

# Optische Untersuchung und Kontrolle der Spindynamik in Mn dotierten II-VI Quantenpunkten

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

vorgelegt von

**Thomas Schmidt**

geboren in Werneck

Würzburg 2009

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

12. Januar 2009

Gutachter der Dissertation:  
1. Gutachter: PD Dr. Lukas Worschech  
2. Gutachter: Prof. Dr. Karl Brunner

Prüfer im Promotionskolloquium:  
1. Prüfer: PD Dr. Lukas Worschech  
2. Prüfer: Prof. Dr. Karl Brunner  
3. Prüfer: Prof. Dr. Wolfgang Kinzel

Tag des Promotionskolloquiums: 13. Mai 2009

Doktorurkunde ausgehändigt am:

*Meinen Eltern*

*Meinem Bruder*

*Meinen Freunden*

## Veröffentlichungen:

- 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“**  
*Journal of Applied Physics* **100**, 123109 (2006)  
rezitiert in:  
*Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology*,  
Vol. **15**, Issue 2, 15. Januar 2007  
*Virtual Journal of Ultrafast Science*, Vol. **6**, Issue 1, Januar 2007
- M. Scheibner, T. Schmidt, L. Worschech, A. Forchel, G. Bacher, T. Passow und D. Hommel:  
**„Superradiance of quantum dots“**  
*Nature Physics* **3**, 106 (2007)
- T. Schmidt, L. Worschech, M. Scheibner, A. Forchel, T. Slobodskyy, G. Schmidt und L. W. Molenkamp:  
**„Spin Polarization in Semimagnetic CdMnSe/ZnSe Quantum Dots with Zero Exciton g Factor“**  
*International Journal of Modern Physics B* **21**, 1626 (2007)
- T. Schmidt, L. Worschech, A. Forchel, M. Scheibner, G. Bacher, T. Slobodskyy, G. Schmidt und L. W. Molenkamp:  
**„Light controlled spin properties and radiative coupling of CdSe based quantum dots“**  
*physica status solidi (c)*, **4**, 3334 (2007)
- S. Mahapatra, T. Kiessling, E. Margapoti, G. V. Astakhov, J. Renner, U. Bass, C. Bougerol, T. Schmidt, A. Bendounan, F. Schmitt, C. Schumacher, L. Worschech, W. Ossau, J. Geurts, L. W. Molenkamp, F. Reinert, A. Forchel und K. Brunner:  
**„CdSe/ZnSe heteroepitaxy: Aspects of growth and self organization of nanostructures“**  
*physica status solidi (c)*, **4**, 3129 (2007)
- L. Worschech, T. Schmidt, A. Forchel, T. Slobodskyy, G. Schmidt und L. W. Molenkamp:  
**„Optical polarization of semimagnetic CdSe quantum dots with low manganese content“**  
*Semiconductor Science and Technology*, **23**, 114018 (2008)
- T. Schmidt, L. Worschech, A. Forchel, T. Slobodskyy, G. Schmidt und L. W. Molenkamp:  
**„Mn-enhanced collective emission of quantum dots“**  
eingereicht bei *Physical Review Letters*, (2008)

# Inhaltsverzeichnis

<b>Zusammenfassung - Summary</b>	<b>1</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>7</b>
<b>2 Physikalische Grundlagen</b>	<b>11</b>
2.1 II-VI Verbindungshalbleiter . . . . .	11
2.2 Semimagnetische Halbleiter . . . . .	12
2.3 Niederdimensionale Strukturen . . . . .	14
2.4 Grundlagen: Drehimpuls und Spin . . . . .	16
2.5 Optisch aktive Übergänge im Halbleiter . . . . .	19
2.6 Der Exziton-Grundzustand im Quantenpunkt . . . . .	21
2.6.1 Longitudinales Magnetfeld ( $\vec{B} \parallel \vec{z}$ ) . . . . .	22
2.6.2 Transversales Magnetfeld ( $\vec{B} \perp \vec{z}$ ) . . . . .	23
<b>3 Experimentelle Untersuchungsmethoden</b>	<b>25</b>
3.1 Die Magnetolumineszenz-Spektroskopie . . . . .	25
3.1.1 Messplatzaufbau . . . . .	26
3.2 Zeitaufgelöste Photolumineszenzspektroskopie . . . . .	29
3.2.1 Der ps-Messplatz . . . . .	29
3.2.2 Funktionsweise der Streak-Kamera . . . . .	30
<b>4 Herstellung niederdimensionaler Strukturen</b>	<b>33</b>
4.1 Molekular-Strahl-Epitaxie . . . . .	33
4.2 Nanostrukturierung . . . . .	34
4.2.1 $\mu$ -Photolumineszenz und Nahfeldmikroskopie . . . . .	35
4.2.2 Lithographische Strukturierungsmethoden . . . . .	36
<b>5 Photolumineszenzsignal semimagnetischer Quantenpunkte</b>	<b>39</b>
5.1 Photolumineszenzspektren . . . . .	39
5.2 Bestimmung der Quantenpunktdichte . . . . .	40
5.3 PL-Spektrum versus Anregungsenergie . . . . .	42
5.4 Magnetfeldabhängigkeit der PL-Intensität . . . . .	45
5.5 $Mn^{2+}$ Lumineszenz . . . . .	50
5.6 Resonanter Energietransfer . . . . .	53

<b>6</b>	<b>Faraday-Geometrie: Eigenschaften der QP-Polarisation</b>	<b>61</b>
6.1	PL-Polarisation von $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$ Quantenpunkten . . . . .	62
6.2	Vorpolarisation - optische Orientierung . . . . .	66
6.3	Ladungsträgerrelaxation . . . . .	69
6.4	Optische Manipulation des g-Faktors . . . . .	74
6.5	Temperatur des $\text{Mn}^{2+}$ Spinsystems . . . . .	78
6.6	Inversion des Polarisationsgrades . . . . .	79
6.7	PL-Polarisation von $\text{CdSe}/\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ Quantenpunkten . . . . .	82
<b>7</b>	<b>Linear-zirkularer Polarisationstransfer</b>	<b>85</b>
7.1	Der „Pseudospin“-Formalismus . . . . .	86
7.2	$\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$ Quantenpunkte . . . . .	88
7.2.1	Linear-zirkular Konvertierung ohne Magnetfeld . . . . .	88
7.2.2	Linear-zirkular Konvertierung im Magnetfeld . . . . .	89
7.3	$\text{CdSe}/\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ Quantenpunkte . . . . .	93
<b>8</b>	<b>Polarisation unter Voigt-Geometrie</b>	<b>97</b>
8.1	Der Hanle-Effekt . . . . .	97
8.1.1	Grundlagen . . . . .	97
8.1.2	Experimentelle Ergebnisse . . . . .	99
8.2	Linear-zirkular Konvertierung in Voigt-Geometrie . . . . .	103
<b>9</b>	<b>Optische Wechselwirkung von Quantenpunkten</b>	<b>107</b>
9.1	PL-Dynamik der $\text{CdMnSe}/\text{ZnSe}$ Quantenpunkte . . . . .	108
9.2	Modell: Funktionale Abhängigkeit der Lebensdauer . . . . .	112
9.3	Spektrale Abhängigkeit der Strahlungskopplung . . . . .	114
9.4	Temperaturabhängigkeit und nicht resonante Dynamik . . . . .	115
<b>A</b>	<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>119</b>
<b>B</b>	<b>Probenregister</b>	<b>121</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>125</b>

# Zusammenfassung - Summary

## Zusammenfassung

Der technologische Fortschritt in der Optoelektronik und Elektronik der vergangenen Jahrzehnte basiert auf einer intensiven Grundlagenforschung im Bereich der Halbleitertechnik. Während vor einigen Jahren die Herstellung und Entwicklung von Bauelementen mit klassischen Wirkprinzipien noch im Blickpunkt der Untersuchungen standen, treten Quanteneffekte von niederdimensionalen Strukturen für die Anwendung in der Kommunikation und Informationsverarbeitung mehr und mehr in den Vordergrund der Forschungstätigkeiten. Heutzutage können aus Halbleitern „künstliche Atome“ (Quantenpunkte) mit maßgeschneiderten Eigenschaften realisiert werden. Hierbei rückt neben den optischen und elektronischen Funktionen zunehmend der Spin der Ladungsträger als möglicher Informationsträger in den Mittelpunkt des Interesses. Die diskrete Zustandsdichte von Halbleiterquantenpunkten gewährleistet dabei eine lange Lebensdauer der Spinzustände. Die vorliegende Arbeit befasste sich mit dem Spin- und dem damit eng verbundenen Polarisationszustand von Ladungsträgern in CdSe/ZnSe Quantenpunkten. II-VI Materialsysteme können in geeigneter Weise mit dem Nebengruppenelement Mangan gemischt werden. Diese semimagnetischen Nanostrukturen weisen eine Vielzahl von charakteristischen optischen und elektrischen Besonderheiten auf. Verantwortlich dafür ist eine Austauschwechselwirkung zwischen dem Spin optisch erzeugter Ladungsträger und den 3d Elektronen der  $Mn^{2+}$  Ionen. Im Rahmen dieser Arbeit erfolgte die Adressierung gezielter Spinzustände durch optische Anregung der Ladungsträger. Die Besetzung unterschiedlicher Spinzustände konnte durch Detektion des Polarisationsgrades der emittierten Photolumineszenz (PL) bestimmt werden. Dabei kamen verschiedene optische Methoden wie zeitaufgelöste und zeitintegrierte PL-Spektroskopie sowie Untersuchungen in Magnetfeldern zum Einsatz.

Zunächst erfolgte die Charakterisierung der mittels MBE-Wachstum hergestellten  $Cd_{1-x}Mn_xSe/ZnSe$  beziehungsweise  $CdSe/Zn_{1-x}Mn_xSe$  Quantenpunkte mit unterschiedlicher  $Mn^{2+}$  Konzentration. Zeitintegrierte PL-Spektroskopie ermöglichte die Bestimmung der spektralen Lage und der Flächendichte der Quantenpunkte. Es stellte sich heraus, dass die untersuchten Proben eine mittlere Quantenpunktdichte von  $10^{11} \text{ cm}^{-2}$  besitzen. Von besonderem Interesse ist in diesem Zusammenhang das Lumineszenzsignal der  $Mn^{2+}$  Ionen. Neben der in der Literatur angegebenen Emission bei ca. 2.12 eV wiesen die untersuchten  $CdSe/Zn_{1-x}Mn_xSe$  Proben ein weiteres Emissionsmaximum bei ca. 1.93 eV auf, welches auf Lokalisierung einiger  $Mn^{2+}$  Ionen an Defektstellen des Kristallgitters zwischen den Quantenpunkten und dem ZnSe Barrierenmaterial zurückgeführt wurde. Magnet-

feldabhängige Untersuchungen zeigten für diese Proben eine deutlich erhöhte Zeeman-Verschiebung des zirkular polarisierten PL-Signals.

Die Intensität der Quantenpunkt PL und  $\text{Mn}^{2+}$  Lumineszenz in Abhängigkeit eines äußeren Magnetfeldes entlang der Wachstumsrichtung der Proben (Faraday-Geometrie) zeigte für Quantenpunkte mit  $x = 0.053$  eine gleichzeitige Erhöhung der PL und der  $\text{Mn}^{2+}$  Lumineszenz im Bereich zwischen  $2.5 \text{ T} < B < 5 \text{ T}$ . Die Zeeman-Verschiebung der Quantenpunkt PL legte den Schluss nahe, dass in diesem Bereich ein resonanter Energietransfer zwischen den exzitonischen Niveaus der Quantenpunkte und dem  ${}^6A_1 \rightarrow {}^4T_2$  Absorptionsband der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen auftritt.

