physica **34**(1), S. 149 (1967).
- [Vol96] M. Vollmer, E. J. Mayer, W. W. Rühle, A. Kurtenbach und K. Eberl, *Exciton relaxation dynamics in quantum dots with strong confinement*, Phys. Rev. B **54**, S. R17292 (1996).
- [Vur01] I. Vurgaftman, J. R. Meyer und L. R. Ram-Mohan, *Band parameters for III-V compound semiconductors and their alloys*, Journal of Applied Physics **89**(11), S. 5815 (2001).
- [Wan05] X.-B. Wang, *Beating the Photon-Number-Splitting Attack in Practical Quantum Cryptography*, Phys. Rev. Lett. **94**, S. 230503 (2005).
- [Wan06] L. Wang, A. Rastelli und O. G. Schmidt, *Structural and optical properties of In(Ga)As/GaAs quantum dots treated by partial capping and annealing*, Journal of Applied Physics **100**(6), S. 064313 (2006).
- [War97] R. J. Warburton, C. S. Dürr, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro und P. M. Petroff, *Charged Excitons in Self-Assembled Semiconductor Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **79**, S. 5282 (1997).
- [War98] R. J. Warburton, B. T. Miller, C. S. Dürr, C. Bödefeld, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, P. M. Petroff und S. Huant, *Coulomb interactions in small charge-tunable quantum dots: A simple model*, Phys. Rev. B **58**, S. 16221 (1998).
- [Woo82] W. K. Wootters und W. H. Zurek, *A single quantum cannot be cloned*, Nature **299**(5886), S. 802 (1982).
- [You05] R. J. Young, R. M. Stevenson, A. J. Shields, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie, K. M. Groom, A. I. Tartakovskii und M. S. Skolnick, *Inversion of exciton level splitting in quantum dots*, Phys. Rev. B **72**, S. 113305 (2005).
- [You06] R. J. Young, R. M. Stevenson, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Improved fidelity of triggered entangled photons from single quantum dots*, New Journal of Physics **8**(2), S. 29 (2006).

-
- [You09] R. J. Young, R. M. Stevenson, A. J. Hudson, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *Bell-Inequality Violation with a Triggered Photon-Pair Source*, Phys. Rev. Lett. **102**, S. 030406 (2009).
- [Yua02] Z. Yuan, B. E. Kardynal, R. M. Stevenson, A. J. Shields, C. J. Lobo, K. Cooper, N. S. Beattie, D. A. Ritchie und M. Pepper, *Electrically Driven Single-Photon Source*, Science **295**(5552), S. 102 (2002).
- [Zho10] H. Zhou, G. Yang, K. Wang, H. Long und P. Lu, *Multiple optical Tamm states at a metal–dielectric mirror interface*, Opt. Lett. **35**(24), S. 4112 (2010).
- [Zwi03] V. Zwiller, T. Aichele, W. Seifert, J. Persson und O. Benson, *Generating visible single photons on demand with single InP quantum dots*, Applied Physics Letters **82**(10), S. 1509 (2003).

Anhang A.

Ratengleichungs-Modell der Photonen-Korrelationsfunktionen zweiter Ordnung

In Abschnitt 2.2 des Kapitels „Grundlagen“ wurde die Modellierung der photonischen Auto- und Kreuzkorrelationsmessungen zweiter Ordnung anhand eines 3-Niveau-Modells behandelt, auf welche folgend näher eingegangen werden soll. Eine ausführliche Beschreibung kann in der Dissertation von T. Aichele nachvollzogen werden [Aic05]. Das 3-Niveau-Modell kann durch den Grundzustand G , den Exzitonzustand X und den Biexzitonzustand XX (vgl. Termschema in Abbildung 2.7) mit den jeweils zugehörigen zeitabhängigen Besetzungswahrscheinlichkeiten $n_G(t)$, $n_X(t)$ sowie $n_{XX}(t)$ beschrieben werden. Weiterhin werden die entsprechenden strahlenden Zerfallszeiten τ_X des Exzitons und τ_{XX} des Biexzitons sowie eine charakteristische globale Anregungsdauer τ_E , welche einfachheitshalber als identisch für Exziton und Biexziton angenommen wird, zur Beschreibung des System benötigt. Obwohl in dieser Arbeit die Anregung über die umgebende Halbleiterbarriere stattfindet, können höher angeregte Multielektronenzustände aufgrund ihrer geringen Lebensdauer von wenigen 10 ps [Vol96] im Vergleich zu den hier betrachteten Zerfallszeiten im Bereich ns vernachlässigt werden. Die Ratengleichungen des Systems lassen sich dann in Matrixform wie folgt darstellen:

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} n_G(t) \\ n_X(t) \\ n_{XX}(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\frac{1}{\tau_E} & \frac{1}{\tau_X} & 0 \\ \frac{1}{\tau_E} & -\left(\frac{1}{\tau_E} + \frac{1}{\tau_X}\right) & \frac{1}{\tau_{XX}} \\ 0 & \frac{1}{\tau_E} & -\frac{1}{\tau_{XX}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} n_G(t) \\ n_X(t) \\ n_{XX}(t) \end{pmatrix} = \hat{N} \mathbf{n}(t). \quad (\text{A.1})$$

Mit der Umformung $\eta_{X,XX} = \frac{\tau_E}{\tau_{X,XX}}$ ergeben sich die Eigenwerte der Matrix \hat{N} zu

$$\lambda_0 = 0 \quad (\text{A.2a})$$

$$\lambda_{1,2} = -\frac{1}{2\tau_E} \left(\eta_X + \eta_{XX} + 2 \pm \sqrt{(\eta_X - \eta_{XX})^2 + 4\eta_X} \right) \quad (\text{A.2b})$$

und die Eigenvektoren zu

$$\mathbf{I}_0 = \begin{pmatrix} \eta_X \eta_{XX} \\ \eta_{XX} \\ 1 \end{pmatrix} \quad (\text{A.3a})$$

$$\mathbf{I}_{1,2} = \begin{pmatrix} -\eta_{XX} - 1 - \lambda_{1,2}\tau_E \\ \eta_{XX} + \lambda_{1,2}\tau_E \\ 1 \end{pmatrix}. \quad (\text{A.3b})$$

Dadurch lässt sich Gleichung A.1 diagonalisieren und man erhält

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} m_G(t) \\ m_X(t) \\ m_{XX}(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \lambda_0 & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_1 & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} m_G(t) \\ m_X(t) \\ m_{XX}(t) \end{pmatrix} = \hat{M} \mathbf{m}(t). \quad (\text{A.4})$$

Dies sind einfache Differentialgleichungen, deren Lösungen die Form $m_i = A_i \cdot e^{\lambda_i t}$ besitzen, wobei A_i eine Konstante darstellt. Über die unitäre Transformation

$$\hat{U} = \begin{pmatrix} \mathbf{I}_0 \\ \mathbf{I}_1 \\ \mathbf{I}_2 \end{pmatrix} \quad (\text{A.5})$$

lassen sich mit $\hat{N} = \hat{U}^{-1}\hat{M}\hat{U}$ und $\mathbf{n}(t) = \hat{U}\mathbf{m}(t)$ schließlich die Besetzungswahrscheinlichkeiten der Zustände ermitteln:

$$n_G(t) = A\eta_X\eta_{XX} + B_i(-\eta_{XX} - 1 - \lambda_1\tau_E)e^{\lambda_1 t} + C_i(-\eta_{XX} - 1 - \lambda_2\tau_E)e^{\lambda_2 t} \quad (\text{A.6a})$$

$$n_X(t) = A\eta_{XX} + B_i(\eta_{XX} + \lambda_1\tau_E)e^{\lambda_1 t} + C_i(\eta_{XX} + \lambda_2\tau_E)e^{\lambda_2 t} \quad (\text{A.6b})$$

$$n_{XX}(t) = A + B_i e^{\lambda_1 t} + C_i e^{\lambda_2 t} \quad (\text{A.6c})$$

Dabei beschreibt $A = \frac{1}{1+\eta_{XX}+\eta_X\eta_{XX}}$ den stationären Gleichgewichtszustand des System, welcher durch die Bedingung $n_G(t) + n_X(t) + n_{XX}(t) \equiv 1$ gegeben ist. Die Koeffizienten B_i und C_i werden im Folgenden durch die Anfangsbedingungen bestimmt. Die generelle Form der Lösungen entspricht einer Summe von abfallenden Exponentialfunktionen, da $\lambda_{1,2} < 0$ gilt. Die genaue Form wird dann durch die Anfangsbedingungen bestimmt, welche von den Photonen, die den Start-Impuls in der HBT-Messanordnung (vgl. Abschnitt 3.2) auslösen, vorgegeben wird. Die am Stopp-Detektor registrierten Koinzidenzen sind proportional zur Besetzungswahrscheinlichkeit.

