

Über die Dynamik lokal wechselwirkender Spinträger

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

vorgelegt von

Michael Scheibner

geboren in Ebern

Würzburg 2005

Eingereicht am:
bei der Fakultät für Physik und Astronomie
der Universität Würzburg

29.12.2005

1. Gutachter:
2. Gutachter:
3. Gutachter:
der Dissertation.

Prof. Dr. Gerd Bacher
PD Dr. Lukas Worschech
Prof. Dr. Fritz Henneberger

1. Prüfer:
2. Prüfer:
3. Prüfer:
im Promotionskolloquium.

Prof. Dr. Gerd Bacher
PD Dr. Lukas Worschech
Prof. Dr. Fritz Henneberger

Tag des Promotionskolloquiums:

22.09.2006

Doktorurkunde ausgehändigt am:

Meinen Eltern

Teile dieser Arbeit wurden bereits veröffentlicht:

- M. Scheibner, G. Bacher, S. Weber, A. Forchel, T. Passow und D. Hommel.
Polarization dynamics in self-assembled CdSe/ZnSe quantum dots: The role of excess energy,
Phys. Rev. B **67**, 153302 (2003)
rezitiert in *Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology* 28. April 2003.
- M. Scheibner, G. Bacher, A. Forchel, T. Passow und D. Hommel.
Spin dynamics in CdSe/ZnSe quantum dots: Resonant versus non-resonant excitation,
J. of Superconductivity: Incorporating Novel Magnetism **16**, 395 (2003).
- M. Scheibner, J. Seufert, H. Schömig, G. Bacher und A. Forchel.
Spin and polarization dynamics in magnetic and non-magnetic semiconductor quantum dots,
Proceedings of the SPIE **4992**, 1 (2003).
- G. Bacher, H. Schömig, M. Scheibner, A. Forchel, A. A. Maksimov, A. V. Chernenko, P. S. Dorozhkin, V. D. Kulakovskii, T. Kennedy und T. L. Reinecke.
Spin-spin interaction in magnetic semiconductor quantum dots,
Physica E **26**, 37 (2005).
- M. Scheibner, T. A. Kennedy, L. Worschech, G. Bacher, A. Forchel, T. Slobodskyy, G. Schmidt und L. Molenkamp.
Coherent Dynamics of Locally Interacting Spins in self-assembled Cd_{1-x}Mn_xSe/ZnSe Quantum Dots,
Phys. Rev. B **73**, 081308(R) (2006).
rezitiert in *Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology* 27. April 2006 und *Virtual Journal of Ultrafast Science* März 2006.

Zur Veröffentlichung eingereicht wurde:

- Michael Scheibner, Thomas Schmidt, Lukas Worschech, Alfred Forchel, Gerd Bacher, Thorsten Passow, und Detlef Hommel. Superradiance of Quantum Dots

Weitere Veröffentlichungen mit Beteiligung des Autors:

- B. Oetiker, N. Duric, J. McGraw, T. Williams, D. Jackson, H.J. Deeg, M. Scheibner, D. Garcia, und E. Wilcox
Searching for companions to late-type M stars, in den Verhandlungen zu 'From Giant Planets to Cool Stars', Eds. C.A. Griffith and M.S. Marley,
ASP Conf. Ser. **212**, 88 (2000)
- J. Seufert, M. Obert, M. Scheibner, N. A. Gippius, G. Bacher, A. Forchel, T. Passow, K. Leonardi, und D. Hommel.
Stark effect and polarizability in a single CdSe/ZnSe quantum dot,
Appl. Phys. Lett. **79**, 1033 (2001)
- J. Seufert, M. Scheibner, G. Bacher, A. Forchel, S. Lee, M. Dobrowolska, und J. K. Furdyna.
Dynamics of zero-dimensional excitons in a semimagnetic environment,
phys. stat. sol. (b) **229**, 727 (2002)
- G. Bacher, H. Schömig, M.K. Welsch, M. Scheibner, J. Seufert, M. Obert, A. Forchel, A.A. Maksimov, S. Zaitsev und V.D. Kulakovskii.
Nano-optics on individual quantum objects - from single to coupled semiconductor quantum dots,
Acta Physica Polonica A **102**, 475 (2002)
- J. Seufert, G. Bacher, M. Scheibner, A. Forchel, S. Lee, M. Dobrowolska und J. K. Furdyna.
Dynamical spin response in semimagnetic quantum dots,
Phys. Rev. Lett. **88**, 027402 (2002)
- T. A. Kennedy, A. Shabaev, M. Scheibner, Al. L. Efros, A. S. Bracker, und D. Gammon.
Optical initialization and dynamics of spin in a remotely doped quantum well,
Phys. Rev. B **73**, 045307 (2006).
- E. A. Stinaff, M. Scheibner, A. S. Bracker, I. V. Ponomarev, V. L. Korenev, M. E. Ware, M. F. Doty, T. L. Reinecke, und D. Gammon,
Optical Signatures of Coupled Quantum Dots,
Science **313**, 636 (2006).

- M. Scheibner, M. F. Doty, I. V. Ponomarev, A.S. Bracker, E.A. Stinaff, V.L. Korenev, T.L. Reinecke, und D. Gammon.
Spin Fine Structure in Optically Excited Quantum Dot Molecules,
cond-mat/0607241 (zur Publikation eingereicht).
- M. F. Doty, M. Scheibner, I. V. Ponomarev, E. A. Stinaff, A. S. Bracker, V. L. Korenev, T. L. Reinecke, und D. Gammon.
Electrically tunable g-factors in quantum dot molecular spin states,
cond-mat/0608198 (akzeptiert zur Publikation in *Phys. Rev. Lett.*).
- I. V. Ponomarev, M. Scheibner, E. A. Stinaff, A. S. Bracker, M. F. Doty, S. C. Badescu, M. E. Ware, V. L. Korenev, T. L. Reinecke, und D. Gammon.
Theory of spin states in coupled quantum dots,
akzeptiert zur Publikation in *phys. stat. sol. (b)*.
- M.F. Doty, M.E. Ware, E.A. Stinaff, M. Scheibner, A.S. Bracker, I.V. Ponomarev, S.C. Badescu, V.L. Korenev, T.L. Reinecke, und D. Gammon.
Spin Interactions in InAs Quantum Dots and Molecules,
akzeptiert zur Publikation in *phys. stat. sol. (b)*.
- M. Scheibner, A. S. Bracker, E. A. Stinaff, M. F. Doty, D. Gammon, I. V. Ponomarev, T. L. Reinecke, und V. L. Korenev
Optical Spectroscopy Of Charged Quantum Dot Molecules,
erscheint in den Verhandlungen der 28. internationalen Konferenz über die Physik von Halbleitern (*ICPS-28*) 2006.
- I. V. Ponomarev, T.L. Reinecke, M. Scheibner, E.A. Stinaff, A. Bracker, M.F. Doty, D. Gammon, und V.L. Korenev.
Theory of Spin States of Quantum Dot Molecules,
erscheint in den Verhandlungen der 28. internationalen Konferenz über die Physik von Halbleitern (*ICPS-28*) 2006.
- T. Schmidt, M. Scheibner, L. Worschech, A. Forchel, T. Slobodskyy, und L.W. Molenkamp.
Sign reversal and light controlled tuning of circular polarization in semimagnetic CdMnSe quantum dots,
akzeptiert zur Publikation in *J. Appl. Phys.*
- A. S. Bracker, M. Scheibner, M. F. Doty, E. A. Stinaff, I. V. Ponomarev, J. C. Kim, L. J. Whitman, T. L. Reinecke, und D. Gammon.
Engineering electron and hole tunneling with asymmetric InAs quantum dot molecules,
cond-mat/0609147 (zur Publikation eingereicht).

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	4
Summary	8
1 Einleitung	9
2 Physikalische Grundlagen	13
2.1 Drehimpuls, Spin und magnetisches Moment	13
2.1.1 Bahndrehimpuls eines Teilchens	13
2.1.2 Spin und Gesamtdrehimpuls eines Teilchens	14
2.1.3 Magnetisches Moment	15
2.1.4 Drehimpulskopplung mehrerer Teilchen	16
2.2 Optische Übergänge in Halbleitern	18
2.3 Das Exziton im Quantenpunkt	21
2.3.1 Magnetfeld in Faraday-Geometrie	22
2.3.2 Magnetfeld in Voigt-Geometrie	23
2.4 Ein paramagnetisches Spin System	24
2.4.1 Wechselwirkung zwischen Mn^{2+} -Ionen	25
2.4.2 Wechselwirkung zwischen Mn^{2+} -Ionen und Exzitonen	26
2.5 Spinrelaxation und Spindephasierung	28
2.5.1 Relevante Zeitkonstanten	28
2.5.2 Spinrelaxationsmechanismen	29
2.6 Die ultraschnelle zeitaufgelöste Photolumineszenzspektroskopie	33
2.7 Magneto-optische Effekte	34
2.7.1 Bei Transmission	37
2.7.2 Bei Reflektion	39
2.7.3 In Halbleitern	42
3 Experimentelle Techniken und Nanostrukturierung	45
3.1 Die zeitaufgelöste Photolumineszenzspektroskopie	45
3.2 Die zeitaufgelöste Kerr Rotation	48
3.3 Erzeugung niederdimensionaler Strukturen	50
3.4 Selektion einzelner Quantenpunkte	52

4	Polarisationsdynamik in CdSe/ZnSe Quantenpunkten	55
4.1	Nachweis der Nulldimensionalität	57
4.2	Strikt resonante Dynamik	60
4.3	Nichtresonante Anregung	61
5	Bestimmung der T_1-Zeit	67
5.1	Ein Drei-Niveau-System	67
5.2	Spinflipzeiten bei nichtresonanter Anregung ohne Magnetfeld	71
5.3	Spinflipzeiten bei nichtresonanter Anregung im Magnetfeld	73
6	Wechselwirkung 'künstlicher Atome'	77
6.1	Bestimmung der Quantenpunktdichte	79
6.2	Die PL-Emissionsrate	80
6.2.1	Spektrale Abhängigkeit	80
6.2.2	Funktionale Abhängigkeit	83
6.2.3	Resonante Dynamik	84
6.2.4	Wegnahme von Quantenpunkten	85
6.2.5	Diskussion der geringen Emissionsraten	87
7	Kohärente Dynamik lokal wechselwirkender Spins	91
7.1	Charakterisierung der Cd(Mn)Se/ZnSe Quantenpunktproben	93
7.2	Zeitaufgelöste Kerr-Rotation am Quantenpunkt-Ensemble	96
7.3	Kohärenter Spintransfer	98
7.4	Änderung des effektiven g-Faktors	99
7.5	Entkopplung der korrelierten Elektron und Loch Präzession	103
7.6	Dekohärenz der Mn-Spins	105
8	Ein langlebiges Spinsystem	107
8.1	Die Exziton-Resonanzen in n-GaAs	109
8.2	Erzeugung der Spinpolarisation	110
8.3	Wechselwirkung mit den Kernspins	112
8.4	Feldabhängigkeit der Kernspinpolarisation	115
8.5	T_2^* donatorgebundener Elektronen	118
A	Probenaufbau und -strukturierung	121
B	Versuchsaufbauten-3D	125
C	Geometrie der Kerr-Effekte	127
	Literaturverzeichnis	141

Zusammenfassung

Der enorme Fortschritt in der Festkörperphysik während der letzten Jahrzehnte schaffte die faszinierende Möglichkeit kontrolliert Strukturen mit atomähnlichen Eigenschaften zu erzeugen. Im Zuge dessen entwickelte sich eine Halbleiterelektronik, die das Bild unserer heutigen modernen Welt maßgeblich beeinflusst hat und weiterhin beeinflusst. Neben den elektronischen Eigenschaften richtet sich die Aufmerksamkeit der Forschung zunehmend auf den Spin der Ladungsträger in Halbleiterstrukturen. Ein Ziel dabei ist den Spin in Analogie zur Ladung zu verwenden um neuartige logische Bauelemente zu erzeugen. Von besonderem Interesse in diesem Zusammenhang sind sogenannte künstliche Atome (Quantenpunkte), die wegen ihrer diskreten Zustandsdichte eine lange Stabilität von Spinzuständen versprechen.

Vor diesem Hintergrund wurde in dieser Arbeit die Dynamik spintragender Teilchen (Elektronen, Löcher, Exzitonen) in selbstorganisierten Cd(Mn)Se/ZnSe Quantenpunkten sowie leicht dotiertem GaAs untersucht. Die unterschiedlichen Materialgruppen boten die Möglichkeit verschiedene Einflüsse auf Spinzustände zu studieren. Die Injektion definierter Spinzustände in die Halbleiterstrukturen erfolgte ausschließlich auf optischem Weg. Ebenfalls optisch wurde auch die zeitliche Entwicklung der Spinzustände detektiert. Durch Anwendung unterschiedlicher Meßmethoden wurde der Zugriff sowohl auf die longitudinalen wie auch die transversalen Spinrelaxationsprozesse ermöglicht. Im Folgenden wird eine Zusammenfassung der jeweils erzielten Ergebnisse gegeben:

Zu Beginn wurde anhand der Polarisation der Quantenpunkt-Photolumineszenz der Einfluß unterschiedlicher Anregungsbedingungen auf den Spinzustand von Elektron-Loch-Paaren (Exzitonen) im Quantenpunktgrundzustand untersucht. Von zentralem Interesse war dabei die Rolle der bei der Injektion der Elektron-Loch-Paare vorhandenen Überschussenergie (ΔE). Um die Polarisationsdynamik am Bezugspunkt $\Delta E = 0$ meV zu erhalten, wurde die Methode der strikt resonanten Photolumineszenzspektroskopie etabliert. Dabei wurde die Flexibilität eines Streak-Kamera-Systems ausgenutzt um das bei gepulster resonanter Anregung dem Laserpuls zeitlich folgende aber energetisch entsprechende Photolumineszenzsignal zu detektieren. Für $\Delta E = 0$ wurden mit $\rho_L \approx 0.8$ hohe lineare Polarisationsgrade festgestellt, die zudem eine nur sehr geringe zeitliche Variation auf der Zeitskala der Elektron-Loch-Rekombination (≈ 200 ps) aufweisen. Damit lies sich die Relaxationszeit zwischen den Grundzuständen der Exzitonen auf mindestens wenige

Nanosekunden abschätzen. Bei Injektion der Elektron-Loch-Paaren mit $\Delta E > 0$ meV konnte festgestellt werden, daß der Polarisationsgrad immer geringer ist als unter strikt resonanten Bedingungen. Jedoch findet die Abnahme nicht monoton mit der Überschußenergie der injizierten Exzitonen statt. Mit einem Energieunterschied von 29 meV treten periodisch Maxima im Polarisationsgrad des Photolumineszenzsignals auf, die der Relaxation über LO-Phonon-Kaskaden zugeschrieben werden konnten. Unter Ausnutzung der LO-Phonon-Kaskaden konnte selbst bei einer Überschußenergie von knapp 100 meV ein Polarisationsgrad von knapp $\rho_L = 0.3$ erhalten werden. Beachtlich dabei ist, daß die zeitliche Variation des Polarisationsgrades auf der Zeitskala der Elektron-Loch-Rekombination gering bleibt.

Ausgehend davon wurde eine genauere Analyse der Polarisationsdynamik (unter quasi resonanten Bedingungen) unter Zuhilfenahme eines durch ein Ratengleichungssystem beschriebenes Drei-Niveau-System durchgeführt. Die Erzeugung unterschiedlicher Anfangsbesetzungen durch Einstellung der Anregungspolarisation ermöglichte die Bestimmung der Relaxationszeiten der Exzitonspinzustände. Ohne Magnetfeld ergab sich $\tau_{YX} = 4.7$ ns und $\tau_{XY} = 1.8$ ns für die Relaxation zwischen den Zuständen $|X\rangle = (|+1\rangle + |1\rangle)/\sqrt{2}$ und $|Y\rangle = (|+1\rangle - |1\rangle)/\sqrt{2}$. Für $B = 7$ T und die Zustände $|+1\rangle$ und $|1\rangle$ konnten die Relaxationszeiten zu $\tau_{-+} = 2.5$ ns und $\tau_{+-} = 1.1$ ns bestimmt werden.

Neben der Polarisationsdynamik konnte in den zeitaufgelösten PL-Messungen beobachtet werden, daß sich die Zerfallszeit des PL-Signals deutlich verlängert je stärker nicht resonant angeregt wurde. Dabei war die Ausprägung dieser Variation an der Wellenlänge des Maximums des PL-Signals am stärksten. Desweiteren konnte gezeigt werden, daß die Änderung der Emissionsraten der für eine Strahlungskopplung zu erwartenden Abhängigkeit von Quantenpunktanzahl und Quantenpunktastand eng folgt. Die Anwendung strikt resonanter Bedingungen und damit die kohärente Anregung eines Subensembles von Quantenpunkten mit nur geringfügig unterschiedlichen Emissionsenergien führte zu der Beobachtung verschiedener PL-Emissionsraten aus den beiden Exzitonzuständen $|X\rangle$ und $|Y\rangle$ ($1/\tau_X = 1/160$ ps⁻¹ und $1/\tau_Y = 1/195$ ps⁻¹). Ein solcher Unterschied konnte bei nicht strikt resonanten Bedingungen nicht beobachtet werden. Wurden Quantenpunkte durch die Erzeugung immer kleinerer Mesenstrukturen zunehmend von den sie umgebenden Quantenpunkten isoliert, so resultierte dies in einer deutlichen Verlängerung der PL-Zerfallszeiten. Als mögliche Ursache für diese Beobachtungen wurde nach Ausschluß von Ladungsträgereffekten eine Kopplung der Quantenpunkte über ihr eigenes Strahlungsfeld in Betracht gezogen. Mit 150 nm konnte eine Untergrenze für die Reichweite der Kopplung angegeben werden.

Im nächsten Schritt wurde das Verhalten des Spins in selbstorganisierten Cd(Mn)Se/ZnSe Quantenpunkten mittels zeitaufgelöster Kerr Rotation studiert. Besonderes Augenmerk wurde dabei auf die Wechselwirkung zwischen den photo-injizierten Ladungsträgerspins

und den in die Quantenpunkte eingebrachten Mn-Spins gelenkt. Ausgehend von manganfreien Quantenpunkten wurde sukzessive die Mn-Konzentration erhöht und dabei auftretende Effekte diskutiert. Das binnen weniger zehn Pikosekunden zerfallende Kerr-Signal eines manganfreien Quantenpunktensembles konnte durch eine Verteilung der Elektron-Loch-Austauschspaltung erklärt werden. Dabei ermöglichte eine Beschreibung des Signals als Folge dephasierender Exziton-Quantenschwebungen die Bestimmung einer unteren Grenze für die Kohärenzzeit T_2^* (6 ps) aus der Breite des Signals. Ähnliches gilt für eine nominelle Mn-Konzentration von $x_{Mn} = 0.005$ ($T_2^* \geq 25$ ps). Bei Erhöhung der Mn-Konzentration traten zunehmend stärker werdende, den Mn-Spins zuzuschreibende, Oszillationen auf. Daraus war zu schließen, daß selbst in einem derart eng miteinander wechselwirkenden Spinsystem ein kohärenter Spintransfer stattfindet. Ein weiterer auffälliger Effekt des Mn-Einbaus war der Vorzeichenwechsel im Kerr-Signal, welcher auf einen entsprechenden Vorzeichenwechsel des effektiven Exziton g-Faktors zwischen $x_{Mn} = 0.01$ und $x_{Mn} = 0.02$ zurückgeführt wurde. Dies beruht auf der zwischen Exziton und Mn-Spins wirkenden spd-Austauschwechselwirkung und der Tatsache, daß für $x_{Mn} = 0$ der g-Faktor negativ ist. Im Fall $x_{Mn} = 0.02$ traten neben den Oszillationen der Mn-Spins auch Oszillationen auf, die den Elektronen zuzuordnen waren. An ihnen läßt sich, basierend auf Literaturwerten für den intrinsischen g-Faktor, der sd-Austauschwechselwirkung ein internes Magnetfeldes von $B_{int} \approx 4.4$ T bei einem externen Magnetfeld von $B_{ext} = 1$ T zuschreiben.

Optisch erzeugte Spinträger haben wie im Fall der Exzitonen den Nachteil, daß die Spininformation maximal solange bestehen bleibt, wie der Informationsträger existiert. Ein Übertrag der Spininformation auf ein permanent vorhandenes System ist deswegen wünschenswert. Mit leicht dotiertem n-GaAs wurde ein System untersucht, das dem eines mit Elektronen dotiertem Quantenpunktensemble ähnlich ist. Da der Schwerpunkt auf die kohärente Dynamik der Donatorelektronen gelegt wurde, wurde zunächst die Erzeugung eines nicht verschwindenden Gesamtspins auf optischen Wege skizziert. Dabei konnte herausgestellt werden, daß in diesem Fall die kohärente Dynamik der Donatorelektronen im Grundzustand für die Oszillationen im Kerr-Signal verantwortlich sein müssen. Mit einem Pikosekundenlaser konnten die Resonanzen der freien und der donatorgebundenen Exzitonen wellenlängenselektiv unterschieden werden. Variationen der Oszillationsperiode im Kerr-Signal auf einer Zeitskala von knapp 20 Minuten deuteten auf eine intensive Wechselwirkung mit den Kernspins hin. Diese führt zum Aufbau interner Magnetfelder. Die Stärke der internen Magnetfelder ist aufgrund von Lokalisierung abhängig vom äußeren Magnetfeld und konnte bei einem externen Magnetfeld von $B = 6$ T zu ca. $B_{int} = 0.8$ T bestimmt werden. Unter Berücksichtigung des internen Magnetfeldes wurde für den tatsächlichen g-Faktor der Elektronen ein Wert von $g_e = -0.49$ erhalten. Eine Abschätzung der T_2^* -Zeit der Elektronen ergab Werte von einigen wenigen Nanosekunden (hohes Magnetfeld) bis hin zu einigen zehn Nanosekunden (geringes Magnetfeld).

Summary

The enormous progress of solid state physics during the past decades lead to the fascinating capability to controllably create structures with atom-like properties. In course of this progress a semiconductor technology developed which has significantly been changing the appearance of our today's modern world. Besides studying the electronic properties research interest is increasingly drawn towards spin in semiconductor structures. In this regard one major aim is to employ spin in analogy to charge in order to create novel logical devices. Especially so called artificial atoms (quantum dots) are of interest since their discrete density of states promises a long stability of spin states.

Against this background the dynamics of spin carrying particles like electrons, holes and excitons in self-organized Cd(Mn)Se/ZnSe quantum dots and lightly doped GaAs has been studied in this thesis. The different materials offered the possibility to investigate various influences on spin states. The injection of defined spin states into the semiconductor structures was achieved exclusively by optical means. Likewise, the temporal evolution of the spin states was detected optically. The application of different experimental methods gave access to longitudinal as well as transverse spin relaxation processes. In the following a summary of the findings obtained in each experiment is given.

First the influence of different excitation conditions on the spin state of electron hole pairs (excitons) in the quantum dot ground state was investigated by monitoring the polarization of the emitted PL-signal. Of central interest was the role of the excess energy (ΔE) transmitted by a particle injected into the semiconductor structure. In order to obtain information on the polarization dynamics at the reference point $\Delta E = 0$ meV, the method of strictly resonant PL-spectroscopy was established. For that matter the versatility of a streak camera system was exploited to detect the PL-signal following a pulsed resonant excitation at the energy of the laser. For $\Delta E = 0$ meV high degrees of linear polarization were found, which in addition exhibited only small variations on the timescale of the electron hole recombination (≈ 200 ps). Based on this it was possible to estimate the relaxation time between the ground states of the exciton to at least on the order of a few nanoseconds. If the electron hole pairs were injected with $\Delta E > 0$ meV it was observed that the polarization degree was always smaller than under strictly resonant conditions. However the reduction did not occur monotonously with increasing excess energy. With a period of 29 meV maxima were observed in the polarization degree,

which were related to the relaxation via LO-Phonon cascades. By utilizing these LO-Phonon cascades it was still possible to obtain a polarization degree of about $\rho_L = 0.3$ at an excitation which created electron hole pairs with an excess energy of almost 100 meV.

With respect to these observations a more detailed analysis of the polarization dynamics (under quasi resonant conditions) was performed. This included the description of the quantum dot exciton in terms of a three level system using a set of rate equations. This in combination with the realization of different initial populations of the exciton ground states, controlled by variation of the polarization of the excitation, enabled the determination of the relaxation times between the exciton ground states. Without external magnetic field and exciton states $|X\rangle = (|+1\rangle + |1\rangle)/\sqrt{2}$ and $|Y\rangle = (|+1\rangle - |1\rangle)/\sqrt{2}$ relaxation times of $\tau_{YX} = 4.7$ ns and $\tau_{XY} = 1.8$ ns were obtained for the relaxation from $|Y\rangle$ to $|X\rangle$ and vice versa. For an external field of $B = 7$ T and exciton states $|+1\rangle$ and $|1\rangle$ the relaxation times were determined to be $\tau_{-+} = 2.5$ ns and $\tau_{+-} = 1.1$ ns.

In addition to the polarization dynamics it was observed that the decay time of the PL-signal increased significantly if non resonant excitation conditions were applied. The variation was emphasized strongest at the wavelength of the maximum of the PL-Signal. A further analysis of the spectral dependence showed that the change in decay rates follows the scaling expected for radiative coupling closely. The application of strictly resonant and therefore the coherent excitation of a subensemble of quantum dots with only slightly different emission energies, resulted in the observation of different emission rates for the exciton states $|X\rangle$ and $|Y\rangle$ ($1/\tau_X = 1/160$ ps⁻¹ and $1/\tau_Y = 1/195$ ps⁻¹). Such a difference was not detected if excitation conditions other than strictly resonant were applied. In a further experiment the creation of mesa structures of decreasing size was used to isolate quantum dots successively from their neighboring quantum dots. This resulted in a significant increase of the PL decay time. After the exclusion of charging effects a coupling of the quantum dots through their radiation field was considered as origin of the observed effects. For the range of this interaction a lower limit of 150 nm was determined.

In the next step the coherent properties of spins in self-organized Cd(Mn)Se/ZnSe quantum dots were studied by means of time resolved Kerr rotation. Special attention was put on the interaction between photoinjected spin carriers and magnetic ions (Mn²⁺-ions) which were built into the quantum dots on purpose. Starting from Mn-free quantum dots the Mn-concentration was increased successively and the occurring effects were discussed. The signal obtained from a Mn-free quantum dot ensemble decays monotonically within a few ten picoseconds. This was related to the distribution of the ground state exchange splitting inherent to the quantum dots. Describing the signal by the dephasing of exciton quantum beats, allowed to extract a lower limit for the T_2^* time from the width of the signal (here $T_2^* \geq 6$ ps). In analogy this was also applied to quantum dots with a nominal Mn concentration of $x_{Mn} = 0.005$ and $T_2^* \geq 25$ ps. A further increase of the

the Mn concentration lead to the occurrence of an oscillatory signal which was assigned to originate from the Mn-spins precessing around the magnetic field. This lead to the interpretation, that even in such a system of tightly interacting spins it is possible to transfer spin coherently. Another obvious effect of the increased Mn incorporation was a sign reversal of Kerr-signal, which occurred between $x_{Mn} = 0.01$ and $x_{Mn} = 0.02$. That sign reversal was related to a corresponding sign change of the effective g-factor. Such a behavior results from the spd-exchange interaction and the fact that the intrinsic exciton g-factor is negative for $x_{Mn} = 0$. Besides the Mn oscillation an oscillation caused by the photoinjected electrons appeared for $x_{Mn} = 0.02$. By using a value for the intrinsic g-factor stated in literature, the sd-exchange interaction was expressed in terms of an internal magnetic field of strength $B_{int} \approx 4.4$ T (at an external field of $B_{ext} = 1.0$ T).

A disadvantage of optically generated spin carriers like excitons correlates with the fact that the imprinted spin information exists only as long as the charges carrying the spin have not recombined. Therefore it is desirable to transfer the spin onto a spin system which is permanently present. By a change of material system to lightly doped n-GaAs, a system quite similar to quantum dots doped with electrons was studied. Since the main focus in this investigation was on the spin dynamics of the donor electron, the creation of a non zero net spin was sketched initially. This provided the information that in this case the oscillation seen in the Kerr-signal originates from donor electrons being in their ground state. Using a picosecond laser allowed to distinguish spectrally between the resonances of the free and the donor bound excitons. Changes of the oscillation period in the Kerr-signal on a time scale of 20 minutes indicated an intense interaction between the electron spins and the nuclear spins of the host material. This interaction results in the creation of internal magnetic fields. The strength of these internal fields depends due to localization on the external field. At the highest external field applied ($B = 6$ T) an internal field of about $B_{int} = 0.8$ T was determined. With the knowledge of the internal magnetic field, the bare electron g-factor was determined ($g_e = -0.49$). T_2^* times ranging from a few nanoseconds at high magnetic fields to a few ten nanoseconds at low magnetic fields were observed.

Kapitel 1

Einleitung

Es ist erstaunlich zu welchen Entwicklungen die Erkenntnisse der Physik bisher geführt haben, obwohl eine vollständige Beschreibung schon von nur drei miteinander wechselwirkenden Teilchen nur näherungsweise möglich ist. Und nimmt man winzige Teilchen und beschränkt sie auf einen ebenso winzigen Raumbereich, so bedarf es aufwendiger mathematisch-physikalischer Mechanismen um deren Zustand zu erfassen. Mit Recht stellt der berühmte Professor und Nobelpreisträger für Physik Richard P. Feynman deshalb in seinem Artikel *'Simulating Physics with Computers'* die Frage: *'...how can we simulate quantum mechanics?'* [Fey82]. Wie also kann man erst die Quantenmechanik eines aus vielen Teilchen bestehenden Systems simulieren? Seine einfache wie geniale Antwort *'Let the computer itself be built of quantum mechanical elements which obey the quantum mechanical laws.'* weist den Weg in Richtung des heute hochaktuellen Forschungsgebietes der Quanteninformationsverarbeitung.

In der konventionellen Informationsverarbeitung basieren logische Operationen auf der Manipulation von Ladungszuständen. Seit einem Experiment von O. Stern und W. Gerlach 1922 ist allerdings bekannt, daß Elementarteilchen wie z.B. Elektronen neben ihrer Ladung noch eine weitere Eigenschaften besitzen können - den *Spin* [Ste22a, Ste22b]. Zwar läßt sich auf den Spin die selbe Algebra wie auf einen Drehimpuls anwenden, jedoch findet sich in der klassischen Physik kein Analogon. Es ist ein Phänomen, das als Konsequenz aus der relativistischen Betrachtung der Quantenmechanik entsteht (siehe z.B. [Nol94b]). Eng verknüpft mit dem Spin sind die magnetischen Eigenschaften eines Systems, welches spinbehaftete Teilchen enthält. So basiert der Ferromagnetismus in Festkörpern auf dem Spin von Elektronen. Genutzt wird dieser Ferromagnetismus z.B. bei der Datenspeicherung auf Computerfestplatten. Mit der Entdeckung der Riesenmagnetowiderstände 1988 [Bai88] begann die Nutzung spinpolarisierter elektrischer Ströme und fand bald darauf Anwendung in sogenannten magnetoelektronischen Bauelementen wie Magnetfeldsensoren, Festplattenleseköpfe und magnetische Speicherbausteine (MRAMs¹). Hervorzuheben ist dabei, daß MRAMs im Gegensatz zu herkömmlichen Speicherbausteinen (DRAMs²)

¹Magnetic Random Access Memory

²Dynamic Random Access Memory

ihren Inhalt aufgrund einer permanenten Spinausrichtung dauerhaft behalten und nicht ständig durch Zufuhr elektrischer Energie aufgefrischt werden müssen.

In den vergangenen Jahren jedoch ist ein Bewußtsein gereift, das den Spin nicht nur als statischen Informationsträger ansieht, sondern ihn anstatt bzw. neben der Ladung in dynamische logische Operationen mit einbezieht (siehe z.B. [Wol01, Aws02, Aws04]). In Analogie zur Elektronik hat sich der Begriff '*Spintronik*' geprägt. Dieses junge Forschungsgebiet befaßt sich mit der Manipulation und der Kontrolle von Spinfreiheitsgraden. Hierbei basieren viele Konzepte auf bekannten Bauelementen der (Halbleiter-)Elektronik. Erwähnt sei hier z.B. der Spintransistor [Dat90] und die Spindiode [Fla01]. Völlig neue Wege hingegen beschreitet man mit dem Ziel einen sogenannten 'Quantencomputer' zu realisieren. Dabei birgt die quantenmechanische Natur des Spins ein enormes Potential. Mit darauf basierenden neuen Rechner-Architekturen können Algorithmen wie z.B. die Faktorisierung großer Zahlen für die De-/Codierung oder die Suche in großen Datenbanken stark beschleunigt werden. Zugleich kann die Übertragung von Daten mittels 'Quantenkommunikation' abhörsicher gemacht werden (siehe z.B. [Bou00]).

Wichtigstes Kriterium um den Spin für die Informationsverarbeitung nutzen zu können ist, daß ein definiert präparierter Spinzustand genügend lange erhalten bleibt. Daher ist es von großem Interesse Einflüsse aus der Umgebung auf den Spin zu erkennen und zu unterdrücken bzw. eventuell gezielt zu nutzen. Als Beispiele seien hier die Hyperfeinwechselwirkung zwischen Ladungsträgerspins und den Kernspins der Gitterbausteine und die Wechselwirkung mit lokalen magnetischen Momenten erwähnt.

Der Untersuchung solcher Einflüsse kommt die enorme Flexibilität in der Erzeugung von Festkörperstrukturen entgegen. Durch Wahl der verwendeten Materialien, kontrolliertes Wachstum und Strukturierung ist es möglich gezielt die physikalischen Parameter des jeweils gewünschten Systems einzustellen. Seit der erstmaligen Realisierung von Quantenpunkten 1986 [Ree86] können damit sogar quasi null-dimensionale Strukturen maßgeschneidert hergestellt werden. Sie werden erzeugt durch geeignete Materialvariationen und/oder geometrische Strukturierung in alle drei Raumrichtungen auf einer Nanometerskala [Bim99, Jac98, Har00, Wog03]. Dies erlaubt Untersuchungen in winzigen Raumgebieten. Zudem weisen Quantenpunkte atomähnliche diskrete Spektren auf [Gam96]. Grund dafür ist eine durch die räumliche Lokalisierung hervorgerufene diskrete Zustandsdichte. Verglichen mit höherdimensionalen Strukturen bedeutet dies eine reduzierte Anzahl von möglichen quantenmechanischen Zuständen und damit eine geringere Wahrscheinlichkeit für die Streuung eines Teilchens von einem Zustand in einen anderen. Unter diesen Gesichtspunkten stellen Quantenpunkte ideale Systeme dar um Einflüsse auf Spinzustände zu untersuchen.

Die vorliegende Arbeit befaßt sich vorwiegend mit der Dynamik spintragender Teilchen in niederdimensionalen Quantensystemen aus Halbleitermaterial, sowie in leicht dotiertem GaAs Volumenmaterial. Betrachtet werden dabei Elektronen, Löcher und Manganionen in Cd(Mn)Se/ZnSe Quantenpunkten sowie Donatorelektronen und Kernspins in GaAs. Insbesondere wird untersucht, unter welchen Bedingungen in diesen Systemen erzeugte

Spinzustände erhalten bleiben bzw. wie diese intern wie auch extern beeinflusst werden können. Der Aufbau dieser Arbeit gliedert sich wie folgt:

In **Kapitel 2** werden aufbauend auf der allgemeinen Beschreibung von Spin- und Bahndrehimpulszuständen die in Halbleitern durch optische Anregung erzeugbaren Zustände aufgezeigt. Besonderes Augenmerk richtet sich dabei auf Exzitonen in Quantenpunktstrukturen. Betrachtungen des jeweiligen Hamiltonoperators sollen den Grundstein für die in unterschiedlichen Magnetfeldkonfigurationen durchgeführten Messungen legen. Eine weitere zentrale Rolle kommt dem neben dem Exziton auftretenden Spinsystem des Mangan²⁺-Ions zu. An diesen beiden Beispielen wird kurz auf den Mechanismus der Austauschwechselwirkung zwischen zwei Spinsystemen eingegangen. Desweiteren erfolgt eine Vorstellung der derzeit bekannten Spinrelaxationsprozesse. Zum Abschluß dieses Kapitels wird auf die physikalischen Grundlagen der in dieser Arbeit zur Untersuchung der Spindynamik verwendeten Meßmethoden eingegangen.

Kapitel 3 beschreibt sodann die in den Experimenten zur Untersuchung der Spindynamik verwendeten experimentellen Versuchsaufbauten. Dabei handelt es sich im Detail um die zeitaufgelöste Photolumineszenzspektroskopie (PL) und die zeitaufgelöste Kerr-Rotation. Zudem wird kurz auf die Erzeugung und die Selektion einzelner der hier untersuchten Quantenpunkte eingegangen.

Kapitel 4 ist der Auftakt zur Vorstellung der experimentell erhaltenen Ergebnisse. Gegenstand der Untersuchungen der hier durchgeführten zeitaufgelösten PL-Messungen ist der Einfluß der Überschußenergie photogenerierter Ladungsträger auf deren Polarisationsdynamik.

Kapitel 5 vertieft die Erkenntnisse über die exzitonische Polarisationsdynamik in Quantenpunkten. Dabei wird unter Zuhilfenahme eines Drei-Niveau-Modells zur Beschreibung der hellen Exzitonenzustände im Quantenpunkt und eines entsprechenden Ratengleichungssystems die longitudinale Spinrelaxationszeit T_1 aus den gemessenen Daten extrahiert.

Kapitel 6 betrachtet das bisher hauptsächlich studierte Quantenpunktensemble aus einem etwas anderen Blickwinkel. Anhand von Untersuchungen der PL-Emissionsrate wird die Möglichkeit einer Kopplung der Quantenpunkte über ihr Strahlungsfeld diskutiert.

Kapitel 7 stellt den Einstieg in die kohärente Laserspektroskopie niederdimensionaler Halbleitersysteme dar. Ausgehend von Quantenpunkten ohne Mangan wird gezeigt, wie sich der Einbau von zusätzlichen magnetischen Momenten in die Quantenpunktmatrix auf die kohärente Dynamik des Systems auswirkt.

In **Kapitel 8** wird mit leicht dotiertem n-GaAs ein System untersucht, welches dem

von Elektronen in Quantenpunkten gleicht. Zu Beginn wird der Mechanismus der Spingeneration an der Resonanz des donatorgebundenen Exzitons dargestellt. Schwerpunkt dieses Kapitels sind die kernmagnetischen Momente und deren Einfluß auf die kohärente Spindynamik der Donatorelektronen.

Kapitel 2

Physikalische Grundlagen

In diesem Kapitel sollen zunächst einige physikalische Grundlagen aufgezeigt werden. Diese dienen zum einen dem Verständnis der durchgeführten Experimente und zum anderen unterstützen sie die Interpretation der gemessenen Daten.

Aufgrund der Ausrichtung dieser Arbeit wird zunächst mit der Erklärung begonnen, was unter Spin zu verstehen ist und wie er mathematisch und physikalisch zu behandeln ist. Da die Untersuchungen zu den Spineigenschaften ausschließlich optisch erfolgen, wird aufgezeigt, wie aus der im Licht enthaltenen Information auf die photogenerierten Spin-zustände in den jeweiligen Strukturen geschlossen werden kann. Als primär erzeugter Spinträger werden die Zustände des Exzitons vor allem in Halbleiterquantenpunkten in verschiedenen Magnetfeldkonfigurationen beschrieben. Zudem werden als weiteres zentrales Spinsystem das Mn^{2+} -Ion und entsprechend auftretende Wechselwirkungen mit den photoinjizierten Spinträgern besprochen. Im Zentrum dieser Arbeit steht insbesondere die Dynamik von Spinzuständen. Deswegen soll ebenfalls ein Überblick über die bekannten Spinrelaxationsprozesse gegeben werden. Abschließend werden die den experimentellen Methoden zugrunde liegenden physikalischen Prinzipien dargelegt.

2.1 Drehimpuls, Spin und magnetisches Moment

2.1.1 Bahndrehimpuls eines Teilchens

In der klassischen Mechanik ist der Bahndrehimpuls \mathbf{l} eines Teilchens über das Vektorprodukt zwischen dem Abstand \mathbf{r} zum Bezugspunkt und seinem Impuls \mathbf{p} definiert.

$$\mathbf{l} = \mathbf{r} \times \mathbf{p} \tag{2.1}$$

Von M. Bohr als Postulat eingeführt und als Resultat der Schrödingergleichung unter Beachtung der jeweiligen Randbedingungen ergibt sich für quantenmechanische Systeme eine

Quantisierung des Bahndrehimpulses. Die zugehörige Quantenzahl l kann nur ganzzahlige Werte annehmen. Dadurch ergibt sich für den Betrag des Drehimpulses entsprechend $|\mathbf{l}| = \sqrt{l(l+1)}\hbar$ ein diskretes Spektrum. In der Spektroskopie erfolgt eine Klassifizierung des Bahndrehimpulses entsprechend der Atomorbitale nach Buchstaben:

l	0	1	2	3	...
Name	s	p	d	f	...

Für die Komponente entlang der Quantisierungsrichtung $l_z = m_l\hbar$ gibt es $2l + 1$ Einstellungsmöglichkeiten, nämlich $m_l = -l, -l + 1, \dots, l - 1, l$. m_l wird im allgemeinen als magnetische Quantenzahl (des Bahndrehimpulses) bezeichnet.

2.1.2 Spin und Gesamtdrehimpuls eines Teilchens

Ausgehend von dem nach den Experimentatoren benannten Stern-Gerlach-Experiment [Ste22a, Ste22b] stellten Samuel A. Goudsmit und George E. Uhlenbeck die These auf, daß Elektronen einen Eigendrehimpuls besitzen. Dieser Eigendrehimpuls oder Spin \mathbf{s} besitzt im Gegensatz zum Bahndrehimpuls kein klassisches Analogon. Zudem kann er neben ganzzahligen Werten auch halbzahlige Werte annehmen. Es kann gezeigt werden, daß der Spin sich als Konsequenz einer relativistischen Betrachtung der Quantenmechanik ergibt (siehe z.B. [Nol94b]). In Analogie zum Bahndrehimpuls gilt für den Spin:

$$|\mathbf{s}| = \sqrt{s(s+1)}\hbar \quad \text{und} \quad s_z = m_s\hbar. \quad (2.2)$$

s und m_s bezeichnen hierbei entsprechend die Spinquantenzahl und die magnetische Quantenzahl des Spins. Wie beim Bahndrehimpuls gilt für die Projektion des Spins auf die Quantisierungsrichtung $m_s = -s, -s + 1, \dots, +s - 1, +s$, d.h. es gibt ebenfalls maximal $2s + 1$ Einstellungsmöglichkeiten.

Bahn- und Eigendrehimpuls eines Teilchens können zum Gesamtdrehimpuls \mathbf{j} zusammengefaßt werden:

$$\mathbf{j} = \mathbf{l} + \mathbf{s}; \quad j_z = l_z + s_z. \quad (2.3)$$

Bei einem Teilchen mit $l = 2$ und $s = 1/2$ ergeben sich die in Abb. 2.1 dargestellten Einstellungen bezüglich der Quantisierungsrichtung \hat{z} .

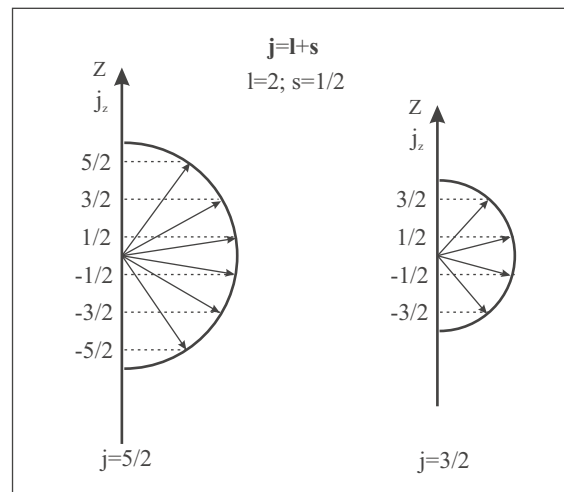


Abb. 2.1: Zustände des Gesamtdrehimpulses mit $l = 2$ und $s = 1/2$.

2.1.3 Magnetisches Moment

Eng verbunden mit dem Drehimpuls eines geladenen Teilchens ist ein magnetisches Moment. Klassisch betrachtet stellt eine bewegte Ladung einen Strom dar und führt somit zu einem Magnetfeld. Die Relation zwischen dem Bahndrehimpuls bzw. dem Spin und dem entsprechenden magnetischen Moment lautet:

$$\boldsymbol{\mu}_\alpha = -g_\alpha \mu_B \frac{\boldsymbol{\alpha}}{\hbar}, \quad \text{wobei} \quad \alpha = l, s. \quad (2.4)$$

Dabei ist \hbar die durch 2π dividierte Planck-Konstante, μ_B das Bohrsche Magneton und g_α der gyromagnetische Faktor (g-Faktor) des Bahndrehimpulses ($g_l = 1$) bzw. des Spins ($g_s \approx 2$). Dies läßt erkennen, daß in beiden Fällen magnetisches Moment und Drehimpuls antiparallel zueinander stehen. Das magnetische Moment des Gesamtdrehimpulses berechnet sich mit Glg. (2.4) durch Vektoraddition. Aufgrund des Spin g-Faktors sind hier jedoch magnetisches Moment und Drehimpuls nicht mehr antiparallel.

$$\boldsymbol{\mu}_j = \boldsymbol{\mu}_l + \boldsymbol{\mu}_s = \mu_B (g_l \mathbf{l} + g_s \mathbf{s}), \quad \text{wobei} \quad g_l \neq g_s. \quad (2.5)$$

Im magnetischen Feld \mathbf{B} erhält ein Teilchen mit magnetischem Moment $\boldsymbol{\mu}$ eine zusätzliche potentielle Energie der Form:

$$E_{pot} = -\boldsymbol{\mu} \mathbf{B} = g(l, s, j) j_z \mu_B B \quad \text{für} \quad \mathbf{B} = B \mathbf{e}_z. \quad (2.6)$$

Der Landé-Faktor $g(l, s, j)$ beschreibt hierbei die Abhängigkeit des gyromagnetischen Verhältnisses von den Quantenzahlen:

$$g(l, s, j) = 1 + \frac{j(j+1) - l(l+1) + s(s+1)}{2j(j+1)} \quad (2.7)$$

2.1.4 Drehimpulskopplung mehrerer Teilchen

In einem aus mehreren Teilchen bestehenden System sind im allgemeinen Wechselwirkungen zwischen den Teilchen zu berücksichtigen. Dazu zählen auch magnetische Wechselwirkungen, die durch die magnetischen Momente der jeweiligen Teilchen bedingt sind. Bei der Bestimmung des Gesamtdrehimpulses eines Systems sind zwei Grenzfälle zu berücksichtigen.

L-S-Kopplung

Sind die Kopplungsenergien zwischen den magnetischen Bahn- ($\boldsymbol{\mu}_{l_n} = -g_l \mu_B \cdot \mathbf{l}_n / \hbar$) und Spinnmomenten ($\boldsymbol{\mu}_{s_n} = -g_s \mu_B \cdot \mathbf{s}_n / \hbar$) verschiedener Teilchen größer als die Kopplungsenergien zwischen Bahn- und Spinnmomenten eines einzelnen Teilchens, dann erfolgt eine Kopplung der einzelnen Bahn- und Spindrehimpulse zu einem Gesamtbahndrehimpuls

$$\mathbf{L} = \sum_i \mathbf{l}_i \quad \text{mit} \quad |\mathbf{L}| = \sqrt{L \cdot (L+1)} \hbar \quad (2.8)$$

und einem Gesamtspin

$$\mathbf{S} = \sum_i \mathbf{s}_i \quad \text{mit} \quad |\mathbf{S}| = \sqrt{S \cdot (S+1)} \hbar. \quad (2.9)$$

Der Gesamtdrehimpuls aller Teilchen ergibt sich somit zu:

$$\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S} \quad \text{mit} \quad |\mathbf{J}| = \sqrt{J \cdot (J+1)} \hbar. \quad (2.10)$$

Diesen Grenzfall bezeichnet man als **L-S-Kopplung**.

j-j-Kopplung

Ist jedoch die Wechselwirkungsenergie zwischen magnetischem Bahn- und Spinmoment eines Teilchens größer als die Wechselwirkungsenergie zwischen den magnetischen Bahn- bzw. Spinmomente verschiedener Teilchen, so koppeln zunächst Bahn- und Spindrehimpuls des n-ten Teilchens zum Gesamtdrehimpuls

$$\mathbf{j}_n = \mathbf{l}_n + \mathbf{s}_n. \quad (2.11)$$

Der Gesamtdrehimpuls ist dann die Summe aller Gesamtdrehimpulse \mathbf{j}_n der einzelnen Teilchen:

$$\mathbf{J} = \sum_n \mathbf{j}_n. \quad (2.12)$$

In diesem Fall spricht man von der **j-j-Kopplung**. Sie tritt in der Regel bei Atomen mit großer Kernladungszahl auf.

Magnetisches Gesamtmoment

Für die magnetischen Momente des Gesamtbahndrehimpulses \mathbf{L} , des Gesamtspins \mathbf{S} und des Gesamtdrehimpulses \mathbf{J} gelten die Gleichungen aus Abschn. 2.1.3 in Analogie. Insbesondere

$$\boldsymbol{\mu}_J = \boldsymbol{\mu}_L + \boldsymbol{\mu}_S = \mu_B(g_L \mathbf{L} + g_S \mathbf{S}) \quad (2.13)$$

und

$$E_{pot} = -\boldsymbol{\mu} \mathbf{B} = g(L, S, J) J_z \mu_B B \quad \text{für} \quad \mathbf{B} = B \mathbf{e}_z, \quad (2.14)$$

mit

$$g(L, S, J) = 1 + \frac{J(J+1) - L(L+1) + S(S+1)}{2J(J+1)} \quad (2.15)$$

2.2 Optische Übergänge in Halbleitern

Festkörper lassen sich ausgehend von Atomen bzw. Molekülen als periodische Aneinanderreihung eben jener beschreiben. Die beim Aufbau eines Festkörpers beteiligten Teilchen wechselwirken miteinander. Dies hat zu Folge, daß aus den beim einzelnen Atom diskreten Energieniveaus sogenannte Energiebänder mit dazwischen liegenden Bandlücken entstehen. Analog zum Atom spricht man bei dem höchsten noch mit Elektronen besetztem Energieband vom Valenzband. Das nächsthöhere Band wird als Leitungsband bezeichnet. Bei den in dieser Arbeit untersuchten Festkörpern handelt es sich um Halbleiter. Das bedeutet, daß am absoluten Temperaturnullpunkt das Valenzband mit Elektronen voll besetzt und das Leitungsband leer ist. Nur durch Energiezugabe (z.B. optisch oder thermisch) lassen sich Elektronen vom Valenzband in das Leitungsband heben. Die energetische Größe der Bandlücke ist eine materialspezifische Eigenschaft.

Bei der Absorption bzw. der Emission von Photonen muß neben der Energieerhaltung auch die Drehimpulserhaltung gelten. D.h. beim Übergang zwischen Valenz- und Leitungsband kann das Elektron nur Zustände einnehmen, deren Bahndrehimpuls sich um den Betrag des Drehimpulses des Photons vom entsprechenden Ausgangszustand unterscheiden. Für die Absorption bzw. Emission von Photonen sind demnach die Auswahlregeln für optische Dipolübergänge zu beachten:

$$\Delta l = \pm 1 \quad \Delta m_l = 0, \pm 1. \quad (2.16)$$

Strenggenommen gilt dies nur bei kugelsymmetrischen Systemen. In Halbleitern sind i.a. zudem die Symmetrien von Valenz- und Leitungsband der jeweiligen Punktgruppe zu berücksichtigen. Die in dieser Arbeit untersuchten Materialien (CdSe (in dünnen Schichten), ZnSe und GaAs) kristallisieren in der Zinkblendestruktur und gehören damit der Punktgruppe T_d an. In dieser Punktgruppe besitzt das Valenzband die Symmetrien $\Gamma_7 + \Gamma_8$, und das Leitungsband Γ_6 (siehe Abb. 2.2). Da der Dipoloperator in T_d entsprechend der Symmetrie Γ_5 transformiert, sind Dipolübergänge zwischen allen Valenzsubbändern und dem Leitungsband möglich, sofern die Bedingungen (2.16) berücksichtigt werden (siehe z.B. [Kli97]).

Aus Δm_l ist dabei die Polarisation des beteiligten Photons abzuleiten.

$$\begin{aligned} \Delta m_l = +1 &\Leftrightarrow \sigma^+(\mathbf{k} \uparrow \uparrow \mathbf{l}_{ph}) \\ \Delta m_l = 0 &\Leftrightarrow \pi \quad \text{mit} \quad \Delta m_l = m_l^a - m_l^e \\ \Delta m_l = -1 &\Leftrightarrow \sigma^-(\mathbf{k} \uparrow \downarrow \mathbf{l}_{ph}) \end{aligned} \quad (2.17)$$

\mathbf{k} und \mathbf{l}_{ph} bezeichnen dabei den Wellenvektor bzw. den Drehimpuls des Photons. m_l^a und m_l^e beschreiben den Zustand des Halbleiters nachdem bzw. bevor ein Photon absorbiert

wurde.