Untersuchungen zur zirkularen Polarisation an  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkten zeigten, dass für moderate  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentrationen mit  $x \leq 2\%$  der zirkulare Polarisationsgrad maßgeblich von der Zeeman-Aufspaltung der exzitonischen Zustände und der Polarisation  $\rho_O$  des Laserlichts bestimmt wird. Der durch die Zeeman-Aufspaltung bedingte Anteil der Polarisation  $\rho_R$  deutet auf einen Vorzeichenwechsel des exzitonischen g-Faktors der Quantenpunkte mit steigender  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration hin. Für  $x = 0.0$  konnte ein g-Faktor von  $g_x \approx -1.62$  und eine Spinrelaxationszeit von  $\tau_s \approx 3.2 \text{ ns}$  ermittelt werden. Im Gegensatz dazu besitzen die Quantenpunkte mit  $x = 0.02$  einen g-Faktor von  $g_x \approx +1.32$  und eine Spinrelaxationszeit von  $\tau_x \approx 1.2 \text{ ns}$ . Der Vorzeichenwechsel der Zeeman-Aufspaltung trat für Quantenpunkte mit einer nominellen  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration von  $x = 0.01$  auf.  $\rho_R$  zeigte für diese Proben nur eine geringe Abhängigkeit vom äußeren Magnetfeld. Im Vergleich zur 0% und 2% Probe ergab sich eine ungefähr 2.8 beziehungsweise 7.5-mal längere Spinrelaxationszeit. Der Wert für  $g_x$  beträgt lediglich  $g_x \approx -0.05$ . Aus den Daten der optischen Orientierung konnte zudem die Feinstrukturaufspaltung der optisch aktiven Zustände ohne externes Magnetfeld zu  $\delta_1 \approx -230 \mu\text{eV}$ ,  $\delta_1 < -3 \mu\text{eV}$  und  $\delta_1 \approx +180 \mu\text{eV}$  für  $x = 0.0$ ,  $x = 0.01$  und  $x = 0.02$  abgeschätzt werden.

Des Weiteren wurde eine Möglichkeit aufgezeigt, den g-Faktor und damit die Zeeman-Aufspaltung optisch zu manipulieren. Dazu wurde die Leistung des Anregungslasers schrittweise erhöht und  $\rho_R$  für Quantenpunkte mit  $x = 0.01$  bestimmt. Für eine mittlere Anregungsleistung von  $P = 9 \text{ mW}$  konnte ein ungefähr 30-mal größerer Wert des g-Faktors von  $g_x \approx -1.47$  bestimmt werden. Das Erhöhen der Anregungsleistung bewirkte ein optisches Heizen des  $\text{Mn}^{2+}$  Systems und führte zu einer Unterdrückung der sp-d Austauschwechselwirkung. Dadurch nahm die Spinrelaxationszeit auf ca. 3 ns bis 4 ns ab. Eine Analyse der effektiven Temperatur des  $\text{Mn}^{2+}$  Systems zeigte, dass zunächst für moderate Anregungsleistungen ein mittels Phononen induzierter, indirekter Heizprozess vorliegt ( $P \propto T^4$ ). Erst für hohe Anregungsleistungen  $P > 3 \text{ mW}$  überwiegt ein direkter durch „Spin-Flip“ Prozesse dominierter Heizmechanismus ( $P \propto T$ ). Analoge Experimente an Quantenpunkten mit  $x = 0.02$  zeigten, dass durch optisches Heizen des  $\text{Mn}^{2+}$  Spinsystems der zirkulare Polarisationsgrad invertiert werden kann. Auf Grund der höheren Zeeman-Aufspaltung der Quantenpunkte erwies sich hier der indirekte Heizmechanismus als der ausschlaggebende Faktor. Dieser Abschnitt der Arbeit wurde mit der Analyse des zirkularen Polarisationsgrades an barrierendotierten  $\text{CdSe}/\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$  Quantenpunkten abgerundet. Im Vergleich zu den mit Mangan dotierten Quantenpunkten wiesen diese Proben eine deutlich größere Zeeman-Aufspaltung auf. Der zirkulare Polarisationsgrad wird damit maßgeblich durch  $\rho_R$  bestimmt, während  $\rho_O$  keinen wesent-

lichen Beitrag liefert. Lediglich eine Erhöhung von  $\rho_O$  im Fall  $B = 0$  deutete für hohe Mangankonzentrationen auf eine Formation magnetischer Polaronen hin.

Im Anschluss daran wurde die Umwandlung von linear polarisiertem Laserlicht in zirkular polarisierte Emission der Quantenpunkte untersucht. Es zeigte sich, dass abhängig von der Orientierung der Polarisations Ebene des linear polarisierten Laserstrahls die zirkulare Polarisation der Quantenpunkt PL einen sinusförmigen Verlauf aufweist. Dies deutete auf eine Quanteninterferenz der linear beziehungsweise zirkular polarisierten, optisch aktiven Eigenzustände der Quantenpunkte hin. Theoretisch konnte dieses Verhalten durch ein Pseudospin-Modell erklärt werden. Ohne Magnetfeld war das Maximum der zirkularen Polarisation für linear polarisierte Anregung zunächst entlang der [100]- beziehungsweise [010]-Achse des Kristallgitters zu beobachten. Dem Pseudospin-Modell entsprechend verschob sich mit steigendem Magnetfeld das Maximum des zirkularen Polarisationsgrades in Richtung der [110]- beziehungsweise  $[\bar{1}\bar{1}0]$ -Achse.

Untersuchungen zum Hanle-Effekt an  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkten rundeten die polarisationsabhängigen Messungen ab. Dabei wurde der Verlauf des zirkularen Polarisationsgrades unter  $\sigma^+$  und  $\sigma^-$  polarisierter Anregung in Abhängigkeit eines externen Magnetfeldes senkrecht zur Wachstumsrichtung (Voigt-Geometrie) bestimmt. Während die Proben mit einem nicht verschwindenden Exziton-g-Faktor ( $x = 0.0$  und  $x = 0.02$ ) das erwartete Lorentz-förmige Hanle-Signal lieferten, zeigten Quantenpunkte mit  $x = 0.01$  eine Asymmetrie der zirkularen Polarisation. Abhängig von der Orientierung des externen Magnetfeldes und der Anregungspolarisation wies der Polarisationsgrad einen periodischen Verlauf auf.

Der letzte Teil der Arbeit beschäftigte sich mit der Rekombinationsdynamik der Quantenpunkte. Mittels lithographischer Ätzprozesse konnte die Anzahl der Quantenpunkte schrittweise reduziert werden. Zeitaufgelöste Untersuchungen für Anregungsenergien unterhalb der ZnSe Bandkante ( $E_{exc} < E_{ZnSe}$ ) zeigten eine deutliche Zunahme der exzitonischen Lebensdauer mit abnehmender Zahl an Quantenpunkten. Diese Beobachtung erwies sich als eine strahlungsinduzierte Wechselwirkung zwischen benachbarten und energetisch identischen Quantenpunkten. Während für CdSe/ZnSe Quantenpunkte eine Änderung der Lebensdauer nur im Fall  $E_{exc} < E_{ZnSe}$  beobachtet werden konnte, trat dieser Effekt im Fall semimagnetischer Quantenpunkte mit einer moderaten Mangandotierung auch für Anregungsenergien oberhalb der ZnSe Bandkante auf. Dies deutete auf eine erhöhte kollektive Emission dieser Quantenpunkte durch Wechselwirkung der photogenerierten Ladungsträger mit den  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen hin. Auch zeigte sich, dass die effektive Dichte und damit die Anzahl der über das gemeinsame Strahlungsfeld wechselwirkenden Quantenpunkte etwa doppelt so hoch ist wie für undotierte CdSe/ZnSe Quantenpunkte.

## Summary

The technological advances in optoelectronics and electronics in the past decades are based on an intensive research in the area of semiconductor technology. Whereas a few years ago the interest was focused on the fabrication and development of devices with classical functionality, the application of quantum effects of low dimensional structures for communication and information processing attracts increasing attention in research activities. Nowadays semiconductors are used to realize “artificial atoms” (quantum dots) with well defined properties. Beside the optical and electronic performance, the spin of charge carriers as a potential information carrier is considered. In particular the discrete density of states of solid state quantum dots provides long spin lifetimes.

The present thesis deals with the spin of charge carriers confined in CdSe/ZnSe quantum dots (QDs) closely linked to the polarization of emitted photons. II-VI material systems can be adequately mixed with the B-group element manganese. Such semimagnetic nanostructures offer a number of characteristic optical and electronic features. This is caused by an exchange interaction between the spin of optically excited carriers and the 3d electrons of the  $\text{Mn}^{2+}$  ions. Within the framework of this thesis addressing of well defined spin states was realized by optical excitation of charge carriers. The occupation of different spin states was detected by the degree of polarization of the emitted photoluminescence (PL) light. For that purpose different optical methods of time-resolved and time-integrated spectroscopy as well as investigations in magnetic fields were applied.

First of all the characterization of molecular beam epitaxy (MBE) grown  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  and  $\text{CdSe}/\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$  QDs with different  $\text{Mn}^{2+}$  concentration was carried out. Time-integrated PL spectroscopy allows to determine the spectral position and the areal density of the QDs. It was found that the studied samples exhibit an average QD density of about  $10^{11} \text{ cm}^{-2}$ . Special interest was dedicated to the luminescence signal of the  $\text{Mn}^{2+}$  ions. The studied  $\text{CdSe}/\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$  QDs show a new emission peak at about 1.93 eV below the well known  $\text{Mn}^{2+}$  emission band at about 2.12 eV. Such an emission can be related to  $\text{Mn}^{2+}$  ions located at crystal defects in the intersection between the QDs and the ZnSe host material. Applying magnetic fields these samples show a considerably enhanced Zeeman shift of the circular polarized PL signal.

For QDs with  $x = 0.053$  the intensity of both the  $\text{Mn}^{2+}$  luminescence and QD PL is enhanced by applying an external magnetic field between  $2.5 \text{ T} < B < 5 \text{ T}$  along the direction of growth (Faraday geometry). From the Zeeman shift of the QD PL it can be concluded that a resonant energy transfer takes place between the exciton states and the  ${}^6A_1 \rightarrow {}^4T_2$  absorption band of the  $\text{Mn}^{2+}$  ions.

By studying the circular polarization of  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  QDs, it was shown that for moderate  $\text{Mn}^{2+}$  concentrations with  $x \leq 2\%$  the degree of circular polarization is mainly controlled by the Zeeman splitting of the exciton states and the polarization  $\rho_O$  of the laser light. With increasing  $\text{Mn}^{2+}$  content the Zeeman splitting  $\rho_R$  shows a sign reversal of the exciton g-factor. For  $x = 0.0$  a g-factor of  $g_x \approx -1.62$  and a spin relaxation time of  $\tau_s \approx 3.2 \text{ ns}$  were determined. In contrast, QDs with  $x = 0.02$  have a g-factor of  $g_x \approx +1.32$  and  $\tau_s \approx 1.2 \text{ ns}$ . The sign-reversal of the Zeeman splitting takes place for a nominal  $\text{Mn}^{2+}$  concentration of  $x = 0.01$ . For this particular sample,  $\rho_R$  is almost not affected by an

external magnetic field. In comparison to the sample with 0% and 2%  $\text{Mn}^{2+}$  the spin relaxation time is by a factor of 2.8, and 7.5 larger, respectively. The value of  $g_x$  is only  $g_x \approx -0.05$ . From the optical orientation the fine structure splitting of the optical active eigenstates in the case of zero magnetic field was estimated as  $\delta_1 \approx -230 \mu\text{eV}$ ,  $\delta_1 < -3 \mu\text{eV}$ , and  $\delta_1 \approx +180 \mu\text{eV}$  for  $x = 0.0$ ,  $x = 0.02$ , and  $x = 0.02$ , respectively.

In addition, a possibility was demonstrated to manipulate the g-factor and thus the Zeeman splitting by optical methods. For that purpose the power of the exciting laser was gradually enhanced and  $\rho_R$  was determined for QDs with  $x = 0.01$ . For an average excitation power of  $P = 9 \text{ mW}$  the g-factor was enhanced by a factor of 30 with a value of  $g_x \approx -1.43$ . Increasing the excitation power leads to an optical heating of the  $\text{Mn}^{2+}$  system and thus to a suppressed sp-d exchange interaction. As a result, the spin relaxation time decreases to a value of about 3 to 4 ns. In the case of moderate excitation power a phonon mediated heating mechanism ( $P \propto T^4$ ) takes place revealed by a detailed analysis of the effective  $\text{Mn}^{2+}$  temperature. In the case of larger excitation powers ( $P < 3 \text{ mW}$ ) direct heating via a spin-flip process ( $P \propto T$ ) dominates. Similar experiments with QDs of  $x = 0.02$  showed that optical heating can invert the circular degree of polarization. Due to the higher Zeeman splitting of these QDs, the indirect heating process is dominant here. This chapter of the thesis is completed by a study of the circular degree of polarization of  $\text{CdSe}/\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$  QDs with a  $\text{Mn}^{2+}$  doped barrier. Compared to the diluted QD samples, these dots exhibit a significant larger Zeeman splitting. Thus the degree of circular polarization is mainly influenced by  $\rho_R$ , whereas  $\rho_O$  does not considerably contribute. Only in the case of  $B = 0$  an enhancement of  $\rho_O$  was observed attributed to a formation of magnetic polarons.