A.1. Photonen-Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung

Im Falle der Photonen-Autokorrelationsmessung zweiter Ordnung wird auf beide Detektionskanäle der HBT-Messanordnung das gleiche Signal gegeben, wobei sich für Exziton und Biexziton unterschiedliche Anfangsbedingungen und damit leicht verschiedene Korrelationsfunktionen ergeben:

- **Exziton**

Im Falle des Exzitons wird der Zerfall des Exzitonzustandes X in den Grundzustand G betrachtet, wodurch die Anfangsbedingungen $n_G(0) = 1$ und $n_X(0) = n_{XX}(0) = 0$ gelten. Aus Gleichung A.6 ergeben sich dann folgende Koeffizienten:

$$B_X = \frac{\lambda_2}{\lambda_1 - \lambda_2} A \quad (\text{A.7a})$$

$$C_X = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} A. \quad (\text{A.7b})$$

Die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung ist proportional zur Besetzungsdichte des betrachteten Zustands und es folgt:

$$g_{X \rightarrow X}^{(2)}(t) \propto n_X(t) \propto 1 + \frac{B_X}{A}(1 + \lambda_1 \tau_{XX})e^{\lambda_1 t} + \frac{C_X}{A}(1 + \lambda_2 \tau_{XX})e^{\lambda_2 t} \quad (\text{A.8})$$

- **Biexziton**

Für das Biexziton gelten die Startbedingungen $n_X(0) = 1$ und $n_G(0) = n_{XX}(0) = 0$ und damit für die Koeffizienten:

$$B_{XX} = \frac{1 + \eta_{XX} + \eta_X \eta_{XX} + \lambda_2 \tau_E}{(\lambda_1 - \lambda_2) \tau_E} A \quad (\text{A.9a})$$

$$C_{XX} = \frac{1 + \eta_{XX} + \eta_X \eta_{XX} + \lambda_1 \tau_E}{(\lambda_2 - \lambda_1) \tau_E} A . \quad (\text{A.9b})$$

Daraus folgt für die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung des Biexzitons:

$$g_{XX \rightarrow XX}^{(2)}(t) \propto n_{XX}(t) \propto 1 + \frac{B_{XX}}{A} e^{\lambda_1 t} + \frac{C_{XX}}{A} e^{\lambda_2 t} . \quad (\text{A.10})$$

A.2. Photonen-Kreuzkorrelationsfunktion zweiter Ordnung

Für die Kreuzkorrelationsmessung zweiter Ordnung wird an einem Ende der Messanordnung das Exziton und am anderen das Biexziton detektiert. Dabei ist die Wahl des Start- und des Stopp-Impulses entscheidend für den beobachteten Verlauf und die Anfangsbedingungen:

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

Gibt der Biexzitonzerfall den Start-Impuls der Messung vor, befindet sich das System in den selben Anfangsbedingungen $n_X(0) = 1$ sowie $n_G(0) = n_{XX}(0) = 0$ wie im Falles des Biexzitons und damit gelten auch die gleichen Bedingungen A.9 für die Koeffizienten. Da allerdings das Exziton die Messung stoppt ist die Kreuzkorrelationsfunktion proportional zur Besetzungswahrscheinlichkeit des Exziton und es gilt für $t > 0$:

$$g_{XX \rightarrow X}^{(2)}(t) \propto n_X(t) \propto 1 + \frac{B_{XX}}{A}(1 + \lambda_1 \tau_{XX})e^{\lambda_1 t} + \frac{C_{XX}}{A}(1 + \lambda_2 \tau_{XX})e^{\lambda_2 t} . \quad (\text{A.11})$$

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

Für negative Verzögerungszeiten ($t < 0$) gilt genau der umgekehrte Fall. Hier startet das Exziton die Messung, während das Biexziton stoppt. Dies führt zu den selben Startbedingungen $n_G(0) = 1$ und $n_X(0) = n_{XX}(0) = 0$ wie bei der Exzitonmessung und es gilt für die Koeffizienten Bedingung A.7. Da das Biexziton den Stopp-Impuls auslöst, ergibt sich eine Proportionalität der Kreuzkorrelationsfunktion zur Besetzungswahrscheinlichkeit des Biexzitons:

$$g_{X \rightarrow XX}^{(2)}(t) \propto n_{XX}(t) \propto 1 + \frac{B_X}{A} e^{\lambda_1 t} + \frac{C_X}{A} e^{\lambda_2 t}. \quad (\text{A.12})$$