Bei den in dieser Arbeit untersuchten Halbleitern, ist das Valenzband p- und das Leitungsband s-artig, da die beiden Bänder aus s- bzw. p-Orbitalen entstanden sind. Zustände im Valenzband besitzen folglich die Gesamtdrehimpulsquantenzahlen $j = 3/2$ bzw. $j = 1/2$, und Zustände im Leitungsband die Gesamtdrehimpulsquantenzahl $j = 1/2$, da zusätzlich zu dem jeweiligen Bahndrehimpuls mit $l = 0$ (s) bzw. $l = 1$ (p) der Elektronenspin mit $s = 1/2$ zu berücksichtigen ist. Damit ergeben sich für die z-Komponente des Gesamtdrehimpulses j_z die folgenden Einstellungsmöglichkeiten:

-	Valenzband	Leitungsband
$j = 1/2$	$j_z = \pm\hbar/2$	$j_z = \pm\hbar/2$
$j = 3/2$	$j_z = \pm\hbar/2, \pm3\hbar/2$	-

Auf den Gesamtdrehimpuls j übertragen lauten die Bedingungen (2.16):

$$\Delta j = 0, \pm 1 \quad (2.18)$$

Wird nun bei der Absorption eines Photons ein Elektron vom Valenzband in das Leitungsband gehoben, so bleibt im Valenzband ein Loch zurück. Man unterscheidet bei den Löchern nach Schwer- ($j_h = 3/2, j_{h,z} = \pm3\hbar/2$) und Leichtlöchern ($j_h = 3/2, j_{h,z} = \pm\hbar/2$), da das Leichtlochband stärker gekrümmt ist als das Schwerlochband (siehe Abb. 2.2). In Quantenpunktstrukturen ist das Leichtlochband aufgrund von Verspannungs- und Quantisierungseffekten energetisch vom Schwerlochband abgespalten¹. Das sogenannte Split-off-Band mit $j_h = 1/2, j_{h,z} = \pm\hbar/2$ ist ebenfalls, jedoch wegen der Spin-Bahn-Kopplung,

¹Dies trifft im Fall des in dieser Arbeit untersuchten GaAs nicht zu (siehe Kap. 8).

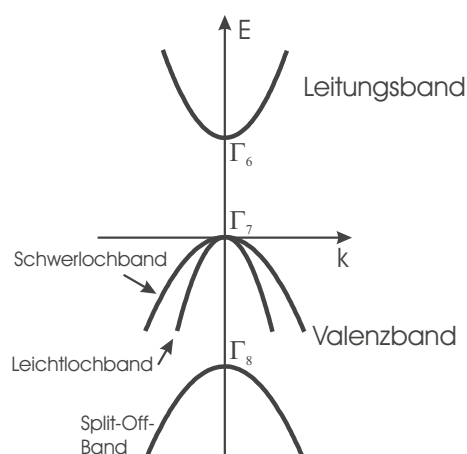


Abb. 2.2: Schematische Darstellung der Bandstruktur am Γ -Punkt im Fall von T_d -Symmetrie.

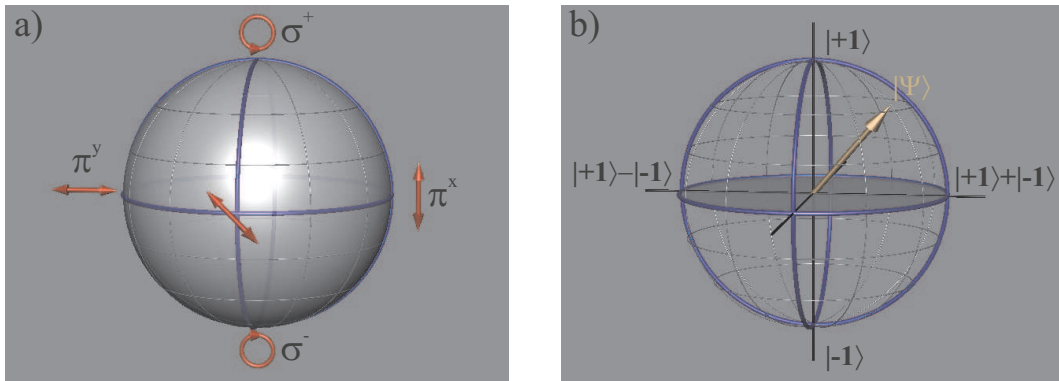


Abb. 2.3: **a)** Poincaré-Kugel - dreidimensionale Darstellung der möglichen Polarisationszustände von Photonen. π^x linear polarisiert, π^y linear polarisiert, σ^+ zirkular polarisiert und σ^- zirkular polarisiert. **b)** Bloch-Kugel im Zustandsraum. Jeder Punkt auf der Kugeloberfläche repräsentiert einen Zustandsvektor $|\Psi\rangle$ (hier m, j eines Exzitons). Zueinander antipodische Punkte auf der Kugel definieren jeweils ein Paar orthogonaler Basisvektoren. Angegeben sind die Zustände der hellen Exzitonen in Bloch-Notation. Pole: die reinen Spinzustände $|\pm 1\rangle$ (Spin-up, Spin-down), Äquator: Lineare Superpositionen der reinen Spinzustände.

abgespalten. Wegen der großen Energieabsenkung der beiden Bänder mit $j_{h,z} = \pm\hbar/2$ (Split-Off-Band bei CdSe ca. 410 meV [Mad01]) erfolgt bei tiefen Temperaturen eine im Vergleich zum Schwerlochband vernachlässigbare Besetzung. Somit werden bei der Betrachtung der Elektron-Loch-Paar-Zustände (Exziton-Zustände) in Cd(Mn)Se/ZnSe Quantenpunkten im Folgenden nur die Schwerlochzustände berücksichtigt. Im Exzitonbild, d.h. unter Betrachtung von $J_z = j_{h,z} + j_{e,z}$, werden die Zustände mit $J_z = \pm\hbar$ als helle Exzitonen und die mit $J_z = \pm 2\hbar$ als dunkle Exzitonen bezeichnet. Diese Bezeichnung erklärt sich dadurch, daß Zustände mit $J_z = \pm\hbar$ an ein Photonfeld ankoppeln können (optische Auswahlregeln), die mit $J_z = \pm 2\hbar$ jedoch nicht. Im Exzitonbild läßt sich der Zusammenhang zwischen der Polarisation des Lichts (Photons) und dem erzeugten Exzitonzustand durch einen Vergleich der Poincaré-Kugel und der Bloch-Kugel besonders gut veranschaulichen (siehe Abb. 2.3). In beiden Fällen wird jedem Punkt auf der jeweiligen Kugeloberfläche ein Zustand zugeordnet - Polarisationszustand des Lichts (Photons) bei der Poincaré-Kugel und Spinzustand des (hellen) Exzitons bei der Bloch-Kugel. Aufgrund der Drehimpulserhaltung entspricht jedem Punkt auf der einen Kugeloberfläche ein Punkt auf der anderen.

Demnach ist aus der Analogie dieser Darstellungen zu erkennen welche Polarisation ein Photon haben muß um einen bestimmten Exzitonspinzustand zu generieren - bzw. welche Polarisation ein Photon hat, das bei der Rekombination eines Exzitons generiert wird.

2.3 Das Exziton im Quantenpunkt

Zur Beschreibung des gebundenen Elektron-Loch-Paares, dem Exziton, im Quantenpunkt, ist es nützlich, den Hamilton-Operator des Systems zu betrachten. Mit ihm lassen sich über die Schrödingergleichung die Eigenzustände und Eigenenergien des Systems berechnen. Als Basiszustände bieten sich die Schwerlochzustände an, die in der Dirac'schen Bra-Ket-Notation ($|\Psi\rangle = |M_J\rangle = |m_{j,h}, m_{j,e}\rangle$) wie folgt geschrieben werden:

$$|M_J\rangle = |\pm 3/2, \mp 1/2\rangle = |\pm 1\rangle \quad \wedge \quad |M_J\rangle = |\pm 3/2, \pm 1/2\rangle = |\pm 2\rangle \quad (2.19)$$

Diese vier Zustände ($|M_J\rangle = |\pm 1\rangle, |\pm 2\rangle$) sind unter Vernachlässigung von Störtermen in Halbleitern mit Zinkblendestruktur entartet. Durch die Spin-Spin-Wechselwirkung zwischen Elektron und Loch (der sogenannten Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung) kommt es je nach Symmetrie des Systems zu einer teilweisen bzw. vollständigen Aufhebung der Entartung. Eine Ableitung des die Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung berücksichtigenden Hamilton-Operators anhand von gruppentheoretischen Überlegungen wird von E. L. Ivchenko und G. E. Pikus aufgezeigt [Ivc97] (siehe auch [Seu99]). Zu der oben erwähnten Basis ergibt sich der Hamilton-Operator in Matrixdarstellung zu

$$\mathcal{H}_{exc} = -\frac{1}{2} \begin{pmatrix} -\delta_0 & \delta_1 & 0 & 0 \\ \delta_1 & -\delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \delta_0 & \delta_2 \\ 0 & 0 & \delta_2 & \delta_0 \end{pmatrix}. \quad (2.20)$$

Die Diagonalstruktur des Operators deutet darauf hin, daß helle und dunkle Zustände nicht mischen. Die Parameter $\delta_{0,1,2}$ bezeichnen die energetische Aufspaltung zwischen hellen und dunklen Zuständen (δ_0) bzw. der hellen (δ_1) und dunklen (δ_2) Zustände untereinander.

Während δ_0 und δ_2 unabhängig von der Quantenpunktsymmetrie einen endlichen Wert besitzen, ist δ_1 nur bei Symmetrien geringer als D_{2d} von Null verschieden. Das Termschema ist in Abb. 2.4 skizziert. Daraus ist zu entnehmen, daß bei vorhandener Aufspaltung der hellen wie auch der dunklen Niveaus die Eigenzustände sich als Linearkombinationen der reinen Zustände $|\pm 1\rangle$ bzw. $|\pm 2\rangle$ darstellen lassen. Aus der Zustandssymmetrie ergibt sich durch die Drehimpulserhaltung die Polarisation der in bzw. aus den jeweiligen Zustand absorbierten bzw. emittierten Photonen zu zirkular polarisiert ($\sigma^{+/-}$) bei den 'reinen' Zuständen und linear polarisiert ($\pi^{x/y}$) bei den 'kombinierten' Zuständen.

Da offensichtlich die Feinstruktur des Systems durch die Symmetrie des Quantenpunktes (des Einschlußpotentials) bestimmt wird, kann durch Auszeichnen einer bestimmten Richtung (z.B. durch ein Magnetfeld) Einfluß auf die Quantenpunktzustände genommen werden. Dies ist beispielsweise bereits aus der Atomphysik bekannt, in der durch

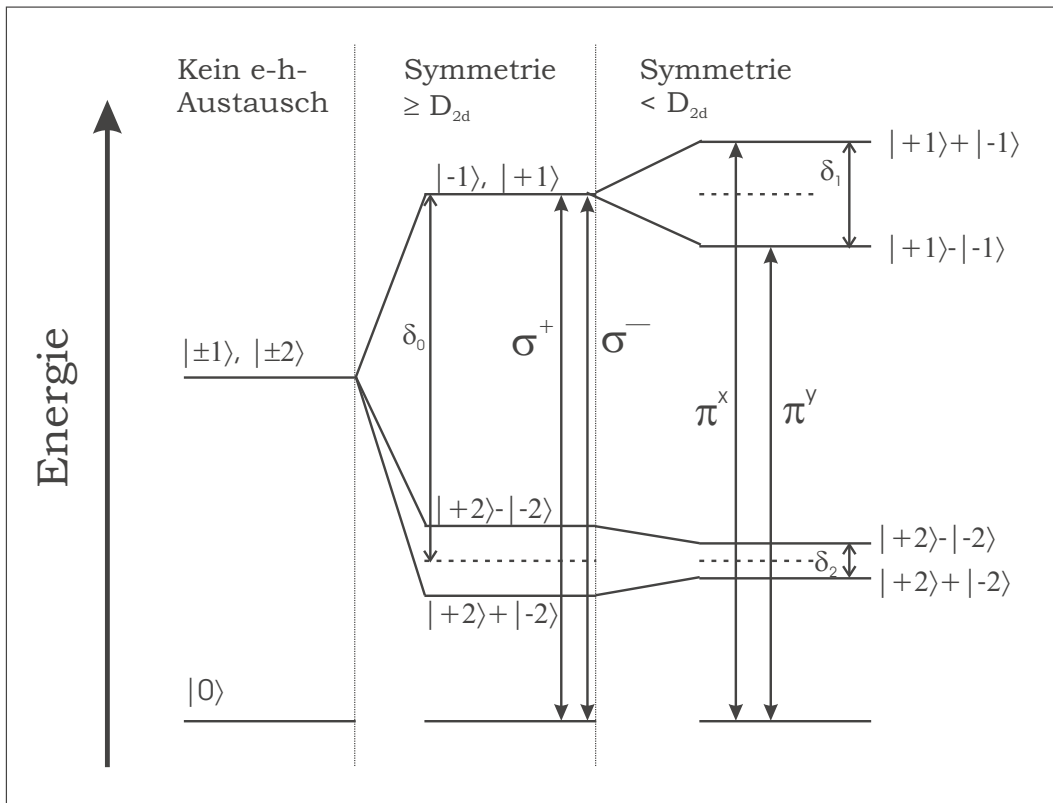


Abb. 2.4: Das Termschema des Exzitons im Quantenpunkt ohne und mit Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung bei niedriger und höherer Symmetrie des Systems. Es ist zudem die Polarisation des am Übergang zwischen dem jeweiligen (hellen) Niveau und dem Vakuum-Zustand $|0\rangle$ beteiligten Photons angegeben. [Kul99, Seu99]

den Zeeman-Effekt die Spin-Entartung aufgehoben werden kann. Im Folgenden wird der Hamilton-Operator für die beiden Fälle Magnetfeld in und senkrecht zur Wachstumsrichtung angegeben.

2.3.1 Magnetfeld in Faraday-Geometrie

Bei den in dieser Arbeit untersuchten Quantenpunkten ist die Wachstumsrichtung \hat{e}_z bereits dadurch ausgezeichnet, daß sie wegen der in dieser Richtung geringeren Ausdehnung des Quantenpunktes die Hauptquantisierungsachse darstellt. Legt man nun ein Magnetfeld in eben diese Richtung ($\mathbf{B} = B\mathbf{e}_z$) an (Faraday-Konfiguration), so koppeln nur die z-Komponenten der Gesamtdrehimpulse von Elektron $j_{e,z}$ und Loch $j_{h,z}$ an das Magnetfeld B . Da es sich hierbei um die Eigenwertoperatoren zu den Basiszuständen $|\pm 1\rangle, |\pm 2\rangle$ handelt, ergibt sich keine Mischung zwischen hellen und dunklen Zuständen. Im Hamilton-Operator spiegelt sich diese Tatsache in der Diagonalform der Matrixdarstellung wieder.

optisch	Eigenwert	Eigenzustand
aktiv	$\frac{1}{2} \left(\delta_0 \pm \sqrt{\delta_1^2 + \xi^2} \right)$	$\frac{1}{N_{\pm}} \left(+1 \rangle \mp \left(\sqrt{1 + \xi^2} \pm \xi \right) -1 \rangle \right)$
inaktiv	$\frac{1}{2} \left(-\delta_0 \pm \sqrt{\delta_2^2 + \chi^2} \right)$	$\frac{1}{N_{\mp}} \left(+2 \rangle \mp \left(\sqrt{1 + \chi^2} \pm \chi \right) -2 \rangle \right)$

Tab. 2.1: Eigenwerte und -zustände des Hamilton-Operators aus Glg. (2.21).

$$\mathcal{H} = -\frac{1}{2} \begin{pmatrix} -\delta_0 + \xi & \delta_1 & 0 & 0 \\ \delta_1 & -\delta_0 - \xi & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \delta_0 - \chi & \delta_2 \\ 0 & 0 & \delta_2 & \delta_0 + \chi \end{pmatrix} \quad (2.21)$$

Dabei gilt $\xi = g_1 \mu_B B / \delta_1$ und $\chi = g_2 \mu_B B / \delta_2$ mit $g_{1/2} = g_e \mp g_h$. Die Eigenwerte und Eigenenergien zu diesem Hamilton-Operator sind in Tab. 2.1 zusammengefaßt.

Die Normierungsfaktoren der Eigenzustände sind gegeben durch:

$$N_{\pm} = \sqrt{2} \sqrt{1 + x^2 \pm \sqrt{1 + x^2}} \quad x = \xi, \chi \quad (2.22)$$

2.3.2 Magnetfeld in Voigt-Geometrie

Wird das Magnetfeld senkrecht (z.B. $\mathbf{B} = B \mathbf{e}_{x/y}$) zur Wachstumsrichtung angelegt (Voigt-Geometrie), so koppeln die x/y-Komponenten der Gesamtdrehimpulse von Elektron und Loch an das Feld an. Allerdings treten damit im Hamilton-Operator Komponenten auf, die die Basiszustände ändern. Die Matrixform enthält folglich zusätzliche von Null verschiedene Nichtdiagonalelemente:

$$\mathcal{H} = -\frac{1}{2} \begin{pmatrix} -\delta_0 & \delta_1 & -g_{e,x} \mu_B B & -\frac{3}{4} \Gamma_{h,x} \mu_B B \\ \delta_1 & -\delta_0 & -\frac{3}{4} \Gamma_{h,x} \mu_B B & -g_{e,x} \mu_B B \\ -g_{e,x} \mu_B B & -\frac{3}{4} \Gamma_{h,x} \mu_B B & \delta_0 & \delta_2 \\ -\frac{3}{4} \Gamma_{h,x} \mu_B B & -g_{e,x} \mu_B B & \delta_2 & \delta_0 \end{pmatrix} \quad (2.23)$$

Die sich daraus ergebenden Eigenwerte und -zustände sind in Tab. 2.2 zusammengestellt.

Es konnte von Dorozhkin *et al.* [Dor03] gezeigt werden, daß die Komponente $\Gamma_{h,x}$ des Loch-g-Tensors in Quantenpunkten sehr klein ist (≈ 0) und somit im Vergleich zu $g_{e,x}$ vernachlässigt werden kann.

In Abb. 2.5 sind exemplarisch für Faraday und Voigt-Geometrie die Eigenenergien und

optisch	Eigenwert & Eigenzustand
'aktiv'	$\frac{1}{4} \left(\pm\delta_1 \pm \delta_2 + \sqrt{(2\delta_0 \pm \delta_1 \mp \delta_2)^2 + 4(g_{e,x} - \frac{3}{4}\Gamma_{h,x})^2 \mu_b^2 B^2} \right)$ $\frac{1}{N_{1,2}} \{ + 1 \rangle \mp - 1 \rangle \} + \gamma_{1,2} \{ + 2 \rangle \mp - 2 \rangle \}$
'inaktiv'	$\frac{1}{4} \left(\pm\delta_1 \pm \delta_2 - \sqrt{(2\delta_0 \pm \delta_1 \mp \delta_2)^2 + 4(g_{e,x} - \frac{3}{4}\Gamma_{h,x})^2 \mu_b^2 B^2} \right)$ $\frac{1}{N_{3,4}} \{ + 2 \rangle \mp - 2 \rangle \} + \gamma_{3,4} \{ + 1 \rangle \mp - 1 \rangle \}$

Tab. 2.2: Eigenwerte und -zustände des Hamilton-Operators aus Glg. (2.23). Die Unterscheidung nach optisch aktiv und inaktiv gilt strenggenommen nur bei $B = 0$ T. Für die Normierungsfaktoren gilt $N_i = (1 + \gamma_i^2)^{-1/2}$ ($i=1,2,3,4$), wobei γ_i von δ_0 , δ_1 , δ_2 , $\Gamma_{h,x}$ und $g_{e,x}$ abhängt.

die Energiedifferenzen der hellen und dunklen Zustände in Abhängigkeit vom Magnetfeld dargestellt. Während in Faraday-Geometrie sich die energetische Lage der Niveaus stark ändert, ist in Voigt-Geometrie nur eine sehr geringe Änderung zu beobachten.

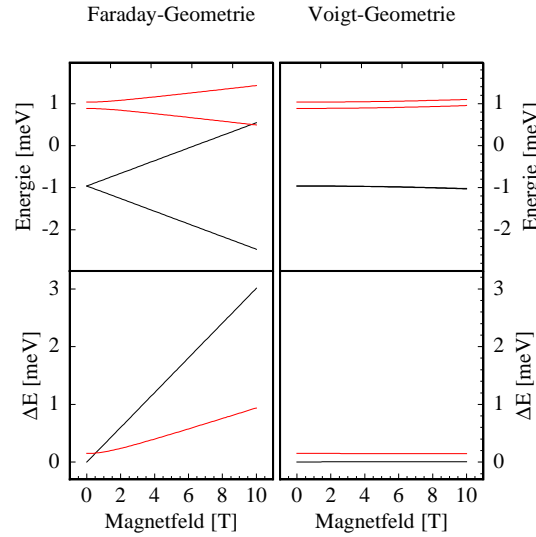


Abb. 2.5: Links: Energieeigenwerte in Faraday-Geometrie. Rechts: Energieeigenwerte in Voigt-Geometrie. (Verwendete Werte: $\delta_0 = 1.92$ meV, $\delta_1 = 0.15$ meV, $\delta_2 = 0.004$ meV, $g_1 = 1.6$, $g_2 = 5.2$ und $g_{e,x} = 1.25$ [Pul99]). Rote und schwarze Linien bezeichnen dabei die im Nullfeld hellen und dunklen Zustände.

2.4 Ein paramagnetisches Spin System

Ein zentraler Punkt dieser Arbeit ist die Wechselwirkung von photoinjizierten Ladungsträgern (Elektron-Loch-Paaren oder Exzitonen) mit lokalen magnetischen Momenten (Mn^{2+} -Ionen). Mangan ist ein Element der Eisengruppe und besitzt bei 2-facher Ionisierung die Elektronenkonfiguration $3d^5$ - also eine halb gefüllte 3d-Schale. Nach den Hundschen Regeln müssen alle fünf Elektronenspins der 3d-Schale im Grundzustand gleich orientiert

sein. Daraus folgt ein Gesamtdrehimpuls von $L = 0$ und ein Gesamtspin von $S = 5/2$. Aufgrund des fehlenden Bahndrehimpulses ergibt sich für den g-Faktor der Mn-3d-Elektronen (g_{Mn}) aus Glg. (2.15) der selbe g-Faktor wie für ein freies Elektron von $g \approx 2^2$.

Thermodynamisch ist die Magnetisierung von N Ionen in einem Volumen V gegeben durch:

$$M = -\frac{N}{V} \frac{\partial F}{\partial B}. \quad (2.24)$$

Die Freie Energie F ist dabei über

$$\exp\left(-\frac{F}{k_B T}\right) = \sum_n \exp\left(-\frac{g_{Mn} \mu_B B}{k_B T}\right) \quad (2.25)$$

definiert. Bei niedrigen Temperaturen T genügt es nur die $n = 2J + 1$ niedrigsten Zustände zu berücksichtigen. Damit folgt nach [Ash01, Kit96]:

$$M = \frac{N}{V} g_{Mn} \mu_B J \mathcal{B}_J \left\{ \frac{g_{Mn} \mu_B J B}{k_B T} \right\}, \quad (2.26)$$

k_B bezeichnet dabei die Boltzmann-Konstante und $\mathcal{B}_J \{x\}$ die durch

$$\mathcal{B}_J \{x\} = \frac{2J + 1}{2J} \coth \left(\frac{2J + 1}{2J} x \right) - \frac{1}{2J} \coth \left(\frac{1}{2J} x \right) \quad (2.27)$$

definierte Brillouin-Funktion.

In einem mit z.B. Mangan dotierten Halbleiter kann es nun zu Wechselwirkungen zwischen den Spins einzelner Mn^{2+} -Ionen bzw. mit den Spins injizierter Ladungsträger kommen.

2.4.1 Wechselwirkung zwischen Mn^{2+} -Ionen

Die durch Glg. 2.26 gegebene Beschreibung eines Systems aus Mn^{2+} -Ionen gilt strenggenommen nur in stark verdünnt magnetischen Strukturen ($x_{Mn} < 0.01$). Bei zunehmender Konzentration reduziert sich der mittlere Abstand benachbarter Mn^{2+} -Ionen und eine Spin-Spin-Austauschwechselwirkung zwischen benachbarten Mn-3d-Elektronen ist zu berücksichtigen. Der Hamilton-Operator dieser sogenannten d-d-Austauschwechselwirkung schreibt sich in der Heisenberg-Form wie folgt:

²Bei genauerer Betrachtung ist mit leichten Abweichungen von diesem Wert zu rechnen, da die 3d-Schale die äußerste Schale des Ions ist und somit das lokale Kristallfeld spürt.

$$\mathcal{H}^{dd} = - \sum_{i,j} J_{i,j}(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j) \mathbf{S}_i(\mathbf{R}_i) \cdot \mathbf{S}_j(\mathbf{R}_j). \quad (2.28)$$

$\mathbf{S}_{i,j}$ bezeichnet hierbei den Mn^{2+} -Spin am Ort $\mathbf{R}_{i,j}$. Verglichen mit einer reinen Dipol-Dipol-Wechselwirkung³ ergibt sich hier eine viel höhere charakteristische Energie, die in der Größenordnung $\approx 100 \mu\text{eV}$ liegt. Ursache hierfür ist ein Superaustausch benachbarter Mn^{2+} -Ionen über ein dazwischen liegendes Anion (z.B. Se^{2-}), der zu einer antiferromagnetischen Kopplung der Mn^{2+} -Spins führt [Lar85]. Der Hamilton-Operator des Mn-Spin-Systems hat im allgemeinen einen tensoriellen Charakter.

$$\mathcal{H}_{i,j} = \sum_{\alpha,\beta} J_{ij}^{\alpha\beta}(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j) S_i^\alpha \cdot S_j^\beta \quad (2.29)$$

Durch Erhöhung der Mangankonzentration nimmt der mittlere Abstand zwischen den Mn^{2+} -Ionen ab und es kann zur Ausbildung antiferromagnetischer Bereiche kommen, in denen sich der Erwartungswert des Gesamtspins reduziert. Die starke Wechselwirkung zwischen den Mn^{2+} -Ionen erschwert ebenfalls die Ausrichtung der einzelnen Ionenspins durch ein externes Magnetfeld, d.h. die Sättigungsmagnetisierung wird erst bei höherem Magnetfeld erreicht. Unter Berücksichtigung dieser Phänomene durch Einführung eines effektiven Spins $S_{eff} < 5/2$ und einer effektiven Temperatur $T_{eff} > T$ behält die Molekularfeldnäherung aus Abschn. 2.1 ihre Gültigkeit, sofern die Mn-Konzentrationen gering bleiben [Gaj79]. Für die Magnetisierung ergibt sich somit:

$$M = \frac{N}{V} g_{Mn} \mu_B S_{eff} \mathcal{B}_{5/2} \left\{ \frac{5g_{Mn} \mu_B B}{2k_B T_{eff}} \right\}. \quad (2.30)$$

2.4.2 Wechselwirkung zwischen Mn^{2+} -Ionen und Exzitonen

Injiziert man Exzitonen in einen mit Mangan dotierten Halbleiter, so treten diese in Wechselwirkung mit den lokalen Mn^{2+} -Spins. Die Bezeichnung für diese Wechselwirkung als spd-Austauschwechselwirkung hat ihren Ursprung in der Natur der beteiligten Teilchen - den s-artigen Leitungsbandelektronen, den p-artigen Valenzbandlöchern und den fünf 3d-Elektronen des Mangans. Der Hamilton-Operator der einzelnen s-Elektronen (p-Löcher) läßt sich in Analogie zur Mn-Mn-Wechselwirkung (Glg. (2.28)) schreiben:

³ $J_{dipol} = 2\sqrt{2}g_{Mn}^2\mu_B^2/a^3 \approx 3 \mu\text{eV}$ [Mac96]

$$\mathcal{H}^{s(p)-d} = - \sum_{\mathbf{R}_i} J^{s(p)-d}(\mathbf{r}_{e(h)} - \mathbf{R}_i) \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{s}_{e(h)}. \quad (2.31)$$

$J^{s(p)-d}$ wird hierbei als s(p)-d-Austauschintegral bezeichnet. \mathbf{R}_i und \mathbf{S}_i stehen für den Ort und den Spin des i-ten Mn^{2+} -Ions und $\mathbf{r}_{e(h)}$ und $\mathbf{s}_{e(h)}$ für Ort und Spin des Elektrons (Lochs). Diese Wechselwirkungsenergie muß, sobald ein nicht verschwindender Mn-Spin auftritt, bei der Betrachtung der Exzitonenergie zusätzlich berücksichtigt werden. Insbesondere ergibt sich bei einem externen Magnetfeld in Wachstumsrichtung (z-Richtung) unter Anwendung der Molekularfeldnäherung:

$$\mathcal{H}^{s(p)-d} = -s_{e(h),z} \langle S_z \rangle x_{Mn} \sum_{\mathbf{R}_i} J^{s(p)-d}(\mathbf{r}_{e(h)} - \mathbf{R}_i). \quad (2.32)$$

Hier bezeichnet $\langle S_z \rangle$ den Mittelwert der z-Komponente des Mn-Gesamtspins und x_{Mn} die Mn-Konzentration. Als Austauschenergien für Valenz- und Leitungsband ergeben sich aus diesem Hamiltonoperator

$$\begin{aligned} \text{Valenzband:} \quad E^{p-d} &= -\frac{1}{3} N_0 \beta x_{Mn} j_{h,z} \langle S_z \rangle & j_{h,z} &= \pm \frac{1}{2}, \pm \frac{3}{2}; \\ \text{Leitungsband:} \quad E^{s-d} &= -N_0 \alpha x_{Mn} s_{e,z} \langle S_z \rangle & s_{e,z} &= \pm \frac{1}{2}. \end{aligned} \quad (2.33)$$

Die Austauschkonstanten für Elektron und Loch $N_0 \alpha$ bzw. $N_0 \beta$ sind für viele semimagnetische Halbleiter bekannt und betragen im System CdSe/ZnMnSe 260 meV bzw. -1310 meV (Volumenmaterial) [Twa84]. Im Fall niederdimensionaler Halbleiterstrukturen kann es in Verbindung mit dem Teilcheneinschluß mitunter zu einer starken Verringerung dieser Werte kommen [Mer99].

Somit läßt sich nun die Austauschenergie des gesamten Exzitons zu $E^{sp-d} = E^{s-d} + E^{p-d}$ berechnen. Ist im manganfreien System die Zeeman-Aufspaltung zwischen den hellen Exzitonzuständen nur durch die in Tab. 2.1 gegebenen Werte bestimmt, so ist im Mangan dotierten System zusätzlich die Austauschenergie der beiden Exzitonspinzustände ($\Delta E^{|\pm 1\rangle}$) aufgrund der Wechselwirkung mit den Mn^{2+} -Ionen zu berücksichtigen. Der vollständige Ausdruck für die Zeeman-Aufspaltung bei einem Magnetfeld in Faraday-Geometrie ergibt sich damit unter Berücksichtigung von Glg. (2.26) zu:

$$\begin{aligned} \Delta E_z(B) &= \Delta E^{|-1\rangle}(B) - \Delta E^{|+1\rangle}(B) = \\ &= \sqrt{\delta_1^2 + (g_1 \mu_B B)^2} + N_0 (\alpha - \beta) x S_{eff} \mathcal{B}_{5/2} \left(\frac{5g_{Mn} \mu_B B}{2k_B T_{eff}} \right). \end{aligned} \quad (2.34)$$

Hieraus errechnet sich der effektive g-Faktor mittels:

$$g_{eff} = \frac{1}{\mu_B} \frac{\partial \Delta E_z(B)}{\partial B}. \quad (2.35)$$

2.5 Spinrelaxation und Spindephasierung

2.5.1 Relevante Zeitkonstanten

Durch die Entwicklung ultraschneller Lasersysteme, welche in der Lage sind, Lichtpulse im Pikosekunden- bzw. Subpikosekundenbereich zu erzeugen wurde die Beobachtung zeitlicher Abläufe in Halbleitern direkt in der Zeitdomäne möglich. Nach der Erzeugung eines Exzitons erfolgt in der Regel zunächst eine Intrabandrelaxation in den Exzitongrundzustand. Dort verweilt das Exziton bis zu seiner Rekombination (Zeitskala: τ_r wenige *ps* bis einige *ns*). Neben diesen im \mathbf{k} -Raum stattfindenden Prozessen sind in dieser Arbeit die sich auf den Spinzustand eines Teilchens auswirkenden Relaxationsprozesse⁴ von besonderem Interesse. Streuprozesse im \mathbf{k} -Raum können Spinzustände nur dann beeinflussen, wenn eine effektive Spin-Bahn-Kopplung vorliegt. Bei der Spinrelaxation unterscheidet man zwischen zwei Arten von Prozessen. Zum einen sind dies diejenigen Prozesse, die die Anzahl an Teilchen mit einem gewissen Spinzustand ändern, z.B. durch Spin-flip. Die charakteristische Zeitkonstante wird in diesem Fall mit T_1 bezeichnet. Kap. 4, Kap. 5 und Kap. 6 befassen sich eingehend mit Bestimmung und Interpretation von T_1 -Zeiten. Zum anderen sind dies Prozesse, die die Spinkohärenz zerstören - d.h. Prozesse, die eine Phasenänderung zur Folge haben (z.B. bei der Spinpräzession im Magnetfeld). Die sogenannte Spinkohärenzzeit bezeichnet man mit T_2 . Strenggenommen gilt die Bezeichnung nur im Fall eines einzelnen Teilchens bzw. einem Ensembles aus identischen Teilchen. Betrachtet man hingegen ein inhomogenes Ensemble⁵, so kennzeichnet man dies i.a. durch T_2^* . Es gilt dabei, daß $T_2^* < T_2$ ist. In Kap. 7 und Kap. 8 wird T_2^* für verschiedene Spinträger bestimmt. Zur Veranschaulichung der T_1 - und T_2 -Zeiten, im Fall eines Ensembles bzw. zeitlicher Mittelung über einen einzelnen Spin, sei auf Abb. 2.6 verwiesen. Bei einem T_1 -Prozeß ändert sich die longitudinale Komponente des Gesamtspins, weswegen dies auch mit longitudinaler Spinrelaxation bezeichnet wird. Gleichsam entspricht es der Zeit für die thermische Relaxation einer sich nicht im Gleichgewicht befindenden Spinpopulation z.B. über das Gitter (Spin-Gitter-Relaxation). T_2 hingegen wird als transversale Spinrelaxation bezeichnet. Es ist die statistisch zu erwartende Zeit für einen phasenändernden Streuprozess eines einzelnen Spins, bzw. die Zeit, die ein anfänglich in Phase um ein longitudinales Magnetfeld präzedierendes (homogenes) Spinensemble benötigt, bis es dephasiert ist. Die

⁴Für eine genauere Diskussion der zugehörigen Relaxationszeiten sei auf die Literatur zu Halbleiterspektroskopie verwiesen - z.B. [Kli97, Sha99].

⁵Eine Ansammlung (leicht) unterschiedlicher Teilchen.

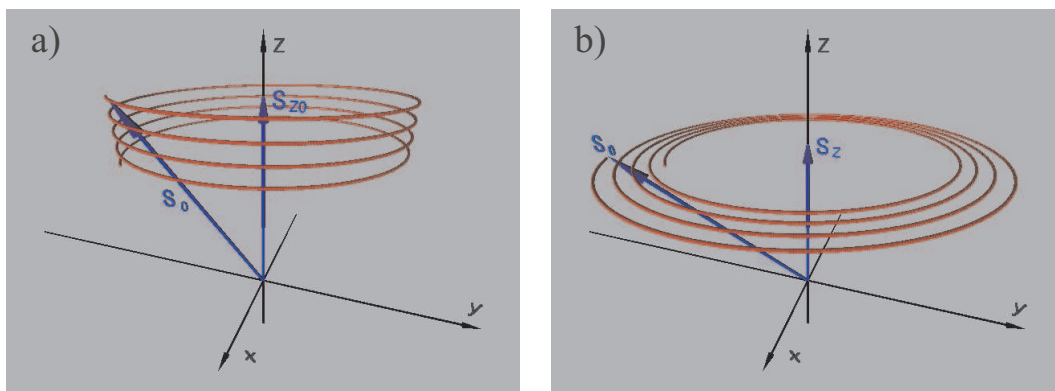


Abb. 2.6: Schematische Darstellung des mittleren (Gesamt-)Spins bei a) longitudinaler Spinrelaxation und b) transversaler Spinrelaxation. a) Der Gesamtspin präzediert um die z-Achse. Dabei beschreibt die Spitze eine abwärts gerichtete Spiralbewegung; d.h. S_z verringert sich bis zu einer Gleichgewichtslage \overline{S}_z . In b) bewegt sich die Spitze des Spinvektors spiralförmig zur z-Achse hin. Die z-Komponente des Gesamtspins bleibt erhalten. Der Gleichgewichtswert für die transversalen Komponenten ist immer null.

longitudinale Spinkomponente bleibt dabei erhalten. Für freie Spinträger sind T_1 und T_2 über die Bewegungsgleichungen des Spins \mathbf{S} in einem äußern Magnetfeld \mathbf{B} definiert:

$$\frac{d}{dt}\mathbf{S} = \frac{\mu_B g}{\hbar}\mathbf{S} \times \mathbf{B} + D\nabla^2\mathbf{S} - \begin{pmatrix} S_x/T_2 \\ S_y/T_2 \\ (S_z - \overline{S}_z)/T_1 \end{pmatrix}. \quad (2.36)$$

Dabei bezeichnen μ_B das Bohrsche Magneton, g den g-Faktor, \hbar die durch 2π dividierte Planck-Konstante, D den Spindiffusionskoeffizienten und \overline{S}_z den thermischen Gleichgewichtswert des longitudinalen Spins. Die drei Terme beschreiben entsprechend das durch das Magnetfeld auf den Spin wirkende Moment, Spindiffusion und die natürliche Abnahme des Spins. Für die in dieser Arbeit betrachteten lokalisierten Systeme kann der Diffusionsterm $D\nabla^2\mathbf{S}$ vernachlässigt werden. Glg. 2.36 bringt auch zum Ausdruck, daß im Gegensatz zum longitudinalen Spin der thermische Mittelwert des transversalen Spins null ist (siehe z.B. auch [Mei84, Ž04]).

2.5.2 Spinrelaxationsmechanismen

Information auf ein System zu übertragen bedeutet generell das System aus seinem Gleichgewicht zu bringen. Zwischen der Informationsverarbeitung mit Ladung und der mit Spins gibt es jedoch einen Unterschied. Im Gegensatz zur Ladung, kommt es beim Spin nicht nur auf die Anwesenheit, sondern auch auf die Orientierung an. Als relevant für die (Elektron-)Spinrelaxation in Halbleitern und Metallen werden in der Literatur hauptsächlich vier verschiedene Mechanismen betrachtet: Elliott-Yafet-Mechanismus,

D'yakonov-Perel'-Mechanismus, Bir-Aronov-Pikus-Mechanismus und die Hyperfeinwechselwirkung. Im Folgenden werden die vier Mechanismen kurz vorgestellt. Für eine ausführlichere Beschreibung wird auf einen Übersichtsartikel zur Spintronik von Žutić *et al.* und den darin angegebenen Referenzen verwiesen [Ž04].

Der Elliott-Yafet-Mechanismus

Der Elektronenspin relaxiert, da in realen Kristallen die Blochzustände keine Spineigenzustände sind. D.h. ein sonst reiner Spin-Zustand enthält jeweils einen geringen Anteil des entgegengesetzten Spinzustandes [Ell54]. Dies ergibt sich aufgrund einer von Ionen induzierten Spin-Bahn-Kopplung. Die Spinrelaxation wird jedoch nicht allein durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung hervorgerufen, sondern entsteht erst in Verbindung mit Impulsstreuungsprozessen. Durch diese Streuung koppeln die Spinzustände und es kommt zur Spinrelaxation⁶. Auslöser dieser Impulsstreuung sind z.B. Verunreinigungen (bei tiefen Temperaturen) und Phononen (bei hohen Temperaturen). Zudem kann die durch Phononen modifizierte Spin-Bahn-Wechselwirkung der periodischen Gitterionen zu einer direkten Kopplung von 'Spin-up' und 'Spin-down' Zuständen führen [Ove53a]. Dies wurde von Yafet berücksichtigt um das Verhalten bei tiefen Temperaturen besser beschreiben zu können [Yaf63]. Der Elliott-Yafet-Mechanismus ist z.B. relevant für Halbleiter mit geringer Bandlücke. Die aus ihm resultierende Spinrelaxationsrate ist indirekt proportional zur Impulsrelaxationszeit.

Der D'yakonov-Perel'-Mechanismus

D'yakonov und Perel' konnten zeigen, daß eine Aufhebung der Spinentartung ebenfalls zu Spinrelaxation führen kann [D'y71, D'y72]. Eine solche Aufhebung der Entartung der Spinzustände kann durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung in Kristallen ohne Inversionszentrum auftreten. Bedeutende Vertreter solcher Kristalle sind z.B. GaAs und ZnSe (Zinkblendestruktur). Effektiv beschrieben werden kann dies durch ein internes impulsabhängiges Magnetfeld $\mathbf{B}(\mathbf{k})$. Ein Spinflip des Spins \mathbf{S} wird dann durch einen Term $\mathbf{B}(\mathbf{k}) \cdot \mathbf{S}$ erreicht. Desweiteren kann dieser Term noch durch Verspannungsfelder und elektrische Felder an Grenzflächen beeinflusst werden. Die Existenz eines effektiven Feldes führt zu einer Präzession des jeweiligen Spins. Jede Impulsänderung, z.B. durch Streuung, wirkt sich auf den Spinzustand aus. Die Spinrelaxationsrate beim D'yakonov-Perel'-Mechanismus ist direkt proportional zur Impulsstreuzeit. Einfluß nehmen kann man auf diesen Mechanismus z.B. durch ein äußeres Magnetfeld (Unterdrückung des internen Feldes) strukturelle Veränderungen (Grenzflächen bzw. Piezofelder) oder sogar externe elektrische Felder. Diese Erkenntnis führte zu einem der wegweisenden Vorschläge in der Spintronik -

⁶Die Spin-Orbit-Wechselwirkung ergibt sich als: $V_{SO} = (\hbar/4m^2c^2)\nabla V_G \times \mathbf{p} \cdot \hat{\sigma}$, wobei V_G für das (skalare) periodische Gitterpotential steht, $\mathbf{p} = -i\hbar\nabla$ den Impulsoperator und $\hat{\sigma}$ die Pauli-Spinmatrizen bezeichnen. Durch den Streuprozess sieht der Spin ein sich änderndes Gitterpotential.

dem Spintransistor von Datta und Das [Dat90]. Von Bedeutung ist der D'yakonov-Perel'-Mechanismus in Halbleitern mit nicht zu geringer Bandlücke.

Der Bir-Aronov-Pikus-Mechanismus

In analoger Weise wie beim D'yakonov-Perel'-Mechanismus kann auch ein effektives Magnetfeld, welches durch die Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung erzeugt wird, zu einer Spinrelaxation führen. Die Relaxation der Elektronen basiert ebenfalls auf einer Präzession um dieses Feld und ist stark davon abhängig, wie schnell der Lochspin relaxiert. Dem Bir-Aronov-Pikus-Mechanismus [Bir76] kommt nur Bedeutung zu, sofern ein starker Überlapp der Elektron- und Loch-Wellenfunktionen vorliegt. D.h. je größer der Überlapp ist, desto geringer ist die Spinrelaxationszeit.

Die Hyperfeinwechselwirkung

Ein weiterer, insbesondere für die Dephasierung eines Spinensembles wichtiger Mechanismus ist durch die Hyperfeinwechselwirkung mit den Kernspins gegeben. Allerdings ist diese nur in stark lokalisierten Systemen, wie z.B. in Quantenpunkten oder bei donatorgebundenen Elektronen, von Bedeutung, da durch eine große Ausdehnung der Wellenfunktion des betreffenden Teilchens eine Mittelung über viele Kernspins erfolgt, bzw. die Wechselwirkungszeit mit den lokalen magnetischen Kernmomenten zu kurz wird⁷. Dephasierung eines Ensembles aus lokalisierten Spins ergibt sich dadurch, daß die einzelnen Spins unterschiedliche magnetische Gesamtmomente der Kernspins spüren. In Tab. 2.3 ist die natürliche Häufigkeit der Isotope mit von Null verschiedenem Kernspin der Elemente der in dieser Arbeit untersuchten Materialien zusammengestellt. Demnach ist nur im Fall des GaAs ein bedeutender Einfluß der Hyperfeinwechselwirkung zu erwarten.

Durch die Hyperfeinwechselwirkung erfährt der Spin eines Elektrons ein Magnetfeld, welches sich aus der Summe aller Kernmomente am Ort des Elektrons zusammensetzt. Die Größenordnung dieses mittleren Magnetfeldes liegt bei $B \approx 1$ T [Pag77, Kra90]. Lokale Fluktuationen der Hyperfeinfelder (Stärke und Richtung) führen zur Dephasierung eines Spinensembles. Im Gegensatz zu zufälligen zeitlichen Fluktuationen sind diese reversibel und können z.B. mittels der Spinechomethode⁸ umgekehrt werden. Besteht eine starke örtliche Korrelation (z.B. Springen von Ladungsträgern) bzw. eine starke Spin-Spin-Korrelation (Austauschwechselwirkung) zwischen benachbarten Spins, so führt dies zu einer statistischen Mittelung Hyperfeinwechselwirkung ('motional narrowing').

⁷In der Literatur findet sich dafür oft der Begriff '*motional narrowing*'.

⁸Erstmals 1950 entdeckt an Kernspins durch E. L. Hahn [Hah50].

Element	Isotope	Kernspin	Summe der Häufigkeiten [%]
Zn	^{67}Zn	5/2	4.1
Se	^{77}Se	1/2	7.6
Cd	^{111}Cd , ^{113}Cd	1/2	25.0
Mn	^{55}Mn	5/2	100.0
Ga	^{69}Ga , ^{71}Ga	3/2	100.0
As	^{75}As	3/2	100.0

Tab. 2.3: Natürliches Vorkommen der Isotope der Elemente der in dieser Arbeit untersuchten Materialien mit von Null verschiedenem Kernspin (Quelle: WebElements [<http://www.webelements.com/>] [Win04]).

Relaxation von Mn-Spins

Ein Schwerpunkt der Untersuchungen in dieser Arbeit liegt auf der Dynamik von in die Quantenpunkte eingebrachten Mn-Spins. Bei Abwesenheit anderer Spintragender Teilchen ist die Relaxation durch die Wechselwirkung der Mn-Spin untereinander geprägt. Wie in Abschn. 2.4.1 bereits angesprochen erfolgt dabei die Wechselwirkung zwischen benachbarten Mn-Spins durch Superaustausch an einem gemeinsamen Anion. Für den im allgemeinen tensoriellen Hamilton-Operator eines über Superaustausch miteinander wechselwirkenden System aus Mn-Spins (Glg. 2.29) hat die wegen der Spin-Bahn-Kopplung am gemeinsamen Anion gebrochene Symmetrie zur Folge, daß auch nicht skalare Terme der Form⁹

$$\mathcal{H}_{i,j}^{ns} = (J_{ij}^{xz} - J_{ij}^{zx})(S_i^z S_j^x - S_i^x S_j^z) \quad (2.37)$$

zu berücksichtigen sind. Eine Konsequenz des Auftretens der nicht-skalaren Terme ist, daß der Gesamtspin nicht erhalten bleibt. Der damit verbundene Mechanismus wird als Spin-Gitter-Relaxation (SGR) bezeichnet.

Der Literatur können folgende Eigenschaften der SGR entnommen werden (siehe z.B. [Sca88, Bin91, Str92, Wan92, Far96, Sca96]). In niedrigen Magnetfeldern ist die SGR nur schwach magnetfeldabhängig. Ab $B \approx 17$ T gilt jedoch für die SGR-Rate $\tau^{-1} \propto B^5$. Die SGR-Rate steigt zudem sowohl mit der Gittertemperatur als auch mit der Konzentration der Mn-Ionen. Abgesehen von Mn-Cluster können auch Defekte und Verunreinigungen von Bedeutung für die SGR-Rate sein.

Niederdimensionalen Halbleitern kommt auf dem Gebiet der Spindynamik eine besondere Rolle zu. Durch die große Anzahl an Freiheitsgraden bei der Gestaltung niederdimensionaler Strukturen können Spineigenschaften gezielt manipuliert bzw. gesteuert werden.

⁹Als Quantisierungsrichtung wurde ohne Beschränkung der Allgemeinheit die z-Richtung gewählt.

Jedoch ist insbesondere im Fall von Quantenpunkten noch nicht klar, welche Spinrelaxationsmechanismen dominieren [Ž04].

2.6 Die ultraschnelle zeitaufgelöste Photolumineszenzspektroskopie

Die Photolumineszenzspektroskopie (PL-Spektroskopie) beruht darauf zunächst mittels Absorption eines Photons eine Anregung in dem zu untersuchenden Material zu erzeugen. D.h. ein sich im Valenzband befindendes Elektron wird in einen freien Zustand im Leitungsband befördert. Von dort relaxiert es im allgemeinen zunächst in den energetisch tiefsten Zustand an der Leitungsbandunterkante. Mit dem im Valenzband zurückgebliebenen Loch kann es ein wasserstoffähnliches System, das Exziton, bilden. Nach einer charakteristischen Zeit, der Rekombinationszeit oder Lebensdauer, rekombinieren Elektron und Loch wieder unter Emission eines neuen Photons. Die Summe aller emittierten Photonen wird als Lumineszenz oder Sekundärphotoemission bezeichnet. Wie bereits in Abschn. 2.2 erwähnt, unterliegen Absorption und Emission den optischen Auswahlregeln. Dies ermöglicht bei Verwendung geeigneter Polarisationsoptiken Rückschlüsse auf die Spinkonfigurationen der im Halbleiter erzeugten Anregung. Bevor die ausgesandten Photonen mit einem Detektor registriert werden, lassen sie sich sowohl spektral wie auch zeitlich analysieren. Zur Spektralanalyse wird in der Regel ein Gitterspektrograph verwendet. Wichtigste Kenngröße eines Gitterspektrograph ist das spektrale Auflösungsvermögen des verwendeten Gitters. Dieses berechnet sich nach

$$\frac{\lambda}{\Delta\lambda} = k \cdot N \quad (2.38)$$

aus dem Produkt der Ordnung des Beugungsmaximums k und der Anzahl der Striche des Gitters N .

Um den zeitlichen Verlauf der Emission von Photonen auflösen zu können, bedarf es zunächst einer gepulsten Anregungsquelle. Dabei muß gelten, daß die Dauer der Pulse geringer als die Zeitkonstante des zu messenden Prozesses sein muß¹⁰. Ein System, mit dem Prozesse bis in den Bereich weniger Pikosekunden und mittlerweile sogar einiger hundert Femtosekunden aufgelöst werden können, ist ein sogenanntes Streak-Kamera System. Ein Vorteil von Streak-Kameras ist, daß mit ihnen die Dynamik nicht nur für eine bestimmte Wellenlänge, sondern simultan in einem ganzen Wellenlängenbereich aufgenommen werden kann. Der schematische Aufbau eines solchen Systems ist in Abb. 2.7 dargestellt. Tritt ein Photon in eine Streak-Kamera ein, so trifft es zunächst auf eine Photokathode, wo es

¹⁰Genaugenommen muß die gesamte Pulsantwort des Meßsystems kürzer als die Zeitkonstante des zu messenden Prozesses sein.

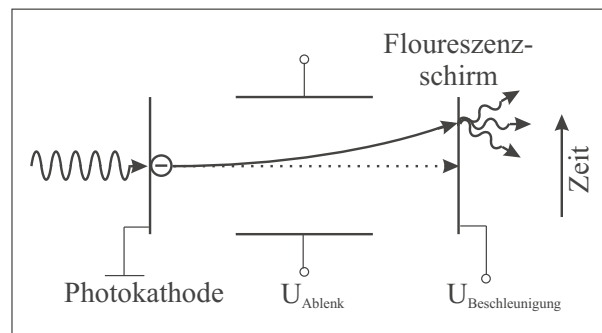


Abb. 2.7: Funktionsprinzip einer Streak-Kamera. Beschreibung siehe Text.

ein Elektron auslöst. Dieses wird mittels eines statischen elektrischen Feldes in Ausbreitungsrichtung des Photons auf einen Floureszenzschirm beschleunigt. Zusätzlich erfährt es senkrecht zu seiner Flugrichtung ein weiteres elektrisches Feld. Dieses Feld wird durch die Pulsquelle (i.a. ein gepulster ps-/fs-Laser) periodisch ausgelöst und nimmt zwischen zwei Pulsen linear mit der Zeit zu¹¹. Abhängig davon zu welchem Zeitpunkt in Bezug auf den Laserpuls das PL-Photon ein Elektron aus der Kathode auslöst, erfährt dieses beim Flug in Richtung des Floureszenzschirms eine unterschiedliche Ablenkspannung. Je nachdem wie stark zu dem entsprechenden Zeitpunkt dieses Ablenkkfeld war, trifft es an einem anderen Ort auf dem Floureszenzschirm auf und erzeugt dort einen Lichtblitz. Die Lichtblitze werden wiederum von einer CCD-Kamera registriert. Bei ausreichend langer zeitlicher Integration entsteht so ein Intensitätsprofil, dessen eine Achse bei Verwendung eines Monochromators die Energie und dessen andere Achse den Zeitpunkt der Emission der PL-Photonen angibt. Für das zeitliche Auflösungsvermögen ist zum einen auf Phasenstabilität der Pulsfolge zu achten und zum anderen sind Wegunterschiede im optischen System zu berücksichtigen. Aufgrund der Heisenbergschen Unschärferelation für Energie und Zeit

$$\Delta E \cdot \Delta t = h \quad (2.39)$$

muß im allgemeinen ein Kompromiß zwischen gewünschter spektraler und gewünschter temporaler Auflösung gefunden werden.