Next, the conversion of linearly polarized laser light to circularly polarized PL emission of the QDs was studied. We found a sinus-like evolution of the circular polarized PL emission dependent on the orientation of the polarization plane of the linearly polarized laser beam. Such an observation points toward an interference between the linear and circular polarized eigenstates of the QDs. A pseudospin model fits well to the experimental findings. Without magnetic field the maximum of circular polarization was observed for linearly polarized excitation along the [100] or [010] axis of the crystal, respectively. According to the pseudospin model, the polarization maximum shifts with increasing magnetic field strength.

The polarization measurements were concluded by a study of the Hanle effect for  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  QDs. Therefore the degree of circular polarization for  $\sigma^+$  and  $\sigma^-$  excitation was determined as a function of a perpendicular magnetic field (Voigt geometry). Whereas the samples with non-zero exciton g-factor ( $x = 0.0$  and  $x = 0.02$ ) show the expected Lorentian Hanle signal, QDs with  $x = 0.01$  exhibit an asymmetry of the circular polarization. The degree of circular polarization shows a periodic response to the magnetic field strength controlled by the direction of the field and the excitation condition.

The final chapter of the thesis deals with the recombination dynamics of QDs. By means of lithography and wet chemical etching a stepwise reduction of the number of QDs was realized in mesa arrays. Time-resolved investigations for excitation energies below the ZnSe band gap ( $E_{exc} < E_{\text{ZnSe}}$ ) showed a large increase of the exciton lifetime with decreasing number of QDs. Such an observation was associated to a radiation induced interaction of

QDs. Whereas for CdSe/ZnSe QDs only for excitation conditions  $E_{exc} < E_{ZnSe}$  a change of the lifetime was observed, semimagnetic dots exhibit a variation of the lifetime also for a laser energy above the ZnSe band gap. This was interpreted as a fingerprint of collective emission of the QDs due to an interaction of photo-generated charge carriers and the  $Mn^{2+}$  ions. The effective density and thus the number of interacting QDs was found to be about twice as much compared to CdSe/ZnSe QDs.

# 1 Einleitung

Die moderne Elektronik und Optoelektronik haben unsere Gesellschaft in den vergangenen Jahrzehnten deutlich verändert. Mobiltelefone, MP3-Player und Laptops sind nur einige wenige Beispiele, die aus unserem Alltag nicht mehr wegzudenken sind. Diese technologischen Errungenschaften wären ohne eine intensive Grundlagenforschung nicht denkbar. Im Jahr 2007 wurde den Physikern Peter Grünberg und Albert Fert der Nobelpreis für die Entdeckung des Riesenmagnetowiderstandes (GMR<sup>1</sup>) [Bai88, Bin89] im Jahr 1988 verliehen. Der GMR ermöglichte erstmals die kommerzielle Nutzung spinpolarisierter Ströme in magnetoelektronischen Bauelementen wie Festplattenleseköpfen, Speicherbausteinen<sup>2</sup> und Sensoren.

Es war der Physiker und Nobelpreisträger Richard P. Feynman der bereits 1959 das enorme Potential und die Tragweite der modernen Halbleiter- und Nanotechnologie erkannte. Der Durchbruch gelang in den 70er Jahren mit der Realisierung des ersten Quantenfilms [Din74]. Technologische Fortschritte gestatteten eine weitere Reduktion der Bewegungsfreiheit der Ladungsträger (Quantendraht [Pet82]). Wissenschaftler des Konzerns Texas Instruments realisierten Ende der 80er Jahre mittels Elektronenstrahlolithographie den ersten Quantenpunkt in Form einer wenige hundert Nanometer großen „Nano-Box“ [Ree86].

Heutzutage ist man in der Lage, Quantenpunkte mit unterschiedlichen Methoden herzustellen. Neben chemisch hergestellten kolloidalen Quantenpunkten [Dan94, Bas06, Car08] spielen in der Physik mittels MBE-Wachstum<sup>3</sup> fabrizierte Nanostrukturen eine bedeutende Rolle [Cib86, Bac99b, Zre94, Gam96a, Bab08]. Diese selbstorganisierten Quantenpunkte [Mah07b, Mah07a] besitzen typischerweise eine Ausdehnung weniger Nanometer [Ast06]. Dabei bestehen sie abhängig von Größe und Materialsystem zumeist aus  $10^4$  bis  $10^6$  Atomen [Leo93, Faf94, Kim00]. Optische und elektronischen Eigenschaften können durch geeignete Wahl der Wachstumsparameter gezielt eingestellt werden [Jac98, Har00, Wog03]. Einigen Forschergruppen ist es gelungen, einzelne Quantenpunkte gezielt an vordefinierten Positionen zu wachsen. Für die Einbettung solcher Nanostrukturen in optischen und elektrischen Systemen wie Mikroresonatoren oder Quantenpunktlasern ist dies von großer Bedeutung [Nak02, Bai04, Por07, Sch08]. Das Potential dieser „künstlichen Atome“ spiegelt sich in ihrer diskreten Zustandsdichte wider.

Ein einfacher und zerstörungsfreier Zugang zu diesen diskreten Energieniveaus gelingt durch optische Spektroskopie. Durch Anregung einzelner Quantenpunkte mit einem Laser geeigneter Energie können photogenerierte Ladungsträger die diskreten Energieniveaus von Leitungs- und Valenzband besetzen. Bei der anschließenden Rekombination eines

---

<sup>1</sup>Giant-Magnetic-Resistance

<sup>2</sup>Magnetic Random Access Memory

<sup>3</sup>Molecular-Beam-Epitaxy

Exzitons<sup>4</sup> wird ein Photon mit definierter Energie ausgesandt und liefert Informationen über die besetzten Energieniveaus des Quantenpunktes.

Seit den Experimenten von Stern und Gerlach Anfang der 20er Jahre [Ste21, Ger21, Ger22] ist bekannt, dass Elektronen oder Löcher neben ihrer Ladung eine weitere fundamentale Eigenschaft besitzen. Dieser als „Spin“ bezeichnete Eigendrehimpuls der Elementarteilchen erklärt sich aus einer relativistischen Betrachtung der Quantenmechanik [Nol03b]. Im Rahmen der „Spintronik“ versucht man durch gezielte Manipulation des Spinzustandes die Dynamik der Ladungsträgerspins für die Informationsübertragung zu nutzen [Wol01, Aws02]. Dabei gelten Halbleiterstrukturen bei der Realisierung von Spintransistoren [Val06, Aws07], Spindioden [Mer08] und Spinfiltern [Efr01, Fol03] als vielversprechende Systeme. Informationen über die kohärente Dynamik der Ladungsträgerspins liefern dabei optische Untersuchungsmethoden wie beispielsweise „Pump and Probe“ Experimente [Sch06a, Gre06, Ber08].

Der Ladungsträgerspin hat direkten Einfluss auf die Polarisation eines durch Rekombination von Elektronen und Löchern emittierten Photons. Umgekehrt kann durch geeignete Anregung der anfängliche Spinzustand gezielt eingestellt werden. In  $\text{Mn}^{2+}$  dotierten Nanostrukturen tritt zudem eine Austauschwechselwirkung zwischen dem Exzitonspin und den lokalen magnetischen Spinmomenten auf [Fur88, Gaj79]. Diese Systeme werden als semimagnetische Halbleiter DMS<sup>5</sup> bezeichnet [Fur88]. Externe Magnetfelder, die eine Polarisation des  $\text{Mn}^{2+}$  Systems bewirken, führen durch die sp-d Wechselwirkung [Lee05a] zu einer starken Polarisation der Ladungsträgerspins [Fie99]. Dies äußert sich durch einen hohen Polarisationsgrad des emittierten PL-Signals [Lee05c]. Zudem konnte in Quantenpunkten eine Reihe von Effekten nachgewiesen werden, die bereits aus der Atom- und Molekülphysik bekannt sind. Neben einer Feinstrukturaufspaltung der Energieniveaus [Kul99, Pul99] und dem Stark-Effekt [Emp97, Seu01b] sind in DMS der zum Teil riesige Zeeman-Effekt [Bac01] sowie der magnetooptische Faraday-Effekt [Sch06a] zu erwähnen. Daneben erwiesen sich Quantenpunkte als exzellente Lichtemitter. Damit beinhalten diese Systeme ein großes Potential in der Entwicklung moderner Lichtquellen wie beispielsweise Halbleiterlaser und Leuchtdioden. Aufgrund ihrer diskreten Zustandsdichte und des Ladungsträgereinschlusses weisen niederdimensionale Strukturen deutlich niedrigere Schwellströme [Sch07c, Klo01, Leg00] und eine geringere Temperaturabhängigkeit der Emissionswellenlänge auf. Insbesondere InGaN/GaN Quantenfilme [Mor95] eignen sich zur Herstellung von blau emittierenden Laser- [Nak96] und Leuchtdioden [Nak93]. Neben der Licht-Materie Wechselwirkung [Yos04, Rei04] spielt der gezielte Einbau von Quantenpunkten in Mikroresonatoren [Böc08, Rei07, Ren06b] eine bedeutende Rolle bei der Entwicklung von Einzelphotonenquellen (SPS<sup>6</sup>). Nichtlineare Emissionsprozesse [Rei08, Ren06a, Kla06, Obe04] sowie der mögliche Einsatz in der Quantenkryptographie [Str07, Kak06, San02, Yua02, Mic00] werden dabei intensiv untersucht und diskutiert. Theoretische wie experimentelle Ansätze belegen zudem, dass Quantenpunkte ohne den Einbau in Mikroresonatoren unter bestimmten Bedingungen ein kollektives Emissionsverhalten [Sch07a, Zha06, Par05] aufweisen können.