A.3. Berücksichtigung der Detektorauflösung

Da das zeitliche Auflösungsvermögen kommerzieller Einzelphotonendetektoren oftmals in der selben Größenordnung wie die Lebensdauern der untersuchten Teilchen liegt, bewirkt dieses eine Verschmierung der gemessenen Photonen-Korrelationsfunktionen zweiter Ordnung (vgl. Abbildung 2.8). Um die Detektorauflösung t_{res} bei den bisherigen Betrachtungen zu berücksichtigen, muss die ideale Funktion mit einer Gaußverteilung $G(\sigma, t)$ mit der Standardabweichung $\sigma = t_{res}/2\sqrt{2 \ln 2}$ gefaltet werden. Die Korrelationsfunktionen setzen sich aus einem negativen und einem positiven Zeitbereich zusammen, was durch die Verwendung der Stufenfunktion Θ einkalkuliert wird, und es gilt:

$$\begin{aligned} g_{res}(t)^{(2)}(t) &= \left[g_{neg}(t)^{(2)}(-t)\Theta(-t) + g_{pos}(t)^{(2)}(t)\Theta(t) \right] \otimes G(\sigma, t) \\ &= \left[1 + \sum_i \alpha_i e^{-\lambda_i t} \Theta(-t) + \sum_i \beta_i e^{\lambda_i t} \Theta(t) \right] \otimes G(\sigma, t). \end{aligned} \quad (\text{A.13})$$

Die Faltung der beiden Exponentialterme in Gleichung A.13 mit der gauß'schen Normalverteilung führt zu folgendem Ausdruck:

$$\begin{aligned} E(t, \lambda, \sigma) &= e^{\lambda t} \Theta(t) \otimes G(\sigma, t) \\ &= \int_0^\infty e^{\lambda t'} G(\sigma, t - t') dt' \\ &= \frac{1}{2} e^{\lambda t + \frac{\lambda^2 \sigma^2}{2}} \left(1 + \operatorname{erf} \left(\frac{t + \sigma^2 \lambda}{\sqrt{2} \sigma} \right) \right), \end{aligned} \quad (\text{A.14})$$

wobei $\text{erf}(t)$ die Gauß'sche Fehlerfunktion darstellt. Für die Photonen-Korrelationsfunktionen ergeben sich daraus dann:

$$g_{res}^{(2)}(t) = 1 + \sum_i \alpha_i E(-t, \lambda_i, \sigma) + \sum_i \beta_i E(t, \lambda_i, \sigma) . \quad (\text{A.15})$$

Die einzelnen Koeffizienten α_i und β_i müssen entsprechend den Anfangsbedingungen aus den Gleichungen A.7 oder A.9 gewählt werden.

Anhang B.

Simulationen auf Basis des Fick'schen Gesetzes

In Abschnitt 4.4 des Kapitels „Einfluss eines RTA-Prozesses auf die elektronischen Eigenschaften von Quantenpunkten“ wurden Simulationen von A. Schliwa von der TU Berlin durchgeführt, welche einen Zugang zur Variation der Indiumkonzentration durch einen RTA-Prozess in einem InAs/GaAs-QP ermöglichen. Im Folgenden soll diese Methode kurz erläutert werden. Um den Effekt des Ausheilens zu simulieren, wurde ein Boxcar-Glättungs-Algorithmus verwendet. Als Ausgangssituation wurde ein pyramidaler PCA-QP mit gleichförmiger Indiumverteilung innerhalb der Grenzen, wie er in Abbildung B.1a zu sehen ist, verwendet. Anschließend wird der Ausgangs-QP für N Schritte durch die Operation

$$c_{i,j,k} \longrightarrow \frac{1}{7}(c_{i+1,j,k} + c_{i-1,j,k} + c_{i,j+1,k} + c_{i,j-1,k} + c_{i,j,k+1} + c_{i,j,k-1} + c_{i,j,k}) \quad (\text{B.1})$$

ausgeheilt, wobei c der Indiumkonzentration an den Koordinaten (i,j,k) entspricht. Die Zahl N steht für die Anzahl der Glättungsschritte (siehe Abb. B.1b bis B.1d). Für jeden Schritt N wird dann eine Berechnung der elektronischen Struktur durchgeführt, um die entsprechende Materialumverteilung, die resultierende Verspannung und die Piezoelektrizität zu erfassen. Die Einteilchenzustände werden über die Implementierung einer 3D 8-Band- \mathbf{kp} -Theorie berechnet und die Lebensdauer des Elektron-Lochpaars anhand der Dipolnäherung bestimmt.