2.7 Magneto-optische Effekte

Im 19. Jahrhundert beobachteten Michael Faraday [Far46] und John Kerr [Ker77] die Änderung des Polarisationszustandes von Licht bei der Transmission durch ein bzw. Reflexion an einem magnetisierten Medium. Die Beschreibung solcher magneto-optischen

¹¹Dies ist eine etwas vereinfachte Darstellung. Tatsächlich wird in der Regel noch eine weitere Spannung senkrecht zu dieser angelegt. Mit beiden wird dann ein zeitlich elliptisch verlaufendes Spannungsfeld erzeugt (Lissajous-Figur).

Effekte erfolgt entweder makroskopisch durch die Theorie der Dielektrika oder mikroskopisch durch die Quantentheorie [Lan85]. Bei der mikroskopischen Betrachtung beruhen die magneto-optischen Effekte auf der Kopplung zwischen dem elektrischen Feld des Lichts und den Elektronenspins durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung ($\sim (\nabla V \times \mathbf{p}) \cdot \mathbf{s}$). Anschaulich läßt dies sich wie folgt interpretieren. Beim Durchlaufen des elektrischen Feldes ∇V sieht das Elektron ein Magnetfeld, an welches sein Spin koppeln kann. Durch diese Beschreibung konnten insbesondere die außergewöhnlich starken magneto-optischen Effekte in ferromagnetischen Materialien erklärt werden [Hul32, Kit51, Arg55]. Für weitergehende Information zur mikroskopischen Theorie sei an dieser Stelle auf die Literatur verwiesen (z.B. [She64, Ers73]). Im folgenden sollen die magneto-optischen Effekte phänomenologisch beschrieben werden. Dies geschieht in Anlehnung an [You96, Zve97, Bau00]. Da es sich bei den in dieser Arbeit untersuchten Strukturen zum Teil um sehr dünne Schichten handelt, wird sowohl die Faraday, als auch die Kerr-Rotation beschrieben. Dabei bedeutet dünn, daß die Schichtdicke geringer als die Eindringtiefe des Lichts in das Material ist. Dies ist im Fall der Quantenpunkte mit Sicherheit gegeben. Zudem kann es zu Mehrfachreflexionen an den Materialgrenzflächen kommen, so daß im allgemeinen Transmissions- und Reflexionseffekte nicht getrennt werden können. Trotzdem ist es Konvention bei in Transmission durchgeführten Experimenten von Faraday-Rotation und bei in Reflexion durchgeführten Experimenten von Kerr-Rotation zu sprechen.

Ausgangspunkt für die Beschreibung von Licht-Materie-Wechselwirkungen sind die Maxwellgleichungen:

$$\begin{aligned}
 \nabla \cdot \mathbf{D} &= \rho \\
 \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0 \\
 \nabla \times \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \\
 \nabla \times \mathbf{H} &= \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}
 \end{aligned}
 \tag{2.40}$$

Dabei bezeichnet \mathbf{H} die magnetische Feldstärke, \mathbf{B} die magnetische Induktion (oder Flußdichte), \mathbf{E} die elektrische Feldstärke, \mathbf{D} die dielektrische Verschiebung, \mathbf{J} die elektrische Stromdichte und ρ die elektrostatische Ladungsdichte. \mathbf{H} und \mathbf{B} bzw. \mathbf{E} und \mathbf{D} sind über die Materialgleichungen

$$\begin{aligned}
 \mathbf{D} &= \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \\
 \mathbf{B} &= \mu_0 (\mathbf{H} + \mathbf{M})
 \end{aligned}
 \tag{2.41}$$

durch die elektrische Polarisation \mathbf{P} bzw. die Magnetisierung \mathbf{M} miteinander verknüpft. Unter Vernachlässigung nicht linearer Effekte bestehen zwischen den Materialparametern und den Feldstärken folgende Zusammenhänge:

$$\begin{aligned}\mathbf{J} &= \tilde{\sigma} \cdot \mathbf{E} \\ \mathbf{P} &= \tilde{\alpha} \cdot \mathbf{E} \\ \mathbf{M} &= \tilde{\chi} \cdot \mathbf{H}\end{aligned}\tag{2.42}$$

$\tilde{\sigma}$, $\tilde{\alpha}$ und $\tilde{\chi}$ bezeichnen dabei entsprechend die spezifische Leitfähigkeit, die Polarisierbarkeit und die magnetische Suszeptibilität. Generell handelt es sich dabei um tensorielle Größen (anisotropes Medium). Für die weiteren Überlegungen sollen ebene Wellen der Frequenz ω und dem Wellenvektor \mathbf{k} betrachtet werden.

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \exp(i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - i\omega t) = \mathbf{E}_0 \exp(i\frac{\omega}{c}\mathbf{n} \cdot \mathbf{r} - i\omega t)\tag{2.43}$$

Im rechten Teil der Gleichung wurde über die Dispersionsrelation $\mathbf{k} = \frac{\omega}{c}\mathbf{n}$ der Brechungsindex \mathbf{n} eingeführt¹². Für das Magnetfeld gilt dies in analoger Weise. Desweiteren soll gelten:

- $\tilde{\rho} = 0$ - es gibt keine statischen Ladungen.
- Das Medium ist homogen - d.h. $\tilde{\sigma}$, $\tilde{\alpha}$ und $\tilde{\chi}$ sind ortsunabhängig.
- Die Magnetisierung sei statisch (zeitunabhängig). Dies kann als gegeben angenommen werden, solange die Frequenz der Spinpräzession ν_s deutlich geringer als die Frequenz des Lichtes ν_{ph} ist¹³.

Damit und unter Verwendung von Glg. (2.41), Glg. (2.42) und Glg. (2.43) lassen sich aus den Maxwell-Gleichungen die folgenden beiden Relationen herleiten:

$$\begin{aligned}\nabla \times \mathbf{E} &= i\omega\mu_0\mathbf{H} \\ \nabla \times \mathbf{H} &= (\epsilon_0 + \tilde{\alpha} + \frac{i}{\omega}\tilde{\sigma}) \cdot \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} = \epsilon_0\tilde{\epsilon} \cdot \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}\end{aligned}\tag{2.44}$$

Hierbei wurde der verallgemeinerte dielektrische Tensor $\tilde{\epsilon} = (\epsilon_0 + \tilde{\alpha} + \frac{i}{\omega}\tilde{\sigma})/\epsilon_0$ eingeführt. Betrachtet man den Einfall einer ebenen elektromagnetischen Welle auf ein Medium, das in beliebiger Richtung magnetisiert ist, so läßt sich der dielektrische Tensor wie folgt allgemein angeben [You96, Qiu00]:

¹² c ist die Lichtgeschwindigkeit ($c = 2.997924562 \cdot 10^8 m.s^{-1}$ [Eve72])

¹³Bei den zur Kerr-Rotation durchgeführten Experimenten gilt: $\nu_{ph} \approx 6.25 \cdot 10^{14} Hz$ und $\nu_s < 1 \cdot 10^{12} Hz$

$$\tilde{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon & -\epsilon_{12} & \epsilon_{13} \\ \epsilon_{12} & \epsilon & -\epsilon_{23} \\ -\epsilon_{13} & \epsilon_{23} & \epsilon \end{pmatrix} \quad (2.45)$$

Die Antisymmetrie $\epsilon_{ik} = -\epsilon_{ki}$ der Tensorelemente ϵ_{ik} mit $i \neq k$ leitet sich aus dem verallgemeinerten Symmetrieprinzip kinetischer Koeffizienten ab¹⁴ - $\epsilon_{ik}(\mathbf{M}) = \epsilon_{ki}(-\mathbf{M})$. Aus der Form des Dielektrizitätstensors ist ersichtlich, daß sich dieser als Summe eines symmetrischen und eines von \mathbf{M} abhängigen antisymmetrischen Tensors schreiben läßt. Dies ermöglicht es $\tilde{\epsilon}$ auch auf die folgende Weise zu definieren:

$$\tilde{\epsilon} \cdot \mathbf{E} = \epsilon \mathbf{E} - \nu \epsilon Q \mathbf{m} \times \mathbf{E} \quad \text{mit} \quad -\nu \epsilon Q \mathbf{m} = -\nu \epsilon Q \begin{pmatrix} m_x \\ m_y \\ m_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \epsilon_{23} \\ \epsilon_{13} \\ \epsilon_{12} \end{pmatrix} \quad (2.46)$$

Die magneto-optische Konstante Q ist ein Materialparameter, der in erster Näherung proportional zum Betrag der Magnetisierung $M = |\mathbf{M}|$ ist. \mathbf{m} sei ein zur Magnetisierung paralleler Einheitsvektor. Klassisch kann der zweite Term in Glg. (2.46) als Lorentz-Kraft interpretiert werden, die auf durch das elektrische Feld \mathbf{E} der Welle beschleunigte Teilchen eine Beschleunigung senkrecht zu \mathbf{E} und \mathbf{M} bewirkt.

Aus Glg. (2.43) und Glg. (2.44) ist ferner eine Beziehung zwischen dem Brechungsindex \mathbf{n} und dem Dielektrizitätstensor $\tilde{\epsilon}$ ableitbar. Das Ergebnis ist unter dem Namen Fresnel-Formel bekannt.

$$\tilde{\epsilon} \cdot \mathbf{E} = n^2 \mathbf{E} - (\mathbf{n} \cdot \mathbf{E}) \cdot \mathbf{n} \quad (2.47)$$

Man beachte, daß im anisotropen (magnetisierten) Medium \mathbf{n} und \mathbf{E} nicht unbedingt senkrecht zueinander stehen müssen.

2.7.1 Bei Transmission

Bei dem im weiteren betrachteten senkrechten Einfall einer ebenen Welle ($\mathbf{E} = (E_x, E_y, 0)$) auf das magnetisierte Medium ist jedoch $\mathbf{n} \perp \mathbf{E}$ der Fall und $\mathbf{n} = (0, 0, n_z)$. Desweiteren soll in Hinblick auf die Experimente zur zeitaufgelösten Kerr-Rotation eine Magnetisierung parallel zu \mathbf{n} angenommen werden ($\mathbf{m} = (0, 0, 1)$). Unter Verwendung von Glg. (2.46) und Glg. (2.47) ergibt sich für den betrachteten Fall:

¹⁴Diese wiederum kann auf die Zeitumkehrsymmetrie zurückgeführt werden (siehe [Lan85]).

$$\epsilon \begin{pmatrix} 1 & -iQ & 0 \\ iQ & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ 0 \end{pmatrix} = n^2 \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ 0 \end{pmatrix} \quad (2.48)$$

Da die Nebendiagonalelemente des Dielektrizitätstensors von Null verschieden sind, koppeln die x- und y-Komponenten des elektrischen Feldes. Daraus folgt, daß linear polarisiertes Licht keine Lösung dieses Gleichungssystems darstellt. Um fortzufahren erfolgt eine Basistransformation zu zirkular polarisiertem Licht und eine Diagonalisierung des Dielektrizitätstensors in dieser Basis.

$$\begin{aligned} \mathbf{e}_+ &= \frac{\mathbf{e}_x + i\mathbf{e}_y}{\sqrt{2}} \\ \mathbf{e}_- &= \frac{\mathbf{e}_x - i\mathbf{e}_y}{\sqrt{2}} \\ \mathbf{e}_z & \end{aligned} \quad \text{und} \quad \tilde{\epsilon}^\pm = \epsilon \begin{pmatrix} 1+Q & 0 & 0 \\ 0 & 1-Q & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (2.49)$$

Damit ergeben sich die Eigenwerte und -vektoren der Glg. (2.48) zu:

$$\begin{aligned} \text{Eigenwerte:} \quad n_\pm &= \sqrt{\epsilon(1 \pm Q)} \approx \sqrt{\epsilon} \left(1 \pm \frac{Q}{2}\right) \\ \text{Eigenvektoren:} \quad \mathbf{E}_\pm &= E_0 \mathbf{e}_\pm \exp\left(i\frac{\omega n_\pm}{c} - i\omega t\right) \end{aligned} \quad (2.50)$$

Der Unterschied in den Brechungsindizes $n_+ \neq n_-$ führt dazu, daß sich rechts und links zirkular polarisiertes Licht unterschiedlich schnell in dem magnetisierten Medium ausbreiten. Beim Durchlaufen einer Strecke d baut sich so zwischen diesen beiden Zirkularpolarisationen eine Phasenverschiebung auf.

$$\Delta\phi = \frac{\omega}{c}(n_- - n_+)d \approx -\frac{\omega}{c}\sqrt{\epsilon}Qd \quad (2.51)$$

Betrachtet man nun linear polarisiertes Licht, so läßt sich dieses zunächst als Überlagerung von rechts und links zirkular polarisiertem Licht darstellen. Dazu werden nun die elektromagnetischen Wellen mit Hilfe von Jones-Vektoren dargestellt (siehe z.B. [Hec01]). Die Indizes (\pm) bzw. (xy) deuten an, auf welche Basis sich der jeweilige Vektor bezieht - zirkular bzw. linear. Vor der Transmission lauten die Jones-Vektoren für eine in x-Richtung linear polarisierte Welle:

$$\begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix}_{xy} = \frac{1}{2} \left(\begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix}_{xy} + \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix}_{xy} \right) = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \end{bmatrix}_\pm \quad (2.52)$$

Die Transmission durch ein Medium der Dicke d unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Brechungsindizes für links und rechts zirkular polarisiertes Licht wird in der Jones-Schreibweise durch eine Matrix dargestellt:

$$\begin{bmatrix} e^{i\frac{\omega}{c}n_+d} & 0 \\ 0 & e^{i\frac{\omega}{c}n_-d} \end{bmatrix}_{\pm} \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ 1 \end{bmatrix}_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} e^{i\frac{\omega}{c}n_+d} \\ e^{i\frac{\omega}{c}n_-d} \end{bmatrix}_{\pm} \quad (2.53)$$

Die Rücktransformation auf die Basis der Linearpolarisation ergibt:

$$\frac{1}{2} \left(e^{i\frac{\omega}{c}n_+d} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix}_{xy} + e^{i\frac{\omega}{c}n_-d} \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix}_{xy} \right) \quad (2.54)$$

Unter Verwendung von $n_+ + \Delta n = n = (n_- + n_+)/2$ erhält man durch Umformung:

$$e^{i\frac{\omega}{c}nd} \begin{bmatrix} \cos\left(\frac{\omega}{c}d\frac{\Delta n}{2}\right) \\ \sin\left(\frac{\omega}{c}d\frac{\Delta n}{2}\right) \end{bmatrix} = e^{i\frac{\omega}{c}nd} \begin{bmatrix} \cos(\Phi_F) \\ \sin(\Phi_F) \end{bmatrix} \quad (2.55)$$

Der Unterschied in den Brechungsindizes führt also zu einer Drehung der Polarisations Ebene der linear polarisierten Welle. Mit der Beziehung (2.51) folgt, daß der Drehwinkel (Faraday-Winkel Φ_F) in etwa proportional zur Dicke d des durchlaufenen Materials und zur magneto-optischen Konstante Q ist:

$$\Phi_F = \frac{\omega}{2c}d\Delta n \approx -\frac{\omega}{2c}\sqrt{\epsilon}Qd \quad (2.56)$$

Da Φ_F im allgemeinen ein komplexer Winkel ist, entsteht zudem zusätzlich eine gewisse Elliptizität der elektromagnetischen Welle.

2.7.2 Bei Reflexion

Ändert eine (ebenen) elektromagnetischen Welle bei der Reflexion an einem magnetisiertem Medium ihre Polarisations-eigenschaften, so spricht man i.a. vom Kerr-Effekt. Dabei unterscheidet man, je nach Orientierung von der Flächennormalen der Materialoberfläche \mathbf{n}_{OF} , der Magnetisierung des Materials \mathbf{M} und Flächennormalen der Einfallsebene der elektromagnetischen Welle \mathbf{n}_{EM} nach polarem ($\mathbf{M} \parallel \mathbf{n}_{OF} \perp \mathbf{n}_{EM}$), longitudinalem ($\mathbf{M} \perp \mathbf{n}_{EM} \perp \mathbf{n}_{OF} \perp \mathbf{M}$) und transversalem ($\mathbf{M} \parallel \mathbf{n}_{EM} \perp \mathbf{n}_{OF}$) Kerr-Effekt (siehe

auch Anh. C. Zur Berechnung des Drehwinkels (Kerr-Winkel Φ_K) im Fall der Reflexion kann prinzipiell analog wie im Fall der Transmission vorgegangen werden. Zur Vermittlung eines breiteren Basiswissens soll nun jedoch ein leicht anderer Weg vorgestellt werden. Dies geschieht in Analogie zu C.-Y. You und S.-C. Shin [You96] basierend auf dem dielektrischen Tensor in Glg. (2.45) und unter Verwendung der magneto-optischen Fresnel-Reflexionsmatrix :

$$\hat{\mathcal{R}} = \begin{pmatrix} r_{pp} & r_{ps} \\ r_{sp} & r_{ss} \end{pmatrix} \quad (2.57)$$

Die Elemente r_{ij} bezeichnen dabei das Verhältnis zwischen den Amplituden des i -polarisierten einfallenden elektrischen Feldes und des j -polarisierten reflektierten elektrischen Feldes¹⁵. Für Näherungen erster Ordnung in Q können sie explizit wie folgt angegeben werden [You96, Hun67, Zak90, Yan93]:

$$r_{pp} = \frac{n_1 \cos(\theta_0) - n_0 \cos(\theta_1)}{n_1 \cos(\theta_0) + n_0 \cos(\theta_1)} - \frac{i2n_0n_1 \cos(\theta_0) \sin(\theta_1)m_x Q}{n_1 \cos(\theta_0) + n_0 \cos(\theta_1)} \quad (2.58)$$

$$r_{sp} = \frac{m_0 n_1 \cos(\theta_0) [m_y \sin(\theta_1) + m_z \cos(\theta_1)] Q}{[n_1 \cos(\theta_0) + n_0 \cos(\theta_1)] [n_0 \cos(\theta_0) + n_1 \cos(\theta_1)] \cos(\theta_1)} \quad (2.59)$$

$$r_{ss} = \frac{n_0 \cos(\theta_0) - n_1 \cos(\theta_1)}{n_0 \cos(\theta_0) + n_1 \cos(\theta_1)} \quad (2.60)$$

$$r_{sp} = - \frac{m_0 n_1 \cos(\theta_0) [m_y \sin(\theta_1) - m_z \cos(\theta_1)] Q}{[n_1 \cos(\theta_0) + n_0 \cos(\theta_1)] [n_0 \cos(\theta_0) + n_1 \cos(\theta_1)] \cos(\theta_1)} \quad (2.61)$$

θ_0 , n_0 und n_1 bezeichnen in diesen Ausdrücken entsprechend den Einfallswinkel, den Brechungsindex des (nichtmagnetischen) Mediums 0 und den Brechungsindex des magnetischen Mediums 1. Der im allgemeinen komplexe Brechungswinkel θ_1 im Medium 1 bestimmt sich über das Snelliussche Brechungsgesetz. Der komplexe Kerr-Winkel für p- und s-Polarisation definiert sich nun über:

¹⁵s-Polarisation: Der Vektor des elektrischen Feldes steht senkrecht auf der durch den Wellenvektor \mathbf{k} und ist parallel zur Flächennormalen \mathbf{n}_{EM} der Einfallsebene. p-Polarisation: Der Vektor des elektrischen Feldes liegt in der Einfallsebene.

$$\tan(\Phi_K^p) = \frac{r_{sp}}{r_{pp}} \approx \Phi_K^p \quad (2.62)$$

$$\tan(\Phi_K^s) = \frac{r_{ps}}{r_{ss}} \approx \Phi_K^s \quad (2.63)$$

Die Näherung gilt für kleine Winkel. Für den Fall der polaren Kerr Geometrie¹⁶ ($m_x = m_y = 0$ und $m_z = 1$) folgt durch Einsetzen der Gleichungen (2.58) bis (2.61) und entsprechender Umrechnung:

$$\Phi_K^{p,polar} = \frac{\cos(\theta_0)}{\cos(\theta_0 + \theta_1)} \cdot \frac{n_0 n_1 Q}{(n_1^2 - n_0^2)} \quad (2.64)$$

$$\Phi_K^{s,polar} = \frac{\cos(\theta_0)}{\cos(\theta_0 - \theta_1)} \cdot \frac{n_0 n_1 Q}{(n_1^2 - n_0^2)} \quad (2.65)$$

D.h. bei senkrechtem Einfall der elektromagnetischen Welle ($\theta_0 = \theta_1 = 0$), $n_0 = 1$ und mit $n_1 = \sqrt{\epsilon}$ ist

$$\Phi_K^{polar} = \frac{i\sqrt{\epsilon}Q}{(\epsilon - 1)}. \quad (2.66)$$

Sind Q und ϵ real, so ist Φ_K (und auch Φ_F) rein imaginär und es entsteht nur Elliptizität aber keine Rotation. Rotation kann nur entstehen, wenn Q auch einen Imaginärteil enthält. Dies trifft zu, wenn im (magnetisierten) Medium Absorption auftritt. In ähnlicher Weise kann der Kerr-Winkel auch für die longitudinale und transversale Kerr-Geometrie berechnet werden [You96]. Unter senkrechtem Einfall tragen diese jedoch nicht zu einer Rotation der Polarisations Ebene bei¹⁷. Da die Experimente zur Kerr-Rotation unter nahezu senkrechtem Einfall durchgeführt werden, wird deshalb hier nicht weiter auf diese Komponenten eingegangen.

Wie eben gesehen (Glg.2.66) ist der Kerr-Winkel unabhängig von der Dicke des Mediums, an dem die Reflexion stattfindet. Dies kann offensichtlich nur gelten, so lange das Medium deutlich dicker ist als die Eindringtiefe des Lichts in dieses Medium ist. Bei dünnen Schichten (also auch bei Quantenpunktmonolagen) treten sowohl Transmission als auch

¹⁶Zur Veranschaulichung der verschiedenen Kerr-Geometrien siehe Anh. C.

¹⁷Anschaulich läßt sich dies mit Hilfe von Glg. (2.47) erklären. Für $\mathbf{E} \parallel \mathbf{M}$ verschwindet die Lorentz-Kraft und für $\mathbf{E} \perp \mathbf{M}$ schwingen die Ladungsträger in Richtung der Oberflächennormalen (keine Dipolstrahlung in diese Richtung).

Reflexion auf. Damit muß der Kerr-Winkel bei dünnen Schichten auch von der Dicke der Schicht und zudem von der Wellenlänge des verwendeten Lichts abhängen. Ist die dünne magnetische Schicht auf ein Substrat mit der Dielektrizitätskonstanten ϵ_{sub} aufgebracht, so ergibt sich nach S. D. Bader [Bad91] der (polare) Kerr-Winkel zu:

$$\Phi_K^{polar} = -\frac{4\pi}{\lambda} \frac{\epsilon Q d}{1 - \epsilon_{sub}}. \quad (2.67)$$

λ bezeichnet hier die Wellenlänge des Lichts.

2.7.3 In Halbleitern

In Halbleitern ist die Faraday- bzw. Kerr-Rotation gewöhnlich in der Umgebung optischer Resonanzen am stärksten. Dies läßt sich an einem ebenfalls auf der Wechselwirkung zwischen Magnetfeldern und Materie beruhendem Effekt, dem Zeeman Effekt, gut nachvollziehen [Cro95]. Bedingt durch ein Magnetfeld kommt es nach Abschn. 2.1.3 zu einer

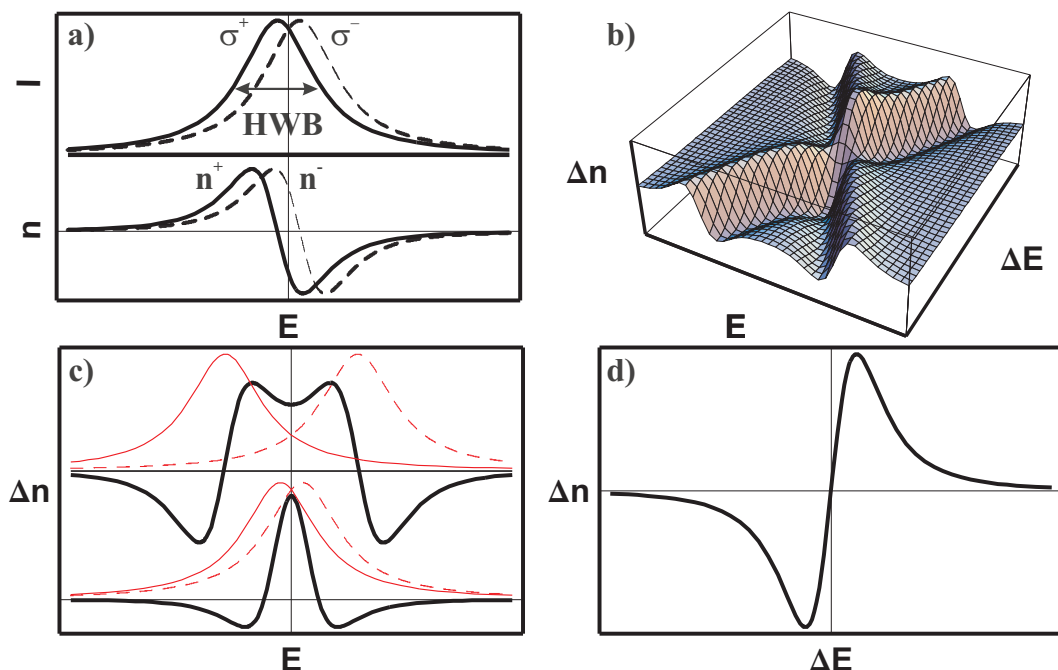


Abb. 2.8: **a)** Oben: σ^\pm -Resonanzlinien. Als Linienform wurde ein Lorentz-Profil angenommen (Halbwertsbreite: HWB). Unten: Verlauf der zugehörigen Brechungsindizes n^\pm . **b)** Brechungsindexunterschied $\Delta n = (n^- - n^+)/2$ in Abhängigkeit von der Energie E und der Linienaufspaltung ΔE . **c)** $\Delta n(E)$ für zwei feste Werte von ΔE (Unten: $\Delta E < HWB$, Oben: $\Delta E > HWB$). **d)** $\Delta n(\Delta E)$ für die Schwerpunktsenergie der beiden Spektrallinien.

Aufspaltung eines $(2J + 1)$ -fach entarteten Zustandes in einzelne Spinzustände, wobei die Aufspaltungsenergie durch den Landé-Faktor bestimmt ist. Betrachtet man z.B. nur die beiden Zustände der hellen Schwerloch-Exzitonen, so sind die mit rechts und links zirkular polarisiertem Licht in Verbindung stehenden optischen Übergänge energetisch verschieden (siehe z.B. Abb. 2.8a)). Dies hat zur Folge, daß sich die entsprechenden Brechungsindizes n_+ und n_- im Bereich der Resonanzenergien ebenfalls unterscheiden ($\Delta n \neq 0$). Wie bereits gesehen ist die Konsequenz daraus eine Rotation der Polarisations ebene linear polarisierten Lichts. Es ist allerdings hier zu beachten, daß Δn eine gewisse spektrale Abhängigkeit besitzt, d.h. $\Delta n = \Delta n(E)$. Folglich gilt auch $\Phi_K = \Phi_K(E)$ (bzw. $\Phi_F = \Phi_F(E)$). Die magneto-optischen Effekte sind also von der energetischen Aufspaltung (ΔE) der optischen Übergänge abhängig. Für Aufspaltungen, die geringer als etwa die Halbwertsbreite der Linien (HWB) sind, ist ϕ_K (ϕ_F) in etwa proportional zur Energiedifferenz. Ist jedoch $\Delta E > HWB$, so wirkt sich die genaue Linienform auf die magneto-optischen Winkel aus. Dieser Sachverhalt ist in Abb. 2.8 schematisch dargestellt. Abhängig von der spektralen Lage in Bezug auf die optischen Resonanzen kann der jeweils beobachtete magneto-optische Effekt positiv oder negativ auftreten.

Kapitel 3

Experimentelle Techniken und Nanostrukturierung

Um optische und elektronische Prozesse in Halbleitern zu studieren, die auf Zeitskalen von Piko- oder Femtosekunden stattfinden, werden Techniken angewendet, bei denen aus einer örtlichen Information eine zeitliche Information abgeleitet wird. In dieser Arbeit wurden zur direkten Untersuchung der Spindynamik in selbstorganisierten Quantenpunktstrukturen zwei grundlegend verschiedene Methoden verwendet. Zum einen handelt es sich dabei um die zeitaufgelöste Photolumineszenz Spektroskopie (TRPL) und zum anderen um die zeitaufgelöste Kerr Rotation (TRKR). Im Folgenden werden beide Methoden anhand der jeweiligen Meßanordnung vorgestellt und die zugrundeliegenden Prinzipien erklärt. Zudem wird kurz darauf eingegangen wie niederdimensionale Strukturen erzeugt werden und aufgezeigt wie man Zugang zu einzelnen Quantenpunkten erhält.

3.1 Die zeitaufgelöste Photolumineszenzspektroskopie

Vereinfacht gesprochen läßt sich die PL-Spektroskopie folgendermaßen beschreiben: Mit einer geeigneten Lichtquelle (Wellenlänge, spektrale Breite,...) werden im zu untersuchenden System (elektronische) Übergänge erzeugt und so das System in einen angeregten Zustand gebracht. Bei der Relaxation in den Ausgangszustand (oder aber auch einen anderen Zustand) werden wiederum Photonen (Lumineszenz) generiert. Aus deren Parametern (Energie, Polarisation,...) läßt sich dann auf bestimmte Eigenschaften des Systems schließen. Ein PL Experiment besteht somit aus zwei Komponenten, der Anregung mit einer wohldefinierten Lichtquelle sowie der Detektion und Analyse der Lumineszenz.

In Abb. 3.1 ist die Versuchsanordnung zur TRPL dargestellt. Als Lichtquelle dient ein durch einen Argon-Ionen-Laser gepumpter Titan-Saphir-Laser der Firma Spectra-Physics. Die Wellenlänge des emittierten Laserstrahls ist bei diesem Laser im Bereich von 700 nm

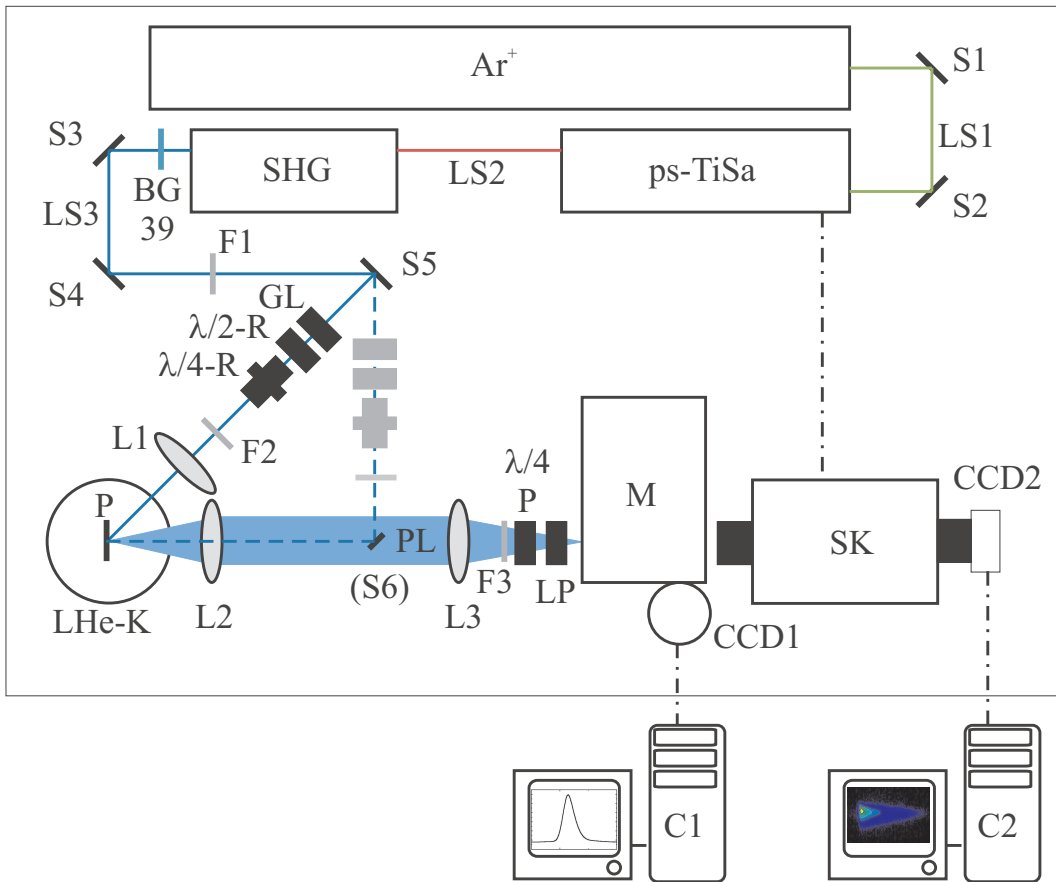


Abb. 3.1: Versuchsanordnung zur zeitaufgelösten PL-Spektroskopie: Ar^+ : Argon-Ionen-Laser, **LS1:** Argon-Ionen-Laserstrahl, **ps-TiSa:** gepulster Titan-Saphir-Laser im Pikosekundenmodus, **LS2:** Titan-Saphir-Laserstrahl, **SHG:** Frequenzverdoppler, **LS3:** frequenzverdoppelter Titan-Saphir-Laserstrahl, **BG39:** Bandkantenfilter (Hochpaß), **GL:** Glan-Laser Prisma (Linearpolarisator), $\lambda/2$ -R: $\lambda/2$ -Rhombus, $\lambda/4$ -R: $\lambda/4$ -Rhombus, **LHe-K:** Helium-Badkryostat, **P:** Probe, $\lambda/4$ P: $\lambda/4$ -Plättchen, **LP:** Linearpolarisator, **M:** 0.46m-Monochromator, **SK:** Streak-Kamera, **CCD1/CCD2:** CCD-Kameras, **C1/C2:** Computer, **S1-S6:** Spiegel, **L1-L3:** Linsen, **F1-F3:** Filter, **PL:** Photolumineszenz. Für den Strahlengang zwischen S5 und P sind zwei Möglichkeiten skizziert. Eine 3D-Illustration dieses Aufbaus findet sich im Anh. B.

bis 1000 nm frei einstellbar. Um zeitaufgelöste Experimente durchzuführen wird der Titan-Saphir-Laser gepulst betrieben. Dazu stehen zwei Modi zur Verfügung - Pikosekunden- und Femtosekundenmodus mit Pulsdauern von 1-2 ps bzw. 80-200 fs. Wegen der geringeren spektralen Breite ($\Delta E \Delta t \approx h$) der Pulse wird zur Durchführung der Experimente der Pikosekundenmodus verwendet. Dieser gewährleistet bei resonanter Anregung, daß nur ein Bruchteil des Quantenpunktensembles mit Elektron-Loch-Paaren besetzt wird, und somit die Quantenpunkte energieselektiv getestet werden können. Um jedoch überhaupt den Grundzustand der zu untersuchenden Cd(Mn)Se/ZnSe Quantenpunkte zu besetzen, ist es nötig die Frequenz der Pulse des Titan-Saphir-Lasers zu verdoppeln. Dies geschieht mit

Hilfe eines frequenzverdoppelnden nicht linearen BBO-Kristalls¹. Durchgeführt werden die Experimente im Wellenlängenbereich von 420 nm bis 500 nm. Zwar besitzt der Frequenzverdoppler auf der Ausgangsseite dichroitische Strahlteiler, die blaue Wellenlängen reflektieren und rote durchlassen, dennoch werden die Fundamentalmode und die zweite Harmonische nicht vollständig getrennt. Deshalb wurde hinter dem Frequenzverdoppler ein Kurzpaßfilter (BG39) in den Strahlengang integriert. Zur Einstellung einer definierten Polarisation wird der Laserstrahl durch die folgenden breitbandigen optischen Komponenten geführt, bevor er auf die Probe im Kryostaten trifft. Da durch etwaige Spiegel die vom Laser emittierte linear polarisierte TEM₀₀-Mode² an Qualität verliert, wird der Strahl zunächst durch ein Glan-Laser-Prisma vollständig linear polarisiert. Der darauf folgende $\lambda/2$ -Rhombus ermöglicht die Drehung der Polarisationsebene um beliebige Winkel. Sollte zirkular polarisiertes Licht benötigt werden, so läßt sich dies durch Hinzunahme eines $\lambda/4$ -Rhombuses, der unter einem Winkel von $\pm 45^\circ$ in Bezug auf die Polarisationsebene des einfallenden Strahls orientiert ist, realisieren. Teilweise wurde der Laserstrahl noch in möglichst spitzen Winkel über einen kleinen Fingerspiegel in den Kryostaten eingekoppelt (z.B. Aufbau am Magnetkryostaten). Dabei wird der Strahl durch eine Linse auf einen Durchmesser von bis zu 50 μm fokussiert.

Die Proben sind an den Kaltfinger des jeweiligen Kryostaten angebracht, der sich wiederum im variablen Temperatureinsatz (VTI³) befindet. Damit lassen sich Temperaturen von 1.5 K (suprafluides Heliumbad) bis Raumtemperatur einstellen. Der Magnetkryostat bietet zusätzlich die Option durch supraleitende Spulen Magnetfelder bis maximal 8 T sowohl in Faraday- (parallel zur Wachstumsrichtung der Proben) wie auch Voigt-Geometrie (senkrecht zur Wachstumsrichtung) anzulegen.

Die von der Probe ausgesandte Photolumineszenz (PL) wird durch eine Linse kollimiert und von einer zweiten Linse auf den vertikalen Eingangsspalt eines Monochromators fokussiert. Zur Analyse der PL-Polarisation werden zwischen dieser Linse und dem Spalt ein $\lambda/4$ -Verzögerungsplättchen und ein Linearpolarisator eingebaut. Der verwendete Monochromator hat eine Länge von 460 mm und ist mit zwei wahlweise verwendbaren Gittern - mit 300 und 1200 Strichen pro Millimeter - ausgestattet. Am vorderen Ausgang des Monochromators ist eine stickstoffgekühlte CCD-Kamera⁴ angebracht, mit der zeitintegrierte Spektren aufgenommen werden können. Diese dient hauptsächlich zur Orientierung und zur Maximierung des PL-Signals. Die zur zeitaufgelösten Detektion eingesetzte Streak Kamera befindet sich am Seitenausgang des Monochromators. Die durch den Monochromator horizontal spektral aufgelöste PL wird auf den horizontalen Eintrittsspalt der Streak-Kamera abgebildet. Photonen die durch diesen Spalt gelangen, treffen auf eine Photokathode (Typ S20) und lösen dort Elektronen aus. Diese werden in Bewegungsrichtung des PL-Photons auf einen Fluoreszenzschirm beschleunigt. Zudem werden sie senk-

¹BBO steht für BaB₂O₄.

²Die TEM₀₀-Mode ist die transversal-elektromagnetische Grundmode des Lasers.

³englisch für: variable temperature insert

⁴CCD steht für: Charged Coupled Device

recht zu dieser Richtung durch ein zeitlich veränderliches Feld vertikal abgelenkt⁵. Dieses zeitlich veränderliche Feld wird periodisch über eine schnelle Photodiode durch die Pulse des Titan-Saphir Lasers ausgelöst. Je nach Zeitpunkt des Auftreffens des PL-Photons auf die Kathode erfährt das jeweilig generierte Photon ein unterschiedliches vertikales Ablenkkfeld, und trifft somit an einer anderen Höhe auf dem Fluoreszenzschirm auf. Das Fluoreszenzlicht des Schirmes wird von einer weiteren, in diesem Fall Peltier-gekühlten, CCD-Kamera aufgezeichnet. Dadurch entsteht ein Bild bei dem die horizontale Koordinate eines jeden Bildpunktes die spektrale Information trägt und die vertikale Koordinate die zeitliche Information. Die Intensität (gezählte Photonen) in jedem Bildpunkt geben folglich Auskunft, wieviele Rekombinationsprozesse bei der entsprechenden Energie und dem entsprechenden Zeitpunkt stattgefunden haben. Beide CCD-Kameras werden über Computer angesteuert und ausgelesen. Das spektrale und das zeitliche Auflösungsvermögen dieses Versuchsaufbaus liegt bei 0.1 meV und etwas besser als 20 Pikosekunden. Wie also eingangs erwähnt, wird die zeitliche Information in eine örtliche umgewandelt.

3.2 Die zeitaufgelöste Kerr Rotation

Im Gegensatz zur TRPL werden bei der TRKR nicht die PL, sondern Eigenschaften des an der Probe wechselwirkenden Laserlichts untersucht. Der Versuchsaufbau zu diesem Experiment ist in Abb. 3.2 schematisch dargestellt. Durchgeführt wurden die Experimente zur TRKR am Naval Research Laboratory in Washington D.C. USA. Wie bei der TRPL dient als Laserquelle ein gepulster Titan-Saphir-Laser in der Pikosekundenkonfiguration⁶. Im Fall der Untersuchungen an den GaAs Proben wurde der frequenzverdoppelnde Kristall aus dem Strahlengang genommen um somit nur die Grundmode zu nutzen. Mit Hilfe eines Strahlteilers wird der Laserstrahl in einen Pump- und einen Probestrahl im Verhältnis von ca. 10:1 geteilt. Der intensivere Pumpstrahl wird über eine mit einem Retroreflektor bestückten Delay-Line geleitet. Um beim Durchfahren der Delay-Line keinen Strahlversatz zu erhalten wurden der einfallende und der reflektierte Strahl mit Hilfe zweier Irisblenden und einer Markierung im Abstand von ca. 1.5 m an der Wand orientiert. Den Pumpstrahl anstatt den Probestrahl über die Delay-Line zu schicken ist deshalb von Vorteil, da der Pumpstrahl nur bis zu Probe geleitet wird, wohingegen der Probestrahl bis zum Detektor weiter läuft. Nach der Delay-Line wird der Pumpstrahl durch einen Linearpolarisator und den Photoelastischen Modulator (PEM) geschickt. Die optische Achse des PEM ist um 45° bezüglich der Linearpolarisators gedreht. Der PEM ist so eingestellt, daß er beim Erreichen seiner maximalen Schwingungsamplitude als $\pm\lambda/4$ -Verzögerer fun-

⁵Die vertikale Ablenkung ist eigentlich eine lange Seite einer Ellipse, die periodisch mit der Pulsrepetitionrate durchgeföhren wird

⁶Bei dem am Naval Research Laboratory verwendeten Lasersystem wurde als Pumplaser ein Diodengepumpter Festkörperlaser (DPSS - Diode pumped solid state) verwendet (MilleniaX der Firma Spectra Physics).

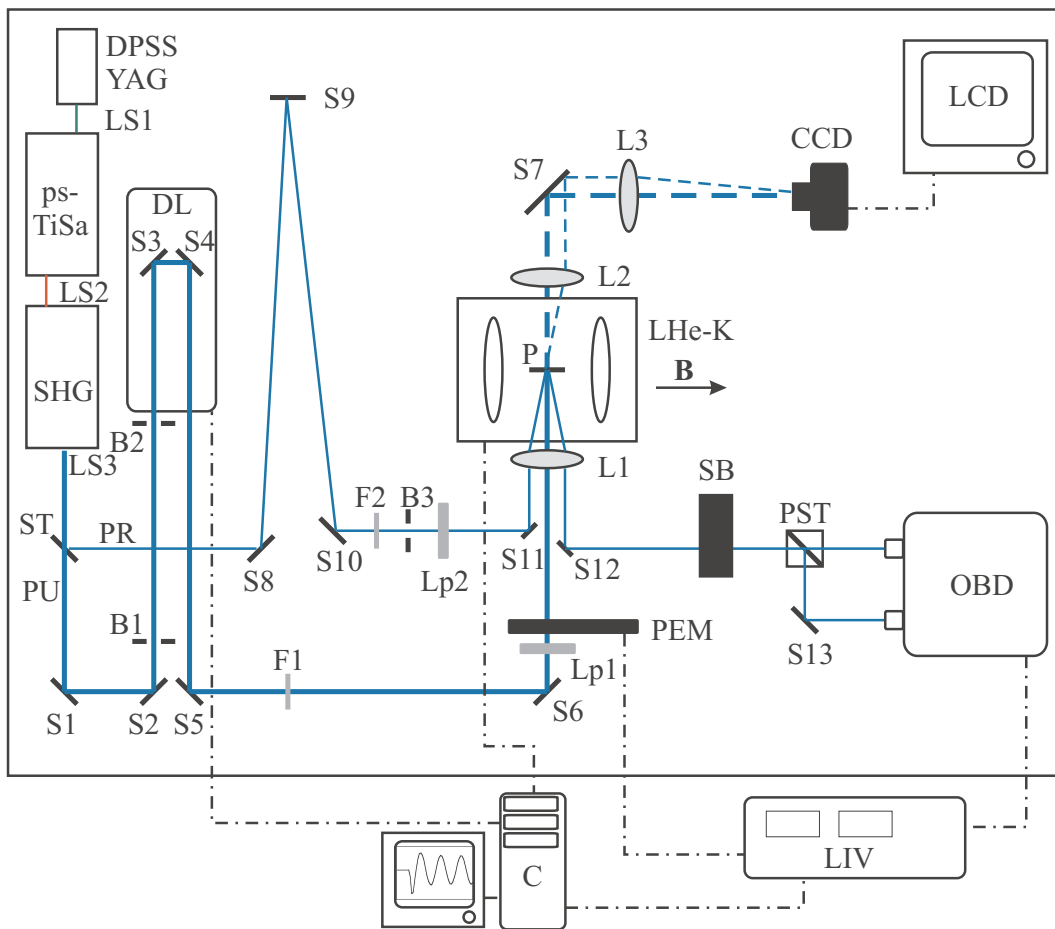


Abb. 3.2: Versuchsanordnung zur zeitaufgelösten Kerr Rotation: **DPSS YAG:** Diodengepumpter Festkörperlaser (Neodym-YAG-Laser, frequenzverdoppelt), **LS1:** frequenzverdoppelter Nd-YAG-Laserstrahl, **ps-TiSa:** gepulster Titan-Saphir-Laser (Pikosekundenmodus), **LS2:** Titan-Saphir-Laserstrahl, **SHG:** Frequenzverdoppler, **LS3:** frequenzverdoppelter Titan-Saphir-Laserstrahl (teilt sich am Strahlteiler (**ST** in Pump (**PU**) und Probestrahl (**PR**)))., **B1-B3:** (Iris-)Blenden, **DL:** Verzögerungsschiene (Delay-Line), **F1/F2:** Filter, **Lp1/Lp2:** Linearpolarisatoren, **PEM:** Photoelastischer Modulator, **LHe-K:** Helium-Badkryostat mit supraleitendem Split-Coil-Magneten, **P:** Probe, **SB:** Soleil-Babinet Polarisationskompensator, **PST:** polarisierender Strahlteiler (Glan-Laser-Prisma), **OBD:** optischer Brückendetektor, **LIV:** Lock-In-Verstärker, **C:** Computer, **CCD:** CCD-Kamera, **LCD:** LCD-Monitor, **S1-S13:** Spiegel **L1-L3:** Linsen, gestrichpunktete Linien: Kabelverbindungen. Eine 3D-Illustration dieses Aufbaus findet sich im Anh. B.

giert. Damit moduliert er die Laserpolarisation periodisch mit einer Frequenz von 20 kHz zwischen links- und rechtszirkular. Die Modulation wird als Triggersignal auf einen Lock-in Verstärker gegeben. Mit einer Linse wird der Pumpstrahl auf einen ca. $200\mu\text{m}$ großen Punkt auf der Probe fokussiert.

Unter einem kleinen Winkel wird der linear polarisierte Probestrahl ebenfalls durch die Linse auf den selben Punkt auf der Probe fokussiert. Für dieses Zweistrahlxperiment ist

es wichtig, daß beide Strahlen auf der Probe überlappen. Dies wird gewährleistet, indem man zunächst beide Strahlen durch ein winziges Loch (Durchmesser $\approx 200 - 300 \mu\text{m}$) im Probenhalter schickt und den Kaltfinger des Kryostaten danach vertikal in der Höhe verstellt um beide Strahlen auf eine Probe treffen zu lassen. Die Reflexion des Probestrahls von der Probe ist in etwa so einzustellen, daß sie im gleichen Abstand wie der einfallende Probestrahl zum Pumpstrahl nur auf der gegenüberliegenden Seite auf die Linse trifft. Ein unter einem Winkel von 22.5° in den Probestrahlangang eingebauter Soleil-Babinet Polarisationskompensator dient als $\lambda/2$ -Verzögerer dazu die Polarisationssebene um 45° zu drehen. Der so gedrehte Strahl wird durch einen polarisierenden Strahlteilerwürfel (Glan-Laser-Prisma) geschickt und so in eine horizontal und eine vertikal polarisierte Komponente zerlegt. Der Intensitätsunterschied der beiden Komponenten wird durch zwei Photodioden, die subtraktiv zusammengeschaltet sind, gemessen. Kommt es vor dem Soleil-Babinet zu keiner Drehung der Polarisationssebene des linearpolarisierten Probestrahls, so sollten beide Strahlen gleiche Intensität haben und damit sich das Signal des Detektors zu Null ergeben. Das Differenzsignal wird auf den Signaleingang des Lock-in Verstärkers gegeben. So wird sichergestellt, daß nur die durch die Pumpulse generierten Drehungen der Polarisationssebene des Probestrahls detektiert werden. Der Lock-in Verstärker, die Delay-Line und das Magnetfeld können über einen Computer angesteuert werden. Damit lassen sich folgende Experimente realisieren:

1. Detektion des Lock-in Signals unter schrittweiser Verstellung der Position des Retroreflektors mit der Delay-Line bei festem Magnetfeld.
2. Detektion des Lock-in Signals unter Variation des Magnetfeldes bei fester Stellung der Delay-Line.
3. Detektion des Lock-in Signals bei fester Stellung der Delay-Line und festem Magnetfeld unter Aufzeichnung der Laborzeit durch die rechnerinterne Uhr.

Die zur Ansteuerung der Geräte verwendete Software wurde in C++ unter der Borland C++ Builder Umgebung geschrieben.

3.3 Erzeugung niederdimensionaler Strukturen

Bettet man Material mit einer geringeren Bandlücke in Material höherer Bandlücke (Barriere), so entsteht ein Bereich, aus dem ein in das Leitungsband befördertes Elektron nicht entweichen kann. Die Halbleiterstruktur bildet somit ein Einschlußpotential für das Elektron. Ist der Bereich des Einschlußpotentials von der Größe der de-Broglie Wellenlänge des Elektrons im jeweiligen Material, so kommt es zu Quantisierungseffekten und es ergibt sich eine Energieniveaustruktur vergleichbar derer, die für ein Teilchen im Potentialkasten aus den Lehrbüchern zur Quantenmechanik bekannt ist (siehe z.B. [Sak93, Nol94a]).

Bei eindimensionalem Einschluß spricht man von einem Quantenfilm (quantum well), bei zweidimensionalem Einschluß von einem Quantendraht (quantum wire) und bei dreidimensionalem Einschluß von einem Quantenpunkt (quantum dot). Da die räumliche Ausdehnung dieser Strukturen im Nanometerbereich liegt, bezeichnet man sie auch als Nanostrukturen. Einhergehend mit der örtlichen Lokalisierung tritt eine Quantisierung der Energiezustände auf. Im Extremfall des Quantenpunktes (dreidimensionales Einschlußpotential) erhält man ähnlich wie bei Atomen eine diskrete Zustandsdichteverteilung. Aus diesem Grund werden Quantenpunkte in der Literatur oft auch als künstliche Atome bezeichnet.

Nulldimensionale Zustände lassen sich aber auch auf natürliche Weise in Festkörpern erzeugen. So können Elektronen, Löcher und Exzitonen lokal an Donatoren bzw. Akzeptoren gebunden werden. Abhängig von der Stärke der Lokalisation ist der nulldimensionale Charakter mehr oder weniger stark ausgeprägt.

Alle in dieser Arbeit analysierten Strukturen wurden mittels Molekularstrahlepitaxie (MBE⁷) hergestellt. Dabei werden ein oder mehrere durch Verdampfung erzeugte Teilchenstrahlen auf einem den Verdampfungsquellen (Effusionszellen) gegenüberliegenden Substrat abgeschieden. Die Steuerung von Parametern wie Substrattemperatur, Teilchenstromdauer, Materialverhältnis, Materialart usw. erlauben es qualitativ hochwertige und vielseitige Strukturen zu wachsen. Für eine weitere tiefer gehende Beschreibung dieser Wachstumsmethode sei auf die Literatur verwiesen (z.B. [Her96]).