---

<sup>4</sup>Exziton: Elektron - Loch Paar

<sup>5</sup>Diluted Magnetic Semiconductor

<sup>6</sup>Single-Photon-Sources

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der spektroskopischen Untersuchung semimagnetischer CdSe/ZnSe Quantenpunkte. Dazu stehen mittels MBE-Wachstum hergestellte Proben mit unterschiedlich starker  $\text{Mn}^{2+}$  Dotierung des Quantenpunkt- (CdSe) oder des Barrierematerials (ZnSe) zur Verfügung. Ziel der Arbeit ist es, einen Einblick in die Spin- und Polarisations-eigenschaften dieser Nanostrukturen zu geben und eine Möglichkeit aufzuzeigen, die Polarisations- und Rekombinationsdynamik der Ladungsträger mittels optischer Methoden gezielt zu kontrollieren. Im Einzelnen gliedert sich die vorliegende Arbeit wie folgt:

- **Kapitel 2** behandelt die Grundlagen semimagnetischer Quantenpunkte. Neben dem II-VI Materialsystem werden die Besonderheiten semimagnetischer Halbleiter wie d-d und sp-d Austauschwechselwirkung zwischen den  $\text{Mn}^{2+}$  und Ladungsträger-spins diskutiert. Nach einer kurzen Einführung in die Quantenmechanik niederdimensionaler Systeme wird zusammenfassend die Drehimpulsalgebra für Spin- und Bahndrehimpulszustände in Halbleitern skizziert. Die Behandlung optisch aktiver Übergänge in Quantenpunkten schließt dieses Kapitel ab.
- Eine ausführliche Beschreibung der experimentellen Untersuchungsmethoden wird in **Kapitel 3** gegeben. Dabei handelt es sich im Detail um die magneto-optische Photolumineszenz (PL)-Spektroskopie sowie um den Aufbau des Messplatzes zur zeitaufgelösten Spektroskopie.
- **Kapitel 4** beschreibt den Herstellungsprozess der untersuchten Nanostrukturen. Hier wird zunächst der MBE-Wachstumsprozess kurz erläutert. Abschließend folgt eine Beschreibung der Selektion einzelner Quantenpunkte für die optische Spektroskopie.
- In **Kapitel 5** wird das zeitintegrierte Spektrum der Proben untersucht und die Magnetfeldabhängigkeit von Quantenpunkt- und  $\text{Mn}^{2+}$  Lumineszenz diskutiert. Neben der spektroskopischen Bestimmung der Quantenpunktdichte erfolgt eine erste Analyse der polarisationsabhängigen Rekombinationsdynamik für unterschiedliche Anregungsenergien.
- Den Hauptteil der Arbeit bildet die Untersuchung des zirkularen Polarisationsgrades der Quantenpunkt PL in Abhängigkeit eines externen Magnetfeldes in Faraday-Geometrie. In **Kapitel 6** wird zudem eine Möglichkeit aufgezeigt, die Polarisation des PL-Signals mittels optischer Methoden zu kontrollieren. Insbesondere der Einfluss der Zeeman-Aufspaltung und der optischen Orientierung durch geeignete Polarisation des Anregungslasers werden diskutiert.
- **Kapitel 7** demonstriert die Konvertierung der linearen Anregungspolarisation in zirkular polarisierte Emission für semimagnetische Quantenpunkte. Die experimentellen Daten werden dabei unter Zuhilfenahme eines „Pseudospinmodells“ diskutiert und in Relation zu den Messungen aus Kapitel 6 gesetzt.
- Mit der Messung des Hanle-Effekts beschäftigt sich **Kapitel 8**. Die beobachtete Anomalie des Hanle-Signals für CdMnSe/ZnSe Quantenpunkte mit einem  $\text{Mn}^{2+}$

Gehalt von 1% wird mit Messungen zur linear-zirkular Konvertierung der PL-Polarisation verglichen.

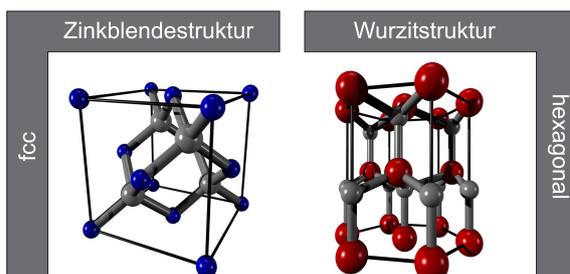
- Das abschließende experimentelle Kapitel dieser Arbeit (**Kapitel 9**) greift auf die anfänglichen Untersuchungen zu Rekombinationsdynamik aus Kapitel 5 zurück. Zeitaufgelöste Messungen liefern dabei Hinweise auf eine erhöhte kollektive Emission semimagnetischer Quantenpunkte.

# 2 Physikalische Grundlagen von semimagnetischen II-VI Quantenpunkten

In diesem Kapitel werden die notwendigen Grundlagen für das Verständnis der optischen Eigenschaften nulldimensionaler Strukturen kurz erläutert. Zunächst werden in Abschnitt 2.1 die fundamentalen Eigenschaften des CdSe/ZnSe Materialsystems aufgezeigt, bevor in Abschnitt 2.2 eine Diskussion über semimagnetische Halbleiter folgt. Im nächsten Schritt wird auf Veränderungen der elektronischen Zustandsdichte beim Übergang von Volumenhalbleitern hin zu niederdimensionalen Strukturen eingegangen (Abschnitt 2.3). Abschnitt 2.4 gibt eine Einführung in die quantenmechanischen Grundlagen des Drehimpulses und Spins eines Teilchens. Da beide Eigenschaften eine fundamentale Rolle für Polarisation der Photolumineszenz (PL) spielen, liefert Abschnitt 2.5 einen Einblick in die erlaubten optischen Übergänge im Halbleiter. Die Magnetfeldabhängigkeit exzitonischer Zustände in Halbleiterquantenpunkten wird abschließend diskutiert (Abschnitt 2.6).

## 2.1 II-VI Verbindungshalbleiter

II-VI Verbindungshalbleiter weisen einige Besonderheiten auf, so dass sie in den vergangenen zehn Jahren ein zunehmendes Interesse der Grundlagenforschung auf sich zogen. Kristalle, gebildet aus Elementen der II. und VI. Hauptgruppe des Periodensystems, besitzen zum einen eine deutlich stärkere Polarität als beispielsweise III-V Verbindungshalbleiter. Dies zieht eine erhöhte Exzitononenbindungsenergie nach sich, die es erlaubt, exzitonische Komplexe auch für hohe Temperaturen [Gin99, Seb02] bis hin zu Raumtemperatur [Din90, Ari07] zu beobachten. Weiter ist es analog zu den gängigsten Vertretern der III-V Materialien ( $\text{GaAs} \Rightarrow \text{IR}$ ;  $\text{GaN} \Rightarrow \text{UV}$ ) möglich, die Energielücke zwischen Leitungs- und Valenzband in einem weiten Spektralbereich von Infrarot bis Ultraviolett zu variieren [Nur92].



**Abb. 2.1:** Links: II-VI Halbleiter kristallisieren bevorzugt in der Zinkblendestruktur (fcc-Gitter). Rechts: Der CdSe Volumenkristall bildet eine Wurzitstruktur aus. In dünnen Schichten auf ZnSe gewachsen kristallisiert CdSe ebenfalls in der Zinkblendestruktur.

Typischerweise kristallisieren die meisten II-VI Verbindungshalbleiter in der Zinkblende-  
destruktur, die schematisch in Abb. 2.1 (links) dargestellt ist. Atome aus der II. und  
VI. Hauptgruppe des Periodensystems, wie beispielsweise Zn und Se, bilden jeweils ein  
kubisch flächenzentriertes Gitter (fcc) aus. Beide Gitter sind dabei um  $1/4$  der Raum-  
diagonalen verschoben, so dass jedes Atom tetraedrisch von vier Atomen des anderen  
Materials umgeben ist. CdSe dagegen besitzt die Eigenschaft unter Normalbedingungen  
in einer hexagonalen Wurtzitstruktur zu kristallisieren, wie sie Abb. 2.1 (rechts) zeigt.  
Wächst man CdSe jedoch epitaktisch in dünnen Schichten auf eine Basis von ZnSe, so  
bildet sich aufgrund der resultierenden Gitterverspannungen ebenfalls eine Zinkblende-  
struktur aus.

## 2.2 Semimagnetische Halbleiter

Semimagnetische Halbleiter sind mit magnetischen Störstellen versehen, die einen Teil  
der Kationenplätze des Kristallgitters besetzen. Solche Systeme werden üblicherweise als  
DMS<sup>1</sup> oder auch SMSC<sup>2</sup> bezeichnet. Durch den Einbau von Mangan können Halbleiter  
mit lokalen magnetischen Momenten ( $\text{Mn}^{2+}$  Ionen) versehen werden. Als Element der Ei-  
sengruppe besitzt Mangan bei 2-facher Ionisierung die Elektronenkonfiguration  $3d^5$  und  
damit eine halb gefüllte äußere Schale. Gemäß der Hund'schen Regel führt dies zu einem  
Gesamtspin von  $S = \frac{5}{2}$  und das  $\text{Mn}^{2+}$  System bildet ein  ${}^6S_{5/2}$ -Multipllett mit Bahndreh-  
impuls  $L = 0$  und Gesamtdrehimpuls  $J = L + S = \frac{5}{2}$ . Ohne Spin-Bahn-Wechselwirkung  
beträgt der Landé-g-Faktor  $g_{Mn} \approx 2$  und entspricht damit dem Wert für freie Elektro-  
nen<sup>3</sup>. Für geringe  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentrationen tritt ohne Wechselwirkung benachbarter Spins  
ein reiner Paramagnetismus auf und die Magnetisierung kann mathematisch durch eine  
Brillouin-Funktion beschrieben werden [Ash01]:

$$M(B, T) = N_0 x g_{Mn} \mu_B J \mathcal{B}_{5/2} \left( \frac{5 g_{Mn} \mu_B B}{2 k_B T} \right) \quad (2.1)$$

$N_0$  ist die Zahl der Elementarzellen pro Einheitsvolumen,  $x$  die Mangankonzentration,  
 $J = S = \frac{5}{2}$ ,  $B$  die Magnetfeldstärke,  $T$  die Temperatur des Systems und  $k_B$  die Boltzmann-  
Konstante.  $\mathcal{B}_J(\chi)$  bezeichnet die durch

$$\mathcal{B}_J(\chi) = \frac{2J+1}{2J} \cdot \coth \left( \frac{2J+1}{2J} \chi \right) - \frac{1}{2J} \cdot \coth \left( \frac{1}{2J} \chi \right) \quad (2.2)$$

definierte Brillouin-Funktion.

<sup>1</sup>Diluted Magnetic Semiconductor

<sup>2</sup>Semimagnetic Semiconductor

<sup>3</sup>Als äußerste Schale des  $\text{Mn}^{2+}$  Ions spürt die 3d Schale das sie umgebende Kristallfeld, so dass mit  
einer leichten Abweichung des g-Faktors zu rechnen ist.

## d-d Austauschwechselwirkung

Für  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentrationen von  $x > 1\%$  tritt zudem eine antiferromagnetische Wechselwirkung benachbarter  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen auf [Fur88], die man auch als d-d Wechselwirkung bezeichnet. Diese kann als Spin-Spin Wechselwirkung in der Heisenberg-Form dargestellt werden:

$$H_{i,j}^{d-d} = - \sum_{i,j} J_{i,j} (\vec{R}_i - \vec{R}_j) \vec{S}_i(\vec{R}_i) \cdot \vec{S}_j(\vec{R}_j) \quad (2.3)$$

$\vec{S}_{i,j}$  beschreibt die am Ort  $\vec{R}_{i,j}$  lokalisierten  $\text{Mn}^{2+}$  Spins. Ein so genannter Superaustausch zwischen zwei benachbarten  $\text{Mn}^{2+}$  Spins und einem zwischen ihnen liegendem Anion des Kristallgitters bewirkt eine antiferromagnetische Kopplung der Spins [Lar85]. Dies bedingt eine Änderung des Gesamtspins des Systems.

Durch erhöhte  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration kann die antiferromagnetische Kopplung stark zunehmen, so dass es schließlich zur Bildung von so genannten „Clustern“ kommt. Dabei neutralisieren sich antiferromagnetisch ausgerichtete Spin-Paare und tragen damit nicht mehr zur Magnetisierung des Halbleiters bei. Nach *Gaj et al.* [Gaj79] kann die Beschreibung der Magnetisierung mittels einer Brillouin-Funktion gemäß Gl. (2.1) durch Einführung phänomenologischer Parameter  $S_{eff} < 5/2$  und  $T_{eff}$  beibehalten werden.