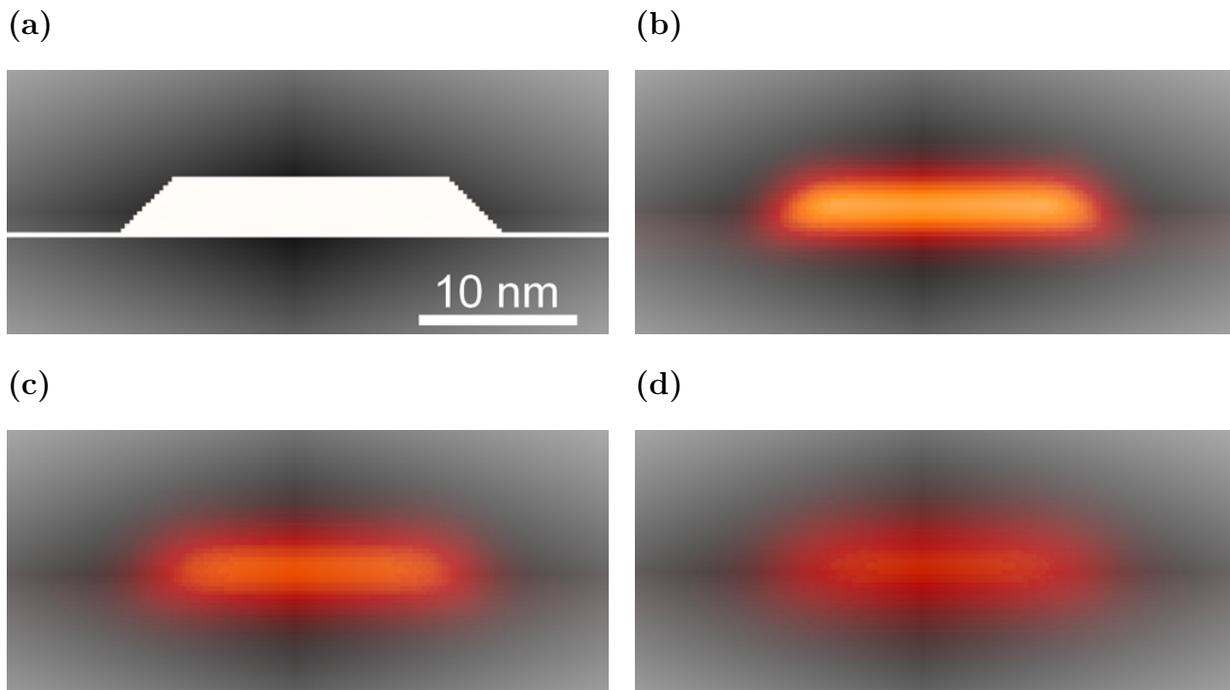


Abbildung B.1.: Indiumkonzentration als Funktion von N -Glättungsschritten. (a) zeigt den Ausgangs-QP mit einer gleichförmigen Indiumverteilung und abrupten Grenzflächen. Durch die Glättungsoperation B.1 findet eine Indiumumverteilung statt ((b): $N = 6$, (c): $N = 12$, (d): $N = 18$).

Veröffentlichungen des Autors

Veröffentlichungen als Erstautor

- T. Braun, S. Unsleber, V. Baumann, M. Gschrey, S. Rodt, S. Reitzenstein, C. Schneider, S. Höfling und M. Kamp, *Cascaded emission of linearly polarized single photons from positioned InP/GaInP quantum dots*, Applied Physics Letters **103**, S. 191113 (2013).
- T. Braun, C. Schneider, S. Maier, R. Igusa, S. Iwamoto, A. Forchel, S. Höfling, Y. Arakawa und M. Kamp, *Temperature dependency of the emission properties from positioned In(Ga)As/GaAs quantum dots*, AIP Advances **4**, S. 097128 (2014).
- T. Braun, V. Baumann, O. Iff, S. Höfling, C. Schneider und M. Kamp, *Enhanced single photon emission from positioned InP/GaInP quantum dots coupled to a confined Tamm-plasmon mode*, Applied Physics Letters **106**, S. 041113 (2015).
- T. Braun, S. Betzold, N. Lundt, M. Kamp, S. Höfling und C. Schneider, *Impact of ex-situ rapid thermal annealing on the magneto-optical properties and the oscillator strength of In(Ga)As quantum dots*, Physical Review B **93**, S. 155307 (2016).