⁷engl.: molecular beam epitaxy

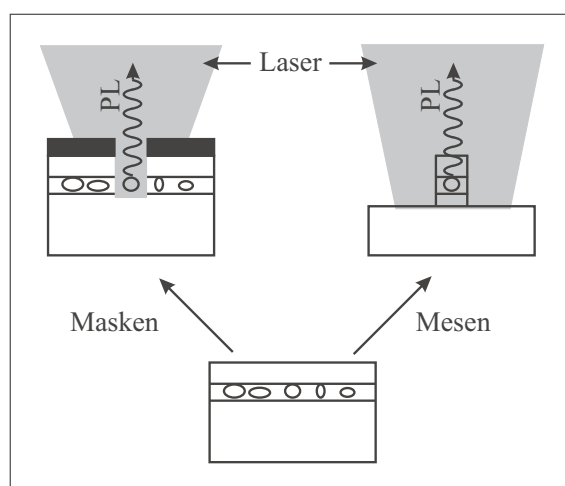


Abb. 3.3: Selektion einzelner Quantenpunkte aus einer Schicht von Quantenpunkten, mittels Lochmasken (links) bzw. Mesen (rechts).

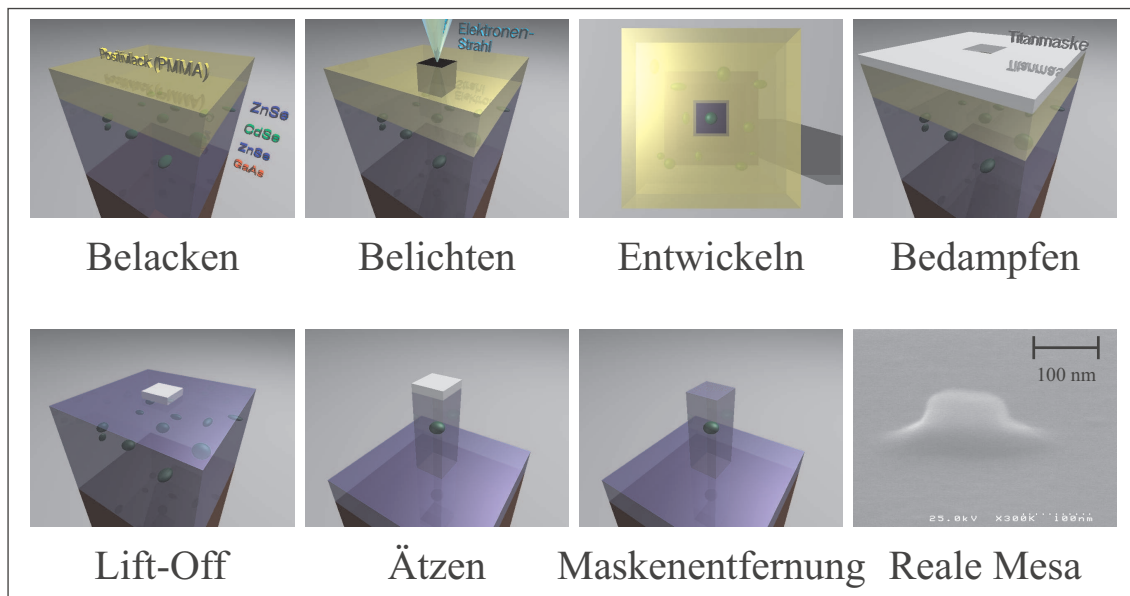


Abb. 3.4: Schematische Darstellung des technologischen Prozesses zur Erzeugung nanometergroßer Mesen.

3.4 Selektion einzelner Quantenpunkte

Die Dichte der mittels MBE-Verfahren hergestellten Quantenpunkte beträgt bei den in dieser Arbeit untersuchten Proben ca. $10^{10} - 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ (siehe z.B. Kap. 6). Daraus läßt sich ein mittlerer Abstand von ca. 35 nm - 100 nm zwischen einzelnen Quantenpunkten ableiten. Um einzelne Quantenpunkte optisch auflösen zu können gibt es im wesentlichen zwei Ansätze. Zum einen kann man anstatt des beugungsbegrenzten Fernfeldes (hier ist eine Ortsauflösung bis in den sub- μm -Bereich möglich) das beugungsfreie Nahfeld verwenden. Dabei erfolgen Anregung und Detektion über die eng zulaufende Spitze einer Glasfaser (Durchmesser $d < \lambda$). Zwar lassen sich so Ortsauflösungen bis zu 30 nm erreichen [Hes94, Sam95], allerdings stellt diese Methode auch hohe Anforderungen an die Stabilität des Aufbaus, d.h. Messungen sind schwer reproduzierbar, und zudem ist die Lichttransmission im allgemeinen sehr gering.

Zum anderen kann man Verfahren der Nanolithographie anwenden, die ortsselektiv den optischen Zugang zu nur wenigen oder sogar nur noch einzelnen Quantenpunkten ermöglichen. Dabei bieten sich zwei Möglichkeiten an. Einerseits kann man nicht erwünschte Quantenpunkte ausblenden, z.B. durch das Aufbringen einer Lochmaske, andererseits kann man diese auch komplett entfernen z.B. indem man sogenannte Mesen aus dem Material ätzt (siehe Abb. 3.3).

Zur Untersuchung der Dynamik ungekoppelter Quantenpunkte und zur Bestimmung der Quantenpunktdichte der in dieser Arbeit verwendeten Proben wurden die jeweiligen Proben mit Mesen strukturiert. Eine schematische Darstellung der Technologieschritte, die

zur Erzeugung solcher Mesen benötigt werden, ist in Abb. 3.4 gezeigt. Zu Beginn wird auf die Probenoberfläche ein gegen Elektronenstrahlen empfindlicher Positiv-Photolack (PMMA) durch Spinning gleichmäßig aufgebracht. Dort, wo später Mesen entstehen sollen, erfolgt die Belichtung des Lacks mit einem fokussierten Elektronenstrahl (Fokus < 4 nm). Bei der chemischen Entwicklung des Lacks lösen sich die belichteten Stellen von der Probenoberfläche - es entsteht ein Negativ der späteren Struktur. Auf dieses Negativ wird eine Metallschicht aufgedampft (hier 15 - 20 nm Titan). Nach dem sogenannten *Lift-off* Prozeß, bei dem der unbelichtete Photolack entfernt wird, verbleibt die Metallmaske nur an den Stellen, an denen die Mesen entstehen sollen. Dadurch dient die Metallschicht als Ätzmaske. Bei dem eigentlichen Ätzschritt wird die so präparierte Probe je nach gewünschter Äztiefe eine gewisse Zeit einer $K_2Cr_2O_7:HBr:H_2$ -Lösung ausgesetzt. An den Stellen, die durch die Metallmaske bedeckt sind, kann die Lösung nicht angreifen⁸, wodurch dort das vorhandene Halbleitermaterial erhalten bleibt. Abschließend wird bei einem organischen Reinigungsprozeß die Metallmaske entfernt. Mit diesem oder ähnlichen Verfahren lassen sich Mesen mit Kantenlängen bis hinunter zu 50 nm erzeugen. Werden solche Mesen mit einem gegenseitigen Abstand erzeugt, der größer als der Fokusbereich des Laserstrahls⁹ ist, so lassen sich auf diese Weise einzelne Quantenpunkte spektroskopieren.

⁸Genau genommen kann die Lösung dort nur von der Seite angreifen. Dadurch bedingt ist eine maximal erreichbare Äztiefe.

⁹Bei derartigen Experimenten betrug der Fokusbereich ca. 50 μm und der gegenseitige Mesenabstand 300 μm .

Kapitel 4

Polarisationsdynamik in CdSe/ZnSe Quantenpunkten

Eine Grundvoraussetzung für die Verwendung des Spins in der Informationsverarbeitung ist, daß ein einmal präparierter Spinzustand möglichst lange erhalten bleibt. Der Verlust von Spinpolarisation ist einer der kritischen Prozesse, die es gilt zu kontrollieren um eine funktionierende Spintronik zu realisieren. So konnte bisher gezeigt werden, daß z.B. in n-dotiertem GaAs Volumenmaterial die Spinrelaxationszeit der Elektronen 100 ns übersteigt [Kik99], während die Spinrelaxation von Exzitonen und Löchern in höherdimensionalen Strukturen im allgemeinen sehr kurz ist [Spi97, Ama97]. Dies trifft speziell bei den II-VI-Halbleitern mit breiter Bandlücke wie z.B. ZnSe zu. Bei ihnen resultiert die starke Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung selbst bei tiefen Temperaturen in extrem kurzen Spinrelaxationszeiten von der Größenordnung $t < 10$ ps [Oes01, Oes02]. Aufgrund der diskreten Zustandsdichte erwartet man bei Quantenpunkten eine starke Modifikation der Spinflipprozesse. In der Tat scheinen Messungen an epitaktisch [Got98, Fli01, Pai01] wie auch chemisch [Gup99] präparierten Quantenpunkten diese Vorhersage zu bestätigen. Dabei ergaben sich Spinrelaxationszeiten selbst für Exzitonen bis in den Nanosekundenbereich und somit deutlich länger als in Volumenmaterial oder Quantenfilmstrukturen. Dies ist in Übereinstimmung mit ortsaufgelösten Photolumineszenz Messungen an Einzelquantenpunkten bei denen eine Spinrelaxationszeit von einigen Nanosekunden aus zeitintegrierten Spektren abgeschätzt wurde [Gam96, Kul00].

All diese Messungen wurden jedoch unter unterschiedlichen Anregungsbedingungen durchgeführt. Gotoh *et al.* [Got98] studierte die Polarisationsdynamik der Exzitonrekombination in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Quantenpunkten bei nicht-resonanter Anregung mit einer Überschubenergie von ca. 100meV. Flissikowski *et al.* [Fli01] hingegen verwendeten eine Überschubenergie, die in etwa der Energie eines LO-Phonons entspricht um einen einzelnen II-VI-Quantenpunkt zu adressieren. Um sicherzustellen, daß keine Relaxationsprozesse die Spindynamik beeinflussen führten Paillard *et al.* [Pai01] ihre Messungen an InAs/GaAs Quantenpunkten unter strikt resonanten Bedingungen durch. Bis dahin stand keine Studie zur Verfügung, in der der Einfluß der Überschubenergie auf die Polarisationsdynamik

und damit die zeitliche Änderung des Spinzustands systematisch untersucht wurde. Dies allerdings ist ein besonders wichtiger Aspekt, z.B. bei der elektrischen Injektion von Elektronen in eine Quantenpunktheterostruktur, bei der die Elektronen ihre Überschussenergie abgeben müssen, bevor sie den Quantenpunktgrundzustand besetzen können.

In diesem Kapitel wird zunächst die Polarisationsdynamik in CdSe/ZnSe selbstorganisierten Quantenpunkten unter systematischer Veränderung der Anregungsbedingungen analysiert. Trotz der in diesem System vorliegenden starken Austauschwechselwirkung [Kul99] kann gezeigt werden, daß keine Depolarisation auf der Zeitskala des betrachteten Zeitintervalls stattfindet, sofern eine strikt resonante Anregung der Exzitoneigenzustände in den Quantenpunkten erfolgt. Durch systematische Variation der Anregungsenergie E_A von strikt resonant (d.h. Anregungsenergie $E_A =$ Detektionsenergie E_D) bis nichtresonant ($E_A > E_D$) wird die Rolle der Überschussenergie auf die Polarisationsdynamik bei der Rekombination von nulldimensionalen Exzitonen im Quantenpunktensemble studiert. Desweiteren wird aufgezeigt, welche Auswirkungen auf die Polarisationsdynamik sich durch Änderung der Eigenzustandssymmetrie durch ein Magnetfeld und durch Wechselwirkung mit lokalen magnetischen Momenten ergeben (Kap. 5).

4.1 Nachweis der Nulldimensionalität

Ändert man die Anregungsbedingungen von nichtresonant zu resonant, so wandelt sich die spektrale Form der Quantenpunktlumineszenz stark (Abb. 4.1a)-c)). Bei Anregung im

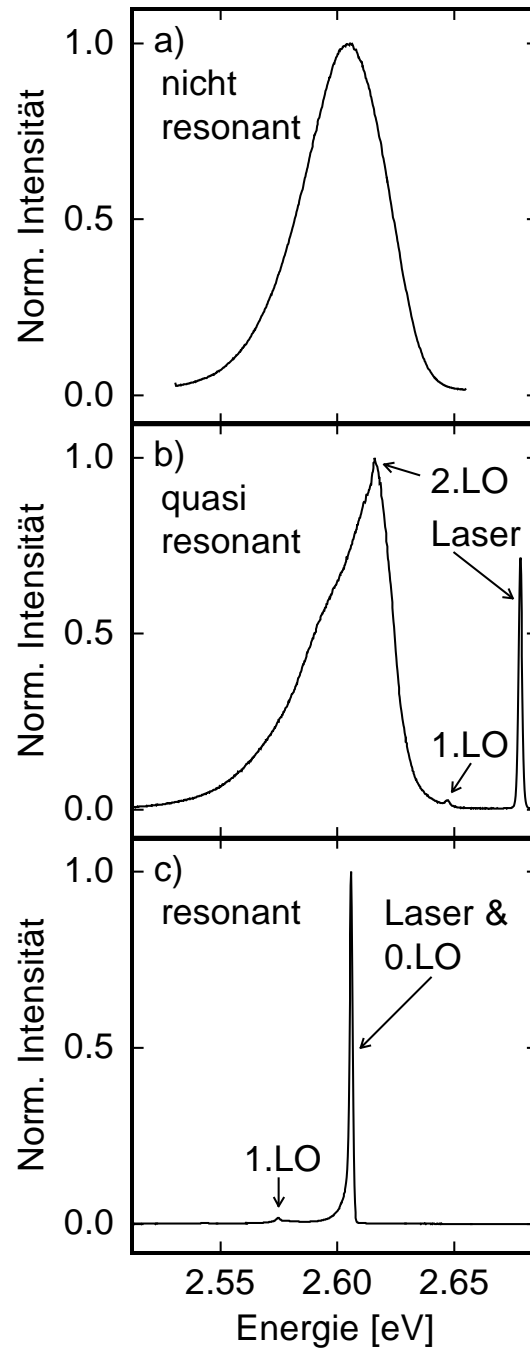


Abb. 4.1: Quantenpunktlumineszenz der Probe S0863 unter verschiedenen Anregungsbedingungen. **a)** Nichtresonant $E_{Laser} = 2.896\text{eV}$ **b)** Quasiresonant $E_{Laser} = 2.635\text{eV}$ und **c)** Resonant $E_{Laser} = 2.605\text{eV}$.

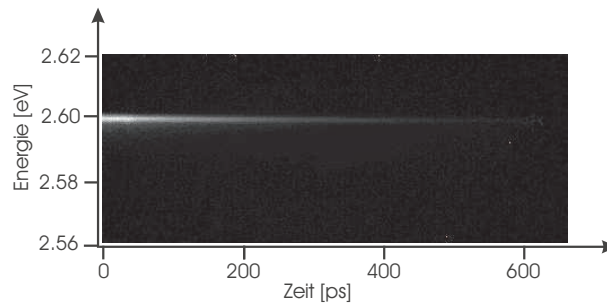


Abb. 4.2: Konturplot des transienten PL-Signals unter strikt resonanten Bedingungen. Weiss: hohe PL-Intensität, Schwarz: geringe PL-Intensität.

Barrierematerial (hier ZnSe) ergibt sich das typische inhomogen verbreiterte Spektrum eines Quantenpunktensembles, mit einer Halbwertsbreite von 35meV bei der Probe S0863 (siehe Abb. 4.1a)). Bei quasiresonanter Anregung des Quantenpunktensembles (d.h. bei Anregung mit einer Energie zwischen der Energie des Quantenpunktgrundzustands und der Energie der Bandlücke der Barriere - $E_{g,ZnSe} = 2.82$ eV bei $T = 10$ K [Mad01]) tritt mit abnehmendem Abstand zwischen Grundzustandsenergie und Laserenergie eine zunehmend deutlicher werdende Verformung des PL-Spektrums auf (siehe Abb.4.1b)). Bei den in Abb. 4.1b) sichtbaren Überhöhungen des PL-Signals handelt es sich um sogenannte LO-Phononen-Replika. Diese selektive Besetzung entsteht dadurch, daß die Relaxation in niederenergetischere Zustände über die Abgabe von LO-Phononen besonders schnell (< 1 ps) stattfindet und somit deutlich schneller als andere Relaxationsprozesse abläuft. Die Energie eines LO-Phonons ist materialspezifisch und beträgt für CdSe bzw. ZnSe 26.5meV bzw. 31.6meV [Mad01, Mel01]. Der in Abb. 4.1 zu ermittelnde Energieunterschied zwischen den LO-Phonon-Replika und der Laserlinie liegt mit 31.1 meV in eben diesem Bereich. Aufgrund von Fluktuationen in der Zusammensetzung variiert die Phononenenergie von Quantenpunkt zu Quantenpunkt. Im Fall der resonanten Anregung der Quantenpunktgrundzustände erreicht die Selektion ihr Maximum. Hier werden im wesentlichen nur noch die Quantenpunkte mit Exzitonen besetzt, die eine der Laserenergie entsprechende Grundzustandsenergie besitzen. Zwar sind auch hier LO-Phonon-Replika sichtbar, jedoch weisen diese eine um mindestens eine Größenordnung geringere Intensität auf als die sogenannte Nullphononlinie.

Für die Untersuchung der Nullphononlinie ergibt sich bei zeitintegrierenden Methoden ein Problem. Im allgemeinen ist das Streulicht des Lasers um mehrere Größenordnungen intensiver als die Lumineszenz der Nullphononlinie. Zwar läßt sich durch die Verwendung eines Linearpolarisators die Intensität des Laserstreulichts stark verringern, jedoch büßt man die Fähigkeit ein, die vollständige Information über den Polarisationszustand des betrachteten Systems zu erhalten. Um dies dennoch mittels der Photolumineszenzspektroskopie direkt zu erzielen, ist es notwendig eine zeitaufgelöste Technik anzuwenden. Um dieses Ziel zu erreichen wurde ein frequenzverdoppelter Titan-Saphir-Laser in Verbindung mit einer Streak-Kamera, wie es in Abschn. 3.1 skizziert ist, verwendet. Damit

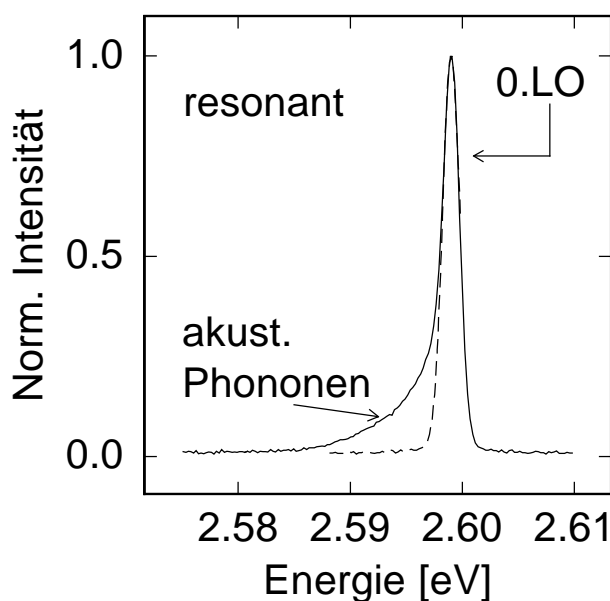


Abb. 4.3: Zeitintegriertes Spektrum aus den Daten der Abb. 4.2. Durchgezogene Linie: Zeitintegriertes PL-Signal, gestrichelte Linie: Andeutung der symmetrischen Linienform (Erhalten durch Spiegelung der hochenergetischen Hälfte des Signals).

ist es möglich den ca. 1.5ps dauernden Laserpuls aus dem zeitlichen Beobachtungsfenster auszublenden.

In Abb. 4.2 ist dies geschehen, und das transiente PL-Signal in einer Graustufengraphik dargestellt. Dabei ist die Energieskala entlang der kurzen Achse, die Zeitskala entlang der langen Achse und die Intensität in Graustufen von weiß (hohe Intensität) bis schwarz (niedrige Intensität) aufgetragen. Über das gesamte betrachtete Zeitfenster ist keine spektrale Verschiebung des PL-Signals zu beobachten. Weitere gleichermaßen durchgeführte Messungen zeigen, daß dies nicht nur für Quantenpunkte gilt, die auf der niederenergetischen Seite des PL-Spektrums emittieren, sondern auch für jene, auf der Hochenergieseite. Bedenkt man, daß es sich bei den untersuchten Strukturen um Cd-reiche Nanoinseln handelt, zeigt dies, daß in der Tat nulldimensionale Exzitonzustände detektiert werden und kein Transfer zwischen den Inseln stattfindet [Bac97]. Das zeitlich integrierte Spektrum (Abb. 4.3) verdeutlicht dies ebenfalls, da die Linienbreite des Signals im wesentlichen der Linienbreite des Lasers entspricht¹. Die Existenz nulldimensionaler Zustände läßt sich zudem durch hoch orts aufgelöste PL Messungen [Küm98, Seu01] bestätigen (siehe auch Abb. 6.1).

¹Die leicht asymmetrische Form entsteht durch phonon-assistierte Rekombination (akustische Phononen) [Gou02, Gou04].

4.2 Strikt resonante Dynamik

Nachdem der nulldimensionale Charakter des Systems nachgewiesen wurde, soll nun auf die Dynamik unter strikt resonanten Bedingungen eingegangen werden. Für die in Abb. 4.4 gezeigten Daten wurde die Anregungsenergie auf $E_L = 2.599$ eV eingestellt. Damit ist das Lichtfeld des Lasers resonant mit den Grundzuständen der Exzitonen in den Quantenpunkten. Die Anregung erfolgte sowohl mit linear (Abb. 4.4 oben) als auch mit zirkular polarisiertem (Abb. 4.4 unten) Licht. Die zeitliche Abnahme der PL-Intensität erfolgt mit einer Zeitkonstanten von ca. 200 ps. Im Polarisationsgrad der PL zum Zeitpunkt $t = 0$ ps unterscheiden sich die beiden Anregungsbedingungen deutlich. Während im Fall der zirkular polarisierten Anregung der Polarisationsgrad nahezu null ist, ergibt sich bei linear polarisierter Anregung ein sehr hoher und nahezu zeitlich konstanter Polarisationsgrad $\rho_Y \approx 0.8$. Definiert ist der Polarisationsgrad über die Intensitäten I^+ und I^- bzw. I^X und I^Y der links und rechts zirkular bzw. vertikal und horizontal linear polarisierten Komponenten der Photolumineszenz wie folgt:

$$\rho_\alpha = \frac{I^\alpha - I^\beta}{I^\alpha + I^\beta} \quad \text{mit} \quad \alpha, \beta = +, -, X, Y \quad (4.1)$$

Ähnliche Messungen an einer als Referenz dienenden Quantenfilmprobe ergaben für beide Polarisationsarten hingegen eine unterhalb der Zeitauflösung (20 ps) liegende Depolarisation des PL-Signals. Dies ist in guter Übereinstimmung mit Daten, die an ZnSe/ZnMgSSe Quantenfilmen erhalten wurden [Oes01]. Hierbei ist es wichtig festzustellen, daß sich das aufgezeigte Verhalten nicht ändert, wenn man die Anregungsdichte zwischen 0.5 W/cm^2 und 100 W/cm^2 oder die Anregungs-/Detektionsenergie variiert, solange man resonant mit den Quantenpunktgrundzuständen bleibt.

Von CdSe/ZnSe Quantenpunkten ist bekannt, daß sich die Eigenzustände der Schwerlochexzitonen aufgrund der Quantenpunktasymmetrie [Kul99, Pul99] oder einer Grenzflächenanisotropie [Dzh97b, Dzh98] oft als eine lineare Superposition der $J_z = |\pm 1\rangle$ bzw. $J_z = |\pm 2\rangle$ Zustände darstellen lassen (siehe Abschn. 2.3). Daraus folgt, daß durch zirkular polarisiertes Licht eine kohärente Überlagerung der Eigenzustände erzeugt wird, wohingegen durch linear polarisiertes Licht die Exzitonen in ihren Eigenzuständen generiert werden. Aus der Beobachtung, daß der lineare Polarisationsgrad geringer als 1 ist, ist zu schließen, daß ein Teil der Quantenpunkte Eigenzustände mit anderer Symmetrie besitzt. Bei den vorliegenden Ensemblemessungen ist die Aufspaltung durch die Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung (δ_1) von Quantenpunkt zu Quantenpunkt verschieden. Damit ergibt sich im Fall der zirkular polarisierten Anregung für jeden Quantenpunkt eine andere Frequenz der Quantenschwebung² zwischen den Zuständen $|+1\rangle$ und $|-1\rangle$. Das Summen-

²Wird eine kohärente Superposition ($|X\rangle \pm |Y\rangle$) zweier Zustände $|X\rangle$ und $|Y\rangle$ eines quantenmechanischen Systems erzeugt, so führt eine energetische Aufspaltung δ_1 zwischen $|X\rangle$ und $|Y\rangle$ durch den

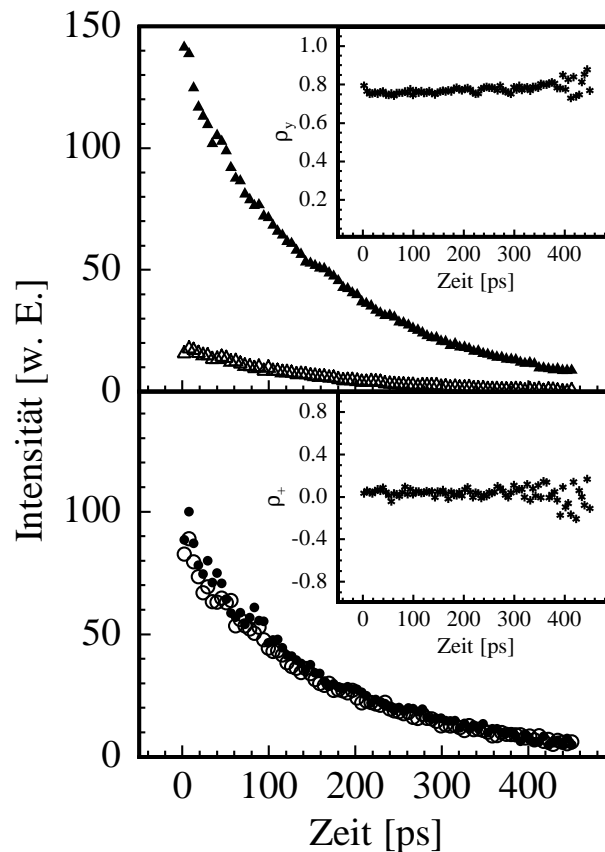


Abb. 4.4: Zeitliche Abnahme des PL-Signals nach Anregung mit linear (*oben*) und zirkular polarisiertem Licht (*unten*). Volle Symbole bezeichnen die Polarisationskomponenten die der jeweiligen Polarisation des Lasers entsprechen und offene die entgegengesetzten Komponenten. In den Bildeinschüben ist jeweils der zeitliche Verlauf des entsprechenden Polarisationsgrades aufgetragen.

signal der verschiedenen Spinpräzessionen führt zu einem verschwindenden Polarisationsgrad, wie es bei endlicher Zeitauflösung zu erwarten ist [Nic98].

Es ist zu betonen, daß die Beobachtung eines nicht geringer werdenden linearen Polarisationsgrades die Erhaltung der kohärenten Überlagerung der beiden Zustände $|\pm 1\rangle$ bedeutet. Nach Paillard *et al.* [Pai01] ist daraus zu schließen, daß sich weder der Spinzustand des Elektrons noch des Lochs während des beobachteten Zeitintervalls ändert.

4.3 Nichtresonante Anregung

Es wird vermutet, daß es nur unter den vorgestellten strikt resonanten Bedingungen möglich ist, die intrinsische Polarisationsdynamik zu beobachten [Pai01]. Im Falle nicht-

Zeitentwicklungsoperator zu einer sogenannten Quantenschwebung (oder engl.: quantum beats) zwischen den Zuständen $(|X\rangle + |Y\rangle)$ und $(|X\rangle - |Y\rangle)$ bzw. $(|X\rangle + i|Y\rangle)$ und $(|X\rangle - i|Y\rangle)$ mit einer zu δ_1 proportionalen Frequenz [Fli01, Tar04b].

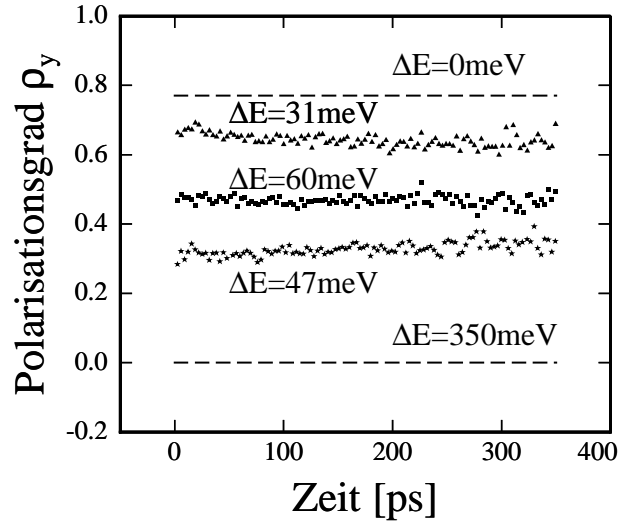


Abb. 4.5: Zeitlicher Verlauf des Polarisationsgrades für drei verschiedene Überschussenergien $\Delta E = 31 \text{ meV}$ (Dreiecke), 47 meV (Sternchen) und 60 meV (Quadrate). Zum Vergleich sind die Polarisationsgrade zum Zeitpunkt $t = 0 \text{ ps}$ bei $\Delta E = 0 \text{ meV}$ und $\Delta E = 350 \text{ meV}$ angedeutet (gestrichelte Linien).

resonanter Anregung könnten Relaxation und Streuung an anderen Ladungsträgern sowie die Anregung von Zuständen mit anderer Symmetrie und damit anderen Auswahlregeln die Entwicklung des Polarisationsgrades der Emission aus dem Quantenpunktgrundzustand beeinflussen. Bislang fehlte eine systematische Untersuchung der Auswirkung einer nichtresonanter Anregung auf die Polarisationsdynamik. Zu diesem Zweck wurde eine Art zeitaufgelöste Photolumineszenzanregungsspektroskopie (PLE³) durchgeführt. Dabei wurde die Detektionsenergie (hier $E_{det} = 2.599 \text{ eV}$) konstant gehalten und die Überschussenergie durch systematische Änderung der Energie des Laserpulses variiert.

In Abb. 4.5 ist der zeitliche Verlauf des Polarisationsgrades bei Anregung mit linear polarisiertem Licht (ρ_Y) für die Überschussenergien $\Delta E = 31 \text{ meV}$, 47 meV und 60 meV dargestellt. Zum Vergleich sind die Polarisationsgrade zum Zeitpunkt $t = 0 \text{ ps}$ bei strikt resonanter Anregung ($\Delta E = 0 \text{ meV}$) und Anregung oberhalb der Barriere ($\Delta E = 350 \text{ meV}$) angedeutet. Es ist festzustellen, daß der Polarisationsgrad unabhängig von der Überschussenergie einen zeitlich konstanten Verlauf aufweist. Dies bedeutet, daß, sobald die Exzitonen den Grundzustand des jeweiligen Quantenpunktes besetzten, keine weitere Änderung des Polarisationszustandes des Ensembles innerhalb des beobachteten Zeitfensters erfolgt. Vergleicht man die Polarisationsgrade bei Anregung mit einer gewissen Überschussenergie mit dem Polarisationsgrad bei strikt resonanten Bedingungen, so ist festzustellen, daß diese immer geringer sind. Bei Anregung oberhalb der Barriere tendiert die Polarisation sogar gegen Null. Dies bedeutet, daß die durch den Laser auf die Elektron-Loch-Paare übertragene Polarisationsinformation nach der Relaxation in den Grundzustand komplett

³PLE steht für photoluminescence excitation.

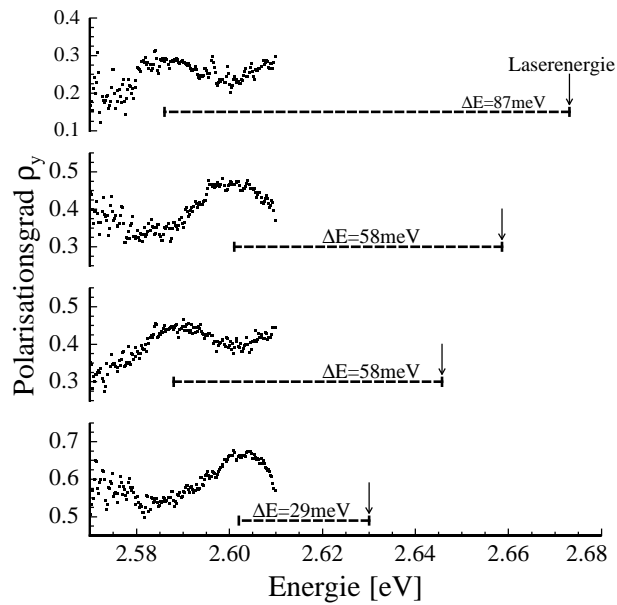


Abb. 4.6: Der lineare Polarisationsgrad ρ_y ist für vier verschiedene Anregungsenergien (angedeutet durch die Pfeile) gegen die PL-Energie aufgetragen. ΔE gibt jeweils die Überschussenergie zwischen der Anregungsenergie und dem Maximum des Polarisationsgrads an.

verlorengegangen ist⁴.

Interessanterweise ändert sich der Polarisationsgrad nicht linear mit der Überschussenergie. Während bei $\Delta E = 47$ meV der Polarisationsgrad nur 0.3 beträgt, ist er beim Einstellen einer Überschussenergie von $\Delta E = 60$ meV deutlich höher. Um den Ursprung dieses Verhaltens zu ergründen, ist in Abb. 4.6 der Polarisationsgrad gegen die PL-Energie für verschiedene Anregungsenergien aufgetragen. Um hauptsächlich den Polarisationsgrad der aus den Quantenpunktgrundzuständen emittierten PL zu diskutieren, sollen nur PL-Energien $E \leq 2.61$ eV betrachtet werden. Im allgemeinen verringert sich der Polarisationsgrad mit zunehmender Überschussenergie. Jedoch treten Resonanzen im Polarisationsgrad bei bestimmten PL-Energien auf. Diese Resonanzen besitzen einen gegenseitigen energetischen Abstand von ca. 29 meV und einen energetischen Abstand von der Anregungsenergie, der einem ganzzahligen Vielfachen von 29 meV entspricht. Dies zeigt deutlich, daß durch die Erzeugung von Exzitonen mit wohl definierten Überschussenergien über der Quantenpunktgrundzustandsenergie der Verlust an Polarisationsinformation minimiert werden kann.

Bedenkt man, daß die Energie von LO-Phononen in CdSe mit 26.5 meV und in ZnSe mit 31.6 meV angegeben wird [Fli01, Mad01]⁵, so legt das die Vermutung nahe, daß die Resonanzen im Polarisationsgrad in Verbindung mit der Relaxation der Ladungsträger in den jeweiligen Quantenpunktgrundzustand über LO-Phonon-Kaskaden stehen. Entspricht die

⁴Bei Anregung mit zirkular polarisiertem Licht gilt für den Polarisationsgrad $\rho_{+/-}(t = 0ps) \approx 0$, unabhängig von der Überschussenergie.

⁵siehe auch Abschn. 4.1

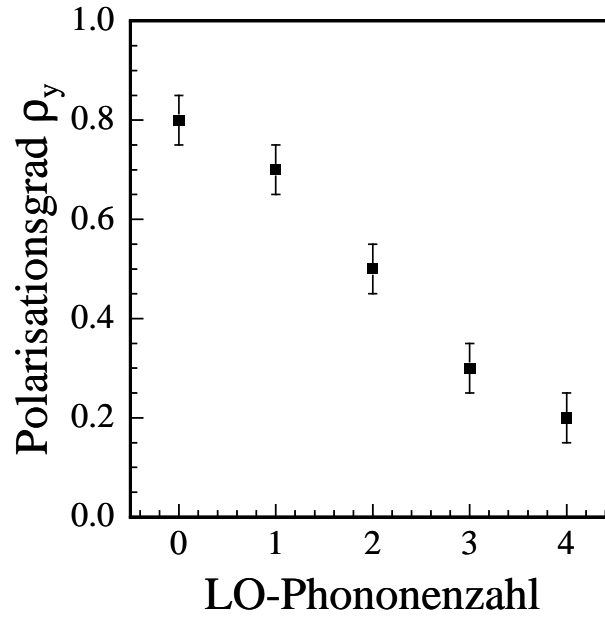


Abb. 4.7: Aufgetragen ist der lineare Polarisationsgrad ρ_y in der Mitte der jeweiligen LO-Phonon-Resonanz aus Abb. 4.6 gegen die Anzahl an LO-Phononen, die benötigt werden um den Quantenpunktgrundzustand zu erreichen.

Überschußenergie einem ganzzahlig Vielfachen der LO-Phononenergie, so wird eine sehr schnelle Relaxation in den Grundzustand erwartet. Die Breite der LO-Phonon-Resonanzen wird mit der Zahl der am Relaxationsprozeß beteiligten LO-Phononen geringfügig größer und ist höchstwahrscheinlich durch Fluktuationen in der Zusammensetzung zwischen den einzelnen Quantenpunkten bestimmt. Dies wiederum führt zu einer gewissen Verteilung von Phononenergien [Fli01].

Interessant ist es nun den Polarisationsgrad an den Maxima miteinander zu vergleichen. Dazu ist in Abb. 4.7 der Polarisationsgrad gegen die entsprechende Zahl der am Relaxationsprozeß teilnehmenden LO-Phononen aufgetragen. Während unter strikt resonanten Bedingungen (0 LO-Phononen) der Polarisationsgrad nahezu 0.8 erreicht, fällt er mit steigender Zahl an LO-Phononen monoton ab und erreicht 0.2, wenn die Exzitonen vier LO-Phononen benötigen um den Quantenpunktgrundzustand zu erreichen. Trotzdem bleibt festzustellen, daß selbst bei Anregung mit deutlicher Überschußenergie immer noch ein signifikanter Anteil der Polarisationsinformation erhalten bleibt.

Im Folgenden sollen mögliche Gründe für die Abnahme der Polarisation mit steigender Überschußenergie diskutiert werden. Zunächst sei zu beachten, daß die Energieaufspaltung zwischen Leicht- und Schwerlochexzitonen in der untersuchten Struktur ca. 100 meV beträgt [Gin99] und das Splitt-off-Band energetisch noch weiter entfernt liegt [LB98]. Damit kann ein Einfluß dieser zusätzlichen Zweige des Valenzbandes zumindest für Überschußenergien geringer als 100meV vernachlässigt werden. Desweiteren scheint aus PLE-Messungen an einzelnen CdSe/ZnSe-Quantenpunkten [Fli01, Ram02] zu folgen, daß zumindest für kleine Überschußenergien (z.B. bis zur ersten LO-Phonon-Resonanz) die Be-

setzung ausgedehnter Zustände unbedeutend ist.

Um der generellen Abnahme des Polarisationsgrades mit zunehmender Überschußenergie Rechnung zu tragen muß beides, die LO-Phononstreuung sowie die Anregung von Quantenpunktzuständen bzw. Überlagerungen von Quantenpunktzuständen mit anderer Symmetrie und somit anderen Auswahlregeln, berücksichtigt werden. Obwohl hier nicht zwischen den einzelnen Mechanismen unterschieden werden kann, ist die Tatsache, daß durch Einstellen der Überschußenergie der Polarisationsgrad maximiert werden kann, von besonderer Bedeutung. Für diese Anregungsenergien ist die Relaxationszeit der Ladungsträger aufgrund der effizienten Wechselwirkung mit den LO-Phononen deutlich verkürzt. Diese verkürzte Relaxationszeit steht in Verbindung mit einem geringeren Verlust an Polarisationsinformation. Daraus ist zu schließen, daß im Falle nichtresonanter Anregung zumindest ein Teil des Polarisationsverlustes durch den Relaxationsprozeß bedingt ist. D.h. der Polarisationsverlust kann nicht allein durch die Annahme verschiedener Auswahlregeln erklärt werden. Zudem ist zu bemerken, daß die Verbreiterung der LO-Phonon-Resonanzen ebenfalls nicht die Abnahme kompensieren kann.

Kapitel 5

Bestimmung der T_1 -Zeit

Aus den bisher gezeigten Daten ist ersichtlich, daß die Spinrelaxation zwischen den aufgrund der Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung aufgespaltenen Grundzuständen der Exzitonen in den Quantenpunkten auf einer Zeitskala abläuft, die die Elektron-Loch-Rekombination deutlich übersteigt. Unter Verwendung eines Ratengleichungsmodells werden in diesem Kapitel absolute Werte für T_1 aus den Daten extrahiert.

Da durch die Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung und der geringen Symmetrie der Quantenpunkte sich die Grundzustände in den untersuchten Quantenpunkten zu Linearkombinationen der beiden Spinzustände $|\pm 1\rangle$ ergeben, stellt sich die Frage, inwiefern die Symmetrie des Systems sich auf die Spin-/Polarisationsdynamik, d.h. die T_1 -Zeit auswirkt. Durch Anlegen eines externen Magnetfeldes in Faraday Geometrie läßt sich die Systemsymmetrie auf elegante Weise ändern und so die Dynamik in den Spinzuständen $|\pm 1\rangle$ analysieren (siehe Abschn. 2.3.1).

5.1 Ein Drei-Niveau-System

In Quantenpunkten läßt sich die Dynamik der Exzitonen unter Vernachlässigung der dunklen und höherenergetischen Zustände mit einem 3-Niveau-System beschreiben (siehe z.B. auch [Tsi02, Mać03b]). Die Einbeziehung der dunklen Zustände bedarf des Spinflips nur eines Teilchens (Elektron oder Loch). Da die Exzitonen wieder zu einem hellen Zustand zurückkehren müssen, um zu einer depolarisierten PL beizutragen, handelt es sich hierbei um einen Prozeß höherer Ordnung. Die Relaxationszeit bestimmt sich in diesem Fall durch die längere der beiden Spinflipzeiten. Nach E. Tsitsishvili *et al.* kann damit nicht die Abhängigkeit der Spinrelaxationszeit von Quantenpunktmaterial und lateraler Quantenpunktgröße beschrieben werden [Tsi03].

In Abb. 5.1 ist ein solches 3-Niveau-System schematisch dargestellt. Zudem sind die dort möglichen dynamischen Prozesse durch Pfeile angedeutet. Einerseits soll Rekombination,

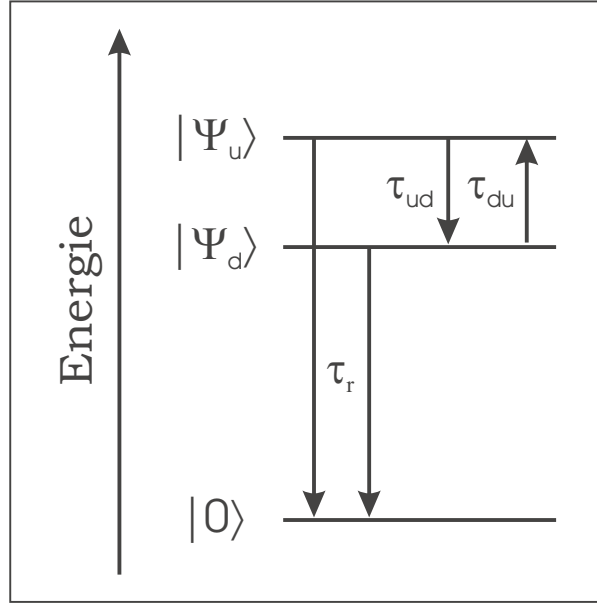


Abb. 5.1: Schema eines Drei-Niveau-Systems. Die Pfeile deuten die berücksichtigten Prozesse, Rekombination ins Grundzustandsniveau $|0\rangle$, Spinflip vom niederenergetischen $|\Psi_d\rangle$ zum höherenergetischen $|\Psi_u\rangle$ und vom höherenergetischen zum niederenergetischen Niveau, mit den entsprechenden Zeitkonstanten τ_r , τ_{du} und τ_{ud} . an

d.h. Übergang von einem der beiden oberen Niveaus $|\Psi_{u/d}\rangle$ ins Grundzustandsniveau $|0\rangle$ mit der Zeitkonstanten τ_r zugelassen sein. Andererseits kann es zu einer Besetzungsumverteilung zwischen den beiden Niveaus $|\Psi_u\rangle$ und $|\Psi_d\rangle$ kommen. Dabei kann die Umverteilung abhängig von der Richtung sein und somit im allgemeinen $\tau_{du} \neq \tau_{ud}$ gelten. Desweiteren seien die folgenden Betrachtungen auf den Fall beschränkt, in dem jeder Quantenpunkt mit maximal einem Exziton besetzt ist. Experimentell wurde dies erreicht, indem die Anregungsdichte so gewählt wurde, daß keine Sättigung des Quantenpunktsystems auftrat. Zur mathematischen Beschreibung der Dynamik soll ein Ratengleichungssystem dienen:

$$\begin{aligned} \dot{n}_u(t) &= -n_u(t) \left(\frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_{ud}} \right) + \frac{n_d(t)}{\tau_{du}} \\ \dot{n}_d(t) &= -n_d(t) \left(\frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_{du}} \right) + \frac{n_u(t)}{\tau_{ud}} \end{aligned} \quad (5.1)$$

$n_u(t)$, $\dot{n}_u(t)$, $n_d(t)$, und $\dot{n}_d(t)$ bezeichnen dabei die jeweilige Besetzungszahl¹ und deren zeitliche Änderung zu dem Zeitpunkt t der beiden Niveaus $|\Psi_u\rangle$ und $|\Psi_d\rangle$. Mit den Anfangsbedingungen

¹Mit Besetzungszahl ist genau genommen die über das Ensemble gemittelte Wahrscheinlichkeit für die Besetzung der Zustände $|\Psi_u\rangle$ bzw. $|\Psi_d\rangle$ gemeint.

$$n_d(t=0) = n_d^0 \quad \text{und} \quad n_u(t=0) = n_u^0 \quad (5.2)$$

ergibt sich die Lösung dieses gekoppelten Differentialgleichungssystems zu:

$$\begin{aligned} n_u(t) &= \frac{e^{-t\left(\frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_{ud}} + \frac{1}{\tau_{du}}\right)}}{\tau_{du} + \tau_{ud}} \left(n_u^0 \tau_{du} + \tau_{ud} \left((n_d^0 + n_u^0) e^{t\left(\frac{1}{\tau_{du}} + \frac{1}{\tau_{ud}}\right)} - n_d^0 \right) \right) \\ n_d(t) &= \frac{e^{-t\left(\frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_{ud}} + \frac{1}{\tau_{du}}\right)}}{\tau_{du} + \tau_{ud}} \left(n_d^0 \tau_{ud} + \tau_{du} \left((n_d^0 + n_u^0) e^{t\left(\frac{1}{\tau_{du}} + \frac{1}{\tau_{ud}}\right)} - n_u^0 \right) \right) \end{aligned} \quad (5.3)$$

Im Grenzfall langer Spinflipzeiten (d.h. τ_{XY} und $\tau_{YX} \gg \tau_r$) vereinfacht sich diese Lösung zu:

$$\begin{aligned} n_u(t) &= n_u^0 e^{-\frac{t}{\tau_r}} \\ n_d(t) &= n_d^0 e^{-\frac{t}{\tau_r}}. \end{aligned} \quad (5.4)$$

Physikalisch entspricht dies einem Fall, indem die beiden Niveaus $|u\rangle$ und $|d\rangle$ voneinander entkoppelt sind. In einem solchen System entspräche die beobachtete Zerfallszeit der reinen Rekombinationszeit τ_r . Sind jedoch τ_{ud} und τ_{du} gegenüber τ_r nicht vernachlässigbar, so weichen die beobachteten Zerfälle auf kurzen Zeitskalen ($t < \tau_{ud(du)}$) davon ab. Anschaulich stellen die Spinflipprozesse weitere Zerfallskanäle aus dem jeweiligen Niveau dar.

Aus der Lösung des Ratengleichungssystems läßt sich die zeitliche Veränderung des Polarisationsgrades $\rho(t)$ unter Berücksichtigung der Parameter τ_{ud} , τ_{du} , τ_r , n_u^0 und n_d^0 berechnen. Der Polarisationsgrad ist gegeben durch

$$\rho(t) = \frac{n_d(t) - n_u(t)}{n_d(t) + n_u(t)}. \quad (5.5)$$

Daraus und unter Berücksichtigung der Gleichungen 5.1 ist ersichtlich, daß der Polarisationsgrad unabhängig von der Rekombinationszeit τ_r ist. Allerdings gilt dies nur insofern τ_r für beide Niveaus gleich ist.

In Abb. 5.2 ist die Lösung des Ratengleichungssystems für verschiedenen Anfangsbedingungen graphisch dargestellt. Folgende Parameter wurden dafür gewählt:

Tab. 5.1: Parameter die zur Berechnung der Graphen in Abb. 5.2 verwendet wurden.

Teilbild	a) und b)	c) und d)
τ_r	300 ps	300ps
τ_{ud}	τ_r	$10 \cdot \tau_r$
τ_{du}	$\tau_{ud}, 2 \cdot \tau_{ud}, 10000 \cdot \tau_{ud}$	$\tau_{ud}, 2 \cdot \tau_{ud}, 10000 \cdot \tau_{ud}$
$\rho(t=0)$	± 0.5	± 0.5

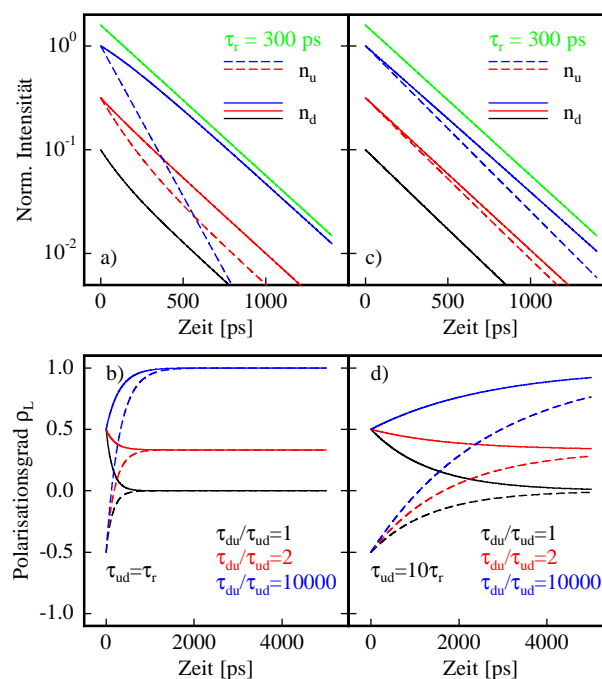


Abb. 5.2: Graphische Darstellung der Lösung des Ratengleichungssystems (Glg. 5.1) für ausgewählte Parameter (siehe Tab. 5.1). In a) und c) ist jeweils die zeitliche Entwicklung der Besetzung des Niveaus $|u\rangle$ nach einer Anfangsbesetzung von $n_u^0 : n_d^0 = 3 : 1$ (gestrichelte Linien) und des Niveaus $|d\rangle$ nach einer Anfangsbesetzung von $n_u^0 : n_d^0 = 1 : 3$ (durchgezogene Linien) gezeigt. In b) und d) ist entsprechend die Polarisationsdynamik dargestellt.

Der Abb. 5.2 ist zu entnehmen, daß der Gleichgewichtspolarisationsgrad durch das Verhältnis τ_{du}/τ_{ud} bestimmt wird. Auf welcher Zeitskala sich dieser einstellt, hängt dabei vom absoluten Wert der kürzeren der beiden Relaxationszeiten (hier τ_{ud}) ab.

5.2 Spinflipzeiten bei nichtresonanter Anregung ohne Magnetfeld

Dies läßt sich nun auf das untersuchte System, bestehend aus den Zuständen $|\Psi_u\rangle \rightarrow |X\rangle$, $|\Psi_d\rangle \rightarrow |Y\rangle$ und $|0\rangle$ anwenden. Aus Abb. 4.4 und Abb. 4.5 ist zu entnehmen, daß der lineare Polarisationsgrad $\rho_L(t)$ (hier Anregung mit π^Y linear polarisiertem Licht, d.h. $\rho_L = \rho_Y$) sich in dem beobachteten Zeitintervall nahezu nicht ändert. D.h., es gilt in erster Näherung:

$$\rho_L(t) = \textit{konst.} = \rho_L^0 \quad \text{bzw.} \quad \dot{\rho}_L(t) = 0 \quad \text{mit} \quad L = Y. \quad (5.6)$$

Aus dieser Gleichgewichtsbedingung und unter Verwendung der Glg. (5.1) ergibt sich für das Verhältnis der beiden Spinflipzeiten:

$$\nu_{SF} = \frac{\tau_{XY}}{\tau_{YX}} = \frac{1 - \rho_Y^0}{1 + \rho_Y^0}. \quad (5.7)$$

Voraussetzung dafür, daß die Gleichgewichtsbedingung Glg. (5.6) erfüllt ist, ist entweder eine Anfangsbesetzung der beiden Niveaus, die dem Gleichgewichtspolarisationsgrad entspricht oder man betrachtet das System im Grenzfall langer Zeiten ($t \gg \tau_{XY/YX}$). D.h. mit einer Anfangsbesetzung der Niveaus, die nicht dem Gleichgewichtspolarisationsgrad entspricht, muß für kleine Zeiten ($t \ll \tau_{XY/YX}$)

$$\dot{\rho}_L(t) \neq 0 \quad (5.8)$$

gelten. Eine Variation des Anfangspolarisationsgrades ist durch Veränderung der Anregungspolarisation (Laserpolarisation) zu erzielen. So sollte bei Anregung mit vertikal linearpolarisiertem Licht (π^X -Polarisation) anfänglich der Zustand $|X\rangle$ stärker besetzt sein als der Zustand $|Y\rangle$ und folglich ein negativer Polarisationsgrad zu beobachten sein. Wenn außer der Anfangsbesetzung weiter keine Änderung vorliegt, d.h. insbesondere das Verhältnis von τ_{XY} zu τ_{YX} gleich geblieben ist, so ist zu erwarten, daß dann der Polarisationsgrad mit zunehmender Zeit dem Gleichgewichtspolarisationsgrad entgegen strebt. Das Ergebnis eines eben solchen Experimentes ist in Abb. 5.3a dargestellt.