## sp-d Austauschwechselwirkung

Die Erzeugung eines Elektron-Loch Paares (Exziton) in einem semimagnetischen Halbleiter führt wegen des Spins der photogenerierten Ladungsträger zu einer Wechselwirkung zwischen dem Exziton und dem Spinsystem der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen. Diese so genannte sp-d Austauschwechselwirkung rührt daher, dass sowohl der Spin des s-artigen Elektrons als auch des p-artigen Lochs einer Wechselwirkung mit den 3d Elektronenspins der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen unterworfen sind. Nach *S. H. Liu* [Liu61] ergibt sich für den Hamilton-Operator der sp-d Austauschwechselwirkung folgender Ausdruck:

$$\mathcal{H}_{exc} = - \sum_{\vec{R}_i} J^{s(p)-d} (\vec{r} - \vec{R}_i) \vec{S}_i \cdot \vec{s}_{e,h} \quad (2.4)$$

$J^{s(p)-d}$  bezeichnet dabei das s(p)-d Austauschintegral,  $\vec{r}$  die Koordinaten der Elektronen beziehungsweise Löcher mit Spin  $\vec{s}_{e,h}$ .  $\vec{S}_i$  steht für den  $i$ -ten  $\text{Mn}^{2+}$  Spin am Aufenthaltsort  $\vec{R}_i$ . Im äußeren Magnetfeld in z-Richtung können die individuellen  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen im Rahmen der Molekularfeldnäherung durch ein Spin-Ensemble mit einer mittleren Spin-Komponente  $\langle S_z \rangle$  beschrieben werden. Damit vereinfacht sich der Hamilton-Operator aus Gl. (2.4) zu

$$\mathcal{H}_{exc} = -s_{\nu,z} \langle S_z \rangle x \sum_{\vec{R}_k} J^{s(p)-d} (\vec{r} - \vec{R}_k), \text{ mit } \nu = e, h. \quad (2.5)$$

$x$  ist dabei die Mangankonzentration und  $\vec{R}_k$  die Koordinaten der Kationenplätze. Die Eigenwerte für die Austauschenergien von Leitungs- und Valenzband können durch Dia-

gonalisierung des Hamiltonians gewonnen werden [Gaj88]:

$$E_{exc}(LB) = N_0 x \alpha m_s \langle S_z \rangle, \text{ mit } m_s = \pm \frac{1}{2} \quad (2.6)$$

$$E_{exc}(VB) = \frac{1}{3} N_0 x \beta m_j \langle S_z \rangle, \text{ mit } m_j = \pm \frac{3}{2}, \pm \frac{1}{2} \quad (2.7)$$

$N_0 \alpha > 0$  und  $N_0 \beta < 0$  sind die Austauschkonstanten des Leitungs- beziehungsweise Valenzbandes. Gemäß [Dem00] kann die resultierende Magnetisierung mit Hilfe des Mittelwertes  $\langle S_z \rangle$  des Manganspin-Ensembles wie folgt formuliert werden:

$$M(B, T) = N_0 x g_{Mn} \mu_B \langle S_z \rangle \quad (2.8)$$

Damit erhält man für die Austauschenergien

$$E_{exc}(LB) = \alpha m_s \frac{M(B, T)}{\mu_B g_{Mn}} \quad (2.9)$$

und

$$E_{exc}(VB) = \frac{1}{3} \beta m_j \frac{M(B, T)}{\mu_B g_{Mn}} . \quad (2.10)$$

Die Ausrichtung der  $Mn^{2+}$  Spins in einem externen Magnetfeld in Faraday-Geometrie wird also über die sp-d-Austauschwechselwirkung auf die Exzitonen übertragen. Im Experiment äußert sich dies in einer Zeeman-Aufspaltung  $E_z$  mit:

$$E_z = \Delta E^{-1} - \Delta E^{+1} = \left[ E_{exc}^{1/2}(LB) + E_{exc}^{-3/2}(VB) \right] - \left[ E_{exc}^{-1/2}(LB) + E_{exc}^{3/2}(VB) \right]$$

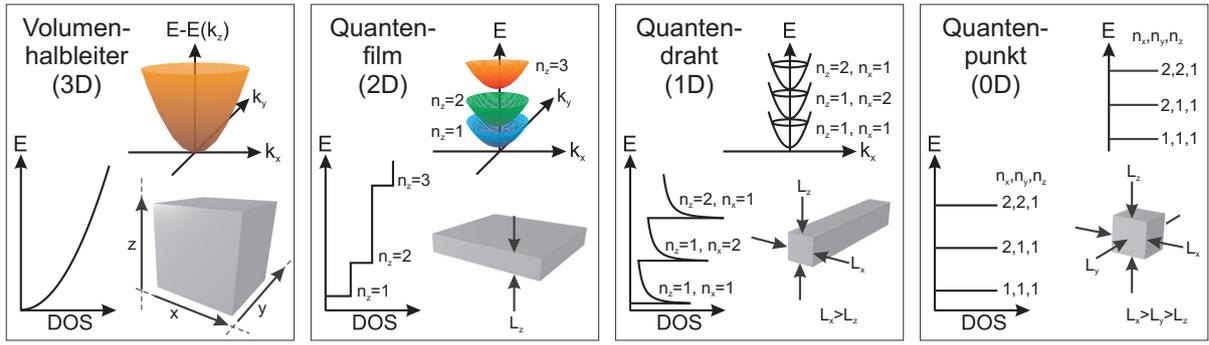
$$E_z = N_0 (\alpha - \beta) x S_{eff} \mathcal{B}_{5/2} \left( \frac{5/2 g_{Mn} \mu_B B}{k_B T_{eff}} \right) \quad (2.11)$$

## 2.3 Niederdimensionale Strukturen

In diesem Abschnitt wird der Übergang der elektronischen Zustände vom dreidimensionalen Volumenhalbleiter zum nulldimensionalen Quantenpunkt diskutiert. Durch Wahl geeigneter Parameter können mittels Molekularstrahlepitaxie die optischen Eigenschaften der Heterostrukturen beeinflusst werden.

Den einfachsten Fall stellt der so genannte Quantenfilm dar. Hierbei handelt es sich um eine Halbleiterschicht geringer Dicke in der Größenordnung der de-Broglie-Wellenlänge, die in Halbleitermaterial größerer Bandlücke eingebettet ist. Dies bedingt einen quantenmechanischen Einschluss der Ladungsträger, so dass diese sich nur in lateraler Richtung frei bewegen können. Die Lösung der Schrödinger-Gleichung liefert für ein solches System folgende Energieeigenwerte [Nol03a]:

$$E_{k_x, k_y, k_z, n} = \frac{\hbar^2}{2m} (k_x^2 + k_y^2) + E_{Z, n} \quad (2.12)$$



**Abb. 2.2:** Elektronische Zustandsdichte für Halbleiter-Heterostrukturen unterschiedlicher Dimensionalität. Mit zunehmendem Ladungsträgereinschluss nimmt die Singularität der Zustandsdichte zu. Quantenpunkte weisen als nulldimensionale Systeme diskrete Energieeigenwerte auf und besitzen eine  $\delta$ -förmige Zustandsdichte.

$k_x$  und  $k_y$  beschreiben die freie Bewegung der Ladungsträger in lateraler Richtung. In Wachstumsrichtung  $z$  der Heterostruktur kann  $E_{z,n}$  nur diskrete Werte annehmen. Durch laterale Ätzverfahren kann die freie Bewegung der Ladungsträger weiter eingeschränkt werden. So erhält man beim Quantendraht einen zweidimensionalen Einschluss der Ladungsträger, die sich fortan nur noch in einer Dimension frei bewegen können. Eine vollständige Reduktion der Dimensionalität kann durch geeignete epitaktische Wachstumsprozesse (vgl. Kapitel 4.1) erzielt werden. Hier sind die Ladungsträger in allen drei Raumrichtungen auf Bereiche von der Größenordnung der de-Broglie-Wellenlänge oder kleiner eingeschlossen. Diese nulldimensionalen Strukturen werden als Quantenpunkte bezeichnet.

Eine zunehmende Lokalisierung der Ladungsträger im Ortsraum bedingt eine zunehmende Quantisierung der Energieniveaus. Verbunden damit ist eine Einschränkung der möglichen Energiezustände. Dies kann durch die Zustandsdichte  $DOS^4$ , also der möglichen Anzahl an Energiezuständen pro Energieintervall, zum Ausdruck gebracht werden [Jac98]:

$$\begin{aligned}
 DOS_{3D} &= \frac{dN}{dE} \propto \frac{d}{dE} E^{3/2} = E^{1/2} \\
 DOS_{2D} &= \frac{dN}{dE} \propto \frac{d}{dE} \sum_{\epsilon_i < E} (E - \epsilon_i) = \sum_{\epsilon_i < E} 1 \\
 DOS_{1D} &= \frac{dN}{dE} \propto \frac{d}{dE} \sum_{\epsilon_i < E} (E - \epsilon_i)^{1/2} = \sum_{\epsilon_i < E} (E - \epsilon_i)^{-1/2} \\
 DOS_{0D} &= \frac{dN}{dE} \propto \frac{d}{dE} \sum_{\epsilon_i < E} \Theta(E - \epsilon_i) = \sum_{\epsilon_i < E} \delta(E - \epsilon_i)
 \end{aligned}$$

<sup>4</sup>Density of States

mit:

$\epsilon_i =$  Eigenenergien

$$\Theta(E - \epsilon_i) = \begin{cases} +1, & \text{falls } E - \epsilon_i > 0 \\ -1, & \text{falls } E - \epsilon_i < 0 \end{cases} \text{ Heavyside-Stufenfunktion}$$

$\delta(E - \epsilon_i) =$  Dirac-Deltafunktion

Beginnend beim dreidimensionalen Volumenhalbleiter strebt die Zustandsdichte mit abnehmender Dimensionalität einem zunehmend singulären Charakter entgegen. Für Volumenhalbleiter erhält man die Zustandsdichte eines quasi freien Elektronengases, während der Ladungsträgereinschluss in drei Dimensionen zu einem  $\delta$ -förmigen Verlauf mit diskreten Energieniveaus führt (vgl. Abb. 2.2). Die elektronische Struktur von Halbleiterquantenpunkten weist damit Ähnlichkeiten mit dem diskreten Termschema von Atomen auf. Quantenpunkte werden deshalb auch als „künstliche Atome“ bezeichnet. Durch die starke Lokalisierung von Elektron und Loch im Quantenpunkt ist der Bohr-Radius im Vergleich zum dreidimensionalen Exziton deutlich verringert. Die Exzitonenergie ist damit im Vergleich zu dreidimensionalen Volumenhalbleitern um einen Faktor sechs<sup>5</sup> oder mehr erhöht [Lah97, Kay88].

## 2.4 Grundlagen: Drehimpuls und Spin

Im Folgenden soll ein Überblick über die physikalischen Eigenschaften des Bahndrehimpulses und des Spins gegeben werden. Eine detaillierte Einführung ist in der Fachliteratur zur Quantenmechanik (siehe z.B. [Nol03a]) sowie der Atom- und Molekülphysik zu finden (z.B. [Hak00, Dem00]).

### Der Bahndrehimpuls

Unter dem Bahndrehimpuls eines Teilchens versteht man das Vektorprodukt aus dem Ortsvektor  $\vec{r}$  des Teilchens und seinem Impuls  $\vec{p} = m\vec{v}$ :

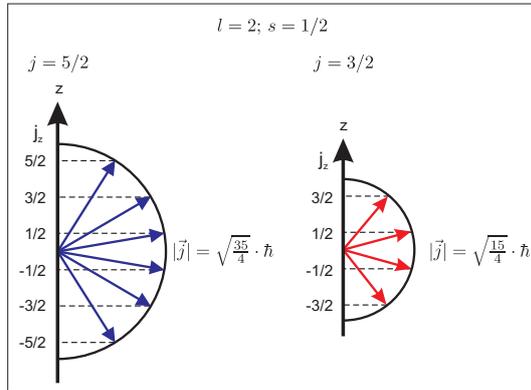
$$\vec{l} = \vec{r} \times \vec{p} \tag{2.13}$$

In der klassischen Mechanik weist  $\vec{l}$  damit ein kontinuierliches Spektrum auf. Für quantenmechanische Systeme besitzt der Bahndrehimpuls stets eine Quantisierung mit der ganzzahligen Quantenzahl  $l$ . Der Betrag des Bahndrehimpulses nimmt damit im Gegensatz zu klassischen Systemen diskrete Werte mit  $|\vec{l}| = \hbar\sqrt{l(l+1)}$  an. In der Atom- und Molekülphysik wird eine Klassifizierung des Drehimpulses entsprechend den Atomorbitalen nach Buchstaben vorgenommen. Drehimpulsquantenzahlen mit  $l = 0$  werden mit dem Buchstaben  $s$  bezeichnet,  $l = 1$  mit  $p$ ,  $l = 2$  mit  $d$  und  $l = 3$  mit  $f$ . Mit steigendem  $l$  erfolgt eine fortlaufende alphabetische Bezeichnung. Die Projektion  $l_z = m_l\hbar$  des Drehimpulses entlang der Quantisierungsrichtung  $z$  weist  $2l + 1$  Einstellungsmöglichkeiten mit  $m_l = -l, -l + 1, \dots, l - 1, l$  auf.  $m_l$  bezeichnet man als magnetische Quantenzahl.