Veröffentlichungen als Koautor

- T. Heindel, C. Schneider, M. Lermer, S. H. Kwon, T. Braun, S. Reitzenstein, S. Höfling, M. Kamp und A. Forchel, *Electrically driven quantum dot-micropillar single photon source with 34% overall efficiency*, Applied Physics Letters **96**, S. 011107 (2010).

- F. Albert, T. Braun, T. Heindel, C. Schneider, S. Reitzenstein, S. Höfling, L. Worschech und A. Forchel, *Whispering gallery mode lasing in electrically driven quantum dot micropillars*, Applied Physics Letters **97**, S. 101108 (2010).
- S. Reitzenstein, T. Heindel, C. Kistner, F. Albert, T. Braun, C. Hopfmann, P. Mrowinski, M. Lermer, C. Schneider, S. Höfling, M. Kamp und A. Forchel, *Electrically Driven Quantum Dot Micropillar Light Sources*, IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics **17**, S. 1670 (2011).
- C. Schneider, S. Kremling, N.V. Tarakina, T. Braun, M. Adams, M. Lermer, S. Reitzenstein, L. Worschech, M. Kamp, S. Höfling und A. Forchel, *AlGaInAs quantum dot solar cells: tailoring quantum dots for intermediate band formation*, Semiconductor Science and Technology **27**, S. 032002 (2012).
- J. Treu, C. Schneider, A. Huggenberger, T. Braun, S. Reitzenstein, S. Höfling und M. Kamp, *Substrate orientation dependent fine structure splitting of symmetric In(Ga)As/GaAs quantum dots*, Applied Physics Letters **101**, S. 022102 (2012).
- J. Beetz, T. Braun, C. Schneider, S. Höfling und M. Kamp, *Anisotropic strain-tuning of quantum dots inside a photonic crystal cavity*, Semiconductor Science and Technology **28**, S. 122002 (2013).
- M. Rau, T. Heindel, S. Unsleber, T. Braun, J. Fischer, S. Frick, S. Nauerth, C. Schneider, G. Vest, S. Reitzenstein, M. Kamp, A. Forchel, S. Höfling und H. Weinfurter, *Free space quantum key distribution over 500 meters using electrically driven quantum dot single-photon sources-a proof of principle experiment*, New Journal of Physics **16**, S. 043003 (2014).
- M. E. Reimer, G. Bulgarini, A. Fognini, R. W. Heeres, B. J. Witek, M. A. M. Versteegh, A. Rubino, V. Zwiller, T. Braun, M. Kamp, S. Höfling, D. Dalacu, J. Lapointe und P. J. Poole, *Overcoming power broadening of the quantum dot emission in a pure wurtzite nanowire*, Physical Review B **93**, S. 195316 (2016).

Tagungsbeiträge als Erstautor

- T. Braun, F. Albert, T., C., S. Höfling, S. Reitzenstein, L. Worschech, M. Kamp und A. Forchel, *Whispering gallery mode lasing in circular and Limacon shaped electrically driven quantum dot micropillars* (Poster), International Nano-Optoelectronic Workshop 2011 (iNow2011), 04. Juli - 06. August, St. Petersburg (Russland) und Würzburg (Deutschland).
- T. Braun, C. Schneider, S. Kremling, N.V. Tarakina, M. Lerner, M. Adams, L. Worschech, S. Reitzenstein, S. Höfling, A. Forchel und M. Kamp, *Towards intermediate-band formation in solar cells with AlGaInAs quantum dots*, DPG Frühjahrstagung 2012, 25.-30. März, Berlin (Deutschland).
- T. Braun, V. Baumann, S. Unsleber, M. Gschrey, S. Rodt, S. Reitzenstein, S. Höfling, C. Schneider und M. Kamp, *Cascaded emission of linearly polarized single photons from positioned InP/GaInP quantum dots*, DPG Frühjahrstagung 2013, 10.-15. März, Regensburg (Deutschland).
- T. Braun, S. Unsleber, V. Baumann, M. Gschrey, S. Rodt, S. Reitzenstein, S. Höfling, C. Schneider und M. Kamp, *Cascaded emission of linearly polarized single photons from positioned InP/GaInP quantum dots*, *Cascaded emission of linearly polarized single photons from positioned InP/GaInP quantum dots* (Poster), 1st Sino-German Solid State Quantum Information Symposium, 16.-21. September 2013, Würzburg (Deutschland).