Die Messung wurde in diesem Fall unter quasi resonanten Bedingungen durchgeführt. Es ist deutlich erkennbar, daß der unter π^Y -Anregung erhaltene Polarisationsgrad zeitlich konstant verläuft ($\rho_Y = 0.355$). Währenddessen weist der unter π^X -Anregung erhaltene Polarisationsgrad (ρ_X) eine deutliche Variation auf und strebt in der Tat dem unter π^Y -Anregung erhaltene Polarisationsgrad entgegen.

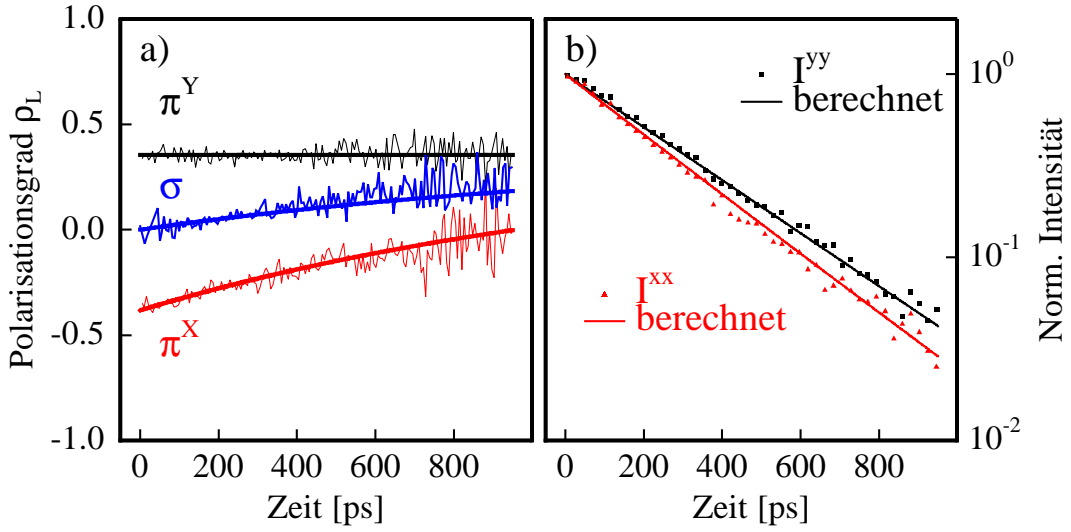


Abb. 5.3: a) Polarisationsdynamik in CdSe/ZnSe Quantenpunkten nach Anregung mit π^Y linear (schwarz), π^X linear (rot) und zirkular (blau) polarisiertem Licht. Die dickeren durchgezogenen Linien sind Fits der Daten nach dem im Text beschriebenen Modell. b) Zeitlicher Verlauf der $\pi^{Y(X)}$ -Komponente des PL-Signals nach Anregung mit $\pi^{Y(X)}$ linear polarisiertem Licht. Die durchgezogenen Linien sind unter Verwendung der aus a) gewonnenen Werte entsprechend berechnete Zerfälle. Anregungsenergie: 2.656eV, Detektionsenergie: 2.579eV, $B = 0T$.

In Abschn. 4.2 konnte festgestellt werden, daß selbst unter strikt resonanten Bedingungen kein Polarisationsgrad von $\rho_Y = 1$ erhalten wird, sondern nur $\rho_Y \approx 0.8$. Dies kann zumindest teilweise damit erklärt werden, daß es im Quantenpunktensemble auch Quantenpunkte gibt, die durch ihre Symmetrie bedingt, nicht π^X - bzw. π^Y -linear polarisiertes Licht (z.B. zirkular, elliptisch oder um einen gewissen Winkel zu π^X - bzw. π^Y gedrehtes linear polarisiertes Licht) emittieren. Unter der Annahme, daß dieses Licht gleichermaßen zu den beiden linearen Polarisationskomponenten π^X bzw. π^Y beiträgt, läßt sich aus dem beobachteten Polarisationsgrad $\rho_Y = 0.355$ der tatsächliche Polarisationsgrad ρ_Y^* der in π^X bzw. π^Y linear polarisierten Quantenpunkte nach

$$\rho_Y^* = \rho_Y / \rho_Y^{sr} \quad (5.9)$$

berechnen. Dabei bezeichnet ρ_Y^{sr} den unter strikt resonanten Bedingungen beobachteten Polarisationsgrad. Aus dem so berechneten $\rho_Y^* = 0.444$ ergibt sich das Verhältnis der Spinflipzeiten mit Glg. (5.7) zu $\nu_{SF} = 0.385$.

Im Rahmen dieses Modells und der genannten Annahmen liefert ein Fit der beiden Datensätze für die Spinflipzeiten die folgenden Werte:

$$\tau_{YX} = (4.7 \pm 0.5) \text{ ns} \quad \text{und} \quad \tau_{XY} = (1.8 \pm 0.2) \text{ ns}.$$

Diese Werte können nun verwendet werden um die tatsächliche Rekombinationszeit τ_r zu bestimmen. In Abb. 5.3b werden die nach Anregung mit $\pi^{Y(X)}$ polarisiertem Licht berechneten Zerfälle der $\pi^{Y(X)}$ Komponenten des PL-Signals mit den entsprechenden experimentell erhaltenen Daten verglichen. Gute Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie ergibt sich für $\tau_r = 300$ ps. Dies zeigt, daß die Annahme einer einheitlichen Rekombinationszeit für beide Polarisationskomponenten gerechtfertigt zu sein scheint. Im Vergleich zur Rekombinationszeit sind die Spinflipzeiten ca. um einen Faktor 10, größer. Damit bestätigt sich die Abschätzung der Größenordnung, die aufgrund der geringen zeitlichen Variation des Polarisationsgrades in Kap. 4 angestellt wurde.

Gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment erhält man ebenfalls, wenn die durch Anregung mit unterschiedlich linear polarisiertem Licht erhaltenen Werte auf ein davon unabhängiges Experiment angewendet werden. Dazu wurde das Quantenpunktensemble mit zirkular polarisiertem Licht angeregt, d.h. $\rho_L(t = 0) = 0$. In Abb. 5.3a ist der daraufhin folgende zeitliche Verlauf der linearen Polarisation dargestellt (blau) und mit dem für diese Anregungsbedingung unter der Verwendung der oben erhaltenen Werte verglichen (dicke durchgezogene blaue Linie). Daraus ist desweiteren zu folgern, daß die Anfangsbesetzung des Ensembles bei quasi resonanten Anregung keinen deutlichen Einfluß auf die Polarisationsdynamik hat.

5.3 Spinflipzeiten bei nichtresonanter Anregung im Magnetfeld

Bisher wurden Spinzustände betrachtet, die aufgrund der geringen Quantenpunktsymmetrie und der Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung als Superpositionen der *Spin-up*- und *Spin-down*-Zustände beschrieben werden müssen. Da es bei der Verwendung des Spins als Informationsträger von Interesse ist beliebige Spinzustände zu generieren, stellt sich die Frage, ob und inwieweit das Ergebnis aus Abschn. 5.2 auf andere Spinzustände übertragbar ist. Durch selbstorganisiertes Wachstum der Quantenpunkte ist es praktisch nicht möglich ganze Ensembles von Quantenpunkten hoher Symmetrie herzustellen. Um trotzdem die Dynamik der reinen Spinzustände untersuchen zu können muß die Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung vernachlässigbar gemacht werden. Eine elegante Methode hierfür bietet sich durch das Anlegen eines externen Magnetfeldes in Faraday-Geometrie. Wie aus den Gleichungen in Tab. 2.1 ersichtlich, führt dies im Grenzfall hoher Magnetfelder dazu, daß selbst bei Quantenpunkten geringer Symmetrie die Eigenzustände als reine Spinzustände beschrieben werden können. Bildlich läßt ein ansteigendes Magnetfeld den Zustandsvektor auf der Blochkugel vom Äquator zu den Polen wandern (siehe Abb. 2.3b)). Um die resultierenden Eigenzustände optisch zu erzeugen bzw. auszulesen, bedeutet dies entsprechend für den Polarisationsvektor des zu absorbierenden bzw. des emittierten Lichts, daß er auf der Poincaré-Kugel ebenfalls zu den Polen wandern muß (siehe Abb. 2.3a)).

Das Quantenpunktensemble besitzt aufgrund von Fluktuationen in der Größe, der Form, der Verspannung und der Zusammensetzung der einzelnen Quantenpunkte eine gewisse Verteilung der Elektron-Loch-Austauschspaltung ($\delta_{0,1,2}$). Experimentell läßt sich δ_1 aus polarisationsaufgelösten Messungen an einzelnen Quantenpunkten bestimmen. Zugang zu einzelnen Quantenpunkten erhält man z.B. durch Erzeugung von Mesen mit Kantenlängen von wenigen hundert Nanometern (siehe Abschn. 3.4). Aus einer Messung von ca. 140 Einzellinien an einem mit Mesen strukturierten Teil der Probe (siehe Abb. 5.4) ergibt sich der Mittelwert des Betrages der Elektron-Loch-Austauschspaltung zu $|\overline{\delta_1}| \approx 160 \mu\text{eV}$. Der g-Faktor solcher CdSe/ZnSe-Quantenpunkte beträgt typischerweise $g \approx 1.6$ [Kul99, Pul99]. Damit die Austauschspaltung vernachlässigt werden kann, wurde ein Magnetfeld von $B = 7 \text{ T}$ angelegt. Dies entspricht nach Glg. (2.14) einer Zeeman-Aufspaltung von $\Delta E \approx 650 \mu\text{eV}$. Unter diesen Bedingungen können die beiden Zustände in nahezu allen Quantenpunkten als rein $|\pm 1\rangle$ angesehen werden. Äquivalent zu dem in Abschn. 5.2 beschriebenen Experiment mit linear polarisiertem Licht kann nun die Spindynamik dieser Zustände mit zirkular polarisiertem Licht analysiert werden. Aus Abb. 5.5 ist erkennbar, daß die Dynamik qualitativ mit der bei $B = 0 \text{ T}$ übereinstimmt. Wieder findet sich eine Anregungsbedingung, bei der der Polarisationsgrad ρ_C nahezu konstant ist, während bei anderen Anregungsbedingungen der Polarisationsgrad mit zunehmender Zeit dem Gleichgewichtspolarisationsgrad entgegen strebt. Wendet man auf diese Daten das oben beschriebene Modell an, so erhält man für die Spinflipzeiten:

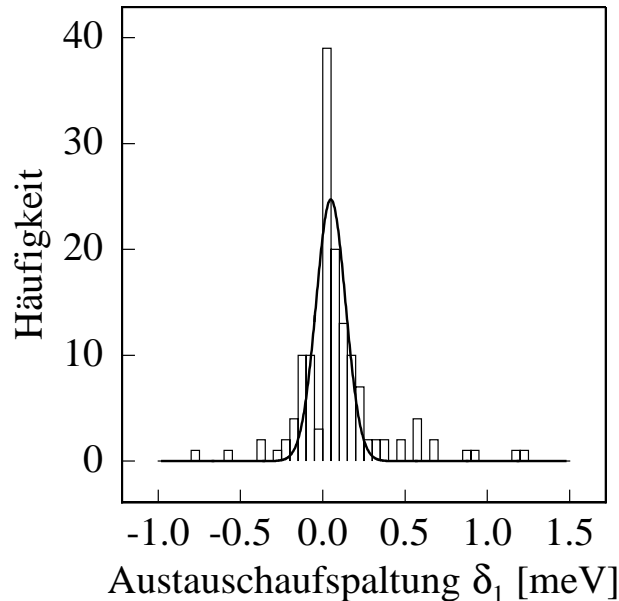


Abb. 5.4: Verteilung der Austauschspaltung δ_1 aus einer Messung an ca. 140 Einzellinien der Probe S863. Als Mittelwert ergibt sich $\overline{\delta_1} = 83 \mu\text{eV}$. Die durchgezogene Linie ist ein Fit der Verteilung mit einer Gauß-Funktion $A \exp(-((\delta_1 - \overline{\delta_1})/\sqrt{2}\sigma_{\delta_1})^2)$ (Varianz: $\sigma_{\delta_1} = 90 \mu\text{eV}$).

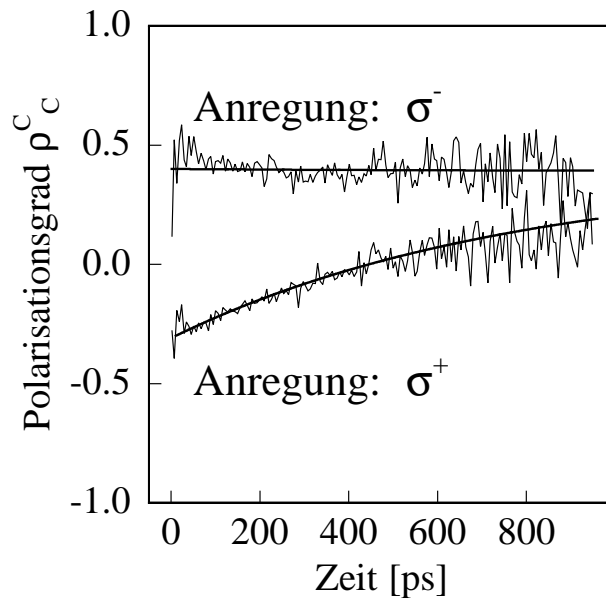


Abb. 5.5: Polarisationsdynamik in CdSe/ZnSe Quantenpunkten nach Anregung mit σ^- und σ^+ zirkular polarisiertem Licht. Die dickeren durchgezogenen Linien sind Fits der Daten nach dem im Text beschriebenen Modell. Anregungsenergie: 2.656 eV, Detektionsenergie: 2.579 eV, $B = 7$ T.

$$\tau_{-+} = 2.5 \text{ ns} \quad \text{und} \quad \tau_{+-} = 1.1 \text{ ns}.$$

Offensichtlich sind die unter $B = 0$ T erzielten Ergebnisse qualitativ auf die reinen Spinzustände $|\pm 1\rangle$ übertragbar. Überraschend ist, daß die hier erhaltenen Werte ca. im gleichen Verhältnis zueinander stehen wie die ohne Magnetfeld erhaltenen Werte. Aus der deutlich größeren Aufspaltung der Energieniveaus sollte intuitiv ein geringeres Verhältnis erwartet werden. Unter der Annahme, daß sich der Gleichgewichtspolarisationsgrad ($\rho^\infty = \rho(t = \infty)$) durch eine thermische Besetzung der beiden Niveaus ergibt ($n_X = n_Y \exp(-\Delta E/k_B T)$), ist folgende Relation abzuleiten

$$\exp(\Delta E/k_B T) = \frac{1 - \rho^\infty}{1 + \rho^\infty} = \nu_{SF} \quad \Rightarrow \quad \Delta E = -k_B T \ln(\nu_{SF}). \quad (5.10)$$

ΔE bezeichnet hier den Energieunterschied zwischen den beiden Niveaus, k_B die Boltzmann-Konstante und T die Temperatur. Mit $T = 2$ K, $\nu_{SF}(B = 0 \text{ T}) = 0.39$ und $\nu_{SF}(B = 7 \text{ T}) = 0.44$ berechnet sich daraus ΔE zu 165 μeV und 145 μeV . Zum Vergleich, die mittlere Austauschspaltung aus den in Abb. 5.4 dargestellten Daten beträgt $\delta_1 = 83 \mu\text{eV}$. Die Diskrepanz zwischen den Werten für $B = 0$ T kann zumindest teilweise auf die der Statistik zugrunde liegende Anzahl an Quantenpunkten zurückgeführt werden. Im

Fall $B = 7 \text{ T}$, wo eine Zeeman-Aufspaltung von $\approx 650 \mu\text{eV}$ erwartet wird, ist eine solche Erklärung nicht mehr möglich. Anhand der bisherigen Überlegungen ist dieses Verhalten nicht nachvollziehbar. Eine mögliche Erklärung ergibt sich aus den Überlegungen in den folgenden Abschnitten dieses Kapitels und dem Kap. 6.

Kapitel 6

Wechselwirkung 'künstlicher Atome'

1954 wies R. H. Dicke darauf hin, daß bei der Beschreibung der spontanen Emission eines Systems von Teilchen die Tatsache zu berücksichtigen ist, daß alle Teilchen (z. B. Atome oder Moleküle) mit ein und dem selben Strahlungsfeld wechselwirken [Dic54]. Konsequenterweise sollten die einzelnen Teilchen nicht als voneinander unabhängig betrachtet werden. Die Existenz einer solchen Wechselwirkung über das Strahlungsfeld würde in einer starken Änderung der Abstrahlungscharakteristik des betrachteten Systems resultieren. Dies ist im allgemeinen unter den Begriffen *Superradiance*¹ und *Subradiance*² bekannt. Der erste experimentelle Nachweis von Superradiance-Effekten in einem Gas gelang N. Skribanowitz 1973 [Skr73].

Heutzutage ist man in der Lage Systeme zu erzeugen, deren Eigenschaften denen von Atomen sehr nahe kommen. Berücksichtigt man die Dichten mit denen solche Strukturen z.B. epitaktisch (Flächendichten ($n \leq 10^{11} \text{ cm}^{-2}$) fabriziert werden und die Ausdehnung sich darin befindlicher Teilchen wie Elektronen, Löcher und Exzitonen, so kann davon ausgegangen werden, daß sie von einander getrennte Systeme darstellen. Seit einigen Jahren werden enorme Anstrengungen unternommen zumindest zwei solcher Quantenpunkte miteinander zu koppeln. Hauptsächlich motiviert durch die Ideen Bausteine für neuartige Informationsverarbeitende Geräte zu entwickeln, wurden bereits unterschiedliche Arten der Wechselwirkung zwischen Quantenpunkten realisiert (siehe z.B. [Bay01, Ouy03, Kre05, Bac05, Lee05]). Die typische Reichweite dieser Wechselwirkungen beschränkt sich auf maximal wenige Nanometer.

In Bezug auf das Strahlungsmodell von Dicke, stellt sich die Frage, ob Quantenpunktsysteme möglicherweise ebenfalls Anzeichen für eine Art kooperativer Strahlung aufweisen und in diesem Sinne als über ihr Strahlungsfeld gekoppelte Quantensysteme anzusehen sind. Die Reichweite dieser Wechselwirkung wäre alleine auf Grund ihrer Art von der Größenordnung der Wellenlänge des emittierten Strahlungsfeldes. Desweiteren sei angemerkt, daß die Kopplung von Quantenpunkten über ein Strahlungsfeld sogar in Überlegungen für Quantencomputer berücksichtigt wird [Bio02].

¹Die Abstrahlungsrate ist deutlich erhöht - bis hin zur Abstrahlung von einem Puls.

²Die Abstrahlungsrate ist deutlich verringert- bis hin zur kompletten Unterdrückung der Abstrahlung.

Es wurde bereits von Jodoin 1974 vermutet, daß Superradiance-Effekte selbst in (inhomogen verbreiterten) Festkörpersystemen zu beobachten seien [Jod74]. Es ist wohl bekannt, daß Quantenpunkte in einem Ensemble im allgemeinen nicht alle identisch zueinander sind. Dennoch, mag die Möglichkeit für eine Wechselwirkung der Quantenpunkte über ihr Strahlungsfeld bestehen [Sha00]. Jüngste theoretische Untersuchungen zeigen, daß Ensembles von CdSe Quantenpunkten entsprechende Charakteristika aufweisen könnten [Par05].

6.1 Bestimmung der Quantenpunktdichte

Eine Bestimmung der Quantenpunktdichte (Dichte nulldimensionaler Zustände) in einer epitaktisch gewachsenen Halbleiterprobe kann z.B. durch optische Spektroskopie erfolgen. Dazu werden mit Methoden der Nanostrukturierung Mesen auf der Probe erzeugt, die aufgrund ihrer mitunter sehr geringen Abmessungen (Kantenlängen im Bereich kleiner als 100 nm) zum Teil nur noch einzelne Quantenpunkte enthalten. In Abb. 6.1 wurde dies exemplarisch an einer Probe mit CdSe/ZnSe Quantenpunkten (Probe S0863) durchgeführt. Durch Abzählen der einzelnen Linien erhält man eine Quantenpunktdichte von $n \approx 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Der sich daraus ergebende mittlere Abstand \bar{d}_{QD} zwischen den Quantenpunkten ist somit $\bar{d}_{QD} \approx 35 \text{ nm}$. Da die laterale Ausdehnung der Quantenpunkte nur ca. 6-10 nm [Küm98] beträgt und die Exzitonen in CdSe bzw. ZnSe einen Bohr-Radius von 5.3 nm bzw. 9 nm besitzen, kann ein direkter Überlapp der Wellenfunktionen von Exzitonen in benachbarten Quantenpunkten ausgeschlossen werden. Damit sollte die Annahme, daß die betrachteten Quantenpunkte voneinander getrennte und unabhängige Objekte sind gerechtfertigt sein.

Es sei hier noch ausdrücklich darauf hingewiesen, daß dieser Abstand deutlich geringer ist als die Wellenlänge der von den Quantenpunkten emittierten Strahlung $\lambda_{rad} \approx 480 \text{ nm}$ ³.

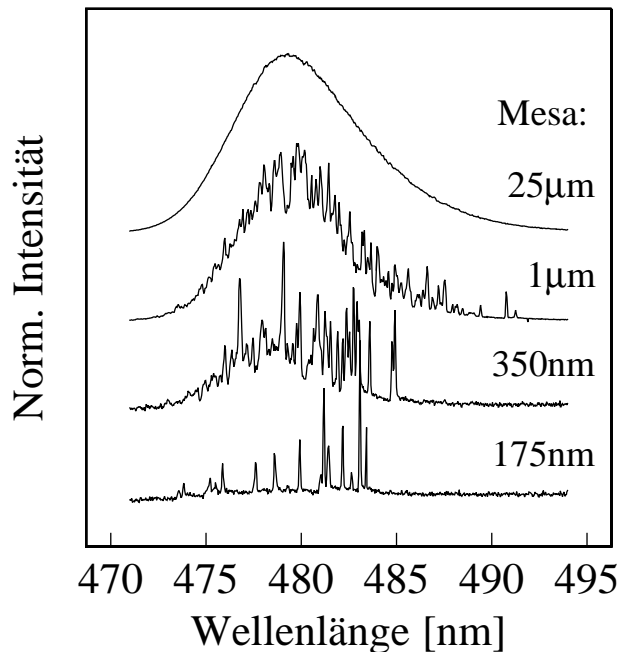


Abb. 6.1: PL-Spektren der Probe S0863 von unterschiedlich großen quadratischen Mesen mit den Kantenlängen $a = 25 \mu\text{m}$, $1 \mu\text{m}$, 350 nm und 175 nm . Die Quantenpunktdichte kann mit $n \leq 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ angegeben werden. (Anregung mit: $\lambda_{\text{Laser}} = 364 \text{ nm}$.)

³Da die Quantenpunkte in ZnSe (zwischen zwei Schichten mit 50 nm und 25 nm) eingebettet sind, sei noch die effektive Wellenlänge im Material mit ca. 180 nm erwähnt (Brechungsindex ZnSe: ≈ 2.7 bei $T = 1.5 \text{ K}$). Damit ist auch sie größer als der mittlere Quantenpunkt Abstand.

6.2 Die PL-Emissionsrate

Aus den Messungen zur Polarisationsdynamik konnten im Kap. 5 Spinrelaxationszeiten bestimmt werden, die ca. 10-mal länger als die Rekombinationszeit der Exzitonen sind. D.h., die beiden hellen Grundzustände des Exzitons können in erster Näherung als entkoppelt angesehen werden. Da es sich gezeigt hat, daß $\tau_{YX} > \tau_{XY}$ gilt, wird im Folgenden hauptsächlich der $|Y\rangle$ -Zustand betrachtet. Dabei soll zunächst die Zerfallszeit des von den Quantenpunkten emittierten PL-Signals genauer untersucht werden.

6.2.1 Spektrale Abhängigkeit

Abbildung 6.2 vergleicht die zeitliche Entwicklung der PL-Intensität am Maximum des PL-Spektrums nach Anregung mit einem 1.5 ps Laserpuls für zwei verschiedene Wellenlängen λ_{Laser} . Diese Daten stammen von einer 100 μm Mesa (quasi unstrukturierte Probenfläche), wobei mit π^Y polarisiertem Licht angeregt wurde und eben dieselbe Polarisationskomponente des PL-Signals detektiert wurde. Im Fall nicht resonanter Anregung ($\lambda_{Laser} = 418 \text{ nm}$) erhält man mit einer einfach exponentiellen Fitfunktion eine Zerfallszeit von $\tau_{(nr)} = 390 \text{ ps}$. Interessanterweise erfolgt bei quasi resonanter Anregung ($\lambda_{Laser} = 463 \text{ nm}$) eine deutliche Abnahme der Lebensdauer auf $\tau_{(r)} = 270 \text{ ps}$. Ein solcher Unterschied kann in diesem Fall nicht durch einen langsamen Nachfüllprozess erklärt werden, da keine höheren Zustände im PL-Signal sichtbar sind. Zudem ist bekannt, daß die

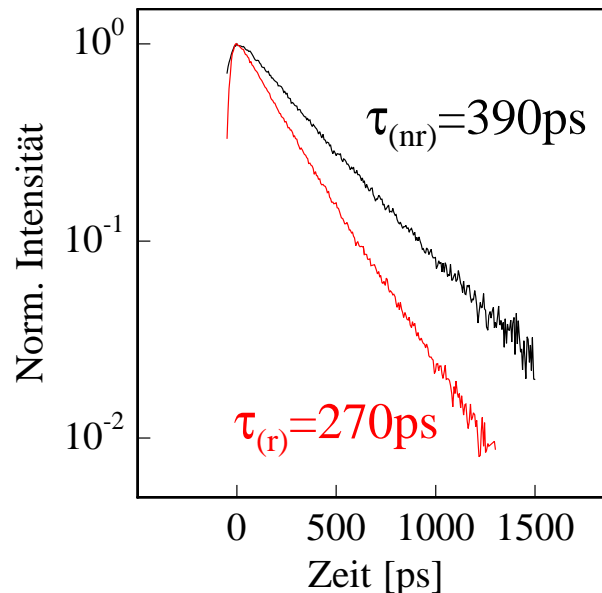


Abb. 6.2: Zeitlicher Verlauf der PL-Intensität am Maximum des PL-Spektrums nach nicht resonanter $\lambda_{Laser} = 418.8 \text{ nm}$ (schwarze Linie) und quasi resonanter $\lambda_{Laser} = 463.2 \text{ nm}$ (rote Linie) Anregung. Die Zerfallszeiten lassen sich zu $\tau_{(nr)} = 390 \text{ ps}$ (nicht resonant) $\tau_{(r)} = 270 \text{ ps}$ (quasi resonant) bestimmen.

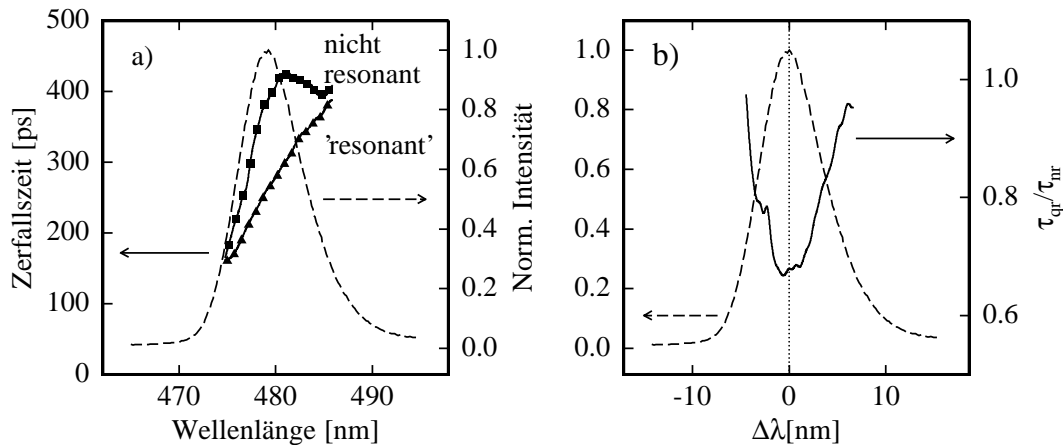


Abb. 6.3: a) Spektrale Variation der PL-Zerfallszeit nach nichtresonanter (Vierecke) und resonanter (Dreiecke) Anregung. b) Verhältnis der links gezeigten Verläufe der PL-Zerfallszeiten. $\Delta\lambda$ bezieht sich auf die Wellenlänge des Maximums des PL-Signals ($\Delta\lambda = 0$ nm gepunktete Linie). Auf beiden Seiten wurde jeweils das bei nicht resonanter Anregung erhaltene PL-Spektrum zum Vergleich mit angegeben (gestrichelte Linie).

Relaxation in den Grundzustand typischerweise auf einer Zeitskala von 1 ps oder kürzer stattfindet [Gin99]. Eine Änderung der Relaxation in den Grundzustand würde sich zudem hauptsächlich im Anstieg des PL-Signals bemerkbar machen. Es sei angemerkt, daß die Experimente bei Anregungsdichten durchgeführt wurden, welche nicht zu einer Sättigung des Quantenpunktsystems geführt haben. Eine Änderung der Anregungsdichte um ca. 4 Größenordnungen ergab dabei in beiden Fällen (quasi und nicht resonant) keine Veränderung der Zerfallszeiten. Somit können Relaxationsmechanismen, Multiexzitongeneration (z.B. Biexzitonen⁴), ausgedehnte exzitonische Zustände und/oder Sättigungseffekte nicht verantwortlich für das beobachtete Verhalten sein. Zudem sollten diese Mechanismen alle Quantenpunkte gleichermaßen beeinflussen. D.h. Quantenpunkte, die im Zentrum des PL-Spektrums emittieren sollten die gleiche relative Änderung der strahlenden Lebensdauer erfahren wie Quantenpunkte, die an den Rändern des Spektrums emittieren.

Um dies zu überprüfen wurde die spektrale Abhängigkeit der Zerfallszeit für beide Anregungsbedingungen bestimmt (siehe Abb. 6.3a). Während nach quasi resonanter Anregung eine in etwa lineare Abhängigkeit zwischen Emissionswellenlänge und Zerfallszeit zu beobachten ist, ist bei nicht resonanter Anregung zunächst ein stärkerer Anstieg der Zerfallszeit zu erkennen bevor diese sättigt, sogar leicht abnimmt und dann wieder anzusteigen scheint. Berechnet man das Verhältnis zwischen nicht resonanter und quasi resonanter Zerfallsrate (τ_{qr}/τ_{nr}) so zeigt sich, daß die stärkste Variation in der Mitte des PL-Spektrums auftritt und in ihrer Wellenlänge mit der des PL-Maximums sehr gut übereinstimmt (Abb. 6.3b). Somit können die oben angesprochenen Effekte (Sättigung, Multiexzitonbildung,..)

⁴Wie von Bacher *et al.* [Bac99] demonstriert ergibt sich das Verhältnis von Exziton zu Biexzitonlebensdauer in derartigen Quantenpunkten zu ca. 1. D.h. von diesem Prozeß ist keine Änderung der Zerfallszeit zu erwarten.

als Ursache für Änderung der Lebensdauer ausgeschlossen werden. Der in Abb. 6.3 aufgezeigte Sachverhalt läßt nun eine Interpretation zu, die anzweifelt, daß die Quantenpunkte im untersuchten Ensemble sich voneinander unabhängig verhalten:

In erster Näherung spiegelt die Form des PL-Spektrums die Verteilung der Grundzustandsenergien der Exzitonen in dem Quantenpunktensemble wieder. Demzufolge ist die Dichte der Quantenpunkte mit einer bestimmten Grundzustandsenergie in der Mitte dieser Verteilung am höchsten. Offensichtlich ist auch das Strahlungsfeld dort am dichtesten. Berücksichtigt man dies, so kommt man auf die eingangs dieses Kapitels gestellte Frage zurück. Sind Quantenpunkte, die einen gegenseitigen Abstand aufweisen, der geringer ist als die Wellenlänge ihrer emittierten Strahlung wirklich als voneinander unabhängige Systeme anzusehen?

Bei der 1954 von Dicke betrachteten Strahlung eng benachbarter identische Atome stellte sich heraus, daß sich bei sogenannter *kooperative* Strahlung die Emissionsrate ändert. Kooperative Strahlung ist aber nicht nur für quantenmechanische Systeme typisch, sondern kann auch in klassischen Systemen beobachtet werden, wie z.B. bei zwei dicht nebeneinander platzierten Stimmgabeln [Lam72]⁵. Allgemein gesprochen koppeln die benachbarten Oszillatoren über das gemeinsame Strahlungsfeld. Die Ausprägung kooperativer Strahlungseffekte hängt dabei von der Anzahl der Oszillatoren, deren gegenseitigen Abstand sowie deren relativen Phase und damit von der Homogenität des betrachteten Ensembles ab. Aus diesem Grund sollen nun drei weitere Betrachtungen angestellt werden:

1. Es soll untersucht werden ob sich die beobachtete Änderung der Rekombinationsraten durch die theoretisch zu erwartenden Abhängigkeiten von der Quantenpunktanzahl und dem Quantenpunktabstand beschreiben läßt.
2. Sodann soll die Betrachtung des zeitlichen Verlaufs der PL-Intensität strikt resonant erfolgen. Einerseits tritt durch die Anregung in den Quantenpunktgrundzustand keine Relaxation auf. Andererseits wird bedingt durch die geringe spektrale Breite des Laserpulses nur ein geringer Teil der Quantenpunkte im Ensemble angeregt (siehe Abb. 4.1). Dieser Teil der Quantenpunkte ist zudem wegen der schmalen Linienbreite des Lasers im Vergleich zum PL-Spektrum der Quantenpunkte spektral homogener als das Ensemble.
3. Unter quasi resonanten Anregungsbedingungen wird die Anzahl der möglicherweise miteinander wechselwirkenden Quantenpunkte reduziert, indem Mesenstrukturen mit Größen bis in den Bereich einiger zehn Nanometer in die Probenstruktur geätzt werden.

⁵Hier zeigt sich, daß die Abnahme der Schallamplitude des Gesamtsystems vom anfänglichen Phasenunterschied $\Delta\phi$ der Anregung abhängt. Im Vergleich zu einem System bestehend aus nur einer Stimmgabel, erfolgt die Abnahme schneller bei gleichphasiger Anregung ($\Delta\phi = 0 \rightarrow A_1^0 = A_2^0 = A$), langsamer bei gegenphasiger Anregung ($\Delta\phi = \pi \rightarrow A_1^0 = A \wedge A_2^0 = -A$) und nahezu gleich schnell bei Anregung mit einem Phasenunterschied von $\Delta\phi = \pi/2$ ($A_1^0 = A \wedge A_2^0 = 0$). A_1^0 und A_2^0 bezeichnen hierbei die Schwingungsamplituden der beiden Stimmgabeln zum Zeitpunkt der Anregung ($t = 0$).

6.2.2 Funktionale Abhängigkeit

Entsprechend dem Modell von Dicke kann sich ein System bestehend aus N (identischen) Oszillatoren in einem Zustand befinden in dem die Emissionsrate durch N/τ gegeben ist (siehe z.B. [Sha00]). $1/\tau$ bezeichnet dabei die Emissionsrate eines isolierten Oszillators. D.h. tritt in einem System aus N Oszillatoren eine Kopplung der Oszillatoren über ihr Strahlungsfeld auf, so skaliert dies linear mit der Anzahl der Oszillatoren.

Desweiteren zeigen beispielsweise G. Parascandolo und V. Savona [Par05], daß eine Wechselwirkung über das Strahlungsfeld einen langreichweitigen Charakter aufweist. Sie geben die Abhängigkeit der Wechselwirkung vom gegenseitigen Abstand der Quantenpunkte (R) mit $1/R$ an. Insgesamt sollte sich die Emissionsrate bedingt durch eine Strahlungskopplung entsprechend einer Funktion

$$f(N, R) = N \cdot \frac{1}{R} \quad (6.1)$$

ändern. Diese funktionale Abhängigkeit kann anhand des PL-Signals des Quantenpunktensembles untersucht werden.

In erster Näherung ist die Intensität (I) des PL-Signals proportional der Zahl ($N(\lambda)$) der an der jeweiligen Wellenlänge (λ) emittierenden Quantenpunkte. Dies gilt in gleicher Weise für die Quantenpunktdichte ($\rho_{QD}(\lambda)$). Aus dieser kann auf den mittleren Abstand der Quantenpunkte geschlossen werden. Für den Quantenpunktabstand gilt:

$$R(\lambda) \propto \frac{1}{\sqrt{\rho_{QD}(\lambda)}} \propto \frac{1}{\sqrt{N(\lambda)}} \propto \frac{1}{\sqrt{I(\lambda)}} \quad (6.2)$$

Damit kann Glg. 6.1 wie folgt formuliert werden:

$$f(N(\lambda), R(\lambda)) \propto f(I(\lambda)) = I \cdot \sqrt{I(\lambda)} \quad (6.3)$$

Der qualitative Verlauf der Funktion $f(N, R)$ kann demnach aus dem PL-Spektrum erhalten werden.

Dies soll nun mit dem spektralen Verlauf der Änderung der Emissionsrate verglichen werden. Dazu wird sowohl das PL-Signal wie auch die Änderung der Emissionsrate normiert. Im Fall der Änderung der Emissionsrate ist die Änderung auf den Fall $\tau_{r,nres}/\tau_{r,res} = 1$ zu beziehen. D.h. man berechnet: $\tau_{r,nres}/\tau_{r,res} - 1$. Der Vergleich beider Verläufe in Abb. 6.4 zeigt eine sehr gute Übereinstimmung beider Kurven. Damit ist gezeigt, daß sowohl die Anzahl wie auch der gegenseitige Abstand der Quantenpunkte untereinander die Änderung der Emissionsrate wie sie beobachtet wird bedingen. D.h. der beobachtete Effekt kann durchaus auf eine Strahlungskopplung der Quantenpunkte zurückgeführt werden.

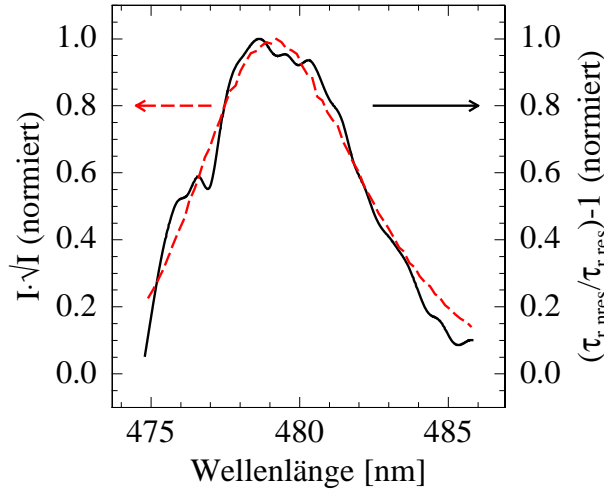


Abb. 6.4: Rot (gestrichelt): Die nach der Theorie zu erwartende spektrale Abhängigkeit der Änderung der Emissionsrate (normiert). Zur Berechnung der Kurve wurde das PL-Signal des Quantenpunktensembles bei nicht resonanter Anregung verwendet. Schwarz (durchgezogen): Normierte gemessene Änderung der Emissionsrate aus Abb. 6.3.

6.2.3 Resonante Dynamik

Die resonante Anregung führt wie aus Kap. 4 bekannt, zu einem höheren Anfangspolarisationsgrad (siehe Abb. 6.5). Es stellt sich jedoch heraus, daß sich die beobachtete Dynamik nicht mit dem in Kap. 5 vorgestellten Modell beschreiben läßt. Dies deutet auf eine modifizierte Relaxationsdynamik unter strikt resonanten Bedingungen hin. Da im Vergleich mit dem theoretisch zu erwartenden Verlauf insbesondere der Polarisationsgrad nach Anregung mit π^X linear polarisiertem Licht eine deutlich geringere Variation aufweist (siehe Abb. 6.5a), haben sich scheinbar die Relaxationsprozesse verlangsamt. Für die berechneten Kurven wurden hierbei die in Abschn. 5.2 bestimmten Zeiten verwendet, sowie eine Rekombinationszeit von $\tau_r = 200$ ps angenommen. Eine langsamere Spinrelaxation jedoch, sollte in Bezug auf das 3-Niveau-System zu einem geringeren Unterschied zwischen den Zerfallszeiten der beiden Polarisationskomponenten (π^Y und π^X) führen. Unter Berücksichtigung der offensichtlich schnelleren Rekombinationszeit und der Relaxationszeiten $\tau_{YX} = 4.7$ ns bzw. $\tau_{XY} = 1.8$ ns ergibt sich wie in Abb. 6.5b zu sehen nur ein geringer Unterschied. Dies steht in Kontrast zur experimentellen Beobachtung.

Der vorhandene große Unterschied deutet an, daß die beiden Exzitonzustände $|X\rangle$ und $|Y\rangle$ unter strikt resonanten Bedingungen einen Unterschied in der Rekombinationszeit entwickelt haben. Im Fall quasi resonanter Anregung scheint dieses Phänomen deutlich unterdrückt zu sein, da ansonsten ein merklich zeitlicher Anstieg des Polarisationsgrades nach Anregung mit π^Y linear polarisiertem Licht beobachtet werden müßte. In Abschn. 5.2 wurde festgestellt, daß allein eine Änderung des Anfangspolarisationsgrades keinen deutlichen Einfluß auf die Polarisationsdynamik hat. Somit kann das Auftreten des Unterschieds in der Zerfallszeit der beiden PL-Komponenten auf die kohärente Anregung

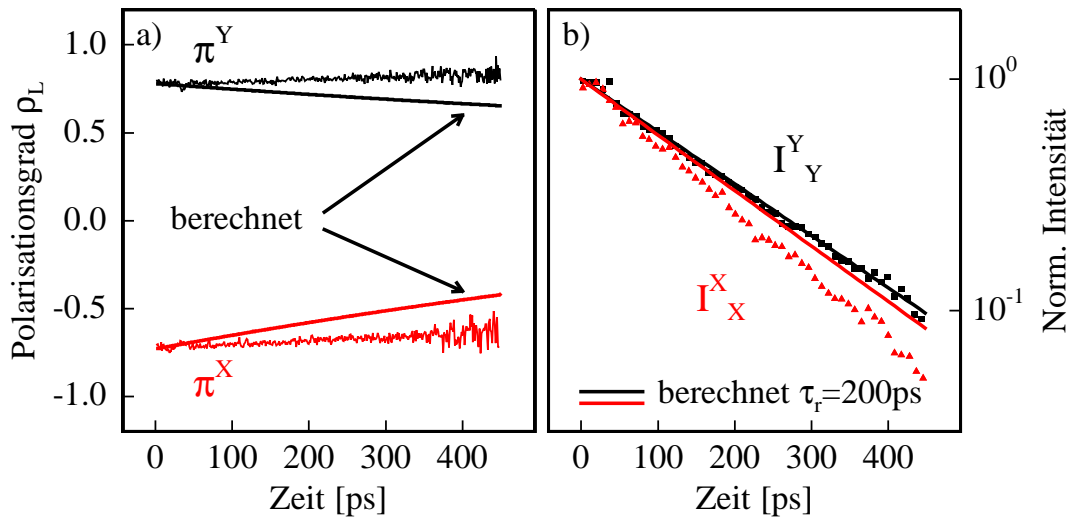


Abb. 6.5: **a)** Polarisationsdynamik nach resonanter Anregung mit π^Y (schwarz) und π^X (rot) linear polarisiertem Licht. **b)** Zeitlicher Verlauf der π^Y (schwarz) und der π^X (rot) Komponente des PL-Signals nach Anregung mit entsprechend ko-polarisiertem Licht. Die glatten durchgezogenen Linien stellen jeweils den nach Kap. 5 zu erwartenden Verlauf dar.

und/oder die höhere Homogenität des angeregten Ensembles zurückgeführt werden. Eine mögliche Erklärung des beobachteten Effekts kann gegeben werden, wird die Existenz einer superradianten Strahlungskopplung und ein Unterschied in der Dichte der Quantenpunkte für unterschiedliche kristallographische Richtungen angenommen.

Eine solche anisotrope Quantenpunktdichte könnte folgendermaßen begründet werden. Aus der Polarisationsdynamik nach quasi resonanter Anregung konnte bereits abgeleitet werden, daß in dem untersuchten Quantenpunktensemble überwiegend der $|Y\rangle$ -Zustand der energetisch niedrigste Zustand ist. Dementsprechend besitzen die Quantenpunkte vornehmlich entlang einer Richtung eine leicht größere laterale Ausdehnung. Bei zufälliger Verteilung der Quantenpunkte in der Ebene, ergibt sich so eine richtungsabhängige Dichte der Quantenpunkte. Existiert eine Wechselwirkung der Quantenpunkte über ihr Strahlungsfeld, so ist konsequenterweise mit einem Unterschied in den Emissionsraten für die verschiedenen linearen Polarisationskomponenten zu rechnen.

6.2.4 Wegnahme von Quantenpunkten

Um eine Kopplung der Quantenpunkte zu beweisen, wäre es wünschenswert die evtl. vorhandene Wechselwirkung zu unterdrücken um so die Kopplungseffekte aufzuheben. Intuitiv der einfachste Ansatz dieses Ziel zu erreichen, besteht darin die Zahl benachbarter Quantenpunkte zu reduzieren, indem man Quantenpunkte wegnimmt. Dies läßt sich schrittweise dadurch erzielen, indem man Mesen unterschiedlicher Größe in die Halbleiterstruktur ätzt. Ein Stück der untersuchten Probe wurde dazu mit quadratischen Mesen

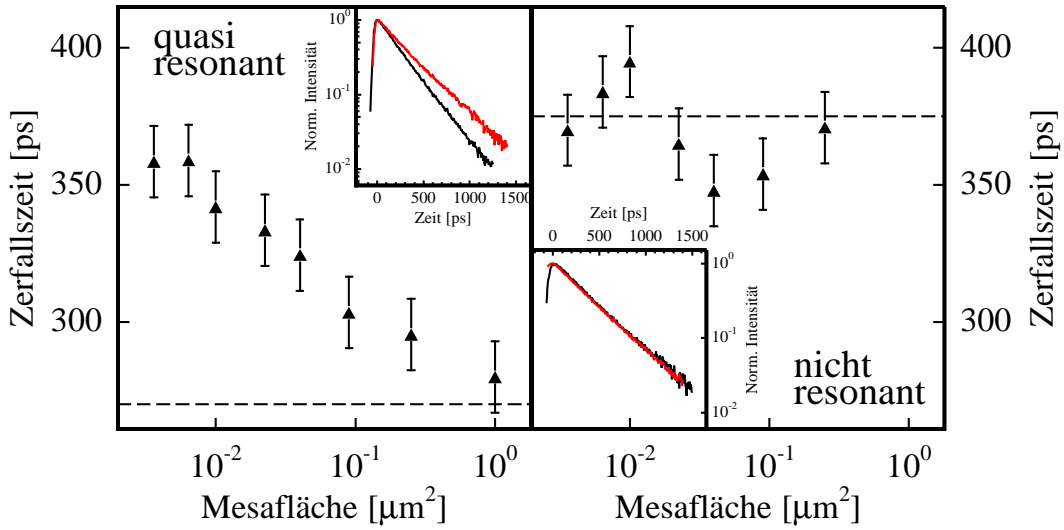


Abb. 6.6: Links: Zerfallszeiten am Maximum des PL-Signal von jeweils unterschiedlich großen Mesen bei quasi resonanter Anregung. Die gestrichelte Linie kennzeichnet die Zerfallszeit im Fall des unstrukturierten Teils der Probe ($100 \mu\text{m}$ Mesa). Bildeinschub: Zeitlicher Verlauf des PL-Signals am Maximum des PL-Spektrums des unstrukturierten Teils der Probe (schwarz) und eines MMFs mit 60 nm Mesen (rot). Rechts: Wie links nur bei nicht resonanter Anregung.

der Größen $1000 \text{ nm} \times 1000 \text{ nm}$ bis $60 \text{ nm} \times 60 \text{ nm}$ strukturiert. Zum Zweck der statistischen Mittelung wurden diese Mesen jeweils zu Feldern mit $100 \mu\text{m}$ Kantenlänge in gegenseitigen Abständen von $1 \mu\text{m}$, $2 \mu\text{m}$, $5 \mu\text{m}$ und $10 \mu\text{m}$ angeordnet (siehe Abb. A.2 im Anhang) (Multi-Mesen-Felder (MMFs)). Auf diese Strukturen werden nun die selben Anregungsbedingungen wie schon in Abb. 6.2 und Abb. 6.3 angewandt. Die Bildeinschübe der Abb. 6.6 zeigen einen Vergleich der Zerfallszeiten der PL-Signale von einem unstrukturierten Teil der Probe und einem MMF mit 60 nm -Mesen. Es ist zu beobachten, daß im Fall der 60 nm -Mesen die Emissionsrate deutlich reduziert ist. Bei quasi resonanter Anregung nimmt, wie im linken Teil der Abb. 6.6 zu sehen ist, die Zerfallszeit mit Abnahme der Mesenfläche monoton zu. Dies steht im Gegensatz zu einer erwarteten Verkürzung der Exzitonlebensdauer, die aufgrund der Erzeugung von zusätzlichen Rekombinations- bzw. Verlustkanälen an den Mesenoberflächen auftreten sollte.

Durch Verringerung der Fläche nimmt die Gesamtzahl der Quantenpunkte ab und damit auch die Wahrscheinlichkeit dafür, daß ein Quantenpunkt mit einem anderen in Wechselwirkung tritt. Die Zahl an Quantenpunkten in einer solchen 60 nm -Mesa kann mit der aus Abb. 6.1 bestimmten Quantenpunktdichte zu < 4 angegeben werden. Somit kann davon ausgegangen werden, daß Effekte aufgrund einer Wechselwirkung zwischen den Quantenpunkten im Vergleich zum unstrukturierten Fall stark reduziert sind. An dieser Stelle ist zu bemerken, daß eine Änderung des gegenseitigen Mesenabstandes von $1 \mu\text{m}$ bis $10 \mu\text{m}$ innerhalb der MMFs keine Einfluß auf die Dynamik hat. Jedoch sei darauf hingewiesen, daß selbst bei Mesen mit Kantenlängen von 300 nm noch eine Änderung der PL-Zerfallszeit zu beobachten ist. D.h., plaziert man Quantenpunkte in einem mittleren

Abstand von 150 nm in der Umgebung von anderen Quantenpunkten, so beeinflusst dies immer noch die Emissionsrate. Somit kann angenommen werden, daß die Reichweite der Wechselwirkung zwischen den Quantenpunkten mindestens der Größenordnung von 150 nm entspricht.

Wird das gleiche Experiment mit unter nicht resonanten Anregungsbedingungen durchgeführt, so zeigt sich keine deutliche Änderung der PL-Zerfallszeit über den gesamten Bereich der untersuchten Mesengrößen (Abb. 6.6 rechts). Damit kann ausgeschlossen werden, daß das unter quasisresonanter Anregung beobachtete Verhalten Ergebnis eines durch die Erzeugung der Mesenstrukturen bedingten veränderten Verspannungsprofils in der Probe ist.

6.2.5 Diskussion der geringen Emissionsraten

Bei der Interpretation der langen Exzitonlebensdauern in den beiden Fällen, nicht resonante Anregung des unstrukturierten Teils der Probe und resonante Anregung des 60 nm MMAs, ist jedoch Vorsicht geboten. Die Anwendung nicht resonanter Anregungsbedingungen entfernt keine Quantenpunkte und verändert auch nicht die Grundzustandsenergie der Exzitonen. Somit sollten in diesem Fall die Quantenpunkte immer noch miteinander wechselwirken. Wie bereits erwähnt kann eine Kopplung über das Strahlungsfeld auch zu einer Reduktion der Emissionsrate führen (siehe z.B. auch [Dic54, Lam72]). Was eintritt, Verstärkung oder Verringerung der Emissionsrate, hängt maßgeblich von der Phase der Anregung in den Quantenpunkten ab. Nicht resonante Bedingungen begünstigen dabei aufgrund der stattfindenden Relaxationsprozesse die statistische Verteilung der Phase bei der Anregung der Quantenpunktgrundzustände. Trotzdem kann Kohärenz bei quasi resonanter Anregung zum Teil erhalten bleiben [Fli01].