<sup>5</sup>Unter der Annahme von sphärischen CdSe Quantenpunkten

## Spin und Gesamtdrehimpuls

Die fundamentalen Experimente der Quantenmechanik haben zudem gezeigt, dass Teilchen neben einem Bahndrehimpuls auch einen Eigendrehimpuls aufweisen. Dieser auch als Spin  $\vec{s}$  bezeichnete zusätzliche Drehimpuls kann neben ganzzahligen<sup>6</sup> auch halbzahlige



**Abb. 2.3:** Mögliche Zustände des Gesamtdrehimpuls  $\vec{j}$  eines Fermions mit  $l = 2$  und  $s = \frac{1}{2}$ .

Werte<sup>7</sup> annehmen. Der Spin kann in der theoretischen Beschreibung quantenmechanischer Vorgänge als Effekt einer relativistischen Betrachtung gesehen werden. Die mathematische Darstellung erfolgt analog zum Bahndrehimpuls  $\vec{l}$  mit  $|\vec{s}| = \hbar\sqrt{s(s+1)}$  und  $s_z = m_s\hbar$ .  $s$  und  $m_s$  bezeichnen die Spinquantenzahl und die magnetische Quantenzahl des Eigendrehimpulses mit

$$m_s = -s, s+1, \dots, s-1, s. \quad (2.14)$$

Somit ergeben sich für  $s_z$  ebenfalls  $2s+1$  Einstellungsmöglichkeiten. Im Allgemeinen können  $\vec{l}$  und  $\vec{s}$  zum Gesamtdrehimpuls  $\vec{j}$  eines Teilchens zusammengefasst werden:

$$\vec{j} = \vec{l} + \vec{s} \text{ und } j_z = l_z + s_z \quad (2.15)$$

Auch für die magnetische Quantenzahl des Gesamtdrehimpulses ergeben sich mit  $m_j = -j, j+1, \dots, j-1, j$  insgesamt  $2j+1$  Einstellungsmöglichkeiten für  $j_z$ . Abb. 2.3 zeigt dies für ein Fermion mit  $l = 2$  und  $s = \frac{1}{2}$ .

## Das magnetische Moment

Der Bahndrehimpuls sowie der Spin eines Teilchens sind mit einem magnetischen Moment  $\vec{\mu}_l$  beziehungsweise  $\vec{\mu}_s$  verbunden:

$$\vec{\mu}_{l,s} = -g_{l,s}\mu_B \frac{\vec{l}, \vec{s}}{\hbar} \quad (2.16)$$

$\mu_B$  steht für das Bohrsche Magneton und  $g_{l,s}$  ist der gyromagnetische Faktor des Bahndrehimpulses beziehungsweise des Spins. Gl. (2.16) lässt erkennen, dass magnetisches Moment und Drehimpuls antiparallel ausgerichtet sind. Durch Vektoraddition kann das magnetische Moment  $\vec{\mu}_j$  des Gesamtdrehimpulses gefunden werden:

$$\vec{\mu}_j = \vec{\mu}_l + \vec{\mu}_s = -\frac{\mu_B}{\hbar} (g_l\vec{l} + g_s\vec{s}), \text{ mit } g_l \neq g_s \quad (2.17)$$

<sup>6</sup>Bosonen: z.B. Photonen

<sup>7</sup>Fermionen: z.B. Elektronen und Löcher (Festkörper)

Damit sind der Gesamtdrehimpuls und das magnetische Moment nicht mehr antiparallel und für den gyromagnetischen Faktor (Landé-g-Faktor) ergibt sich folgender Ausdruck, der von den Quantenzahlen  $j$ ,  $l$  und  $s$  abhängt:

$$g(j, l, s) = 1 + \frac{j(j+1) - l(l+1) + s(s+1)}{2j(j+1)} \quad (2.18)$$

## Die L-S-Kopplung

In einem System aus mehreren Teilchen tritt eine Kopplung der Gesamtdrehimpulse auf. Sind die Kopplungsenergien zwischen den magnetischen Bahn- und Spinmomenten verschiedener Teilchen größer als die Kopplungsenergien zwischen Bahn- und Spinmomenten jedes einzelnen Teilchens, so spricht man von einer Spin-Bahn-Kopplung oder auch L-S-Kopplung genannt.

Dabei bilden die einzelnen Bahn- beziehungsweise Spindrehimpulse der Teilchen zunächst einen Gesamtbahndrehimpuls  $\vec{L}$  beziehungsweise einen Gesamtspin  $\vec{S}$ :

$$\vec{L} = \sum_i \vec{l}_i \quad \text{und} \quad \vec{S} = \sum_i \vec{s}_i \quad (2.19)$$

mit  $|\vec{L}| = \hbar\sqrt{L(L+1)}$  und  $|\vec{S}| = \hbar\sqrt{S(S+1)}$ . Daraus ergibt sich dann ein Gesamtdrehimpuls  $\vec{J}$  des Systems zu:

$$\vec{J} = \vec{L} + \vec{S} \quad \text{mit} \quad |\vec{J}| = \hbar\sqrt{J(J+1)} \quad (2.20)$$

Das magnetische Gesamtmoment  $\vec{\mu}_J$  stellt sich damit zu  $\vec{\mu}_J = \vec{\mu}_L + \vec{\mu}_S$  ein. Für den Landé-g-Faktor des Mehrteilchensystems erhält man analog zu Gl. (2.18):

$$g(J, L, S) = 1 + \frac{J(J+1) - L(L+1) + S(S+1)}{2J(J+1)}. \quad (2.21)$$

## Die j-j-Kopplung

Der umgekehrte Fall wird als j-j-Kopplung des Drehimpulses bezeichnet. Hier verbinden sich der Bahndrehimpuls und der Spin jedes Teilchens zunächst zu einem Gesamtdrehimpuls  $\vec{j}$  des Einteilchensystems, ehe diese zu einem Gesamtdrehimpuls  $\vec{J}$  koppeln:

$$\vec{j}_i = \vec{l}_i + \vec{s}_i \quad \text{und} \quad \vec{J} = \sum_i \vec{j}_i \quad (2.22)$$

Die j-j-Kopplung tritt vornehmlich für Atome mit großer Kernladungszahl auf.

## 2.5 Optisch aktive Übergänge im Halbleiter

Im Gegensatz zu Atomen oder Molekülen weisen Festkörper anstelle eines diskreten Energiespektrums so genannte Energiebänder mit dazwischenliegenden Bandlücken  $E_{gap}$  auf. Analog zur Atomphysik wird auch in der Festkörperphysik das höchste mit Elektronen besetzte Energieband als Valenzband bezeichnet. Das Erste - im Fall niedriger Temperaturen ( $k_B T \ll E_{gap}$ ) - unbesetzte Band wird als Leitungsband bezeichnet.

CdSe/ZnSe Halbleiter besitzen ein p-artiges Valenz- ( $l = 1$ ) und ein s-artiges Leitungsband ( $l = 0$ ). Beide Bänder sind aus den entsprechenden Orbitalen der einzelnen Atome entstanden. Folglich besitzen elektronische Zustände mit Spin  $s = \frac{1}{2}$  im Valenzband die Gesamtdrehimpulsquantenzahl  $j = \frac{3}{2}$  beziehungsweise  $j = \frac{1}{2}$  und im Leitungsband  $j = \frac{1}{2}$ . Die z-Komponente des Gesamtdrehimpulses besitzt damit folgende Einstellungsmöglichkeiten:

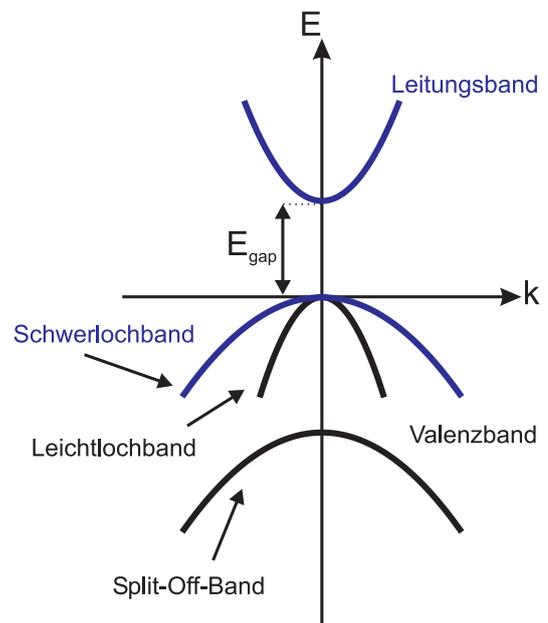
-	Leitungsband	Valenzband
$j = \frac{1}{2}$	$j_z = \pm \frac{1}{2} \hbar$	$j_z = \pm \frac{1}{2} \hbar$
$j = \frac{3}{2}$	-	$j_z = \pm \frac{1}{2} \hbar, \pm \frac{3}{2} \hbar$

Durch optische oder auch thermische Energiezufuhr  $E > E_{gap}$  können nun Elektronen vom Valenzband in Leitungsband angehoben werden, so dass im Valenzband ein Loch zurückbleibt. Dabei muss zwischen schweren ( $j_{hh,z} = \pm 3\hbar/2$ ) und leichten Löchern ( $j_{lh,z} = \pm \hbar/2$ ) unterschieden werden, da das Leichtlochband stärker gekrümmt ist als das Schwerlochband (siehe Abb. 2.4).

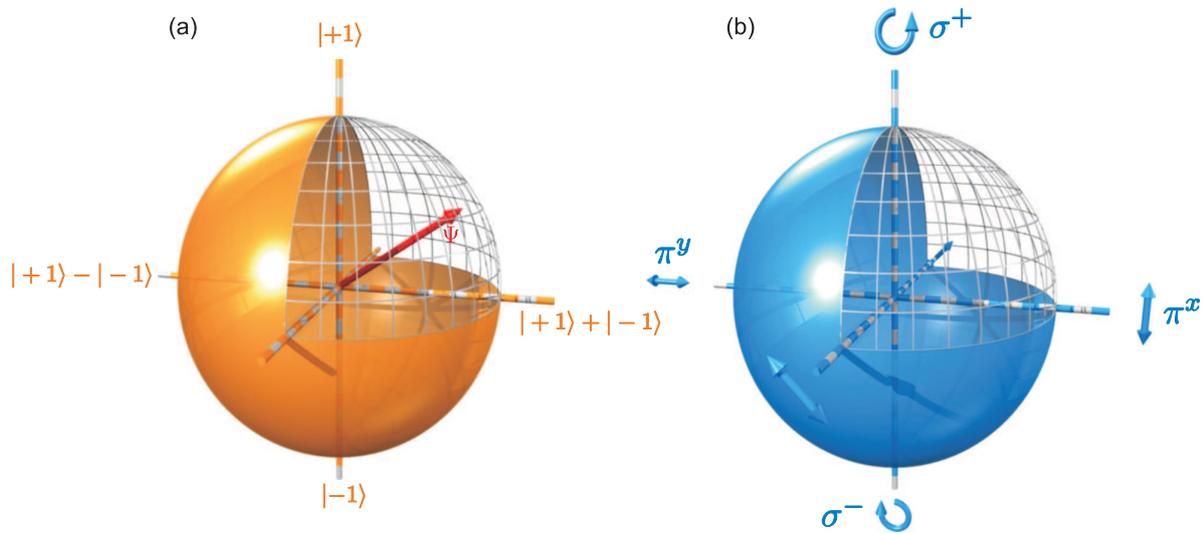
In den untersuchten Quantenpunkten ist das Leichtlochband aufgrund von Gitterverspannungen und Quantisierungseffekten energetisch vom Schwerlochband abgespalten. Weiter existiert mit  $j_h = 1/2$  und  $j_{h,z} = \pm \hbar/2$  ein zusätzliches, energetisch tiefer liegendes „Split-Off-Band“. Für CdSe ist das „Split-Off-Band“ um ca. 410 meV abgesenkt [Mad96]. Da beide Bänder mit  $j_z = \pm \hbar/2$  energetisch tiefer liegen, kann die thermische Besetzung dieser Zustände vernachlässigt werden und es müssen lediglich die Schwerlochzustände bei der Bildung von Elektron-Loch-Paaren berücksichtigt werden.