Danksagung

Abschließend möchte ich allen Leuten danken, die mich auf meinem fachlichen und persönlichen Weg unterstützt und die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. Mein Dank gilt hierbei...

... Prof. Dr. Alfred Forchel für die Aufnahme am Lehrstuhl für Technische Physik mit seinen hervorragenden technologischen Möglichkeiten und die interessante Themenstellung in einem spannenden Forschungsgebiet.

... im Besonderen meinem Doktorvater Dr. Martin Kamp für die überaus freundliche Aufnahme als seinen Promotionsstudenten. Du standest mir immer mit Rat und Tat zur Seite und hast damit zum wesentlichen Erfolg dieser Arbeit beigetragen.

... Prof. Dr. Jean Geurts für die Übernahme des Zweitgutachtens dieser Arbeit sowie Prof. Dr. Ronny Thomale für die Teilnahme als Prüfer im Promotionskolloquium.

... Prof. Dr. Sven Höfling und Dr. Christian Schneider für die wissenschaftliche Unterstützung, das überaus angenehme Miteinander und die Möglichkeit in Themengebieten abseits dieser Arbeit mitzuarbeiten.

... allen Kollegen aus der Wachstumsabteilung und insbesondere Vasilij Baumann für die Herstellung exzellenter Proben und die wissenschaftlichen Diskussionen, die zum Erfolg der Arbeit beigetragen haben.

... meinen ehemaligen Masteranden Sebastian Unsleber und Simon Betzold sowie meinen Bacheloranden Oliver König, Maximilian Schwarz, Elischa Bläss und Oliver Iff. Vielen Dank für Euer Engagement und Euer Durchhaltevermögen.

... meinen Kollegen Ferdinand Albert, Stefan Kremling, Peter Gold, Arash Rahimi-Iman, Matthias Amthor, Tobias Heindel sowie allen anderen Kollegen aus meiner Arbeitsgruppe für das freundschaftliche Arbeitsklima und jegliche Hilfestellung.

... meinem Bürokollegen Julian Fischer für die angenehme und heitere Atmosphäre.

... Monika Emmerling, Adriana Wolf, Silke Kuhn, Theresa Steinl sowie allen anderen technischen Assistentinnen für die Prozessierung der Proben auf höchstem technologischen Niveau.

... Gerhard Heller für den Beistand bei technischen Problemen und deren Beseitigung.

... den Mitarbeitern der wissenschaftlichen Werkstätten für Spezialanfertigungen, Reparaturen und die Hilfestellungen. Insbesondere möchte ich mich bei Roland Ebert und Cornelius Ziga für die immerwährende Versorgung mit flüssigem Helium bedanken.

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

... meinen Bundesbrüdern sowie meinem gesamten Freundeskreis, vor allem jedoch meinem lieben Lbf. Sven Wilbert, für die gemeinsam verbrachte Zeit und den ein oder anderen amüsanten Abend. Des Weiteren gilt mein besonderer Dank Tanita Wallace, die mich während der gesamten Promotion in unserer Wohngemeinschaft begleitet hat. Danke für die schöne Zeit, diverse Mahlzeiten und die stets lustigen Abende.

... meinen Eltern sowie meiner gesamten Familie für deren Unterstützung während der gesamten Zeit auf jede nur erdenkliche Art und Weise. Ihr habt für mein Durchhaltevermögen gesorgt und für den Erfolg dieser Arbeit entscheidend beigetragen. Schließlich möchte ich mich ganz besonders bei meiner Freundin Franziska Ludwig für die Motivation in kritischen Momenten, die nötige Ablenkung in arbeitsreichen Phasen und die angenehmen miteinander verbrachten Stunden bedanken.