Zusätzlich zur Dephasierung durch Relaxation sollten auch andere Prozesse bei der Interpretation der geringen Emissionsraten berücksichtigt werden. Dazu gehört vornehmlich die Erzeugung von Ladungsträgern in den bzw. in der Umgebung der Quantenpunkte. Die Anwesenheit von Ladungsträgern würde bedingt durch den Stark-Effekt den Überlapp von Elektron- und Lochwellenfunktion modifizieren. Damit ergibt sich zum einen eine geänderte Energieniveaustuktur im Quantenpunkt, sowie eine Reduktion der Rekombinationsrate. Der Einfluß von lokalen elektrischen Feldern auf die Rekombination von Exzitonen in Quantenpunkten und der damit verbundenen Emission von Photonen ist bekannt aus Messungen des Stark-Effekts durch Anlegen externer Felder [Emp97, Seu01], bzw. durch Messungen zur spektralen Diffusion [Seu00, T00]. Im Fall der nicht resonanten Anregung gibt es in der Tat Anzeichen dafür, daß Ladungsträger generiert werden. So ist z.B. der Abb. 6.7 zu entnehmen, daß der genaue Verlauf der gemessene Lebensdauer der Exzitonen bei Änderung der Anregungsbedingungen davon abhängt von welcher Wellenlänge aus man die Messung beginnt. Werden Ladungsträger in der Umgebung der Quantenpunkte erzeugt, so können diese dort auf Zeitskalen von bis zu einigen Minuten

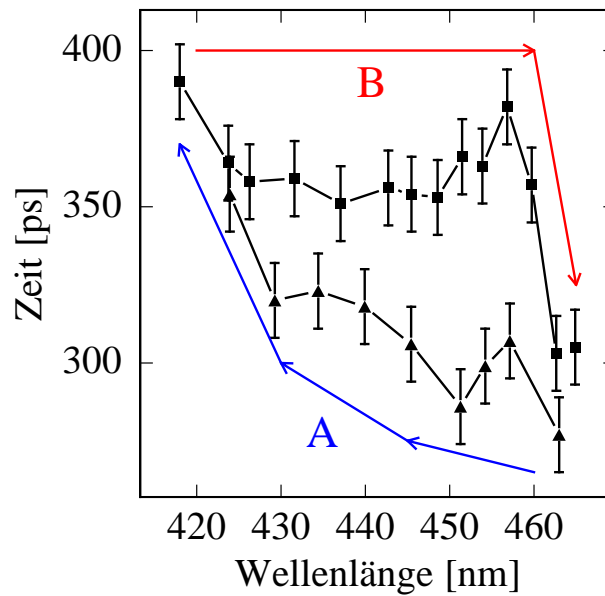


Abb. 6.7: Zerfallszeit am Maximum des PL-Signals bei Änderung der Anregungsbedingungen von (A) quasi resonant zu nicht resonant (Dreiecke) und (B) nicht resonant zu quasi resonant (Quadrate).

verweilen [Seu00].

Die Erzeugung von Ladungen kann aus den folgenden Gründen alleine jedoch nicht die spektrale Abhängigkeit der relativen Änderung der Emissionsraten erklären (siehe Abb. 6.3 und Abb. 6.4). Bei nicht resonanter Anregung im Barrierematerial kann davon ausgegangen werden, daß die Wahrscheinlichkeit der Ladungserzeugung ortsunabhängig ist. D.h. die Wahrscheinlichkeit eine Ladung in einem Quantenpunkt bzw. in der Umgebung eines Quantenpunktes zu finden, ist für alle Quantenpunkte gleich. Zudem skaliert das elektrische Feld einer Punktladung entsprechend $1/R^2$ mit dem Abstand. In einem Abstand von 35 nm ist der Wert des elektrischen Feldes einer einzelnen Punktladung in ZnSe (statische Dielektrizitätskonstante: $\epsilon_{ZnSe} = 9.2\epsilon_0$) bereits auf 1.27 kV/cm abgefallen. Im Vergleich zu Messungen bei denen ein externes elektrisches Feld angelegt wurde, ruft ein Feld dieser Stärke einen vernachlässigbar geringen Stark-Effekt hervor [Seu01]. Der Einfluß einer Ladung in/bei einem Quantenpunkt auf einen benachbarten Quantenpunkt ist demnach sehr gering und eine Abhängigkeit vom gegenseitigen Quantenpunkt Abstand kann ausgeschlossen werden. Desweiteren sei auch erwähnt, daß im Fall von InAs/GaAs Quantenpunkten sich die PL-Emissionsraten beim Übergang von nicht resonanter zu strikt resonanter Anregung nur um eine Faktor von ca. 1.2 ändern [Pai00]. Im Gegensatz dazu beträgt der Faktor bei den hier untersuchten CdSe/ZnSe Quantenpunkten ca. 1.5. Dies entspricht dem von Parascandolo und Savona theoretisch vorhergesagten Verhalten, nach dem sich eine über das gemeinsame Strahlungsfeld vermittelte Wechselwirkung bei CdSe Quantenpunkten stärker ausprägen sollte als im Fall von InAs Quantenpunkten [Par05].

Ein Einfluß von evtl. an den geätzten Oberflächen entstandenen Defekten kann Ausge-

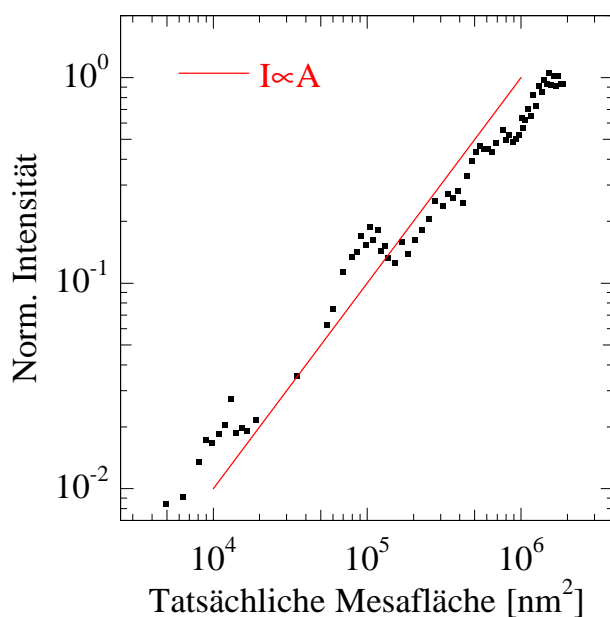


Abb. 6.8: Quadrate: Zeitintegrierte PL-Intensität I am Maximum des PL-Spektrums in Abhängigkeit der tatsächlichen Mesafläche A . Rote Gerade: Theoretisch zu erwartender Verlauf der Intensität - $I \propto A$.

geschlossen werden, da man für diese Art Quantenpunkte keine spektrale Diffusion aufgrund des Ätzprozesses hat nachweisen können [Seu00]. Stattdessen wird die Hauptursache für das Auftreten spektraler Diffusion und damit von Ladungsträgern in der Umgebung der Quantenpunkte im Vorhandensein von beim Wachstum entstandenen Stapelfehlern gesehen. Im Fall der hier untersuchten Quantenpunkte, die durch die Ablagerung von nominell 1.3 Monolagen CdSe auf ZnSe entstanden sind, wird keine Bildung solcher Stapelfehler beobachtet [Pas02].

Abschließend sei erwähnt, daß die zeitintegrierte, von den Mesen emittierte PL-Intensität linear mit der (tatsächlichen) Mesafläche A skaliert (siehe Abb. 6.8). Die tatsächliche Mesafläche wurde aus Feldemissionsmikroskopaufnahmen bestimmt. Die Kantenlängen sind ca. 40 nm größer als die nominelle Mesafläche. Der Ursprung der Abweichungen bei ca. 150 nm, 300 nm, 600 nm und 900 nm sind zur Zeit noch nicht vollständig geklärt, kann aber vermutlich auf Interferenzeffekten bedingt durch die Mesastrukturen zurückgeführt werden. Das Vorhandensein bereits von nur relativ geringen elektrischen Feldern (ca. 10^4 kV/cm²) würde zu einer zusätzlichen Verringerung der Intensität um eine Faktor von ca. 10 führen [Seu01].

Demnach ist zu folgern, daß die beobachteten Änderungen der Emissionsrate nicht hauptsächlich durch Trennung der Elektron- und Lochwellenfunktionen aufgrund lokaler Ladungen hervorgerufen werden. Die Ergebnisse der durchgeführten Messungen können somit als starkes Indiz für eine Kopplung der Quantenpunkte über ihr Strahlungsfeld gewertet werden.

Kapitel 7

Kohärente Dynamik lokal wechselwirkender Spins

Im Hinblick auf die Realisierung spinbasierter informationsverarbeitender Bauelemente werden verschiedenste Ansätze diskutiert [Wol01, Aws02]. Insbesondere bilden Halbleiterstrukturen die Basis für eine Vielzahl an Konzepten für solche Bauelemente sowohl für die Spintronik (z.B. Spingleichrichter [Fie99], Spinfilter [Slo03], Spintransistoren [Dat90, Kan98]) als auch die Quanteninformationsverarbeitung¹[Los98]. Selbst für die Kombination beider, einer kohärenten Spintronik, werden bereits Halbleiterstrukturen angedacht [Aws04]. Wegen ihrer vielversprechenden Skalierbarkeit erhalten besonders Quantenpunkte viel Aufmerksamkeit. Wie bereits in Kap. 4 gesehen unterstützt ihre diskrete Zustandsdichte die Stabilität möglicher Spinkonfigurationen sowohl von Elektronen wie auch von Löchern. Von besonderem Interesse sind semimagnetische Quantenpunkte [Los98, Efr01], da aufgrund der Austauschwechselwirkung zwischen Ladungsträgern und magnetischen Momenten im Kristallgitter ein Einfluß sowohl auf die Spinflipcharakteristik als auch die Kohärenzzeiten zu erwarten ist. Zudem bietet sich die Möglichkeit der Übertragung von Spininformation zwischen den beiden Spinsystemen. Da diese beiden Arten von Spinträgern (Mn^{2+} -Ionen und Exzitonen) wegen ihrer unterschiedlichen g Faktoren leicht unterschieden werden können, stellen sie ideale Teilsysteme dar um Informationen über die Spin-Spin-Wechselwirkung in Quantenpunkten zu erhalten.

Die kohärenten Eigenschaften nicht-magnetischer Quantenpunkte wurden bereits intensiv untersucht (siehe z.B. [Fli01, Gup02, Fli04, Tar04a]). Die daraus erhaltenen langen Spin-kohärenzzeiten für Elektronen und Löcher unterstützen die Idee, den Spinfreiheitsgrad in der Spintronik wie auch der Quanteninformationsverarbeitung zu verwenden, nachhaltig. Im Gegensatz dazu blieben Untersuchungen an semimagnetischen Quantenpunkten bisher auf nicht-kohärente Eigenschaften der Spin-Spin-Wechselwirkung beschränkt [Seu02, Jia03, Hun04]. Dies trifft auch auf Untersuchungen an einzelnen semimagnetischen Quantenpunkten zu [Bac02, Mać03a].

¹oder engl.: quantum information processing und quantum computation

In diesem Kapitel wird zunächst eine Charakterisierung der Quantenpunktproben durchgeführt. Dies beinhaltet eine Untersuchung der Auswirkung des Einbaus von Mn^{2+} -Ionen in die Quantenpunkte auf die Spinrelaxationszeit (T_1). Darauf aufbauend wird die kohärente Wechselwirkung zwischen stark lokalisierten Spinträgern und den in die Halbleiter-Quantenpunkte eingebauten magnetischen Momente der Mn^{2+} -Ionen analysiert. Es wird gezeigt, daß es durch Erhöhung der Mn-Konzentration in den Quantenpunkten zu einer Phasenverschiebung des kohärenten Spintransfers zwischen den beiden Spinsystemen aufgrund einer Vorzeichenumkehr des effektiven g Faktors der Exzitonen kommt. Zudem werden die Auswirkungen der geringen Dimensionalität der Quantenpunkte auf die Spin-kohärenz beider, der Ladungsträgerspins und der Mn^{2+} -Spins, aufgezeigt.

7.1 Charakterisierung der Cd(Mn)Se/ZnSe Quantenpunktproben

Für die angestrebten Untersuchungen wurden insgesamt fünf epitaktisch gewachsene Proben mit unterschiedlicher nomineller Mn-Konzentration verwendet - $x_{Mn}=0, 0.005, 0.01, 0.02$ und 0.04 . Der Aufbau dieser Proben ist im Anh. A zu finden. Aus STEM-Aufnahmen² kann die Größe der Quantenpunkte abgeschätzt werden (siehe Abb. 7.1). Dabei kann der Durchmesser mit 10 nm und die Höhe mit 3.5 nm angegeben werden. Die auf nulldimensionale Zustände hindeutende diskrete Natur der Zustandsdichte wurde für diese Proben durch hoch orts aufgelöste PL-Spektroskopie an Nanometer großen Mesen nachgewiesen. Dabei treten bei Verringerung der untersuchten Probenfläche einzelne diskrete Linien im PL-Spektrum auf (siehe Abb. 7.2). Daraus ist zu schließen, daß die in Abb. 7.1 gezeigten Strukturen tatsächlich zu einem dreidimensionalen Einschluß der Ladungsträger führen. Somit ist gezeigt, daß es auch unter Zugabe von Mangan beim Wachstum zur Bildung von Quantenpunkten kommt. Im Gegensatz zu höher Mn-dotierten Proben weisen die hier beobachteten einzelnen diskreten PL-Linien überwiegend keine deutlich verbreiterte Linienbreite auf (siehe z.B. [Bac01]).

In Abb. 7.4 und Abb. 7.3 sind weitergehende auf PL-Spektroskopie beruhende Charakterisierungen der Quantenpunktensembles zusammengestellt. Die spektrale Lage des Maximums der von den Quantenpunkten emittierten PL variiert unter den Proben um weniger als 2% . Im Fall $x_{Mn} \leq 0.02$ beträgt die spektrale Breite des PL-Signals $FWHM = 36\text{ meV} \pm 2.5\text{ meV}$ ³ und die aus strikt resonanten Messungen erhaltenen strahlenden Lebensdauern unterscheiden sich im Rahmen der Auflösung kaum [Sch03]. Daraus ist zu schließen, daß sowohl Größe wie auch Fluktuationen (in Form und Zusammensetzung) der Quantenpunkte in diesen Proben vergleichbar sind. Insbesondere bedeutet dies, daß offensichtlich keine strukturellen Veränderungen durch den Einbau der Mn-Ionen vorliegen.

²STEM: scanning transmission electron microscopy

³FWHM: Volle Breite bei der Hälfte des Maximalwertes (Full Width at half maximum).

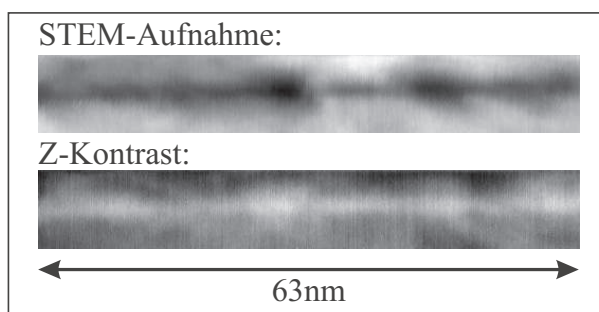


Abb. 7.1: *Oben:* Typische STEM-Aufnahme der Cd(Mn)Se/ZnSe Quantenpunkte. *Unten:* Z-Kontrast-Aufnahme. Die STEM-Messungen wurden von A. Sauerwald und T. Kümmell am Lehrstuhl für Werkstoffe der Elektrotechnik der Universität Duisburg-Essen durchgeführt.

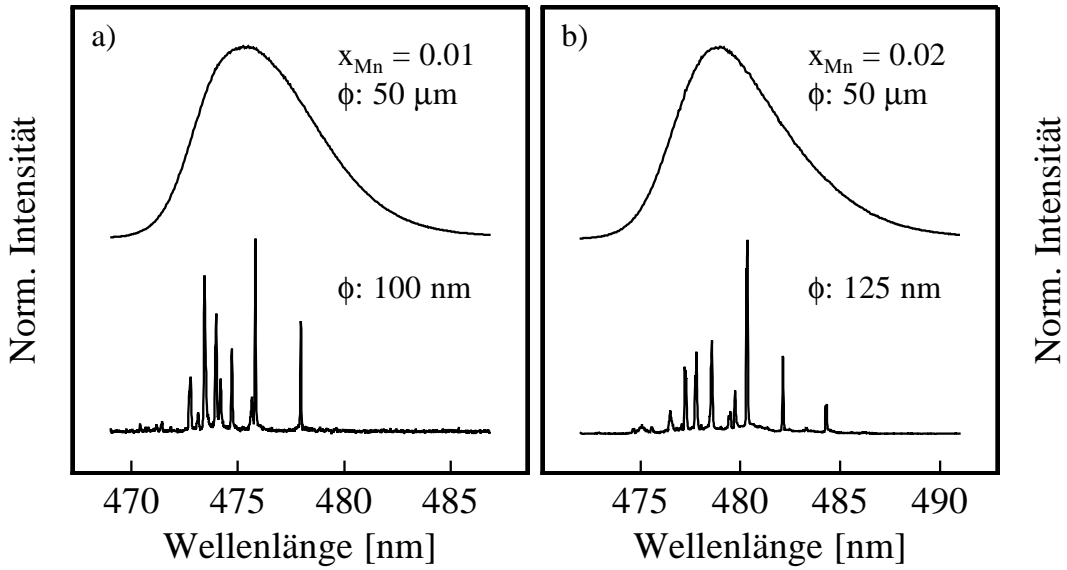


Abb. 7.2: *PL-Spektren der Proben mit a) $x_{Mn} = 0.01$ und b) $x_{Mn} = 0.02$. Jeweils oben Spektrum der entsprechenden Probe bei geringer lateraler Ortsauflösung ($50 \mu\text{m}$) und unten Spektrum bei hoher lateraler Ortsauflösung (100 nm bzw. 125 nm). Diese Messungen wurden von H. Schömig (Technische Physik Universität Würzburg) durchgeführt.*

Die Probe mit $x_{Mn} = 0.04$ zeigt eine etwas größere PL-Linienbreite $FWHM = 53.5 \text{ meV}$ und eine reduzierte Strahlungslebensdauer (Faktor ≈ 3). Vor allem die Änderung der Lebensdauer ist auf einen deutlich verstärkten Energietransfer zu Mn-internen Übergängen zurückführbar [Seu02].

Aufgrund der sp-d-Austauschwechselwirkung wäre eine Beeinflussung der Polarisationszustände der Exzitonen zu erwarten. Für Abb. 7.4 wurden aus diesem Grund Untersuchungen der Polarisationsdynamik unter strikt resonanten Bedingungen durchgeführt. Im Vergleich zu der bereits bekannten Dynamik der Probe S0863 ($x_{Mn} = 0$), zeigen die Quantenpunkte mit $x_{Mn} = 0.01$ (Probe CB2133) bis auf einen geringeren Anfangspolarisationsgrad keine signifikante Änderung (Abb. 7.4a)). Der Anfangspolarisationsgrad variiert zwar mit der spektralen Lage innerhalb des jeweiligen PL-Spektrums, eine deutliche Systematik zwischen den Proben mit $x_{Mn} = 0$ (Probe CB2210), $x_{Mn} = 0.005$ (Probe CB2132), $x_{Mn} = 0.01$ (Probe CB2133) und $x_{Mn} = 0.02$ (Probe CB2134) ist nicht erkennbar. Der Einbau geringer Mengen von Mangan, scheint folglich keinen signifikanten Einfluß auf die Exzitoneigenzustände zu haben.

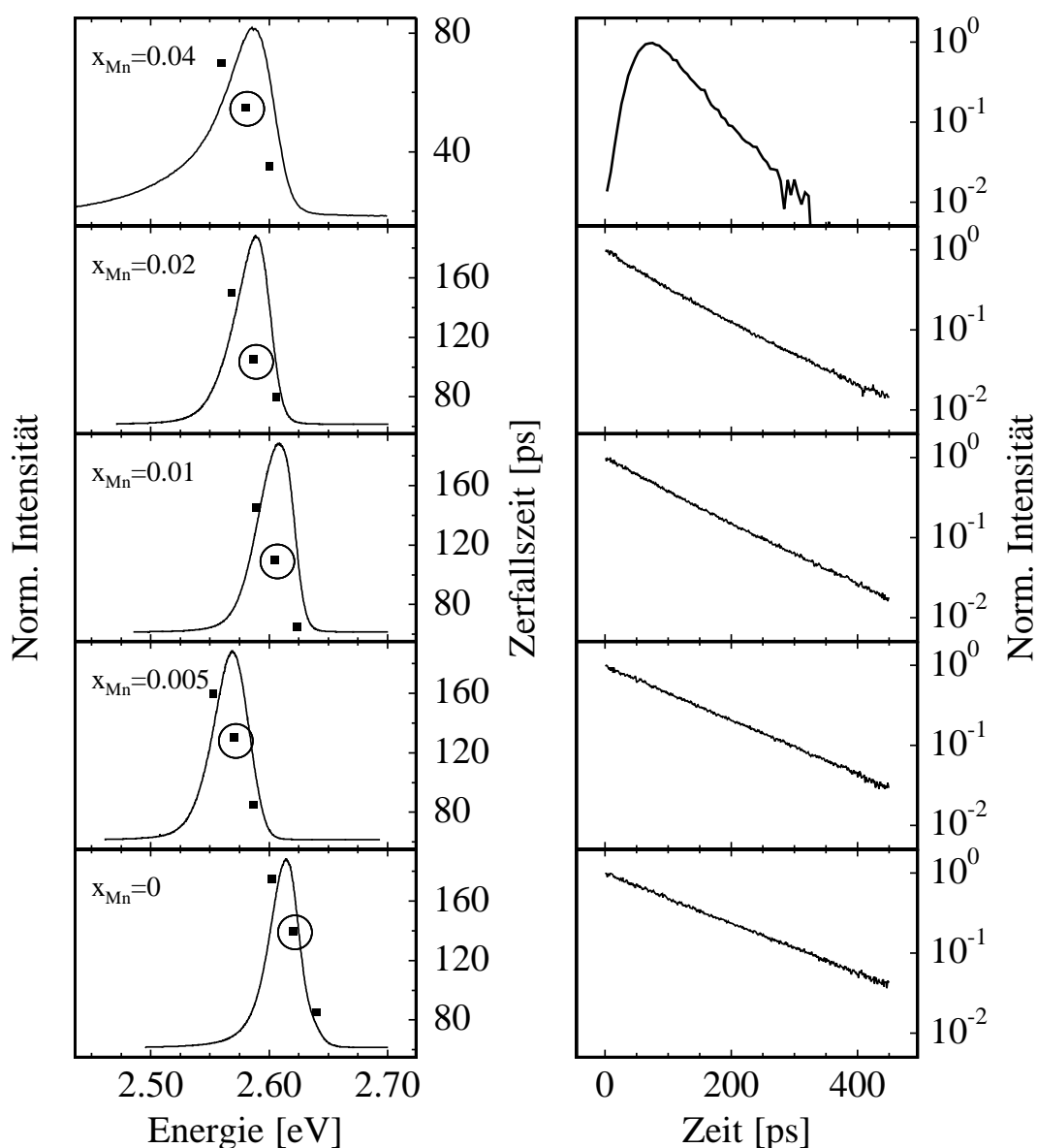


Abb. 7.3: PL-Charakterisierung der Cd(Mn)Se/ZnSe Quantenpunktensembles. **Links:** PL-Spektren (Linien / linke Achse) aus nicht resonanten Messungen und PL Zerfallszeiten (Quadrate / rechte Achse) aus strikt ($x_{Mn} \leq 0.02$) bzw. quasi resonanten ($x_{Mn} = 0.04$) Messungen. **Rechts:** Zeitaufgelöstes PL-Signal der links durch Kreise markierten Datenpunkte. Im Fall $x_{Mn} = 0.04$ konnten aufgrund der deutlich geringeren Quantenausbeute (\approx Faktor 100) nur quasi resonante Messungen ($\lambda_{Laser} = 463$ nm) (durchgeführt werden).

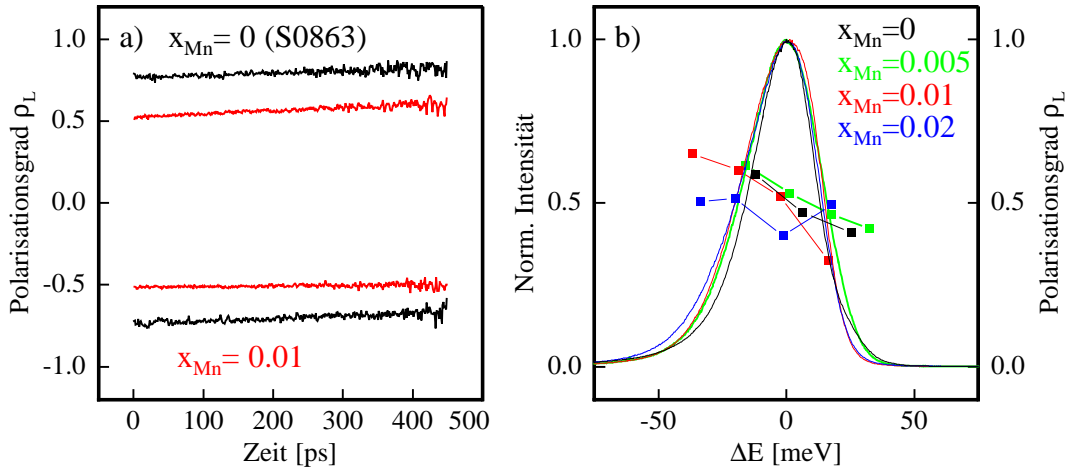


Abb. 7.4: PL-Charakterisierung der Cd(Mn)Se/ZnSe Quantenpunktensembles. **Links:** Vergleich der Polarisationsdynamik unter strikt resonanten Bedingungen einer Probe ohne Mangan (Probe S0863) und der Probe mit $x_{Mn} = 0.01$ (Probe CB2133). **Rechts:** Polarisationsgrade (rechte Hochwertachse) bei $t \approx 0$ ps der Proben Cb2210 ($x_{Mn} = 0$), CB2132 ($x_{Mn} = 0.005$), CB2133 ($x_{Mn} = 0.01$) und CB2134 ($x_{Mn} = 0.02$) in Abhängigkeit der relativen spektralen Lage innerhalb des PL-Spektrums (linke Hochwertachse) der jeweiligen Probe

7.2 Zeitaufgelöste Kerr-Rotation am Quantenpunkt-Ensemble

Abb. 7.5 zeigt das typische Signal einer zeitaufgelösten Kerr-Rotationsmessung an einem Ensemble von CdSe/ZnSe Quantenpunkten⁴ in einem Magnetfeld von $B = 1$ T (bzw. $B = 6$ T). Deutlich zu erkennen ist, daß das Signal zwei zeitlich von einander getrennte Anteile (einen negativen und einen positiven) besitzt. Durch Variation des externen Magnetfeldes tritt keine merkliche Veränderung dieses Signals ein. Wie es auch später bei den Mn-dotierten Quantenpunkten zu sehen sein wird, ist der scharfe negative Ausschlag des Signals um $t = 0$ ps immer vorhanden. Aufgrund der zeitlichen Lage, der Dauer und der Unabhängigkeit von Wellenlänge und Materialsystem (siehe auch Kap. 8) ist dieses Signal dem räumlichen und zeitlichen Überlapp von Pump- und Probepuls zuzuschreiben. Dies ist in Übereinstimmung mit Beobachtungen bei anderen Pump-Probe-Experimenten und wird in der Literatur als *kohärentes Artefakt* bezeichnet [Kli97, Kai93]. Es entspricht im wesentlichen dem Korrelationssignal der beiden Laserpulse. Die zweite und wichtigere Struktur ist der zu größeren Verzögerungen hin relativ schnell monoton abfallende Teil des Signals. Im Gegensatz zum kohärenten Artefakt ist, wie später zu sehen, dieser Teil stark abhängig von der Mn-Konzentration. Für den Fall $x_{Mn} \leq 0.005$ (siehe Abb. 7.5 und Abb. 7.6a) können keine oszillatorischen Komponenten, wie z.B. durch Präzession von Elektronenspins um das externe Magnetfeld, beobachtet werden. Stattdessen zeigt sich ein monoton abfallendes Signal. Die charakteristischen Zerfallskonstanten betragen 6 ps

⁴Gemessen an der Probe CB2210

($x_{Mn} = 0$) und 25 ps ($x_{Mn} = 0.005$). Die Erklärung des relativ schnellen Abfalls des Kerr-Signals lehnt sich an Argumente von Nickolaus *et al.* an [Nic98]. Dabei werden vornehmlich exzitonische Eigenschaften berücksichtigt: Das Verschwinden des Signals ist demnach eher eine Folge der inhomogenen Verteilung der Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung als eine 'tatsächliche' Spindekohärenz der spinbehafteten Teilchen im Quantenpunktgrundzustand. Die resonante Anregung eines einzelnen Quantenpunktes mit zirkular polarisiertem Licht führt zu einer kohärenten Oszillation des ausgesandten optischen Signals, deren Frequenz ω von der Austauschaufspaltung δ_1 des Grundzustands bestimmt ist [Fli01, Tar04b]. Das Ensemble Signal ergibt sich folglich durch Überlagerung (Summation) aller möglichen Frequenzen, die die Quantenpunkte im Ensemble charakterisieren. Dies erzeugt ein schnell abfallendes Kerr-Signal. Wird für die Verteilung der Austauschaufspaltung (δ_1) eine Gauß-Funktion

$$D(\delta_1) = \exp(-(\delta_1/\sqrt{2}\sigma_{\delta_1})^2) \quad (7.1)$$

mit der Varianz σ_{δ_1} angenommen, so ist folgende Form des Kerr-Signals bei unendlicher Spinlebensdauer zu erwarten:

$$TRKR(t) \propto \int_{-\infty}^{\infty} D(\delta_1) \cos\left(\frac{\delta_1 t}{\hbar}\right) d\delta_1 = \exp\left(-\frac{(t\sigma_{\delta_1}/\hbar)^2}{2}\right). \quad (7.2)$$

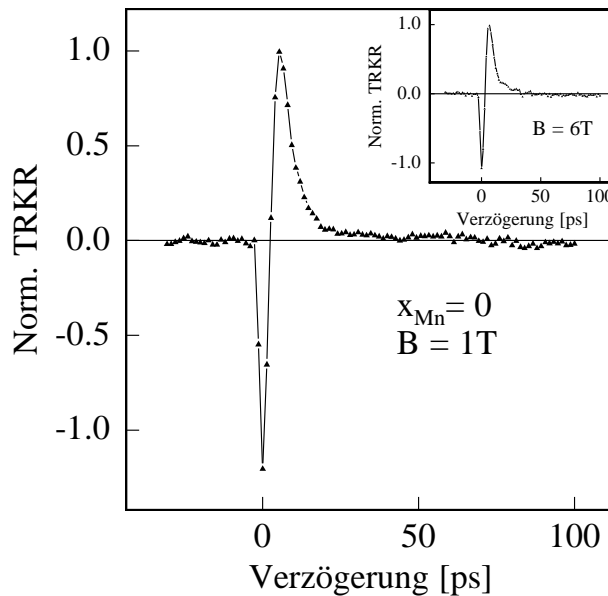


Abb. 7.5: TRKR-Signal eines Ensembles aus CdSe/ZnSe Quantenpunkten in einem Magnetfeld von $B = 1$ T und $B = 6$ T (Bildeinschub).

Das Ergebnis dieser Überlegung macht deutlich, daß die beobachtete Abnahme des Kerr-Signals stark von der Homogenität der Quantenpunkte abhängen kann. Solange T_2^* größer als die durch den Betrag der Elektron-Loch-Austauschspaltung $|\delta_1|$ gegebene Schwingungsperiode ist ($T_2^* > \hbar/|\delta_1|$), stellen die aus den Daten ermittelten charakteristischen Zerfallszeiten nur eine untere Grenze für die Kohärenzzeiten T_2^* der Exzitonen dar. Sogenannte eingefrorene Lochspins können insofern als Ursache für das monoton abfallende Kerr-Signal ausgeschlossen werden, da keine Oszillationen aufgrund präzedierender Elektronenspins für $x_{Mn} \leq 0.005$ zu sehen sind. Der stark anisotropen g-Faktor der Löcher in Quantenpunkten verhindert deren Präzession um das externe Magnetfeld. Demnach wird nur eine Änderung des Lochspins durch Spinflipprozesse erwartet, die zu einem monoton abfallenden Signal führen. Die Elektronen hingegen, können um das externe Magnetfeld präzedieren und sollten somit einen oszillatorischen Beitrag zum Signal liefern, wie dies z.B. bei Crooker *et al.* [Cro96] zu sehen ist. Zudem wird keine signifikante Änderung des nicht oszillierenden Kerr-Signals bei Änderung des externen Magnetfeldes beobachtet. Dies wiederum ist in Übereinstimmung mit der Tatsache, daß die Exzitongrundzustandsaufspaltung in Voigt-Geometrie nur schwach magnetfeldabhängig ist [Pul99] (siehe auch Abb. 2.5).

7.3 Kohärenter Spintransfer

Eine Änderung der Situation tritt ein, wenn die Mn-Konzentration weiter erhöht wird. Dem allgemeinen Abfall des Kerr-Signals überlagert sich ab $x_{Mn} = 0.01$ eine periodische Oszillation. Vergleicht man die Kerr-Signale der Quantenpunkte mit unterschiedlicher Mn-Konzentration miteinander, so sind mehrere interessante Aspekte festzustellen. Erstens, mit zunehmender nomineller Mn-Konzentration verstärkt sich der oszillierende Anteil des Signals. Bereits dies deutet auf die Präzession der Mn-Spins um das Magnetfeld als Ursache der im Signal sichtbaren Oszillationen⁵. Tatsächlich läßt sich aus der Oszillationsperiode T bei großen Pump-Probe-Verzögerungen ($t > 200$ ps) mittels $\hbar/T = g\mu_B B$ ein g Faktor von 1.98 bestimmen, was gut mit dem aus der Literatur bekannten Wert für Mn von ca. 2 übereinstimmt⁶. Bedenkt man die resonante Natur des Experiments, so bezeugt das Auftreten der Oszillation der Mn-Spins zum einen den Einbau der Mn-Ionen in die Kristallmatrix der Quantenpunkte und zum anderen, daß selbst bei starker räumlicher Eingrenzung der Spinträger ein kohärenter Spintransfer stattfindet. Desweiteren nimmt das den Exzitonen zuzuschreibende asymmetrische Hintergrundsignal mit zunehmendem x_{Mn} schneller ab. Trotzdem ist zu betonen, daß man selbst im Fall $x_{Mn} = 0.01$, in dem

⁵Aufgrund der niedrigen Konzentration an Mn-Ionen ist für $x_{Mn} = 0.005$ eine nur sehr kleine Oszillationsamplitude zu erwarten. Tatsächlich deuten sich in hohen Magnetfeldern ($B = 6$ T) bei sehr geringen Verzögerungszeiten Oszillationen an (nicht dargestellt).

⁶Geringfügige Variationen im Wert des g-Faktors können durch Geometrie und Symmetrie des jeweiligen Systems bedingt sein [Jia03].

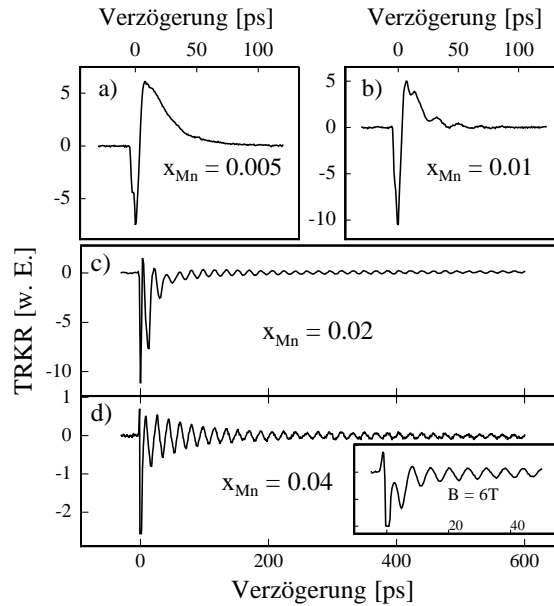


Abb. 7.6: Zeitaufgelöste Kerr-Signale von Quantenpunkten mit unterschiedlicher Mn-Konzentration x_{Mn} bei $B = 2 T$ (bzw. $B = 6 T$ im Bildeinschub **d**). **a)** $x_{Mn} = 0.005$, **b)** $x_{Mn} = 0.01$, **c)** $x_{Mn} = 0.02$ und **d)** $x_{Mn} = 0.04$.

die Oszillationen das Vorhandensein von magnetischen Ionen in den Quantenpunkten beweisen, ein $T_2^* > 20$ ps aus der generellen Abnahme des mit den Exzitonen verbundenen Kerr-Signals erhält. D.h., die T_2^* -Zeit sowohl der Elektronen *wie auch* der Löcher übertrifft diesen Wert. Insbesondere für die Löcher bedeutet dies eine um einen Faktor von mindestens 5-10 längere Spinkohärenzzeit im Vergleich zu höherdimensionalen Systemen [Cro97, Aki98]. Die weitere Erhöhung der Mn-Konzentration resultiert in einer drastischen Verkürzung der exzitonischen T_2^* -Zeit, wie es aus den Daten für $x_{Mn} = 0.04$ zu erkennen ist (siehe Abb.7.6d). Nur in hohen Magnetfeldern läßt sich hier das von den Exzitonen stammende Signal noch auflösen. Es sei noch einmal darauf hingewiesen, daß diese Messungen an Quantenpunktensembles nur eine untere Grenze für die T_2^* -Zeit liefern können.

7.4 Änderung des effektiven g-Faktors

Ein weiteres interessantes Phänomen kann beim Übergang von $x_{Mn} = 0.01$ zu $x_{Mn} = 0.02$ beobachtet werden (siehe Abb.7.6 und Abb.7.7). Dort wechselt das exzitonische Hintergrundsignal offensichtlich das Vorzeichen. Dies kann einer Umkehrung der Zeeman-Aufspaltung zugeschrieben werden. An dieser Stelle ist anzumerken, daß der für die Kerr-Rotation verantwortliche Brechungsindexunterschied zwischen rechts und links zirkular polarisiertem Licht in der Umgebung eines optischen Übergangs in der Regel auch sein

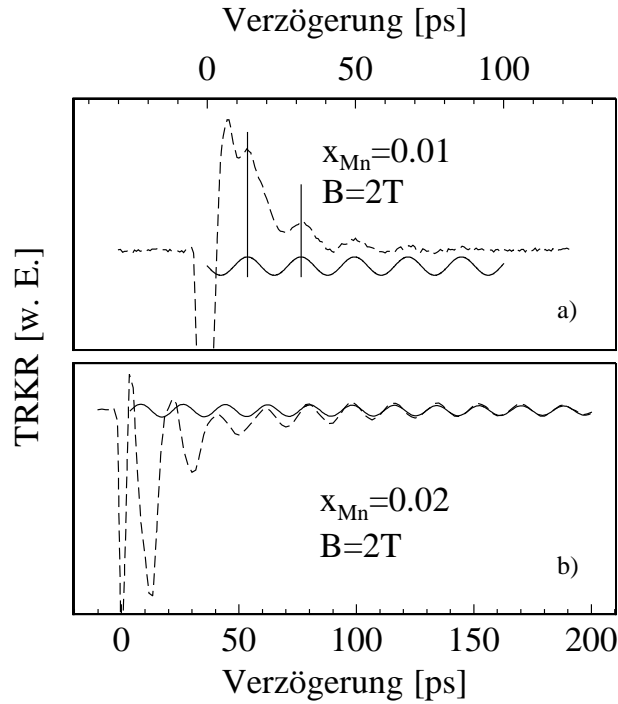


Abb. 7.7: Kerr-Signal versus Verzögerungszeit in einem Feld von $B = 2 \text{ T}$. **a)** Vergleich zwischen dem Signal bei $x_{Mn} = 0.01$ (gestrichelte Linie) und einer zu $t = 0 \text{ ps}$ hin extrapolierten, an die Oszillationsperiode der Daten angepassten Sinusfunktion (durchgezogene Linie). **b)** Vergleich zwischen dem Signal bei $x_{Mn} = 0.02$ (gestrichelte Linie) und einem zu $t = 0 \text{ ps}$ hin extrapolierten Fit der Daten bei $t > 200 \text{ ps}$ (durchgezogene Linie).

Vorzeichen wechselt (siehe Abb. 2.8 oder [Cro95]). Dies wird bei einzelnen energetisch scharfen Resonanzen auch beobachtet. Im Quantenpunktensemble tragen allerdings an jeder Stelle des Spektrums viele Resonanzen der einzelnen Quantenpunkte zum Signal bei. D.h. es ist bei Verschiebung der Laserenergie innerhalb des Spektrums nicht notwendigerweise mit einem Vorzeichenwechsel des Kerr-Signals zu rechnen. Im gesamten Bereich, in dem ein Kerr-Signal nachweisbar war, konnte kein Vorzeichenwechsel des Signals bei einer festen Verzögerungszeit festgestellt werden. Der fehlende Vorzeichenwechsel im TRKR-Spektrum ist somit auch ein indirekter Nachweis dafür, daß es sich bei den untersuchten Strukturen um ein Ensemble von Quantenpunkten handelt (viele Resonanzen) und nicht um eine scharfe Resonanz (wie z.B. bei einem Quantenfilm). Die Zeeman-Aufspaltung ΔE_Z von Exzitonen in semimagnetischen Halbleitern setzt sich aus einem Beitrag durch den Band-g-Faktor g_0 und einem Beitrag, der die über die magnetischen Momente des Kristallgitters vermittelte Wechselwirkung zwischen den Ladungsträgern und dem Magnetfeld beschreibt, zusammen [Bac02, Lee90]⁷:

⁷siehe auch Glg. (2.35)

$$\Delta E_Z = g_0 \mu_B B + (\alpha - \beta) x_{Mn} N_0 S_{eff} \mathcal{B}_{5/2} \left(\frac{5 \mu_B g_{Mn} B}{2 k_B T_{eff}} \right) \quad (7.3)$$

Hierbei ist B das externe Magnetfeld, g_{Mn} der g-Faktor der Mn-Elektronen, N_0 die Anzahl der Kationen pro Volumeneinheit, $\mathcal{B}_{5/2}(\frac{5 \mu_B g_{Mn} B}{2 k_B T_{eff}})$ bezeichnet die Brillouin-Funktion des Mn-Spin-5/2 Systems und α und β stehen entsprechend für die Austauschkonstanten von Elektronen und Löcher. Ebenso berücksichtigt dieser Ausdruck die phänomenologischen Parameter S_{eff} und T_{eff} , welche die antiferromagnetische Wechselwirkung benachbarter Mn-Spins beschreiben [Gaj79].

Aus Glg. (7.3) ist ersichtlich, daß bei $x_{Mn} = 0$ allein der Term des Band-g-Faktors einen Beitrag liefert. Aus Magneto-PL-Messungen läßt sich für $x_{Mn} = 0$ ein negativer g-Faktor ableiten. Der Einbau von immer mehr Mn-Atomen in die Quantenpunkte steigert den Beitrag des zweiten Terms in Glg. (7.3) und führt für $x_{Mn} \geq 0.02$ zu einer positiven Zeeman-Aufspaltung bzw. einem positiven effektiven g-Faktor g_{eff} .

$$g_{eff} = \frac{1}{\mu_B} \frac{d\Delta E_Z}{dB} = g_0 + \frac{d}{dB} \left(\frac{(\alpha - \beta) x_{Mn} N_0 S_{eff}}{\mu_B} \mathcal{B}_{5/2} \left(\frac{5 \mu_B g_{Mn} B}{2 k_B T_{eff}} \right) \right) \quad (7.4)$$

Bei genauer Betrachtung ist festzustellen, daß ein solcher Vorzeichenwechsel bereits bei einer deutlich geringeren Mn-Konzentration (ca. Faktor 10) stattfinden müßte. Dies ergibt sich allerdings unter Verwendung der Parameter für Volumenmaterial. Bei starkem räumlichen Einschluß der Ladungsträger, kann es zu einer starken Verringerung der Austauschkonstanten kommen [Mer99]. Desweiteren kann aufgrund des endlichen Einschlußpotentials davon ausgegangen werden, daß die Wellenfunktionen von Elektron und Loch zum Teil auch in das nicht mit Mn-Ionen dotierte Barrierematerial ragen. Ein Vorzeichenwechsel des effektiven g-Faktors ist auch von anderen semimagnetischen Halbleitern bekannt [Mać03a, Bac03]. Nach Abschn. 2.7.3 führt dies, wie im Experiment zu sehen, zu einer Vorzeichenumkehr des Kerr-Signals.

Zum Verständnis der vollständigen Dynamik der lokal miteinander wechselwirkenden Spins ist es von immenser Bedeutung zu wissen, wie die Präzession der einzelnen Spinträger beginnt. Wie bereits von Crooker *et al.* [Cro97] beschrieben sollte das den photoinjizierten Spins zugeschriebene Signal mit maximaler Amplitude beginnen. Ursache dafür ist, daß die Anregung mit zirkular polarisiertem Licht erfolgt und damit die Spins der photoinjizierten Ladungsträger zunächst in bzw. gegen die Strahlrichtung orientiert sind. Im Magnetfeld beginnen diese und damit auch ihr magnetisches Moment sodann kosinusartig zu oszillieren. Das von den Mn-Spins stammende Signal hingegen sollte sinusartig, also mit verschwindender Amplitude bei $t = 0$ beginnen. Bevor die Exzitonen durch den Laser injiziert werden, sind die Mn-Spins entlang des äußeren Magnetfeldes ausgerichtet. Folglich liefern sie keinen Beitrag zur Magnetisierung des Materials in Wachstumsrichtung

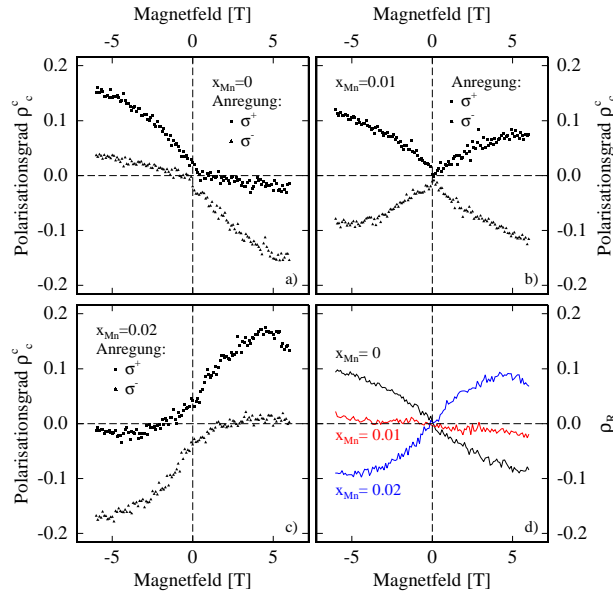


Abb. 7.8: a)-c) Zirkularer Polarisationsgrad der Quantenpunkt-PL in Abhängigkeit eines in Faraday-Geometrie angelegten Magnetfeldes für a) $x_{Mn} = 0$, b) $x_{Mn} = 0.01$ und c) $x_{Mn} = 0.02$. Die Anregung erfolgte sowohl mit rechts (Quadrate) als auch mit links (Dreiecke) zirkular polarisiertem Licht. d) Durch Relaxation bedingter Anteil der Polarisationsgrade für $x_{Mn} = 0$ (schwarz), $x_{Mn} = 0.01$ (rot) und $x_{Mn} = 0.02$ (blau).

(Richtung des Laserstrahls). Vergleicht man die durch die Mn-Spins hervorgerufenen Kerr-Signale der Proben mit $x_{Mn} = 0.01$ und $x_{Mn} = 0.02$, so stellt man ebenfalls eine deutliche Phasenverschiebung um π fest (siehe Abb.7.7). Hierbei sei angemerkt, daß das zu frühen Verzögerungszeiten gemessene Kerr-Signal eine Überlagerung der Mn-Oszillation und einer Oszillation aufgrund der Spinpräzession von Elektronen ist (siehe Abschn. 7.5). Die tatsächliche Phasenverschiebung kann damit nur für große Verzögerungszeiten beobachtet werden. Dies ist eine direkte Konsequenz des zwischen $x_{Mn} = 0.01$ und $x_{Mn} = 0.02$ auftretenden Vorzeichenwechsels des exzitonischen g-Faktors. Daß es sich um einen realen Vorzeichenwechsel des exzitonischen g-Faktors handelt wird zudem durch Messungen des Polarisationsgrades der PL in Abhängigkeit des Magnetfeldes (Faraday-Geometrie) bestätigt (siehe Abb. 7.8). Für diese Messung wurden die Quantenpunktensembles mit zirkular polarisiertem Licht angeregt. Gemessen wurde der Grad der Zirkularpolarisation des emittierten PL-Signals in Abhängigkeit des angelegten Magnetfeldes jeweils am Maximum des PL-Spektrums bei $B = 0$ T mit geringer spektraler Auflösung. Bei der Messung am Ensemble und geringer spektrale Auflösung können bei geringen bis moderaten g-Faktoren Effekte aufgrund von Linienverschiebungen vernachlässigt werden. Bestimmt durch das Vorzeichen des g-Faktors der Exzitonen und der Richtung des Magnetfeldes ist entweder der Exzitonenzustand $|+1\rangle$ oder der Exzitonenzustand $|-1\rangle$ energetisch günstiger. Bei unpolarisierter Anregung ist zu erwarten, daß der jeweils energetisch günstigere Zustand aufgrund von Relaxation im zeitlichen Mittel stärker besetzt ist. Das Vorzeichen

der Steigung des Polarisationsgrades läßt auf das Vorzeichen des g-Faktors schließen⁸. Bei Anregung mit zirkular polarisiertem Licht wird dem System eine gewisse Vorpolarisation aufgezwungen. Dieses Verhalten wird als optische Orientierung bezeichnet. Abhängig von der Richtung der Zeeman-Aufspaltung verstärkt bzw. schwächt dies den zeitlich gemittelten Polarisationsgrad (Unstetigkeiten in der Steigung der Polarisationsgrade in Abb. 7.8 bei $B = 0$ T).

Die beiden Beiträge, optische Orientierung und Relaxation, zum Polarisationsgrad lassen sich mathematisch voneinander trennen, da der Beitrag durch die optische Orientierung (ρ_O) im Gegensatz zum Beitrag durch Relaxation (ρ_R) von der Polarisation der Anregung abhängt. D.h. für die zirkularen Polarisationsgrade bei Anregung mit rechts- bzw. linkszirkular polarisiertem Licht gilt:

$$\rho_c^+ = \rho_R + \rho_O \quad \text{bzw.} \quad \rho_c^- = \rho_R - \rho_O \quad (7.5)$$

In Abb. 7.8 d) ist für $x_{Mn} = 0, 0.01$ und 0.02 der durch Relaxation bedingte Anteil dargestellt. Während die für $x_{Mn} = 0.01$ noch leicht negative Steigung von ρ_R einen im Vergleich zu $x_{Mn} = 0$ verringerten g-Faktor andeutet, so ist die für $x_{Mn} = 0.02$ positive Steigung ein deutliches Zeichen dafür, daß ein Vorzeichenwechsel der Zeeman-Aufspaltung und damit des effektiven g-Faktors stattgefunden hat.

In diesem Zusammenhang sei auch auf den signifikant von Null verschiedenen Polarisationsgrad im Fall $x_{Mn} = 0.02$ bei einem Magnetfeld von $B = 0$ T hingewiesen. Nach S. Mackowski *et al.* deutet dies auf die Bildung magnetischer Polaronen in den Quantenpunkten hin. Die Beobachtbarkeit der Polaronbildung wiederum läßt darauf schließen, daß sich das magnetische Polaron auf einer Zeitskala vergleichbar bzw. geringer als die Spinrelaxationszeit des Exzitons bildet [Mać04]. Umgekehrt bedeutet dies, daß die longitudinale Spinrelaxationszeit der Exzitonen vergleichbar oder länger als die Lebensdauer der Exzitonen ist, da die Bildungszeit nulldimensionaler Polaronen in ähnlichen Quantenpunktstrukturen zu 125 ps bestimmt wurde [Seu02].

7.5 Entkopplung der korrelierten Elektron und Loch Präzession

Ab einer gewissen Mn-Konzentration ist die Bedingung $T_2^* > \hbar/|\delta_1|$ für die Beobachtung des exzitonischen Merkmales im Kerr-Signal nicht mehr gegeben (siehe auch Abschn. 7.2). Einerseits kann sich die T_2^* -Zeit durch intensivere Wechselwirkung mit den fluktuierenden magnetischen Momenten in den Quantenpunkten verkürzen. Andererseits kann

⁸Zum absoluten Wert der Steigung trägt neben dem g-Faktor auch das Verhältnis aus Spinrelaxationszeit und Rekombinationszeit bei, weshalb nur bedingt auf einen Wert des g-Faktors geschlossen werden kann.