Koppelt man nun ein Schwerloch mit einem „Split-Off“-Band).

Elektron, so kann der entsprechende Exzitonzustand die Gesamtdrehimpulsquantenzahl



**Abb. 2.4:** Schematische Darstellung der Bandstruktur: Leitungsband & Valenzband (Leichtloch-, Schwerloch- und Split-Off-Band).



**Abb. 2.5:** (a) Bloch-Kugel im Zustandsraum. Jedem Punkt auf der Kugeloberfläche (quantenmechanischer Zustand) kann ein entsprechender Polarisationszustand auf der (b) Poincaré-Kugel zugeordnet werden. Orthogonale Zustände sind dabei antiparallel dargestellt.

$J = 1$  und  $J = 2$  annehmen, wobei für die z-Komponente des exzitonischen Gesamtdrehimpuls und damit für  $m_J = \pm 1$  beziehungsweise  $m_J = \pm 2$  gilt. Für die optische Aktivität eines Halbleiters, also die Fähigkeit des Festkörpers Photonen zu absorbieren oder zu emittieren, ist neben der Energieerhaltung auch an die Bedingung der Drehimpulserhaltung geknüpft. Das bedeutet, dass beispielsweise beim Übergang eines Elektrons vom Valenz- ins Leitungsband - oder auch umgekehrt - nur Zustände besetzt werden können, deren Gesamtdrehimpuls sich um den Betrag des Drehimpulses des absorbierten (oder emittierten) Photons unterscheidet. Da es sich bei Photonen um Bosonen handelt, also um Teilchen mit einem ganzzahligen Drehimpuls  $\pm\hbar$ , sind damit gemäß den Auswahlregeln für optische Dipolübergänge nur folgende Zustandsänderungen mit  $m_J = 0, \pm 1$  erlaubt. Dies entspricht aber gerade der Rekombination beziehungsweise Besetzung der Exzitonenzustände mit  $J_z = \pm\hbar$ . Diese Zustände werden daher auch als *helle* oder *optisch aktive* Zustände bezeichnet, während für  $J_z = \pm 2\hbar$  von *dunklen* Exzitonen die Rede ist. Diesen ist es nicht möglich an das Photonenfeld anzukoppeln und damit optisch zu rekombinieren beziehungsweise optisch angeregt zu werden. Weiter sind damit die optischen Auswahlregeln direkt mit der Polarisation des Photons verknüpft:

$$\Delta m_J = +1 \Leftrightarrow \sigma^+$$

$$\Delta m_J = 0 \Leftrightarrow \pi$$

$$\Delta m_J = -1 \Leftrightarrow \sigma^-$$

Für  $\Delta m_J = 0$  erhält man bei Emission ein Photon mit linearer und für  $\Delta m_J = \pm 1$  mit links- beziehungsweise rechts-zirkularer Polarisation. Dieser Zusammenhang zwischen dem Exzitonenzustand und der Polarisation des Lichts kann durch Gegenüberstellung der

Bloch- und Poincaré-Kugel veranschaulicht werden. Hierbei wird jedem Punkt auf der Oberfläche der Poincaré-Kugel (Polarisationszustand des Photons) ein entsprechender Zustand des hellen Exzitons auf der Bloch-Kugel zugeordnet (vgl. Abb. 2.5).

## 2.6 Der Exziton-Grundzustand im Quantenpunkt

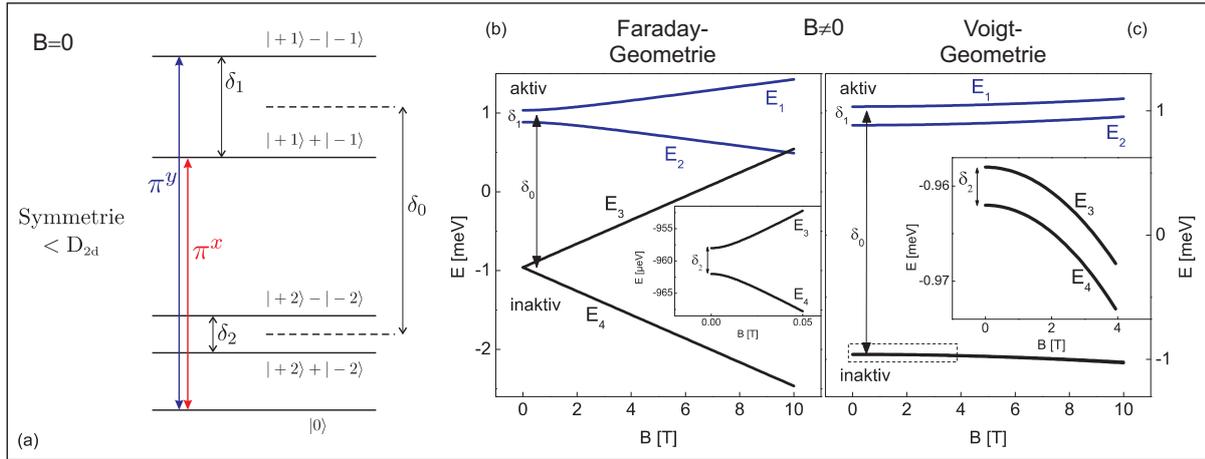
Mit Hilfe des Dirac-Formalismus können die aufgrund der Kopplung von Bahndrehimpuls und Spin des Elektrons beziehungsweise Lochs möglichen vier Zustände ( $|m_J\rangle = |m_{j,hh}, m_{j,e}\rangle$ ) des Quantenpunktexzitons wie folgt dargestellt werden:

$$|m_J\rangle = |\pm 3/2, \mp 1/2\rangle = |\pm 1\rangle \quad \text{und} \quad |m_J\rangle = |\pm 3/2, \pm 1/2\rangle = |\pm 2\rangle \quad (2.23)$$

Wie bereits erläutert wurde, handelt es sich bei  $|\pm 1\rangle$  um optisch aktive Zustände, während  $|\pm 2\rangle$  die Zustände dunkler Exzitonen beschreibt. Unter Vernachlässigung einer e-h-Austauschwechselwirkung sind diese Zustände in Halbleitern mit Zinkblendestruktur zunächst entartet. Berücksichtigt man jedoch die Spin-Spin Wechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern, so findet in Abhängigkeit der Symmetrie des Systems eine teilweise bis vollständige Aufhebung der Entartung statt. Gruppentheoretische Betrachtungen [Ivc97a, Ivc97b] zeigen, dass für Quantenpunkte mit einer stark ausgeprägten Asymmetrie (Symmetrie  $< D_{2\nu}$ ) die Aufhebung der Energieentartung durch einen Störterm  $H_{exc}$  des Hamilton-Operators beschrieben werden kann. Eine detaillierte Ausführung hierzu ist unter anderem in den Arbeiten von *J. Seufert* [Seu99] und *R. Weigand* [Wei00] zu finden, so dass die folgende Diskussion sich auf die wesentlichen Ergebnisse beschränkt. In Matrixdarstellung kann  $H_{exc}$  in der Basis ( $|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle$ ) wie folgt formuliert werden [Wei00]:

$$\mathcal{H}_{exc} = -\frac{1}{2} \begin{pmatrix} -\delta_0 & \delta_1 & 0 & 0 \\ \delta_1 & -\delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \delta_0 & \delta_2 \\ 0 & 0 & \delta_2 & \delta_0 \end{pmatrix} \quad (2.24)$$

Die Parameter  $\delta_0$ ,  $\delta_1$  und  $\delta_2$  sind dabei die vom Grad der Symmetrie abhängigen Feinstrukturaufspaltungen zwischen den hellen und dunklen ( $\delta_0$ ), den beiden hellen ( $\delta_1$ ) und den beiden dunklen Exzitonzuständen ( $\delta_2$ ). Für Quantenpunkte mit hoher Symmetrie verschwindet beispielsweise die energetische Aufspaltung zwischen den beiden hellen Exzitonen ( $\delta_1 = 0$ ) und die Zustände  $|\pm 1\rangle$  sind energetisch entartet. Im Fall nicht entarteter heller Exzitonen ( $\delta_1 \neq 0$ ) können die beiden optisch aktiven Zustände durch eine Linearkombination aus den entarteten Zuständen  $|\pm 1\rangle$  gebildet werden. Ein vergleichbares Ergebnis erhält man für die dunklen Zustände, jedoch nimmt auch für symmetrische Quantenpunkte  $\delta_2$  stets einen von null verschiedenen Wert an. Abb. 2.6a zeigt die Eigenzustände für Quantenpunkte mit geringer Symmetrie ( $< D_{2\nu}$ ). Neben den hellen ( $|+1\rangle \pm |-1\rangle$ ) und dunklen Eigenzuständen ( $|+2\rangle \pm |-2\rangle$ ) ist auch die jeweilige Polarisation des absorbierten beziehungsweise emittierten Photons eingezeichnet. Im Gegensatz



**Abb. 2.6:** (a) Feinstrukturaufspaltung und Polarisationsverhalten asymmetrischer Quantenpunkte ( $< D_{2\nu}$ ) ohne externes Magnetfeld. Die beiden rechten Abbildungen zeigen den Verlauf der Energieeigenwerte für (b)  $B \parallel z$  (Faraday-Geometrie) und (c)  $B \perp z$  (Voigt-Geometrie). Zur Berechnung wurden folgende Werte verwendet:  $\delta_0 = 1.92$  meV,  $\delta_1 = 0.15$  meV,  $\delta_2 = 0.004$  meV,  $g_1 = 1.6$ ,  $g_2 = 5.2$ ,  $g_e^x = 0.2$  [Pul99] und  $\Gamma_h^x = 0$ .

zu den reinen Zuständen ( $|\pm 1\rangle$ ) bei symmetrischen Strukturen, die an das Feld eines zirkular polarisierten Photons koppeln ( $\sigma^\pm$ ), weisen die kombinierten Zustände für asymmetrische Quantenpunkte eine Absorption beziehungsweise Emission von linear polarisierten Photonen ( $\pi_{x,y}$ ) auf (vgl. auch Abb. 2.5).

Die Quantenzustände können also durch eine gezielte Auszeichnung einer Richtung beeinflusst werden, da die Feinstrukturaufspaltung deutlich von der Symmetrie des Systems abhängt. Im Folgenden wird als ein solcher Einfluss auf die Eigenzustände des Systems ein von außen angelegtes Magnetfeld behandelt. Hierbei soll zunächst der Fall  $\vec{B} \parallel z$  (Faraday-Geometrie) diskutiert werden, also die Orientierung des Magnetfeldes parallel zur Wachstumsrichtung der Proben und damit entlang der Hauptquantisierungsachse der Quantenpunkte. Abschließend wird noch der Fall  $\vec{B} \perp z$  (Voigt-Geometrie) erörtert.

### 2.6.1 Longitudinales Magnetfeld ( $\vec{B} \parallel \vec{z}$ )

Für ein externes Magnetfeld  $\vec{B} \parallel \vec{z}$  koppeln lediglich die  $z$ -Komponenten des Gesamtdrehimpulses von Elektronen und Löchern an das Magnetfeld  $B$ . Dadurch erhält der Hamilton-Operator neben  $H_{exc}$  aus Gl. (2.24) noch einen weiteren Term  $H_B$ . In Matrixdarstellung nimmt  $\mathcal{H} = H_{exc} + H_B$  damit folgende Form an [Wei00]:

$$\mathcal{H} = -\frac{1}{2} \begin{pmatrix} -\delta_0 + \chi\delta_1 & \delta_1 & 0 & 0 \\ \delta_1 & -\delta_0 - \chi\delta_1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \delta_0 - \xi\delta_2 & \delta_2 \\ 0 & 0 & \delta_2 & \delta_0 + \xi\delta_2 \end{pmatrix}, \quad (2.25)$$

mit:  $\chi = \frac{g_1 \mu_B B}{\delta_1}$  und  $\xi = \frac{g_2 \mu_B B}{\delta_2}$ .  $g_1$  und  $g_2$  sind die effektiven g-Faktoren der hellen beziehungsweise dunklen Exzitonen. Analog zu  $H_{exc}$  Gl. (2.24) weist der Hamilton-Operator  $\mathcal{H}$  aus Gl. (2.25) wieder eine Blockdiagonalform auf. Dies äußert sich physikalisch in der Tatsache, dass bezüglich der Basis  $(|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle)^T$  keine Mischung zwischen hellen und dunklen Exzitonzuständen auftritt. Tab. 2.1 zeigt die entsprechenden Eigenzustände und die dazugehörigen Energieeigenwerte des Hamiltonian aus Gl. (2.25):

**Tab. 2.1:** Energieeigenwerte und Eigenzustände des Hamilton-Operators  $\mathcal{H}$  im Magnetfeld in Faraday-Geometrie.  $N_{\pm}(x) = \sqrt{2(1+x^2 \pm x\sqrt{1+x^2})}$  mit  $x = \chi, \xi$  sind die Normierungsfaktoren der exzitonenischen Eigenzustände.