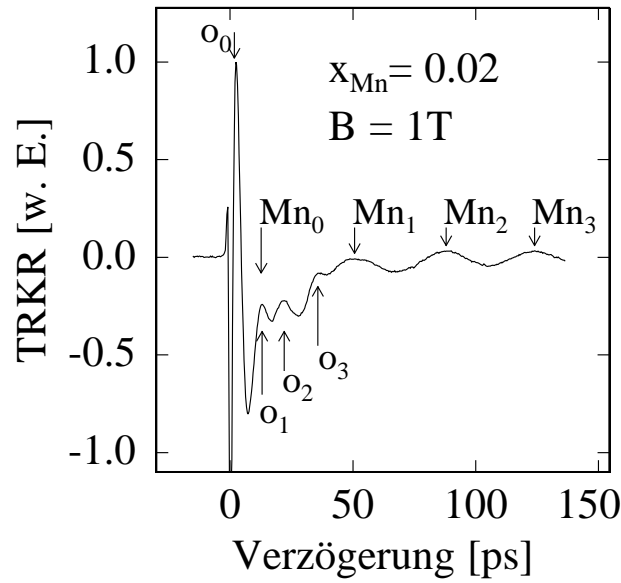


Abb. 7.9: Kerr-Signal für $x_{Mn} = 0.02$ und $B = 1$ T um $t = 0$ ps. Mn_0 bis Mn_3 und o_0 bis o_3 indizieren entsprechend die Maxima der Mn-Oszillation und der der photoinjizierten Spins.

erwartet werden, daß die spd-Austauschwechselwirkung die Elektron-Loch-Austauschspaltung übersteigt, und somit die Kopplung von Elektron und Loch im Quantenpunkt aufhebt. Oder in anderen Worten, die Elektron-Loch-Austauschspaltung δ_1 wird stark reduziert. Tritt dieser Fall für mehr und mehr Quantenpunkte ein, so müßten die exzitonen Merkmale im Kerr-Signal immer weiter abnehmen.

Wechselwirken Elektronen und Löcher 'separat' mit den magnetischen Momenten der Mn-Ionen, so sollten sich dafür Anzeichen im Kerr-Signal finden lassen. Wie aus Abb. 7.9 ersichtlich, kann bei einem äußeren Magnetfeld von $B = 1$ T zusätzlich zu der Oszillation der Mn-Spins eine weitere schnellere Oszillation aufgelöst werden (o_0 bis o_3). Die Beobachtung, daß diese Signalkomponente kosinusartig beginnt, deutet auf photo-injizierte Spinträger als Ursprung hin. Die leichte Unregelmäßigkeit in der Oszillationsperiode mag auf die durch die Lokalisation bedingte Wechselwirkung mit den Mn-Spins zurückzuführen sein. Aus der (mittleren) Oszillationsperiode läßt sich ein effektiver g-Faktor von $g_o = +6.7$ bei $B = 1$ T ableiten. Für Elektronen in CdSe/ZnSe Quantenpunkten wird der intrinsische g-Faktor senkrecht zur Wachstumsrichtung in der Literatur mit einem Wert von 1.25 angegeben [Pul99]. Der intrinsische g-Faktor der Löcher wird aufgrund einer starken Anisotropie mit $g_h \approx 0$ angegeben [Dor03]. Eine Oszillation der Löcher ist daher nicht zu erwarten.

Das Auftreten der schnellen Oszillation bestätigt das in semimagnetischen Halbleitern allgemein beobachtete Phänomen eines erhöhten effektiven g-Faktors.

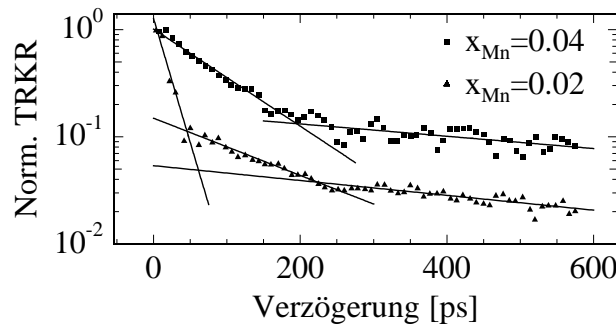


Abb. 7.10: Logarithmische Auftragung der Amplitude der Mn-Oszillation für $x_{Mn} = 0.02$ (Dreiecke) und $x_{Mn} = 0.04$ (Vierecke). Zerfallskonstanten: 20 ps, 160 ps und 630 ps bei $x_{Mn} = 0.02$ und 100 ps und 760 ps bei $x_{Mn} = 0.04$.

7.6 Dekohärenz der Mn-Spins

Um Informationen über die Kohärenzzeit der Mn-Spins in diesen semimagnetischen Quantenpunkten zu erhalten, ist es lohnenswert die beobachteten Oszillationen genauer zu analysieren. Betrachtet man die Kerr-Signale der Proben mit $x_{Mn} = 0.02$ und $x_{Mn} = 0.04$ (siehe Abb. 7.6 c) und d)), so scheint die Abnahme der Amplitude der Mn-Oszillation nicht einfach exponentiell zu verlaufen. Zu frühen Zeiten, in denen sich die Exzitonen noch in den Quantenpunkten befinden, nimmt die Oszillationsamplitude schneller ab als zu späteren Zeiten, in denen das den Exzitonen zugeordnete Signal bereits verschwunden ist. In Abb. 7.10 ist die Amplitude der beobachteten Oszillationen gegen die Pump-Probe-Verzögerung für die beiden Fälle $x_{Mn} = 0.02$ und $x_{Mn} = 0.04$ auf einer logarithmischen Skala aufgetragen. Zunächst soll das Verhalten im Fall $x_{Mn} = 0.02$ besprochen werden. Hier charakterisieren offensichtlich bis zu drei Zerfallskonstanten die Abnahme der Oszillationsamplitude. Der erste schnelle Zerfall findet mit einer Zeitkonstanten von ca. 20 ps statt und kann somit obiger Diskussion zufolge in Verbindung mit den photoinjizierten Spins gebracht werden.

Aus dem zweiten Abschnitt der Abnahme der Mn-Oszillationsamplitude kann eine Zeitkonstante von $160 \text{ ps} \pm 10 \text{ ps}$ extrahiert werden. Dies ist in sehr guter Übereinstimmung mit der Zeitskala der exzitonenischen Rekombination unter strikt resonanten Bedingungen bei diesen Proben ($x_{Mn} \leq 0.02$)⁹. Die inkohärente Exzitonpopulation beeinflusst also weiter die Mn-Spin-Präzession. Damit zeigt sich, daß die Wechselwirkung zwischen Mn-Spins und den photoinjizierten Spins nicht auf den anfänglichen Anstoß der Mn-Präzession beschränkt ist. Es bestätigt zugleich, daß die Exzitonen ihre Spinkohärenz zumindest teilweise auf der Zeitskala ihrer Rekombination behalten, während sie stark mit den Mn-Spins über den spd-Austausch wechselwirken. Im Fall großer Pump-Probe-Verzögerung ($\geq 200 \text{ ps}$), wenn die photogenerierten Ladungsträger bereits rekombiniert sind, findet ei-

⁹Da die Lebensdauer der Quantenpunkte von der spektralen Lage abhängt, sei erwähnt, daß beide Messungen ca. mit der Wellenlänge, an der sich das Maximum der PL befindet, durchgeführt worden sind.

ne monoexponentielle Abnahme mit einer Zeitkonstanten von $T_2^* = 630 \text{ ps} \pm 70 \text{ ps}$ statt. Verglichen mit bisherigen Messungen an höher dimensionalen Strukturen ist dies um ca. einen Faktor zwei größer [Cro97, Aki98].

Wie aus Abb. 7.10 ersichtlich, erhält man für $x_{Mn} = 0.04$ ein sehr ähnliches Verhalten wie im Fall $x_{Mn} = 0.02$. Hier ergeben sich charakteristische Zerfallszeiten von $100 \text{ ps} \pm 5 \text{ ps}$ und von $760 \text{ ps} \pm 150 \text{ ps}$. Die Abwesenheit des ersten sehr schnellen Zerfalls spiegelt die im Vergleich zur Zeitauflösung kurze T_2^* -Zeit der photoinjizierten Spins bei $x_{Mn} = 0.04$ wieder. Nur in hohen Magnetfeldern kann deren Verhalten noch teilweise aufgelöst werden (siehe Bildeinschub der Abb. 7.6d)). Zwar begünstigen die relativ geringen Mn-Konzentrationen in den hier untersuchten Proben die Beobachtung langer Spinkohärenzzeiten für die Mn-Spins, trotzdem können die hier gemessenen langen Spinkohärenzzeiten hauptsächlich auf die lokale Verteilung der Mn-Spins (in den Quantenpunkten) zurückgeführt werden. Diese bedingt, verglichen mit Volumenmaterial bzw. Quantenfilmen, z.B. eine verminderte Spindiffusion und begrenzt folglich Spin-Spin-Wechselwirkungen und Spin-Gitter-Relaxationsprozesse auf ein winziges Kristallvolumen.

Kapitel 8

Ein langlebiges Spinsystem

Das bisher betrachtete System, Exzitonen in Quantenpunkten, hat einen natürlichen Nachteil. Die Rekombination der Teilchen beschränkt ihre praktische Verwendung als Informationsträger auf die Grundlagenforschung. Zwar hat sich gezeigt, daß ein kohärenter Spinübertrag von den Exzitonen auf die Mn-Spins möglich ist, jedoch bleibt der Spin dort auch nur auf einer Zeitskala von weniger als $1ns$ erhalten. Selbst bei einer Schaltzeit im Bereich von Femtosekunden ist dies nicht genug¹. Ein Übergang von dem Spin-5/2-System des Mn auf ein reines Spin-1/2-System (Elektronen) kann im Hinblick auf die Spinrelaxation schon allein aufgrund der Tatsache, daß der Spin weniger Einstellungsmöglichkeiten (Streuzustände) besitzt, von Vorteil sein.

In diesem Kapitel soll die kohärente Dynamik eines nicht rekombinierenden Spinsystems betrachtet werden. Dazu wurde als Materialsystem aus der Gruppe der III-V-Halbleiter leicht dotiertes GaAs (n-GaAs) gewählt. Zur Spinlebensdauer in n-GaAs gibt es theoretische Vorhersagen. Dabei variieren die Werte für die Spindephasierungszeit T_2^* von einigen zu einigen hundert Nanosekunden [Dzh02a]. Dementsprechend wird erwartet, daß die homogene Spindephasierungszeit sogar im Bereich von Mikrosekunden liegt [Mer02, dS03, Kha03]. Derartig lange Zeiten gelten allerdings nur für eher lokalisierte Elektronen [Kro03]. Im Fall delokalisierte Elektronen hingegen werden nur Zeiten von maximal einigen Nanosekunden erwartet [Bro02]. Eine Lokalisation der Donatorelektronen liegt vor, wenn durch Verringerung der Donatorkonzentration der mittlere Abstand zwischen den Donatoren größer und damit die Wahrscheinlichkeit des Springens der Elektronen von Donator zu Donator kleiner wird. An Donatoren gebundene Elektronen in leicht dotiertem GaAs ($n < 10^{16} cm^{-3}$) sind folglich vergleichbar mit in Quantenpunkten lokalisierten Elektronen. In Analogie zu den semimagnetischen Quantenpunktproben, bei denen Spin auf das Mn-System transferiert wurde, soll hier den Donatorelektronen ein Spin aufgeprägt werden.

Die Untersuchungen sind Teil einer Reihe von Experimenten, bei denen mit unterschiedlichen Meßmethoden die Spineigenschaften in leicht dotiertem GaAs im Hinblick auf ei-

¹Als brauchbar für die Informationsverarbeitung werden Systeme angesehen mit denen mindestens $10^4 - 10^6$ Operationen durchgeführt werden können [Pre98].

ne kontrollierte Manipulation des Spins erforscht werden sollen [Col02, Col03, Col04]. Mit Hilfe der zeitaufgelösten Kerr-Rotation soll ein Einblick in die kohärente Dynamik dieses Systems gewonnen werden. Zwar wurde für n-GaAs die T_2^* -Zeit bereits intensiv mit den verschiedensten Methoden wie der magnetischen Resonanz [Col03], Hanle [Dzh02b, Dzh02a, Dzh97a, Col02] und eben auch der Faraday-Rotation [Kik98] bestimmt, jedoch größtenteils an Proben mit höher Dotierung. Zudem wurden die Faraday-Messungen hauptsächlich mit Femtosekundenlasern, und damit mit 'geringer' spektraler Auflösung durchgeführt.

Die Suche nach immer langlebigeren Spinsystemen hat mittlerweile auch Aufmerksamkeit auf die Kernspins gelenkt. Wurden sie bisher nur als eine Quelle für Störungen des elektronischen Spinzustandes angesehen, so werden sie wegen ihrer schwachen Wechselwirkungen mittlerweile ebenso in Überlegungen z.B. zur Speicherung bzw Manipulation von Spininformation miteinbezogen [Kik00, Gam01, Sme02].

Unter Verwendung eines Pikosekundenlasers wird gezeigt, daß freies und donatorgebundenes Exziton klar voneinander getrennt werden können. Die T_2^* -Zeit des Donatorelektrons kann in Abhängigkeit des Magnetfeldes bestimmt werden. Zudem wird auf den Einfluß der Wechselwirkung mit den kernmagnetischen Momenten eingegangen.

8.1 Die Exziton-Resonanzen in n-GaAs

Bei der Herstellung der hier untersuchten Proben wurde darauf geachtet, daß die Quantenausbeute der $1\mu\text{m}$ starken aktiven n-GaAs Schicht besonders hoch ist. Zudem sollte die Spindiffusion möglichst gering gehalten werden, da in GaAs bereits makroskopische Spindiffusionslängen nachgewiesen werden konnten [H98, Kik99]. Erreicht wird dies dadurch, daß die n-GaAs Schicht mit zwei AlGaAs-Lagen umgeben wird. Weitere Details des Probenaufbaus finden sich im Kap. A. Im Folgenden wird auf Daten von zwei Proben mit Dotierungskonzentrationen $n = 3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ und $3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ Bezug genommen.

Betrachtet man die PL-Spektren der n-GaAs Proben, so sind zwei Resonanzen deutlich zu erkennen (siehe Abb. 8.1. Diese sind zum einen dem freien Exziton (X) und zum anderen dem an einen neutralen Donator gebundenen Exziton (D^0X) zuzuordnen. Je nach Konzentration n dominiert die eine bzw. die andere Spezies von Exzitonen. Um die Spindynamik beider Resonanzen spektral trennen zu können ohne zu viel an zeitlicher Auflösung einzubüßen, wurden an den Proben zeitaufgelöste Kerr-Rotationsmessungen mit Pikosekundenpulsen durchgeführt. Variiert man die Laserwellenlänge systematisch innerhalb des Resonanzspektrums, so ist festzustellen, daß das Kerr-Signal eine deutliche Amplitudenmodulation aufweist. Beispielhaft ist dies in Abb. 8.2 für $n = 3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ gezeigt. An den Resonanzen tritt eine merkliche Zunahme der Amplitude auf, während dazwischen und daneben die Amplitude abnimmt. Desweiteren ist erkennbar, daß an den Resonanzen auch bei negativen Verzögerungen, bzw. einer positiven Verzögerung von ca. 12ns , eine

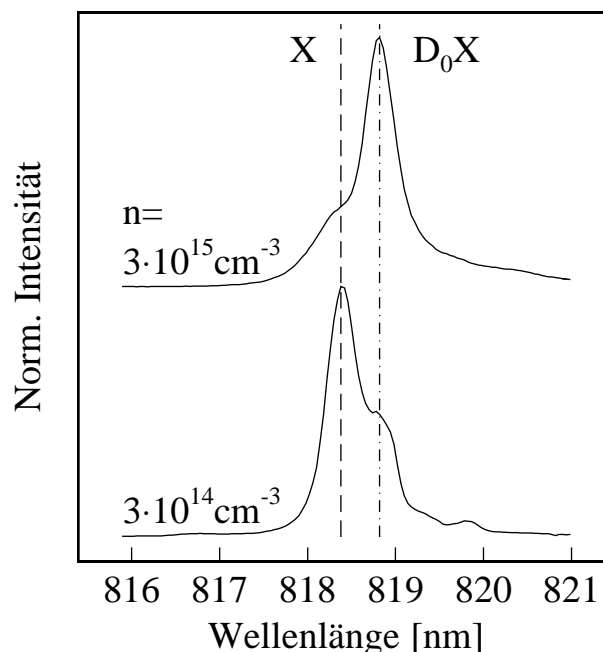


Abb. 8.1: PL-Spektren von n-GaAs mit Dotierungskonzentrationen von $n = 3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ und $3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$. Die gestrichelte und gestrichpunktete deuten entsprechend die Lage der PL-Maxima des freien und des donatorgebundenen Exzitons an.

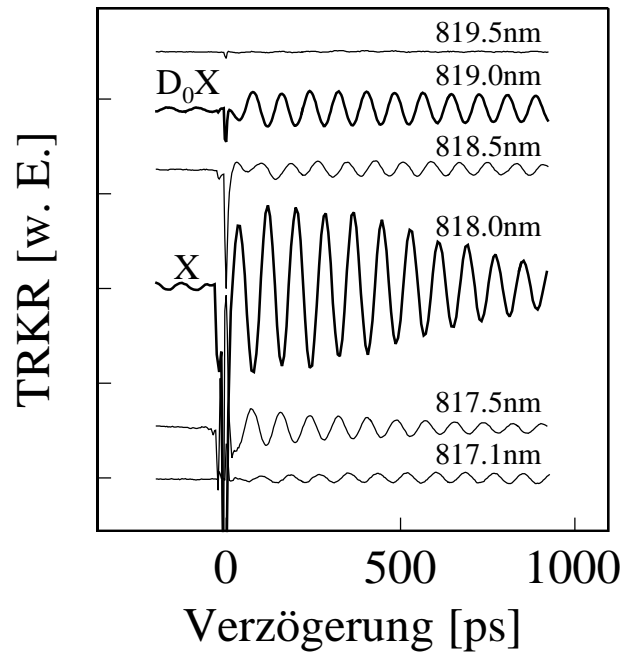


Abb. 8.2: Zeitaufgelöstes Kerr-Signal für $n = 3 \cdot 10^{14}$ in Abhängigkeit der Wellenlänge des Lasers. Hervorgehoben sind die Resonanzen des freien (X) und des donatorgebundenen (D^0X) Exzitons.

deutliche Oszillation auftritt. Dies ist auf die höhere Sensitivität der Kerr-Rotation bei diesen Wellenlängen zurückzuführen. Im Unterschied zum D^0X nimmt an der Resonanz des freien Exzitons die Oszillationsamplitude auf einer Zeitskala von 1000ps deutlich ab. Interpretiert werden kann dies mit der endlichen Lebensdauer der freien Exzitonen. Zwar rekombinieren die gebundenen Exzitonen auf der selben Zeitskala, jedoch können deren Elektronen aufgrund der Spinpaarung nicht zu dem oszillierenden Kerr-Signal beitragen. Die Löcher können als unpolarisiert angenommen werden, da der Lochspin wegen der kompletten Vermischung von Spin- und Bahnfreiheitsgraden im Volumenmaterial sehr schnell relaxiert [Oes96, Kik98, Hil02]. Demnach sind auch sie nicht die Ursache der beobachteten Oszillation im Kerr-Signal. Einen Beitrag leisten können nur ungepaarte Donatorelektronen.

8.2 Erzeugung der Spinpolarisation

Im Folgenden soll die Initialisierung der Elektronenspins aufgezeigt werden. Dabei soll nur die Absorption von rechts zirkular polarisiertem Licht betrachtet werden, da für links zirkular polarisiertes Licht die gleichen Überlegungen in Analogie zutreffen. In Abb. 8.3 sind die Zustände des donatorgebundenen Exzitons dargestellt. Die Grundzustände des Systems werden von den beiden Spinzuständen $|\pm 1/2\rangle_D$ des Donatorelektrons gebildet.

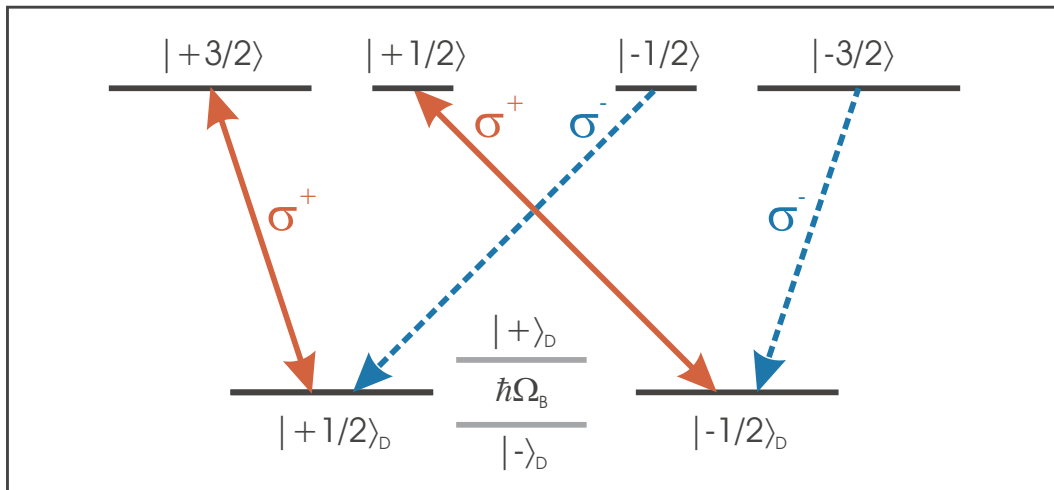


Abb. 8.3: Schematische Darstellung der Energieniveaus von Donatorelektron und den donatorgebundenen Schwer- und Leichtlochexzitonen. Die Pfeile deuten die bei bzw. nach Absorption von rechts zirkular polarisiertem Licht stattfindenden Übergänge zwischen den Zuständen an. Ein in Voigt-Geometrie angelegtes Magnetfeld erzeugt Superpositionen $(|\pm\rangle_D)$ der Zustände $|\pm 1/2\rangle_D$, die um $\hbar\Omega_B$ energetisch aufgespalten sind.

Das angeregte System besitzt die energetisch entarteten Zustände $|\pm 1/2\rangle$ und $|\pm 3/2\rangle$, die entsprechend donatorgebundenen Leichtlochexzitonen bzw. Schwerlochexzitonen beschreiben. Dabei entspricht die Representation der Zustände der Projektion des Spins in Ausbreitungsrichtung des Lichts.

Ein senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Lichts angelegtes Magnetfeld (Voigt-Geometrie) mischt die beiden Zustände $|\pm 1/2\rangle_D$. Jeder beliebige Spinzustand eines Donatorelektronen läßt sich allgemein in der Form

$$|\pm\rangle_D = a_{+1/2} | +1/2\rangle_D \pm a_{-1/2} | -1/2\rangle_D \quad (8.1)$$

darstellen. Die Koeffizienten $a_{\pm 1/2}$ bestimmen die Orientierung des Spins, wobei $|a_{+1/2}|^2 + |a_{-1/2}|^2 = 1$ gilt. Die Spinpolarisation S_L in Ausbreitungsrichtung des Lichts berechnet sich demnach aus der Differenz der Betragsquadrate der beiden Koeffizienten:

$$S_L = |a_{+1/2}|^2 - |a_{-1/2}|^2 \quad (8.2)$$

Bei einem in Voigt-Geometrie angelegten Magnetfeld ergeben sich die Koeffizienten zu $a_{\pm 1/2}^+ = 1/\sqrt{2}$ für den $|+\rangle_D$ -Zustand bzw. $a_{\pm 1/2}^- = 1/\sqrt{2}$ für den $|-\rangle_D$ -Zustand. Dabei sind die Zustände $|\pm\rangle_D$ energetisch entsprechend dem Produkt aus Lamor-Frequenz Ω_B und \hbar aufgespalten (Zeeman-Aufspaltung). Für beide Zustände ergibt sich die Spinpolarisation in Ausbreitungsrichtung des Lichts zu null, $S_L^\pm = 0$. Bei einer Temperatur die

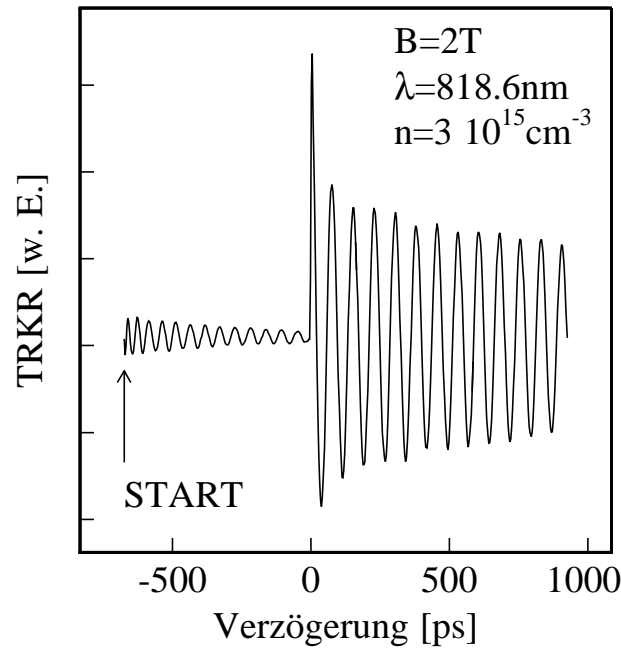


Abb. 8.4: Zeitaufgelöstes Kerr-Signal für $n = 3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ an der Resonanz des donatorgebundenen Exzitons. Pump und Probestrahl waren bis unmittelbar vor Aufnahme der Daten geblockt. Die Daten wurden beginnend bei negativer Verzögerung (START) hin zu positiver Verzögerung aufgenommen.

einer thermischen Energie entspricht die größer als die Zeeman-Aufspaltung ist, ist ein Ensemble aus N Spins unpolarisiert und die einzelnen Spins verteilen sich gleichmäßig auf die Zustände $|\pm\rangle_D$. Die $|\pm 1/2\rangle_D$ -Zustände sind ebenfalls gleich besetzt.

Wie in Abb. 8.3 durch die roten durchgezogenen Pfeile angedeutet, koppelt rechts zirkular polarisiertes Licht den $|-1/2\rangle_D$ -Grundzustand mit dem $|+1/2\rangle$ -Leichtlochzustand und den $|+1/2\rangle_D$ -Grundzustand mit dem $|+3/2\rangle$ -Schwerlochzustand. Das Verhältnis zwischen Leichtloch- und Schwerlochübergängen von Valenz zu Leitungsband ist durch die entsprechenden Interbandmatrixelemente gegeben und beträgt 1 zu 3. D.h. es finden dreimal mehr Schwerlochübergänge wie Leichtlochübergänge statt. Die Wechselwirkung mit (resonantem) rechts zirkular polarisiertem Licht reduziert zum einen die Populationen der Zustände $|\pm 1/2\rangle_D$ und ändert deren Verhältnis. Folglich entsteht eine Spinpolarisation des Grundzustands in Ausbreitungsrichtung des Lichts. Dies gilt allerdings nur solange die Dauer der Anregung vernachlässigbar gegenüber der Periodendauer der Spinpräzession um das Magnetfeld ist.

8.3 Wechselwirkung mit den Kernspins

Abbildung 8.4 zeigt das zeitaufgelöste Kerr-Signal an der Resonanz des donatorgebundenen Exzitons für $n = 3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$. Die Aufnahme des Datensatzes erfolgte hierbei von links (negative Verzögerung) nach rechts (positive Verzögerung). Pump- und Pro-

bestrahlt waren bis unmittelbar vor dem Start der Datenaufnahme geblockt, so daß der Ausgangszustand der Probe als völlig relaxiert anzunehmen ist. Erstaunlicherweise zeigt sich eine Änderung der Oszillationsperiode im linken Teil des Bildes. Daraus ergibt sich unmittelbar eine Zeitabhängigkeit der Lamor-Präzession:

$$\omega = g\mu_B B/\hbar. \quad (8.3)$$

Als mögliche zeitabhängige Größen kommen dabei nur der g-Faktor g und das Magnetfeld B in Betracht. Untersuchungen von Kikkawa und Awschalom an einer Probe mit einer Donatorkonzentration von $n = 3 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ zeigen, daß sich auf einer Zeitskala von 250 s interne Magnetfelder durch optisches Pumpen aufbauen können [Kik00]. Abhängig vom extern wirkenden Magnetfeld B_{ext} erreicht das interne Magnetfeld dort Werte bis zu $B_{int} \approx -0.4 \text{ T}$ ($B_{ext} = 8 \text{ T}$). Die Erzeugung einer Kernspinpolarisation durch optisches Pumpen beruht auf dem Overhauser-Effekt [Ove53b, Mei84]. Dabei geben die durch den Pump-Puls aus dem thermischen Gleichgewicht gebrachten Elektronenspins ihren Spin teilweise an die Kernspins ab um wieder ins thermische Gleichgewicht zu gelangen. Für die in Glg. 8.3 angegebene Lamor-Präzession kann folglich davon ausgegangen werden, daß die Zeitabhängigkeit im Magnetfeld enthalten ist.

Im Folgenden soll dies anhand der Probe mit $n = 3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ überprüft werden. Dazu wurde bei einer festen negativen Verzögerung gemessen, nachdem Pump- und Probestrahl für mehrere Stunden (über Nacht) geblockt gewesen sind. Abbildung 8.5 zeigt das Kerr-Signal bei ca. -150 ps in Abhängigkeit der Laborzeit. Nach Entfernung der Strahlblockaden nimmt das Kerr-Signal einen endlichen Wert an und beginnt zu oszillieren. Der von Null verschiedene Mittelwert nach Entfernung der Strahlblockaden ist auf eine geringfügige Dejustage des Systems über Nacht zurückzuführen. Daß obwohl die Verzögerung zwischen Pump- und Probepuls konstant gehalten wird Oszillationen auftreten, kann nur verstanden werden wenn eine zeitliche Änderung der Oszillationsperiode angenommen wird. Dabei kann die Zeitabhängigkeit als eine Folge eines sich zeitlich verändernden effektiven Magnetfeldes ($B_{eff}(t)$) betrachtet werden:

$$\tau(t) = h/g_e\mu_B B_{eff}(t) \quad (8.4)$$

Die beobachteten Oszillationen ergeben sich demnach dadurch, daß sich die einzelnen Perioden durch den festen Verzögerungszeitpunkt schieben. Deutlich zu erkennen ist, daß die Oszillationsperiode nicht zeitlich konstant bleibt, sondern mit zunehmender Zeit größer wird. Dies deutet auf einen Sättigungsprozeß hin. Trägt man die zeitliche Position der Maxima gegen die Ordnungszahl des Maximums auf, so erhält man den im Bildeinschub von Abb. 8.5 dargestellten Verlauf. Aus diesen Daten ist es möglich eine charakteristische Zeit für den Aufbau des internen Magnetfeldes zu extrahieren. Dafür geht man von einer Kosinusfunktion ($\cos(\omega t)$) aus, für deren n-tes Maximum mit Glg. (8.3) gilt:

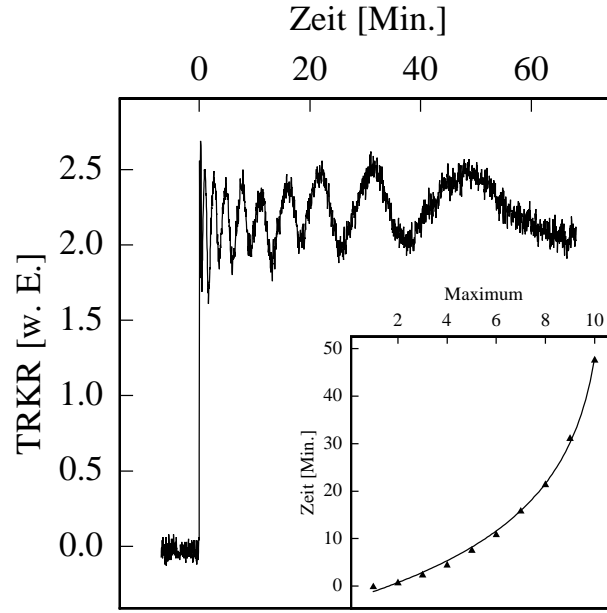


Abb. 8.5: Kerr-Signal bei fester (negativer) Verzögerung nachdem die Probe mehrere Stunden nicht optisch gepumpt wurde. Bildeinschub: Zeitliche Position des m -ten Maximums der Oszillation im Hauptbild. Die durchgezogene Linie ist ein Fit der Daten entsprechend der im Text dargestellten Überlegung.

$$2\pi n = \omega t = \frac{g_e \mu_B \tau}{\hbar} (B_{ext} + B_{int}(1 - \exp(-t/\sigma))). \quad (8.5)$$

Dabei bezeichnen B_{int} das interne Magnetfeld, B_{ext} das externe Magnetfeld, τ die Verzögerung ($\approx 12ns$), g_e den Elektron g-Faktor, μ_B das Bohr'sche Magneton und σ die charakteristische Zeit, die es bedarf, um das interne Magnetfeld aufzubauen. Von Interesse ist in dieser Gleichung allerdings nur die Änderung des Gesamtfeldes, die benötigt wird um n um einen ganzzahligen Wert m zu ändern, d.h.:

$$\frac{g_e \mu_B \tau}{\hbar} B_{int}(1 - \exp(-t/\sigma)) = m. \quad (8.6)$$

Das Auflösen dieser Gleichung nach t ermöglicht das Fitten der Daten im Bildeinschub der Abb. 8.5. Für σ ergibt sich daraus ein Wert von ca. 1050 s (17.5 Minuten). Zudem läßt sich das Produkt aus dem g-Faktor des Elektrons und dem internen Magnetfeld zu $g_e \cdot B_{int} \approx 60$ mT bestimmen. Zum Vergleich, Kikkawa und Awschalom geben für $B_{ext} = 2$ T ein internes Magnetfeld von $|B_{int}| \ll 100$ mT an [Kik00]. Die Diskrepanz ist möglicherweise in der stärkeren Lokalisation aufgrund der geringeren Donatorkonzentration zu suchen.

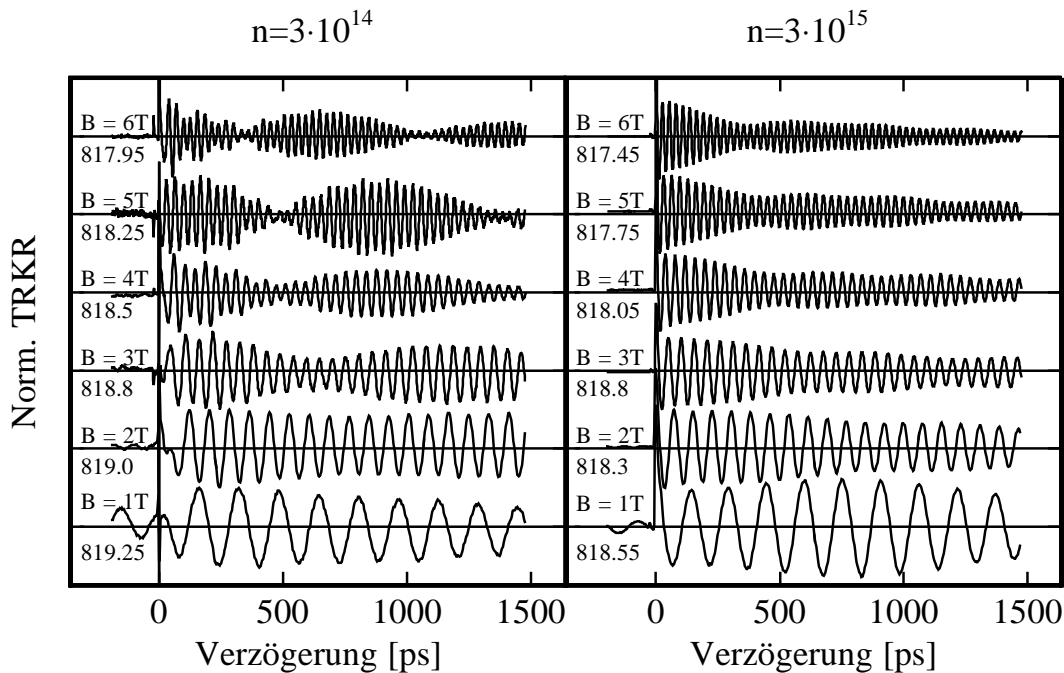


Abb. 8.6: Zeitaufgelöste Kerr-Signale der Proben mit $n = 3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ (*links*) und $n = 3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ (*rechts*) in Magnetfeldern bis $B = 6 \text{ T}$.

8.4 Feldabhängigkeit der Kernspinpolarisation

Ein Mittel die Auswirkung der Lokalisierung zu untersuchen, ist die Variation des angelegten Magnetfeldes. Die Erhöhung des Feldes führt zu einer stärkeren Lokalisation der Elektronen. Quantitative läßt sich dies durch die sogenannte magnetische Länge l_m beschreiben.

$$l_m = \sqrt{\frac{\hbar}{eB}} \quad (8.7)$$

Abbildung 8.6 zeigt die Veränderung der zeitaufgelösten Kerr-Rotation bei Variation des Magnetfeldes für die Proben mit $n = 3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ und $n = 3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$. Bei der Variation das Feldes wurde die diamagnetische Verschiebung berücksichtigt². In beiden Fällen ist zunächst zu bemerken, daß T_2^* mit steigendem Magnetfeld geringer wird. Ist bei geringen Magnetfeldern selbst bei negativen Verzögerungen (Pump-Probe-Verzögerung von ca. 12 ns) die Oszillation noch erkennbar, so ist sie bei $B = 6 \text{ T}$ dort völlig im Rauschen untergegangen. Parallel zu dieser Entwicklung treten zunehmend deutlicher werdende Schwebungen im Signal zum Vorschein. D.h., die Einschnürung an den Knotenpunkten der Einhüllenden prägt sich mit steigendem Magnetfeld stärker aus. Dies ist

²Diese macht sich durch eine zu B^2 proportionalen Verschiebung der PL-Linien bemerkbar (siehe z.B. [Ash01]).

bei $n = 3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ deutlicher als bei $n = 3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$. Der bei niedrigen Magnetfeldern zu beobachtende geringfügige Anstieg des Kerr-Signals kann zum Teil durch die Überlagerung mit der noch vorhandenen Spinpräzession die durch den vorangegangenen Pump-Puls erzeugt wurde erklärt werden.

Im Fall $n = 3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ sind sogar zwei Schwebungen mit unterschiedlicher Schwebungsperiode beobachtbar (am besten erkennbar bei $B = 6 \text{ T}$). Die schnelle Schwebung (kurze Schwebungsperiode) verschwindet jedoch auf einer Zeitskala von $t \lesssim 1 \text{ ns}$. Daraus ist zu schließen, daß diese Schwebung mit den Elektronen der nicht donatorgebundenen Exzitonen verknüpft ist. Zwar wurde die Lebensdauer der Exzitonen in dieser Probe nicht direkt bestimmt, jedoch ist bekannt, daß sie in solchen Strukturen wenige Nanosekunden beträgt [pH02, Gil97].

Die in Abb. 8.6 zu erkennende langsame Schwebung zeigt kein Abklingverhalten auf der Zeitskala von ca. 1 ns. Demnach ist sie allein den Donatorelektronen zuzuschreiben. Die Lokalisation der Elektronen hat zur Folge, daß lokale Unterschiede im effektiven Magnetfeld nicht gemittelt werden. Solche Unterschiede können beispielsweise durch Gitterfehler, die Möglichkeit für den Donator unterschiedliche Gitterplätze einzunehmen oder unterschiedliche Donatoren hervorgerufen werden. Damit ergeben sich für die Donatorelektronen leicht unterschiedliche Frequenzen bei der Larmorpräzession. Selbst bei einer kontinuierlichen Verteilung der Frequenzen kann eine Schwebung auftreten, sofern nur ein gewisser Frequenzbereich zu berücksichtigen ist. Die Schwebungsperiode wird dabei durch den Unterschied zwischen oberer (ω_o) und unterer (ω_u) Grenzfrequenz bestimmt. Im Fall einer Rechteckverteilung und einer Kosinusschwingung ($\cos(\omega t)$) ergibt sich eine Schwebung z.B. zu:

$$TRKR(t) \propto \int_{\omega_u}^{\omega_o} \cos(\omega t) d\omega = \frac{\sin(\omega_o t) - \sin(\omega_u t)}{t}. \quad (8.8)$$

Hieraus ist auch gut zu erkennen, daß das Vorhandensein einer gewissen Frequenzverteilung zu einer Dämpfung des Signals führen kann ($1/t$ -Proportionalität in Glg. (8.8)). Dieses Phänomen ist im allgemeinen unter dem Begriff *g-Faktor-Verbreiterung*³ bekannt. Sind Unterschiede im effektive wirkenden Magnetfeld die Ursache der Schwebung, so kann aus der Schwebungsperiode die Breite der Verteilung des internen Magnetfeldes abgeschätzt werden. Für $n = 3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ und $B = 6 \text{ T}$ ergibt sich z.B. $\Delta B_{int} = \pm 150 \text{ mT}$. Dies folgt aus:

³im Englischen: g-factor broadening. Tritt auf, wenn in einem System kein scharf definierter g-Faktor vorliegt, sondern eine gewisse Verteilung des g-Faktors um einen Mittelwert.

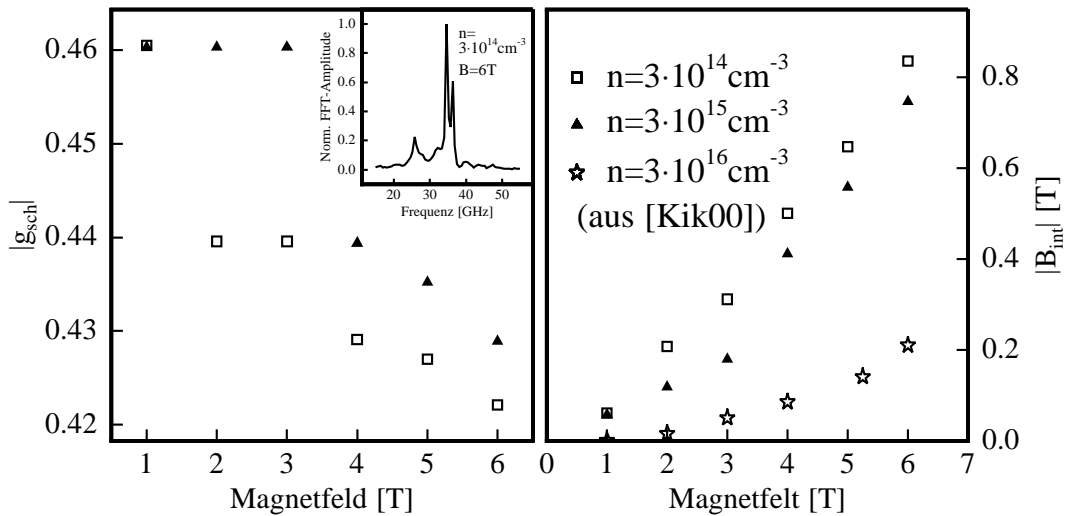


Abb. 8.7: *Links:* Magnetfeldabhängigkeit der scheinbaren g -Faktoren der Proben mit $n = 3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ (offene Quadrate) und $n = 3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ (Dreiecke). Die Werte wurden mittels Fourier-Analyse der Daten aus Abb. 8.6 berechnet. Sofern zwei eng benachbarte Frequenzen aufgelöst werden konnten, wurde der Mittelwert zur Berechnung von g_{sch} verwendet. *Bildeinschub:* Fourier-Spektrum der des Kerr-Signals der Probe mit $n = 3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ bei $B = 6 \text{ T}$. Die beiden eng benachbarten Maxima ergeben sich aus der langsamen Schwebung im Kerr-Signal. *Rechts:* Betrag des internen Magnetfeldes in Abhängigkeit das äußeren Magnetfeldes. Zum Vergleich wurden die in Ref. [Kik00] angegebenen Werte für $n = 3 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ aufgetragen (Sterne).

$$\begin{aligned}
 \hbar\omega_u &= g\mu_B B_{ext} & \text{und} \\
 \hbar\omega_o &= g\mu_B (B_{ext} + 2\Delta B_{int}) \\
 \Rightarrow \quad \Delta B_{int} &= \frac{1}{2} B_{ext} \left(\frac{\omega_o}{\omega_u} - 1 \right). & (8.9)
 \end{aligned}$$

In Abb. 8.6 ist desweiteren zu beobachten, daß die Periode der langsamen Schwebung zu kleinen Magnetfeldern hin länger wird. Dies entspricht einer Abnahme der Differenz der beiden Grenzfrequenzen und damit einer Verringerung von ΔB_{int} .

Im folgenden soll das interne Magnetfeld in Abhängigkeit des externen Magnetfeldes bestimmt werden. Aus den Daten der Abb. 8.6 können dazu mittels Fourier-Analyse die scheinbar wirkenden g -Faktoren (g_{sch}) bestimmt werden (siehe Abb. 8.7). Für den Fall daß zwei eng benachbarte Maxima im Fourier-Spektrum aufgelöst werden konnten wurde der Mittelwert der beiden Frequenzwerte zur Berechnung des scheinbaren g -Faktors verwendet. Im linken Teil der Abb. 8.7 ist die Magnetfeldabhängigkeit der scheinbaren g -Faktoren für die Proben mit $n = 3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ und $n = 3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ dargestellt. Diese ergeben sich nach $h\nu = g_{sch}\mu_B B$ aus den durch Fourier-Analyse bestimmten Frequenzen ν . In beiden Fällen ist mit steigendem Magnetfeld eine Abnahme des sichtbaren g -Faktors zu beobachten. Dies entspricht der Feststellung, daß das durch die Kernspins erzeugte in-

terne Magnetfeld dem äußeren Magnetfeld entgegen gerichtet ist.

In Abschn. 8.3 konnte bereits für $n = 3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ und einem externen Magnetfeld von $B = 2 \text{ T}$ das Produkt von dem internen Magnetfeld mit dem g-Faktor des Elektrons zu $g_e B_{int} = 60 \text{ mT}$ bestimmt werden. Aus der Beziehung

$$g_{sch} \mu_B B = g_e \mu_B (B - B_{int}) \quad (8.10)$$

kann damit der g-Faktor des Elektrons zu $|g_e| = 0.49$ bestimmt werden. Unter Verwendung dieses Wertes kann mit Glg. 8.10 aus den scheinbaren g-Faktoren nun das entsprechende interne Magnetfeld der Kernspins berechnet werden. Das Ergebnis ist im rechten Teil der Abb. 8.7 als Funktion des externen Magnetfeldes aufgetragen. Das interne Feld wächst danach für $n = 3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ bei $B = 6 \text{ T}$ auf über $|B_{int}| > 0.8 \text{ T}$. Dies ist im Vergleich zu den von Kikkawa und Awaschalom angegebenen Werten bei einer Donatorkonzentration von $n = 3 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ deutlich höher. Für vollständig polarisierte Kernspins erwarten Krapf *et al.* sogar einen Wert von bis zu $B_{int} = 2.4 \text{ T}$ [Kra90].

8.5 T_2^* donatorgebundener Elektronen

Wie bereits aus der Betrachtung von Abb. 8.6 festzustellen war, nimmt die T_2^* -Zeit der Donatorelektronen stark mit dem Magnetfeld ab. Zurückzuführen ist diese Änderung zu einem großen Teil auf die g-Faktorverbreiterung bzw. entsprechend die lokalen Fluktuationen des effektiven Magnetfeldes. Je geringer das Magnetfeld desto weniger stark kommen die Effekte der Inhomogenität zum Tragen. D.h., bei niedrigen Magnetfeldern läßt sich T_2^* durch die Annahme eines einfach exponentiellen Abklingens der Einhüllenden des Kerr-Signals abschätzen.

$$T_2^* \approx \frac{t_2 - t_1}{\ln\left(\frac{a(t_1)}{a(t_2)}\right)}. \quad (8.11)$$

$a_{1/2}$ bezeichnen dabei die Amplituden der Einhüllenden des Kerr-Signals zu der jeweiligen Verzögerungszeit $t_{1/2}$. Es sei noch einmal erwähnt, daß negative Verzögerungszeiten $t_{(-)}$ tatsächlich positive Verzögerungen von $t_{(+)} = 12 \text{ ns} + t_{(-)}$ darstellen.

In Abb. 8.8 sind für $n = 3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ und $n = 3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ die nach Glg. 8.11 abgeschätzten T_2^* -Zeiten bei verschiedenen Magnetfeldern aufgetragen. Dazu wurden die Amplituden der Einhüllenden des Kerr-Signals kurz vor und kurz nach bzw. zu zwei Zeiten nach dem Überlapp von Pump- und Probepuls verwendet. Es ist zu erkennen, daß T_2^* zu geringeren Magnetfeldern stark ansteigt. Als Ursache dafür kann die geringere Lokalisation der Elektronen im niedrigen Magnetfeld angegeben werden. Wie gezeigt, führt diese zu einer

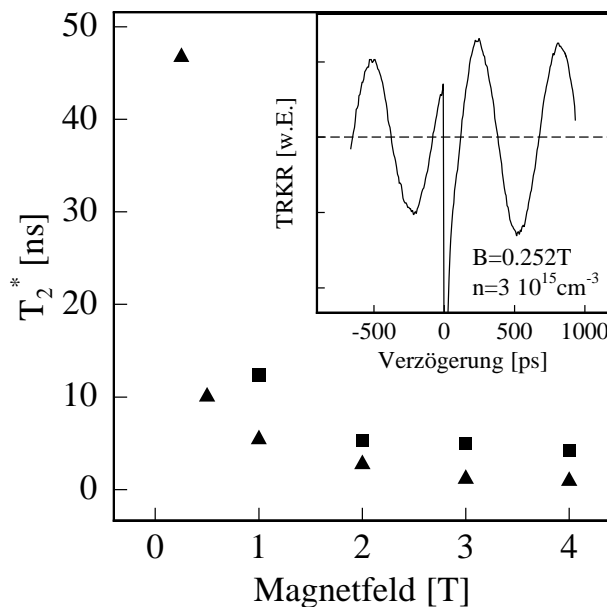


Abb. 8.8: Magnetfeldabhängigkeit der T_2^* -Zeiten für $n = 3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ (Quadrate) und $n = 3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ (Dreiecke). Bildeinschub: Das Kerr-Signal in der Umgebung des Überlapps von Pump- und Probe-Puls ($t = 0 \text{ ns}$ bzw. $t = 12 \text{ ns}$). Die gestrichelte Linie entspricht dem Nullsignal.

geringeren g-Faktorverbreiterung und aufgrund der Mittelung über mehr Kernspins zu einer geringeren Wechselwirkung mit den Kernspins.

Bei sehr niedrigen Magnetfeldern übersteigt T_2^* die Zeit zwischen zwei aufeinander folgende Laserpulse deutlich (siehe Bildeinschub in Abb. 8.8). Die daraus abgeschätzte T_2^* -Zeit von knapp 50 ns ist allerdings nur als ein grober Richtwert zu betrachten. Da das bei der Ankunft eines Pump-Pulses noch vom vorherigen Puls vorhandene Signal kaum abgeklungen ist, ist damit zu rechnen, daß die Amplitude des Kerr-Signals kurz nach einem Pump-Puls auch noch vom vorherigen Puls mit beeinflußt wird. Allerdings ist zu erwähnen, daß unabhängige optische Spinresonanzmessungen und Hanle-Messungen an der selben Probe eine Spinlebensdauer von 28 ns (bei $B = 2 \text{ mT}$) [Col03] bzw. 26 ns ergeben haben [Col02]. Der Literatur sind ähnlich hohe bzw. sogar höhere Werte für die Spinlebensdauer zu entnehmen. Durch die Methode der optischen Orientierung fanden Dzhioev *et al.* bei einer Donatorkonzentration von $n = 1 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ eine Spinlebensdauer von $T_2^* = 42 \text{ ns}$ [Dzh97a]. Die durch Faraday-Rotation erzielten Werte erreichen sogar bis zu 130 ns (bei $B = 0 \text{ T}$) [Kik98]. Die hier erzielten Werte fügen sich folglich sehr gut in die aus der Literatur bekannten Werte ein.

Anhang A

Probenaufbau und -strukturierung

S0863

Hergestellt von: K. H. Leonardi, T. Passow, D. Hommel.

Ort: Institut für Festkörperphysik Universität Bremen, Bremen.

Herstellungsart: Molekularstrahlepitaxie.

Quantenpunktprobe zur Bestimmung der Polarisationsdynamik in CdSe/ZnSe selbstorganisierten Quantenpunkten (Kap. 4 und Kap. 5). Zudem wurde diese Probe bei Untersuchungen zur Kopplung zwischen Quantenpunkten verwendet (Kap. 6). **Aufbau:**

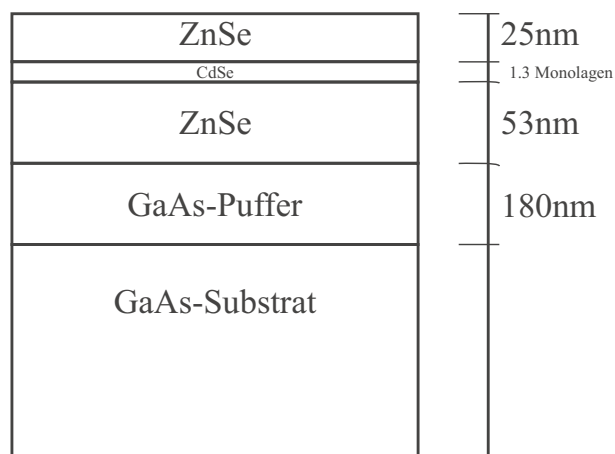


Abb. A.1: Schematischer Aufbau der Probe S0863.

CB2132, CB2133, CB2134, CB2135 und CB2210

Hergestellt von: T. Slobodskyy, G. Schmidt und L.W. Molenkamp.

Ort: Physikalisches Institut, Experimentelle Physik III Universität Würzburg, Würzburg.

Herstellungsart: Molekularstrahlepitaxie.

Quantenpunktprobe zur Bestimmung der Polarisationsdynamik und der kohärenten Dynamik lokal wechselwirkender Spins in Cd(Mn)Se/ZnSe selbstorganisierten Quantenpunkten (Kap. 5 und Kap. 7). **Aufbau:**

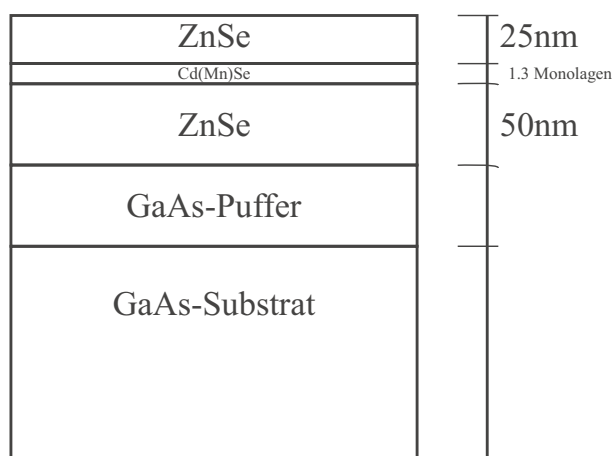


Abb. A.3: Schematischer Aufbau der Proben CB2132-CB2135 und CB2210. Die nominelle Mn-Konzentration x_{Mn} in der 1.3-Monolagen-Cd(Mn)Se-Schicht variiert zwischen den Proben wie folgt: CB2132 - $x_{Mn} = 0.005$, CB2133 - $x_{Mn} = 0.01$, CB2134 - $x_{Mn} = 0.02$, CB2135 - $x_{Mn} = 0.04$ und CB2210 - $x_{Mn} = 0$.

GaAs-Schichten

Hergestellt von: A. S. Bracker und D. Gammon

Ort: Electronic Materials Branch, Naval Research Laboratory, Washington DC.

Herstellungsart: Molekularstrahlepitaxie.

Strukturen zur Untersuchung der kohärenten Spindynamik in leicht n-dotiertem GaAs (Kap. 8).

Aufbau:

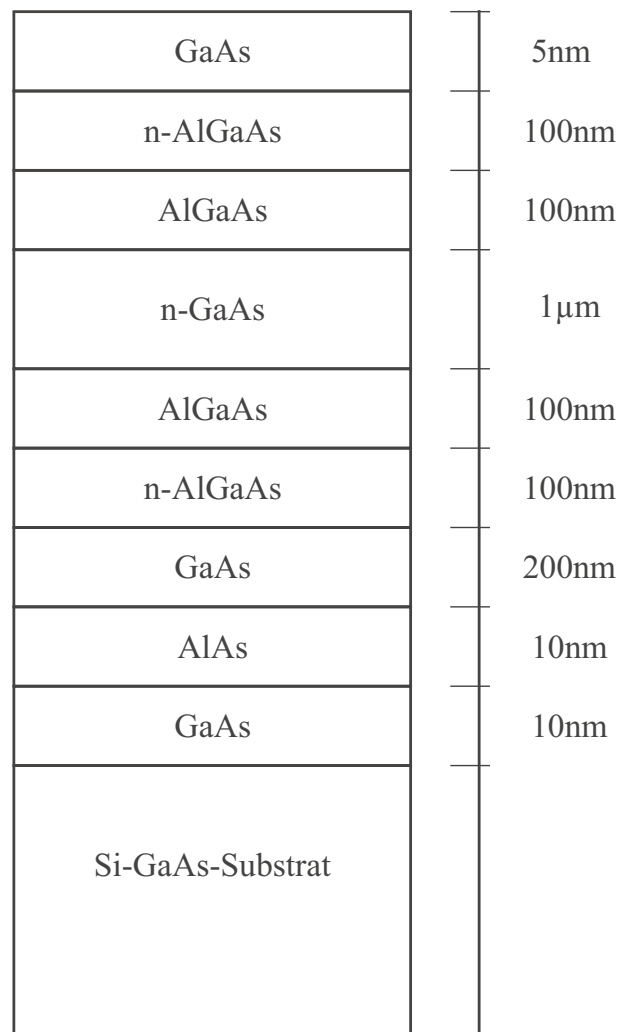


Abb. A.4: Schematischer Aufbau der untersuchten GaAs-Proben. Die nominelle Donator-Konzentrationen n betragen in den beiden n-AlGaAs-Schichten $7 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ (oberhalb 200 nm GaAs Puffer) und $1.5 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ (unterhalb 5-nm GaAs Deckschicht) und in der 1 μ m n-GaAs-Schicht betragen $3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ und $3 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$.

Anhang B

Versuchsaufbauten-3D

Zeitaufgelöste PL-Spektroskopie

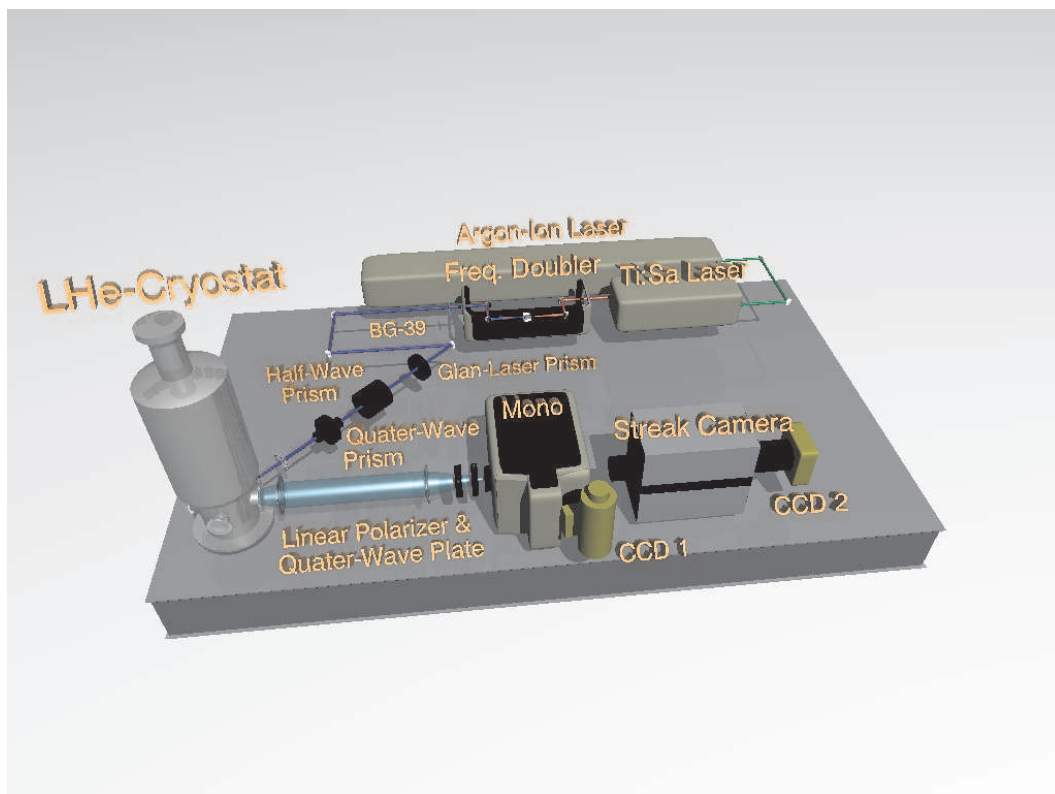


Abb. B.1: 3D-Illustration des Versuchsaufbaus zur zeitaufgelösten PL-Spektroskopie.

Zeitaufgelöste Kerr-Rotation

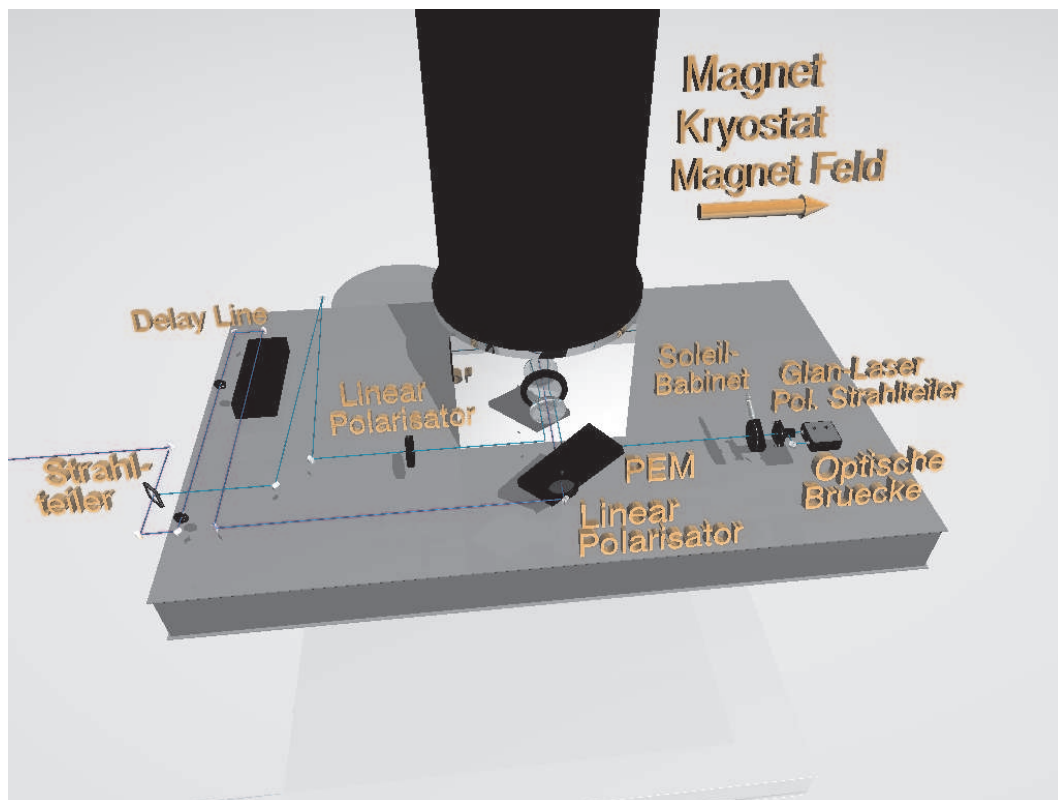


Abb. B.2: 3D-Illustration des Versuchsaufbaus zur zeitaufgelösten Kerr-Rotation.

Anhang C

Geometrie der Kerr-Effekte

Polarer Kerr-Effekt

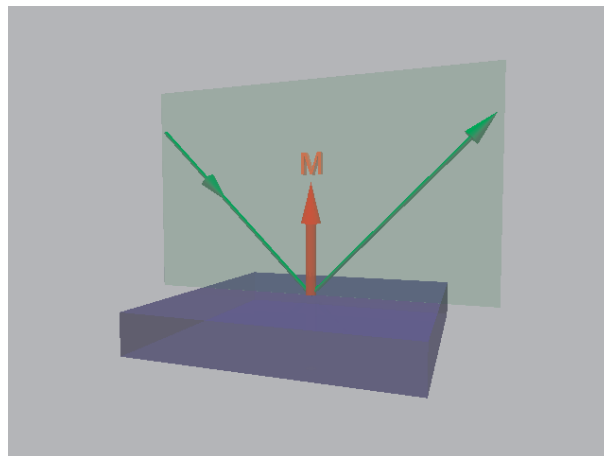


Abb. C.1: Orientierung von Magnetisierung M (roter Pfeil) Lichtstrahl (Grüne Pfeile) und Einfallsebene (grüne Ebene) im Fall des polaren Kerr-Effektes. Bei senkrechtem Lichteinfall auf die Probe (blau) trägt die polare Magnetisierung zum Kerr-Effekt bei.

Longitudinaler Kerr-Effekt

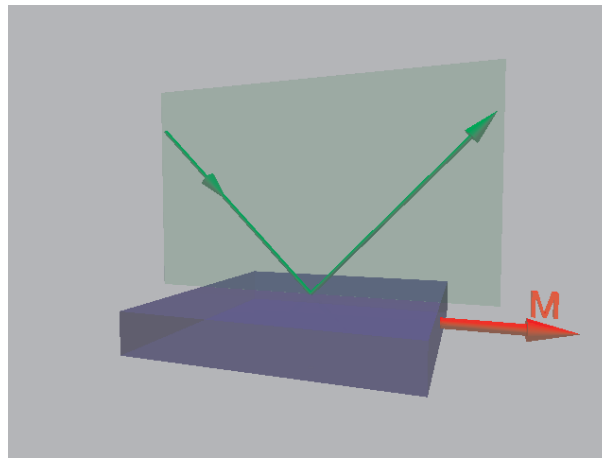


Abb. C.2: Orientierung von Magnetisierung M (roter Pfeil) Lichtstrahl (Grüne Pfeile) und Einfallsebene (grüne Ebene) im Fall des longitudinalen Kerr-Effektes. Bei senkrechtem Lichteinfall auf die Probe (blau) trägt die longitudinale Magnetisierung **nicht** zum Kerr-Effekt bei.

Transversaler Kerr-Effekt

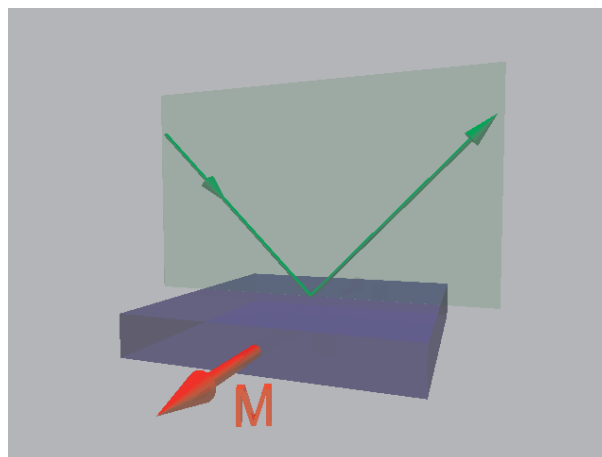


Abb. C.3: Orientierung von Magnetisierung M (roter Pfeil) Lichtstrahl (Grüne Pfeile) und Einfallsebene (grüne Ebene) im Fall des transversalen Kerr-Effektes. Bei senkrechtem Lichteinfall auf die Probe (blau) trägt die transversale Magnetisierung **nicht** zum Kerr-Effekt bei.

Literaturverzeichnis

- [Aki98] R. Akimoto, K. Ando, F. Sasaki, S. Kobayashi und T. Tani, *Larmor precession of Mn^{2+} moments initiated by the exchange field of photoinjected carriers in CdTe/ $Cd_{1-x}Mn_x$ Te quantum wells*, Phys. Rev. B **57** (1998), 7208.
- [Ama97] T. Amand D. Robart, X. Marie, M. Brousseau, P. Le Jeune, und J. Barrau, *Spin relaxation in polarized interacting exciton gas in quantum wells*, Phys. Rev. B **55** (1997), 9880.
- [Arg55] P. N. Argyres, *Theory of the Faraday and Kerr effects in ferromagnetics*, Phys. Rev. **97** (1955), no. 2, 334.
- [Ash01] N.W. Ashcroft, N.D. Mermin, *Festkörperphysik*, Oldenbourg, 2001.
- [Aws02] D.D. Awschalom, D. Loss und N. Samarth, *Semiconductor Spintronics and Quantum Computation*, Springer, 2002.
- [Aws04] D.D. Awschalom, *Spin Electronics*, p. 52, Kluwer Academic Publishers, 2004.
- [Bac97] G. Bacher, R. Spiegel, T. Kümmell, O. Breitwieser, A. Forchel, B. Jobst, D. Hommel, und G. Landwehr, *Relaxation of hot excitons in inhomogeneously broadened $Cd_xZn_{1-x}Se/ZnSe$ nanostructures*, Phys. Rev. B **56** (1997), 6868.
- [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** (1999), 4417.
- [Bac01] G. Bacher, H. Schömig, M.K. Welsch, S. Zaitsev, V.D. Kulakovskii, A. Forchel, S. Lee, M. Dobrowolska, J.K. Furdyna, B. König und W. Ossau, *Optical spectroscopy on individual CdSe/ZnMnSe quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **79** (2001), 524.
- [Bac02] G. Bacher, A. A. Maksimov, H. Schömig, V. D. Kulakovskii, M. K. Welsch, A. Forchel, P. S. Dorozhkin, A. V. Chernenko, S. Lee, M. Dobrowolska und J.K. Furdyna, *Monitoring Statistical Magnetic Fluctuations on the Nanometer Scale*, Phys. Rev. Lett. **89** (2002), 127201.
- [Bac03] G. Bacher, *Optical Spectroscopy on Epitaxially Grown II–VI Single Quantum Dots*, Topics In Applied Physics, vol. 90, 2003.

- [Bac05] G. Bacher, M.K. Welsch, A. Forchel, Y. Lyanda-Geller, T.L. Reinecke, C.R. Becker und L.W. Molenkamp, *Tunable quantum coupling in a II-VI quantum dot molecule*, (Zur Veröffentlichung eingereicht.).
- [Bad91] S. D. Bader, *SMOKE*, J. Magn. Magn. Mater. **100** (1991), 440.
- [Bai88] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friedrich und J. Chazelas, *Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices*, Phys. Rev. Lett. **61** (1988), 2472.
- [Bau00] A. Bauer, *Far-Field and Near-Field Magneto-Optical Microscopy of Ultrathin Films*, Habilitationsschrift, Freie Universität Berlin, Institut für Experimentalphysik, 2000.
- [Bay01] M. Bayer, P. Hawrylak, K. Hinzer, S. Fafard, M. Korkusinski, Z. R. Wasilewski, O. Stern und A. Forchel, *Coupling and Entangling of Quantum States in Quantum Dot Molecules*, Science **291** (2001), 451.
- [Bim99] D. Bimberg, M. Grundmann und N.N. Ledentsov, *Quantum Dot Heterostructures*, Wiley, 1999.
- [Bin91] V. Bindilatti, T. Q. Vu und Y. Shapira, *Phonon bottleneck in the spin relaxation of dilute magnetic semiconductors: New model for the narrowing of the magnetization steps in pulsed fields*, Solid State Commun. **77** (1991), 423.
- [Bio02] E. Biolatti, I. D'Amico, P. Zanardi, und F. Rossi, *Electro-optical properties of semiconductor quantum dots: Application to quantum information processing*, Phys. Rev. B **65** (2002), 075306.
- [Bir76] G. L. Bir, A. G. Aronov und G. E. Pikus, *Spin relaxation of electrons due to scattering by holes*, Sov. Phys. JETP **42** (1976), 705.
- [Bou00] D. Bouwmeester, A. Eckert und A. Zeilinger (ed.), *The Physics of Quantum Information*, Springer, 2000.
- [Bro02] F. X. Bronold, I. Martin, A. Saxena, D. L. Smith, *Magnetic-field dependence of electron spin relaxation in n-type semiconductors*, Phys. Rev. B **66** (2002), 233206.
- [Col02] J.S. Colton, T.A. Kennedy, A.S. Bracker und D. Gammon, *Spin Lifetime Measurements in MBE-Grown GaAs Epilayers*, phys. stat. sol. b **233** (2002), 445.
- [Col03] J.S. Colton, T.A. Kennedy, A.S. Bracker, D. Gammon und J.B. Miller, *Optically oriented and detected electron spin resonance in a lightly doped n-GaAs layer*, Phys. Rev. B **67** (2003), 165315.
- [Col04] J.S. Colton, T.A. Kennedy, A.S. Bracker und D. Gammon, *Microsecond spin-flip times in n-GaAs measured by time-resolved polarization of photoluminescence*, Phys. Rev. B **69** (2004), 121307(R).

-
- [Cro95] S.A. Crooker, D.D. Awschalom und N. Samarth, *Time-Resolved Faraday Rotation Spectroscopy of Spin Dynamics in Digital Magnetic Heterostructures*, IEEE J. Sel. Top. Quantum Elec. **1** (1995), 1082.
- [Cro96] S.A. Crooker, J.J. Baumberg, F. Flack, N. Samarth und D.D. Awschalom, *Terahertz Spin Precession and Coherent Transfer of Angular Momenta in Magnetic Quantum Wells*, Phys. Rev. Lett. **77** (1996), 2814.
- [Cro97] S.A. Crooker, D.D. Awschalom, J. J. Baumberg, F. Flack und N. Samarth, *Optical spin resonance and transverse spin relaxation in magnetic semiconductor quantum wells*, Phys. Rev. B **56** (1997), 7574.
- [Dat90] S. Datta und B. Das, *Electronic analog of the electrooptic modulator*, Appl. Phys. Lett. **56** (1990), 665.
- [Dic54] R. H. Dicke, *Coherence in Spontaneous Radiation Processes*, Phys. Rev. **93** (1954), 99.
- [Dor03] P.S. Dorozhkin, A.V. Chernenko, V.D. Kulakovskii, A.S. Brichkin, A.A. Maksimov, H. Schoemig, G. Bacher, A. Forchel, S. Lee, M. Dobrowolska und J. K. Furdyna, *Longitudinal and transverse fluctuations of magnetization of the excitonic magnetic polaron in a semimagnetic single quantum dot*, Phys. Rev. B **68** (2003), 195313.
- [dS03] R. de Sousa, S. Das Samar, *Electron spin coherence in semiconductors: Considerations for a spin-based solid-state quantum computer architecture*, Phys. Rev. B **67** (2003), 033301.
- [D'y71] M. I. D'yakonov und V. I. Perel', Sov. Phys. JETP **33** (1971), 1053.
- [D'y72] M. I. D'yakonov und V.I. Perel', Sov. Phys. Solid State **13** (1972), 3023.
- [Dzh97a] R.I. Dzhioev, B.P. Zakharchenya, V.L. Korenev, M.N. Stepanova, *Spin diffusion of optically oriented electrons and photon entrainment in n-gallium arsenide*, Phys. Solid. State **39** (1997), 1765.
- [Dzh97b] R.I. Dzhioev, H.M. Gibbs, E.L. Ivchenko und G. Khitrova, *Determination of interface preference by observation of linear-to-circular polarization conversion under optical orientation of excitons in type-II GaAs/AlAs superlattices*, Phys. Rev. B **56** (1997), 13405.
- [Dzh98] R.I. Dzhioev, B. P. Zakharchenya, E. L. Ivchenko, V. L. Korenev, Yu. G. Kusraev, N. N. Ledentsov, V. M. Ustinov, A. E. Zhukov und A. F. Tsatsul'nikov, *Optical orientation and alignment of excitons in quantum dots*, Phys. Solid. State **40** (1998), 790.
- [Dzh02a] R.I. Dzhioev, K.V. Kavokin, V.L. Korenev, M.V. Lazarev, B.Ya. Meltser, M.N. Stepanova, B.P. Zakharchenya, D. Gammon und D.S. Katzer, *Low-temperature spin relaxation in n-type GaAs*, Phys. Rev. B **66** (2002), 245204.

- [Dzh02b] R.I. Dzhioev, V.L. Korenev, I.A. Merkulov, B. P. Zakharchenya, D. Gammon, Al.L. Efros und D.S. Katzer, *Manipulation of the Spin Memory of Electrons in n-GaAs*, Phys. Rev. Lett. **88** (2002), 256801.
- [Efr01] A.L. Efros, E.I. Rashba, M. Rosen, *Paramagnetic Ion-Doped Nanocrystal as a Voltage-Controlled Spin Filter*, Phys. Rev. Lett. **87** (2001), 206601.
- [Ell54] R. J. Elliott, *Theory of the Effect of Spin-Orbit Coupling on Magnetic Resonance in Some Semiconductors*, Phys. Rev. **96** (1954), 266.
- [Emp97] S. A. Empedocles und M. G. Bawendi, *Quantum-Confined Stark Effect in Single CdSe Nanocrystallite Quantum Dots*, Science **278** (1997), 2114.
- [Ers73] J. L. Erskine, und E. A. Stern, *Magneto-Optic Kerr Effects in Gadolinium*, Phys. Rev. B **8** (1973), 1239.
- [Eve72] K. Evenson, J. S. Wells, F. R. Petersen, B. L. Danielson, G. W. Day, R. L. Barger und J. L. Hall, *Speed of Light from Direct Frequency and Wavelength Measurements of the Methane-Stabilized Laser*, Phys. Rev. Lett. **29** (1972), 1346.
- [Far46] M. Faraday, Trans. Roy. Soc. (London) **5** (1846), 592.
- [Far96] W. Farah, D. Scalbert und M. Nawrocki, *Magnetic relaxation studied by transient reflectivity in $Cd_{1-x}Mn_xTe$* , Phys. Rev. B **53** (1996), 10461.
- [Fey82] R. P. Feynman, Intl. J. Theo. Phys. **21** (1982), 467.
- [Fie99] R. Fiederling, M. Keim, G. Reuscher, W. Ossau, G. Schmidt, A. Waag und L.W. Molenkamp, *Injection and detection of a spin-polarized current in a light-emitting diode*, Nature **402** (1999), 787.
- [Fla01] M. E. Flatté und G. Vignale, *Unipolar spin diodes and transistors*, Appl. Phys. Lett. **78** (2001), 1273.
- [Fli01] T. Flissikowski A. Hundt, M. Lowisch, M. Rabe und F. Henneberger, *Photon Beats from a Single Semiconductor Quantum Dot*, Phys. Rev. Lett. **86** (2001), 3172.
- [Fli04] T. Flissikowski, A. Betke, I. A. Akimov und F. Henneberger, *Two-Photon Coherent Control of a Single Quantum Dot*, Phys. Rev. Lett. **92** (2004), 227401.
- [Gaj79] J.A. Gaj, R. Planel, G. Fishman, *Relation of magneto-optical properties of free excitons to spin alignment of Mn^{2+} ions in $Cd_{1-x}Mn_xTe$* , Solid State Commun. **29** (1979), 435.
- [Gam96] D. Gammon, E.S. Snow, B.V. Shanabrook, D.S. Katzer und D. Park, *Homogeneous Linewidths in the Optical Spectrum of a Single Gallium Arsenide Quantum Dot*, Science **273** (1996), 87.

-
- [Gam01] D. Gammon, Al.L. Efros, T.A. Kennedy, M. Rosen, D.S. Katzer, D. Park, S.W. Brown, V.L. Korenev und I.A. Merkulov, *Electron and Nuclear Spin Interactions in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **86** (2001), 5176.
- [Gil97] G.D. Gilliland, *Photoluminescence spectroscopy of crystalline semiconductors*, Mater. Sci. Eng. R **18** (1997), 99.
- [Gin99] F. Gindele, U. Woggon, W. Langbein, J.M. Hvam, K. Leonardi, D. Hommel und H. Selke, *Excitons, biexcitons, and phonons in ultrathin CdSe/ZnSe quantum structures*, Phys. Rev. B **60** (1999), 8773.
- [Got98] H. Gotoh H. Ando, H. Kamada, A. Chavez-Pirson und J. Temmyo , *Spin relaxation of excitons in zero-dimensional InGaAs quantum disks*, Appl. Phys. Lett. **72** (1998), 1341.
- [Gou02] S.V.. Goupalov, S. V. Goupalov, R. A. Suris, P. Lavallard und D. S. Citrin, *On the zero phonon line homogeneous broadening in semiconductor QDs*, Proc. of SPIE Int. Soc. Opt. Eng. **5023** (2002), 235.
- [Gou04] S. V. Goupalov, , *Exciton dephasing in self-assembled CdSe quantum dots*, Phys. Rev. B **70** (2004), 073302.
- [Gup99] J.A. Gupta, D.D. Awschalom, X. Peng, A.P. Alivisatos, *Spin coherence in semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. B **59** (1999), R10421.
- [Gup02] J.A. Gupta, D.D. Awschalom, Al.L. Efros und A.V. Rodina, *Spin dynamics in semiconductor nanocrystals*, Phys. Rev. B **66** (2002), 125307.
- [H98] D. Hägele, M. Oestreich, W. W. Rühle, N. Nestle und K. Eberl , *Spin transport in GaAs*, Appl. Phys. Lett. **73** (1998), 1580.
- [Hah50] E. L. Hahn, *Spin Echoes*, Phys. Rev. **80** (1950), 580.
- [Har00] P. Harrison, *Quantum Well, Wires and Dots*, Wiley, 2000.
- [Hec01] E. Hecht, *Optik*, Oldenbourg, 2001.
- [Her96] M. A. Herman und H. Sitter, *Molecular beam epitaxy*, Springer, 1996.
- [Hes94] H. F. Hess, E. Betzig, T. D. Harris, L. N. Pfeiffer und K. W. West, Science **264** (1994), 1740.
- [Hil02] D.J. Hilton, C.J. Tang, *Optical Orientation and Femtosecond Relaxation of Spin-Polarized Holes in GaAs*, Phys. Rev. Lett. **89** (2002), 146601.
- [Hul32] H. R. Hulme, *The Faraday Effect in Ferromagnetics*, Proc. R. Soc. London, Ser. A **135** (1932), no. 826, 1932.
- [Hun67] R. P. Hunt, *Magneto-Optic Scattering from Thin Solid Films*, J. Appl. Phys. **38** (1967), 1652.

- [Hun04] A. Hundt, J. Puls und F. Henneberger, *Spin properties of self-organized diluted magnetic $Cd_{1-x}Mn_xSe$ quantum dots*, Phys. Rev. B **69** (2004), 121309.
- [Ivc97] E. L. Ivchenko und G. E. Pikus, *Superlattices and Other Heterostructures - Symmetry and Optical Phenomena*, Springer, 1997.
- [Jac98] L. Jacak, P. Hawrylak und A. Wojs, *Quantum Dots*, Springer, 1998.
- [Jia03] W.B. Jian, Jiye Fang, Tianhao Ji und Jibao He, *Quantum-size-effect-enhanced dynamic magnetic interactions among doped spins in $Cd_{1-x}Mn_xSe$ nanocrystals*, Appl. Phys. Lett. **83** (2003), 3377.
- [Jod74] R. Jodoin L. Mandel, *Superradiance in an inhomogeneously broadened system*, Phys. Rev. A **9** (1974), 873.
- [Kai93] W. Kaiser, *Topics in applied physics*, vol. 60, Springer, 1993.
- [Kan98] B.E. Kane, *A silicon-based nuclear spin quantum computer*, Nature **393** (1998), 133.
- [Ker77] J. Kerr, *On the rotation of the plane of polarization by reflection from the pole of a magnet*, Phil. Mag. **3** (1877), 399.
- [Kha03] A. Khaetskii, D. Loss und L. Glazman, *Electron spin evolution induced by interaction with nuclei in a quantum dot*, Phys. Rev. B **67** (2003), 195329.
- [Kik98] J.M. Kikkawa und D. D. Awschalom, *Resonant Spin Amplification in n-Type GaAs*, Phys. Rev. Lett. **80** (1998), 4313.
- [Kik99] J.M. Kikkawa und D.D. Awschalom, *Lateral drag of spin coherence in gallium arsenide*, Nature **397** (1999), 139.
- [Kik00] J. M. Kikkawa und D. D. Awschalom, *All-Optical Magnetic Resonance in Semiconductors*, Science **287** (2000), 473.
- [Kit51] C. Kittel, *Optical Rotation by Ferromagnetic Substances*, Phys. Rev. **83** (1951), 208(A).
- [Kit96] C. Kittel, *Introduction to solid state physics*, John Wiley and Sons, 1996.
- [Kli97] C.F. Klingshirn, *Semiconductor Optics*, p. 352, Springer, 1997.
- [Küm98] T. Kümmell, R. Weigand, G. Bacher, A. Forchel, K. Leonardi, D. Hommel, und H. Selke, *Single zero-dimensional excitons in CdSe/ZnSe nanostructures*, Appl. Phys. Lett. **73** (1998), 3105.
- [Kra90] M. Krapf, G. Denninger, H. Pascher, G. Weinmann und W. Schlapp, *Optically detected conduction electron spin resonance and overhauser shift in p-GaAlAs/GaAs-heterostructures*, Sol. State. Comm. **74** (1990), 1141.

-
- [Kre05] H. J. Krenner, M. Sabathil, E. C. Clark, A. Kress, D. Schuh, M. Bichler, G. Abstreiter und J. J. Finley, *Direct Observation of Controlled Coupling in an Individual Quantum Dot Molecule*, Phys. Rev. Lett. **94** (2005), 057402.
- [Kro03] M. Kroutvar, Y. Ducommun, D. Heiss, M. Bichler, D. Schuh, G. Abstreiter und J. J. Finley, *Optically programmable electron spin memory using semiconductor quantum dots*, Nature **432** (2003), 81.
- [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** (1999), 1780.
- [Kul00] V.D. Kulakovskii, R. Weigand, G. Bacher, J. Seufert, T. KÜmmell, A. Forchel, K. Leonardi und D. Hommel, *Optical Spectroscopy on One and Two Exciton States in ZnSe-Based Single Quantum Dots*, Phys. Status Solidi A **178** (2000), 323.
- [Lam72] W. L. Lama, R. Jodoin und L. Mandel, *Superradiance in Radiatively Coupled Tuning Forks*, Am. J. Phys. **40** (1972), 32.
- [Lan85] L. D. Landau und E. M. Lifschitz, *Lehrbuch der Theoretischen Physik - Elektrodynamik der Kontinua*, vol. 8, Akademie Verlag Berlin, 1985.
- [Lar85] B.E. Larson, K.C. Hass, H. Ehrenreich, A.E. Carlsson, *Exchange mechanisms in diluted magnetic semiconductors*, Solid State Comm. **56** (1985), 347.
- [LB98] Landoldt-Börnstein, vol. 41, Springer, 1998, Subvolume B.
- [Lee90] Y.R. Lee, R. G. Alonso, E.-K. Suh, A. K. Ramdas, L.-X. Li und J. K. Furdyna, *Optical characterization of Cd_{1-x}Mn_xTe epilayers grown by liquid-phase epitaxy*, J. Appl. Phys. **68** (1990), 1023.
- [Lee05] S. Lee, H. S. Lee, J. Y. Lee J. K. Furdyna und M. Dobrowolska, *Experimental evidence for antiferromagnetic spin-spin interaction between carriers localized in coupled quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **86** (2005), 033114.
- [Los98] D. Loss D.P. Vincenzo, *Quantum computation with quantum dots*, Phys. Rev. A **57** (1998), 120.
- [Mac96] G. Mackh, *Magnetische Lokalisation und Dynamik von Exzitonen in semimagnetischen Halbleitern*, Ph.D. thesis, Physikalisches Institut der Julius-Maximilians-Universität Würzburg, 1996.
- [Mać03a] S. Maćkowski, H. E. Jackson, L. M. Smith, J. Kossut, G. Karczewski, W. Heiss, *Tuning the properties of magnetic CdMnTe quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **83** (2003), 3575.
- [Mać03b] S. Maćkowski, T. A. Nguyen, H. E. Jackson, L. M. Smith, J. Kossut und G. Karczewski, *Exciton spin relaxation time in quantum dots measured by continuous-wave photoluminescence spectroscopy*, Appl. Phys. Lett. **83** (2003), 5524.

- [Mać04] S. Maćkowski, T. Gurung, T. A. Nguyen, H. E. Jackson, L. M. Smith, G. Karczewski und J. Kossut, *Optically-induced magnetization of CdMnTe self-assembled quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **84** (2004), 3337.
- [Mad01] O. Madelung (ed.), *Semiconductors: Basic data*, Springer, 2001.
- [Mei84] F. Meier, B. P. Zakharchenya (ed.), *Optical orientation*, North-Holland, 1984.
- [Mel01] D.V. Melnikov und W. Beall Fowler, *Electron-phonon interaction in a spherical quantum dot with finite potential barriers: The Fröhlich Hamiltonian*, Phys. Rev. B **64** (2001), 245320.
- [Mer99] I. A. Merkulov, D. R. Yakovlev, A. Keller, W. Ossau, J. Geurts, A. Waag, G. Landwehr, G. Karczewski, T. Wojtowicz und J. Kossut, *Kinetic Exchange between the Conduction Band Electrons and Magnetic Ions in Quantum-Confined Structures*, Phys. Rev. Lett. **83** (1999), 1431.
- [Mer02] I. A. Merkulov, Al. L. Efros und M. Rosen, *Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. B **65** (2002), 205309.
- [Nic98] H. Nickolaus, H.-J. Wünsche, und F. Henneberger, *Exciton Spin Relaxation in Semiconductor Quantum Wells: The Role of Disorder*, Phys. Rev. Lett. **81** (1998), 2586.
- [Nol94a] W. Nolting, *Grundkurs theoretische Physik, Quantenmechanik, Teil 1: Quantenmechanik*, vol. 5-1, Zimmermann-Neufang, 1994.
- [Nol94b] W. Nolting, *Grundkurs theoretische Physik, Quantenmechanik, Teil 2: Methoden und Anwendungen*, vol. 5-2, Zimmermann-Neufang, 1994.
- [Oes96] M. Oestreich, S. Hallstein, A. P. Heberle, K. Eberl, E. Bauser und W.W. Rühle, *Temperature and density dependence of the electron Landé g factor in semiconductors*, Phys. Rev. B **53** (1996), 7911.
- [Oes01] M. Oestreich, J. Hübner, D. Hägele, M. Bender, N. Gerhardt, M. Hofmann, W.W. Rühle, H. Kalt, T. Hartmann, P. Klar, W. Heimbrodt und W. Stolz, *Spintronics: Spin Electronics and Optoelectronics in Semiconductors*, vol. 41, pp. 173–186, Springer, 2001.
- [Oes02] M. Oestreich, M. Bender, J. Hübner, D. Hägele, W.W. Rühle, T. Hartmann, P. J. Klar, W. Heimbrodt, M. Lampalzer, K. Volz und W. Stolz, *Spin injection, spin transport and spin coherence*, Semicond. Sci. Technol. **17** (2002), 285–297.
- [Ouy03] Min Ouyang und David D. Awschalom, *Coherent Spin Transfer Between Molecularly Bridged Quantum Dots*, Science **301** (2003), 1074.
- [Ove53a] A. W. Overhauser, *Paramagnetic Relaxation in Metals*, Phys. Rev. **89** (1953), 689.
- [Ove53b] A.W. Overhauser, *Polarization of Nuclei in Metals*, Phys. Rev. **92** (1953), 411.

-
- [Pag77] D. Paget, G. Lampel, B. Sapoval und V. I. Safarov, *Low field electron-nuclear spin coupling in gallium arsenide under optical pumping conditions*, Phys. Rev. B **15** (1977), 5780.
- [Pai00] M. Paillard, X. Marie, E. Vanelle, T. Amand, V. K. Kalevich, A. R. Kovsh, A. E. Zhukov und V. M. Ustinov, *Time-resolved photoluminescence in self-assembled InAs/GaAs quantum dots under strictly resonant excitation*, Appl. Phys. Lett. **76** (2000), 76.
- [Pai01] M. Paillard, X. Marie, P. Renucci, T. Amand, A. Jbeli und J. M. Gérard, *Spin Relaxation Quenching in Semiconductor Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **86** (2001), 1634.
- [Par05] G. Parascandolo und V. Savona, *Long-range radiative interaction between semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. B **71** (2005), 045335.
- [Pas02] T. Passow, K. Leonardi, H. Heinke, D. Hommel, D. Litvinov, A. Rosenauer, D. Gerthsen, J. Seufert, G. Bacher und A. Forchel, *Quantum dot formation by segregation enhanced CdSe reorganization*, J. Appl. Phys. **92** (2002), 6546.
- [pH02] G. W. p't Hooft, W. A. J. A. van der Poel, L. W. Molenkamp und C. T. Foxon, *Giant oscillator strength of free excitons in GaAs*, Phys. Rev. B **35** (2002), 8281.
- [Pre98] J. Preskill, *Reliable quantum computers*, Proc. R. Soc. London, Ser. A **454** (1998), 385.
- [Pul99] J. Puls, M. Rabe, H.-J. Wünsche, und F. Henneberger, *Magneto-optical study of the exciton fine structure in self-assembled CdSe quantum dots*, Phys. Rev. B **60** (1999), R16303.
- [Qiu00] Z. Q. Qiu und S. D. Bader, *Surface magneto-optic Kerr effect*, Rev. Sci. Instr. **71** (2000), 1243.
- [Ram02] M. Rambach, J. Seufert, M. Obert, G. Bacher, A. Forchel, K. Leonardi, T. Passow und D. Hommel, *Excitation Spectroscopy on Single Quantum Dots and Single Pairs of Quantum Dots*, Phys. Stat. Sol. b **229** (2002), 503.
- [Ree86] M. A. Reed, R. T. Bate, K. Bradshaw, W. M. Duncan, W. M. Frensley, J. W. Lee und H. D. Smith, *Spatial quantization in GaAs-AlGaAs multiple quantum dots*, J. Vacuum Sci. Technol. B **4** (1986), 358.
- [Sak93] J.J. Sakurai, *Modern quantum mechanics*, Addison Wesley, 1993.
- [Sam95] L. Samuelson, A. Gustaffson, D. Hessman, J. Lindahl, L. Montelius, A. Peterson und M. E. Pistol, *Optical characterization of quantum wires and quantum dots*, phys. stat. sol. (a) **152** (1995), 269.
- [Sca88] D. Scalabert, J. Cernogora und C. Benoit A La Guillaume, *Spin-lattice relaxation in paramagnetic CdMnTe*, Solid State Commun. **66** (1988), 571.

- [Sca96] D. Scalabert, *Spin-Lattice Relaxation in Diluted Magnetic Semiconductors*, phys. stat. sol. (b) **193** (1996), 189.
- [Sch03] M. Scheibner, J. Seufert, H. Schömiß, G. Bacher, A. Forchel, *Spin and polarization dynamics in magnetic and non-magnetic semiconductor quantum dots*, Proc. SPIE Vol. **4992**, p. 1-14; *Ultrafast Phenomena in Semiconductors VII*; Kong-Thon F. Tsen, Jin-Joo Song, Hongxing Jiang; Eds., 2003.
- [Seu99] J. Seufert, *II-VI-Halbleiter-Einzelquantenpunkte - Optische Spektroskopie an künstlichen Atomen*, 1999.
- [Seu00] J. Seufert, R. Weigand, G. Bacher, T. Kümmerling, A. Forchel, K. Leonardi und D. Hommel, *Spectral diffusion of the exciton transition in a single self-organized quantum dot*, Appl. Phys. Lett. **76** (2000), 1872.
- [Seu01] J. Seufert, M. Obert, M. Scheibner, N. A. Gippius, G. Bacher, A. Forchel, T. Passow, K. Leonardi und D. Hommel, *Stark effect and polarizability in a single CdSe/ZnSe quantum dot*, Appl. Phys. Lett. **79** (2001), 1033.
- [Seu02] J. Seufert, G. Bacher, M. Scheibner, A. Forchel, S. Lee, M. Dobrowolska und J. K. Furdyna, *Dynamical Spin Response in Semimagnetic Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **88** (2002), 027402.
- [Sha99] J. Shah, *Ultrafast spectroscopy of semiconductors and semiconductor nanostructures*, Springer, 1999.
- [Sha00] T. V. Shahbazyan, M. E. Raikh und Z. V. Vardeny, *Mesoscopic cooperative emission from a disordered system*, Phys. Rev. B **61** (2000), 13266.
- [She64] Y. R. Shen, *Faraday rotation of rare-earth ions. i. theory*, Phys. Rev. **133** (1964), no. 2A, A511.
- [Skr73] N. Skribanowitz, I. P. Herman, J. C. MacGillivray und M. S. Feld, *Observation of Dicke Superradiance in Optically Pumped HF Gas*, Phys. Rev. Lett. **30** (1973), 309.
- [Slo03] A. Slobodskyy, C. Gould, T. Slobodskyy, C. R. Becker, G. Schmidt und L.W. Molenkamp, *Voltage-Controlled Spin Selection in a Magnetic Resonant Tunneling Diode*, Phys. Rev. Lett. **90** (2003), 246601.
- [Sme02] J.H. Smet, R. A. Deutschmann, F. Ertl, W. Wegscheider, G. Abstreiter und K. von Klitzing, *Gate-voltage control of spin interactions between electrons and nuclei in a semiconductor*, Nature **415** (2002), 281.
- [Spi97] R. Spiegel, G. Bacher, A. Forchel, B. Jobst, D. Hommel und G. Landwehr, *Polarization-dependent formation of biexcitons in (Zn,Cd)Se/ZnSe quantum wells*, Phys. Rev. B **55** (1997), 9866.
- [Ste22a] O. Stern und W. Gerlach, *Der experimentelle Nachweis des magnetischen Moments des Silberatoms*, Zeitschr. f. Physik **8** (1922), 110.

-
- [Ste22b] O. Stern und W. Gerlach, *Der experimentelle Nachweis der Richtungsquantelung im Magnetfeld*, Zeitschr. f. Physik **9** (1922), 349.
- [Str92] Strutz, A. M. Witowski und P. Wyder, *Spin-lattice relaxation at high magnetic fields*, Phys. Rev. Lett. **68** (1992), 3912.
- [T00] 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** (2000), 9944.
- [Tar04a] A.I. Tartakovskii, J. Cahill, M. N. Makhonin, D.M. Whittaker, J-P. R. Wells, A. M. Fox, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, K. M. Groom, M. J. Steer und M. Hopkinson, *Dynamics of Coherent and Incoherent Spin Polarizations in Ensembles of Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **93** (2004), 057401.
- [Tar04b] A.I. Tartakovskii, M.N. Makhonin, I.R. Sellers, J. Cahill, A.D. Andreev, D.M. Whittaker, J-P. R. Wells, A.M. Fox, D.J. Mowbray, M.S. Skolnick, K.M. Groom, M.J. Steer, H.Y. Liu und M. Hopkinson, *Effect of thermal annealing and strain engineering on the fine structure of quantum dot excitons*, Phys. Rev. B **70** (2004), 193303.
- [Tsi02] E. Tsitsishvili, R. v. Baltz und H. Kalt, *Temperature dependence of polarization relaxation in semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. B **66** (2002), 161405(R).
- [Tsi03] E. Tsitsishvili, R. v. Baltz und H. Kalt, *Exciton spin relaxation in single semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. B **67** (2003), 205330.
- [Twa84] A. Twardowski, M. von Ortenberg, M. Demianiuk, und R. Pauthenet, *Magnetization and exchange constants in $Zn_{1-x}Mn_xSe$* , Solid State Commun. **51** (1984), 849.
- [Ž04] I. Žutić, J. Fabian und S. Das Sarma, *Spintronics: Fundamentals and applications*, Reviews of modern physics **76** (2004), 323.
- [Wan92] X. Wang, M. Dahl, D. Heiman, P. A. Wolff und P. Becla, *Spin-lattice relaxation of spin pairs in CdSe:Mn by the Dzyaloshinski-Moriya exchange interaction*, Phys. Rev. B **46** (1992), 11216.
- [Win04] M. J. Winter, WebElementsTM (2004), <http://www.webelements.com/>.
- [Wog03] U. Woggon, *Optical Properties of Semiconductor Quantum Dots*, Springer, 2003.
- [Wol01] S.A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnár, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova, D. M. Treger, *Spintronics: A Spin-Based Electronics Vision for the Future*, Science **294** (2001), 1488.
- [Yaf63] Y. Yafet, *g Factors And Spin-Lattice Relaxation Of Conduction Electrons*, vol. 14, p. 2, Academic, New York, 1963.

- [Yan93] Z. J. Yang und M. R. Scheinfein, *Combined three-axis surface magneto-optical Kerr effects in the study of surface and ultrathin-film magnetism*, J. Appl. Phys. **74** (1993), 6810.
- [You96] C.-Y. You und S.-C. Shin, *Derivation of simplified analytic formulae for magneto-optical Kerr effects*, Appl. Phys. Lett. **69** (1996), 1315.
- [Zak90] J. Zak, E. R. Moog, C. Liu und S. D. Bader, *Fundamental magneto-optics*, J. Appl. Phys. **68** (1990), 4203.
- [Zve97] A. K. Zvezdin, V. A. Kotov (ed.), *Modern magneto-optics and magneto-optical materials*, Institute of Physics Publishing, 1997.

Danksagung

Zu guter letzt möchte ich mich bei all jenen bedanken, die es mir durch ihre Unterstützung und Mithilfe ermöglicht habend, diese Arbeit anzufertigen:

- Herrn Prof. Dr. A. Forchel für die Aufnahme am Lehrstuhl für Technische Physik und die Bereitstellung moderner experimenteller Geräte.
- Herrn Prof. Dr. G. Bacher für die Betreuung dieser Arbeit, stetiges Interesse an deren Durchführung und den zahllosen inspirierenden Diskussionen weit über seine Zeit in Würzburg hinaus.
- Den Herren Prof. Dr. A. Forchel und Prof. Dr. G. Bacher danke ich zudem für die Vermittlung der Kontakte zum Naval Research Laboratory in Washington D.C. und die Unterstützung meines einjährigen Aufenthalts an diesem Forschungsinstitut.
- Herrn PD Dr. L. Worschech für die weiterführende Betreuung dieser Arbeit und die stetige Unterstützung in der Zeit nach meiner Rückkehr vom Naval Research Laboratory.
- Herrn Dr. T.L. Reinecke für die Einladung ein Jahr in der Abteilung für 'Electronic Materials' am Naval Research Laboratory forschen zu dürfen und die Hilfe bei organisatorischen Angelegenheiten innerhalb wie außerhalb des Labors.
- Herrn Dr. T.A. Kennedy für die wunderbare Zusammenarbeit im Labor, die anregenden Diskussionen und die Vermittlung einiger experimenteller Kniffe.
- Herrn Dr. S. Badescu für die vielen Diskussionen im und außerhalb des Labors und die Hilfe bei täglichen Problemen aller Art.
- Allen weiteren Mitarbeitern und Gastwissenschaftlern der Abteilung für 'Electronic Materials' für die herzliche Arbeitsatmosphäre, zahlreichen Diskussionen, die Bereitstellung von erstklassigen Proben und experimentellen Geräten, insbesondere den Herrn Dr. D. B. Shanabrook, Dr. D. Gammon, Dr. A. Bracker, Prof. Dr. J.S. Colton, Prof. Dr. D. Gershoni, Dr. E. Glaser und Dr. V. L. Korenev.

- Dem Herrn T. Schmidt, den ich während seiner Diplomarbeit betreuen durfte, für die Unterstützung bei den experimentellen Untersuchungen und die gute Zusammenarbeit.
- Allen Mitgliedern der II-VI-Spektroskopiegruppe J. Seufert, M.K. Welsch, H. Schömig, M. Obert, B. Wild, S. Halm, J. Renner, E. Margapoti, D. Weiskopf für eine wundervolle Arbeitsatmosphäre und schöne gemeinsame Stunden auch außerhalb der Büros und Labors.
- Allen Techn. Assistenten insbesondere Frau M. Emmerling für die exzellente und prompte Strukturierung der Proben sowie den fachlichen und nicht so fachlichen Unterhaltungen.
- Dem Herrn G. Heller für die stets prompte Unterstützung in Sachen Lasertechnik und sonstigen technischen Fragen.
- Den Sekretärinnen Frau A. Schmidt und Frau A. Berger für die stetige Hilfsbereitschaft in allen nicht so technischen Angelegenheiten.
- Dr. V. Latusek und allen weiteren Mitarbeitern in der Verwaltung, die stets bemüht waren, alle nötigen Dokumente so schnell wie möglich zu bearbeiten und in alle Richtungen weiter zu leiten.
- Meiner Freundin Thea für die Geduld und das Verständnis, das sie für die unzähligen Stunden, die ich anstatt mit ihr in Labors dies und jenseits des großen Teichs verbracht habe.
- Meiner Familie für jegliche Unterstützung, jede Aufmunterung und jede gelegentlich doch benötigte Ablenkung. Ganz besonders danke ich meinen Eltern, die mir diesen Weg überhaupt erst ermöglicht haben, mir dabei stets sowohl finanziell wie auch tatkräftig mit vollem Herzen zur Seite standen.

Lebenslauf

Michael Scheibner, geboren am 19.03.1975 in Ebern

1981–1985	Grundschule Rentweinsdorf
1985–1994	Friedrich-Rückert-Gymnasium Ebern
Juli 1994	Abitur
Juli 1994–September 1995	Wehrersatzdienst im OP- und Ambulanzbereich des Kreiskrankenhauses Ebern
November 1995	Beginn des Studiums der Physik an der Julius-Maximilians-Universität Würzburg
Oktober 1997	Vordiplom
1998–1999	Studium der Physik an der University of New Mexico, Albuquerque, NM (USA)
Mai 1999	Master Of Science-Abschluß
1999–2001	Fortführung des Physikstudiums und Diplomarbeit am Lehrstuhl für Technische Physik der Universität Würzburg bei PD Dr. Gerd Bacher. Thema: <i>Spindynamik in niederdimensionalen - Halbleiterstrukturen</i>
September 2001	Diplom in Physik
2001–2004	Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Lehrstuhl für Technische Physik der Universität Würzburg bei Prof. Dr. A. Forchel
2003	1-jähriger Forschungsaufenthalt am Naval Research Laboratory Washington DC USA in der Abteilung für Electronic Materials bei Dr. T. A. Kennedy
seit Mai 2005	Gastwissenschaftler am Naval Research Laboratory Washington DC USA in der Abteilung für Electronic Materials in der Gruppe von Dr. D. Gammon.

Würzburg, den 29.12.2005

Michael Scheibner

Ehrenwörtliche Erklärung

gemäß §6 Abs. 3 und 5
der Promotionsordnung der
Fakultät für Physik und Astronomie
der Universität Würzburg

Hiermit erkläre ich ehrenwörtlich, daß ich die Dissertation selbständig und ohne Hilfe eines Promotionsberaters angefertigt und keine weiteren als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

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

Am 15. Mai 1999 wurde mir von der University of New Mexico at Albuquerque, NM (USA) der akademische Grad 'Master Of Science' verliehen. Am 03. September 2001 wurde mir von der Universität Würzburg der akademische Grad 'Diplom-Physiker (Univ.)' verliehen. Weitere akademische Grade habe ich weder erworben noch versucht zu erwerben.

Würzburg, den 29.12.2005

Michael Scheibner