-	Eigenwert	Eigenzustand
$E_{1,2}$	$\frac{1}{2} (\delta_0 \pm \delta_1 \sqrt{1 + \chi^2})$	$\frac{1}{N_{\pm}(\chi)} ( +1\rangle \mp (\sqrt{1 + \chi^2} \pm \chi)  -1\rangle)$
$E_{3,4}$	$\frac{1}{2} (-\delta_0 \pm \delta_2 \sqrt{1 + \xi^2})$	$\frac{1}{N_{\mp}(\xi)} ( +2\rangle \mp (\sqrt{1 + \xi^2} \mp \xi)  -2\rangle)$

Tab. 2.1 zeigt, dass für  $\chi = 0$  und  $\xi = 0$ , also ohne äußeres Magnetfeld, die Energieeigenzustände durch die Feinstrukturaufspaltung  $\delta_1$  beziehungsweise  $\delta_2$  bestimmt sind. Für helle Exzitonen bedeutet dies, dass die zirkular polarisierten Komponenten  $|\pm 1\rangle$  gleich gewichtet sind und die entsprechende Linearkombination zu einer linear polarisierten Emission führt (vgl. Abb. 2.6a). Mit steigendem Magnetfeld  $B$  dominiert der Zeeman-Term  $g_1 \mu_B B$  die Eigenzustände und die Energieaufspaltung, so dass die Emission einen nicht mehr kompensierbaren zirkularen Anteil aufweist (vgl. Abb. 2.6b). Tab. 2.2 zeigt die optisch aktiven Eigenzustände für die beiden Grenzfälle  $\chi \rightarrow 0$  und  $\chi \rightarrow \pm\infty$  [Wei00].

**Tab. 2.2:** Optisch aktive Eigenzustände eines Quantenpunkts (Symmetrie  $< D_{2\nu}$ ) für die Grenzfälle  $\chi \rightarrow 0$  und  $\chi \rightarrow \pm\infty$ .

Energie	Eigenzustände		
	$\chi \rightarrow 0$	$\chi \rightarrow \infty$	$\chi \rightarrow -\infty$
$E_1$	$( +1\rangle -  -1\rangle) / \sqrt{2}$	$- -1\rangle$	$ +1\rangle$
$E_2$	$( +1\rangle +  -1\rangle) / \sqrt{2}$	$ +1\rangle$	$- -1\rangle$

### 2.6.2 Transversales Magnetfeld ( $\vec{B} \perp \vec{z}$ )

Bei einer Orientierung des Magnetfeldes  $\vec{B} \perp \vec{z}$ , also senkrecht zur Wachstumsrichtung der Proben, können die  $x$ - beziehungsweise  $y$ -Komponenten des Drehimpulses an das Feld an koppeln. Dadurch ändert sich die Form des Hamilton-Operators, der in Matrixdarstellung wie folgt angegeben werden kann [Sch05]:

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \delta_0 & -\delta_1 & g_e^x \mu_B B & \frac{3}{4} \Gamma_h^x \mu_B B \\ -\delta_1 & \delta_0 & \frac{3}{4} \Gamma_h^x \mu_B B & g_e^x \mu_B B \\ g_e^x \mu_B B & \frac{3}{4} \Gamma_h^x \mu_B B & -\delta_0 & -\delta_2 \\ \frac{3}{4} \Gamma_e^x \mu_B B & g_e^x \mu_B B & -\delta_2 & -\delta_0 \end{pmatrix} \quad (2.26)$$

Gl. (2.26) zeigt, dass der Hamiltonian unter Voigt-Geometrie keine Blockdiagonalform mehr aufweist, sondern zusätzliche für  $B \neq 0$  nicht verschwindende Nichtdiagonalelemente besitzt. Dies führt mit steigendem Magnetfeld zu einer Änderung der Basiszustände.  $\Gamma_e^x$  aus Gl. (2.26) bezeichnet den g-Tensor des Schwerlochs, der im Vergleich zum Elektron-g-Faktor  $g_e^x$  verschwindend kleine Werte annimmt ( $\rightarrow \Gamma_e^x \approx 0$ ) [Dor03, Sch06a]. Die entsprechenden Eigenzustände sind in Tab. 2.3 zusammengefasst und Abb. 2.6c zeigt den Verlauf der Energieeigenwerte.

**Tab. 2.3:** Energieeigenwerte und Eigenzustände des Hamilton-Operators in Voigt-Geometrie.  $N(\gamma_i) = \sqrt{1 + \gamma_i^2}^{-1}$  dient der Normierung der Eigenzustände.

	Energieeigenwert	Eigenzustand
$E_1$	$\frac{1}{4} \left( \delta_1 + \delta_2 + \sqrt{(2\delta_0 + \delta_1 - \delta_2)^2 + 4(g_e^x - \frac{3}{4} \Gamma_h^x)^2 \mu_B^2 B^2} \right)$	$\frac{1}{N(\gamma_1)} \cdot [( +1\rangle -  -1\rangle) + \gamma_1( +2\rangle -  -2\rangle)]$
$E_2$	$\frac{1}{4} \left( -\delta_1 - \delta_2 + \sqrt{(2\delta_0 - \delta_1 + \delta_2)^2 + 4(g_e^x + \frac{3}{4} \Gamma_h^x)^2 \mu_B^2 B^2} \right)$	$\frac{1}{N(\gamma_2)} \cdot [( +1\rangle +  -1\rangle) + \gamma_2( +2\rangle +  -2\rangle)]$
$E_3$	$\frac{1}{4} \left( \delta_1 + \delta_2 - \sqrt{(2\delta_0 + \delta_1 - \delta_2)^2 + 4(g_e^x - \frac{3}{4} \Gamma_h^x)^2 \mu_B^2 B^2} \right)$	$\frac{1}{N(\gamma_3)} \cdot [( +2\rangle -  -2\rangle) + \gamma_3( +1\rangle -  -1\rangle)]$
$E_4$	$\frac{1}{4} \left( -\delta_1 - \delta_2 - \sqrt{(2\delta_0 - \delta_1 + \delta_2)^2 + 4(g_e^x + \frac{3}{4} \Gamma_h^x)^2 \mu_B^2 B^2} \right)$	$\frac{1}{N(\gamma_4)} \cdot [( +2\rangle +  -2\rangle) + \gamma_4( +1\rangle +  -1\rangle)]$

In Voigt Geometrie tritt mit steigendem Magnetfeld eine Mischung heller und dunkler Exzitonzustände auf und führt damit zu relativ komplexen Termen der Energieeigenzustände, die durch eine Kopplungskonstante  $\gamma_i$  mit  $i = 1, 2, 3, 4$  vereinfacht dargestellt werden können.  $\gamma_i$  hängt dabei von  $\delta_0$ ,  $\delta_1$ ,  $\delta_2$ ,  $\Gamma_e^x$  und  $g_e^x$  ab. Zu den optisch aktiven Zuständen  $|\pm 1\rangle$  mischen sich mit steigendem Magnetfeld die dunklen Niveaus  $|\pm 2\rangle$  und umgekehrt. Dies bedeutet, dass die für  $B = 0$  linear polarisierten, optisch aktiven Eigenzustände für hohe Feldstärken in vier Niveaus aufspalten. Hierbei hängt die Vermischung optisch aktiver und inaktiver Zustände maßgeblich von den Kopplungskonstanten  $\gamma_i$  und der äußeren Magnetfeldstärke ab.

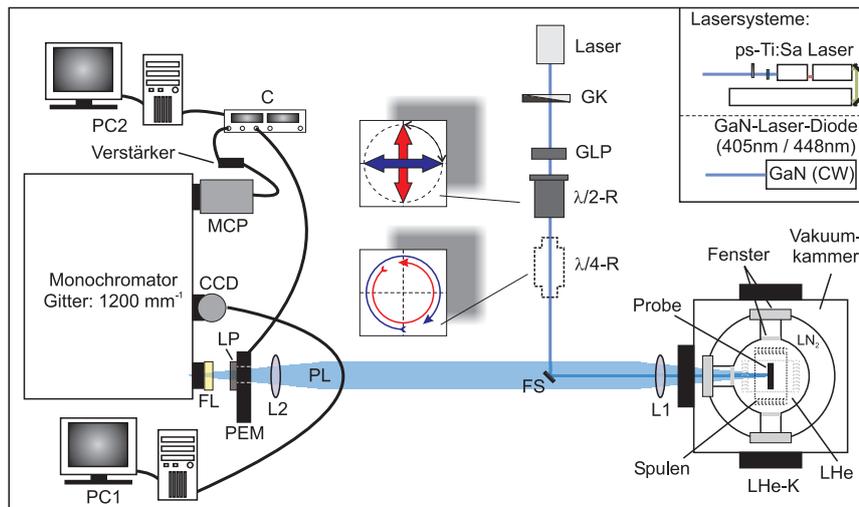
# 3 Experimentelle Untersuchungsmethoden

Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten optischen Untersuchungen an Halbleiterquantenpunkten wurden zwei verschiedene experimentelle Methoden der PL-Spektroskopie angewandt. Zum einen handelt es sich um orts aufgelöste Magneto-PL-Spektroskopie und zum anderen um zeitaufgelöste PL-Messungen. Im Folgenden sollen die grundlegenden Prinzipien beider Methoden erläutert und die Versuchsaufbauten vorgestellt werden.

## 3.1 Die Magnetolumineszenz-Spektroskopie

Direkte Halbleiter zeichnen sich im Vergleich zu Materialien mit indirekter Bandlücke als exzellente Lichtemitter aus. Dabei decken sie einen sehr weiten Spektralbereich von ultraviolett bis zum fernen Infrarot ab. Diese Eigenschaft macht man sich in der Photolumineszenzspektroskopie zu Nutze. Mittels geeigneter Lichtquellen (Photonenenergie, spektrale Breite, Intensität, ...) - in der Regel Laser - werden elektronische Übergänge vom Valenzband ins Leitungsband des Halbleiters angeregt. Die Ladungsträger relaxieren innerhalb weniger Pikosekunden an die Bandkante des Leitungs- und Valenzbandes. Die Überschussenergie der Ladungsträger wird in Form von inelastischen Streuprozessen (Phononenstreuung, Auger-Prozess, Ferninfrarot-Photonenemission) abgegeben. Die Elektron-Loch-Paare rekombinieren durch Aussendung von Photonen. Dieser Vorgang findet in der Regel auf einer Zeitskala von einigen hundert Pikosekunden bis hin zu einigen Nanosekunden statt. Neben strahlenden Rekombinationen können auch optisch inaktive Übergänge auftreten, die mit zunehmender Umgebungstemperatur an Bedeutung gewinnen. Um die thermische Verbreiterung der optischen Übergänge zu minimieren, ist es erforderlich die Halbleiter bei kryogenen Temperaturen zu untersuchen. Hierzu werden die Proben mit Hilfe von flüssigem Helium auf wenige Klevin abgekühlt. Unter diesen Bedingungen ist die thermische Energie kleiner als die Exziton-Bindungsenergie und die beobachtbaren Übergänge von der Bandkante besitzen vorwiegend exzitonischen Charakter.

Die spektrale Analyse des emittierten PL-Lichts erlaubt es die Energie der Eigenzustände zu bestimmen und gibt somit wichtige Einblicke in die optischen und elektronischen Eigenschaften des Halbleiters. Die Polarisation des emittierten PL-Signals liefert dabei wichtige Informationen über die Spinorientierung der photogenerierten Ladungsträger.



**Abb. 3.1:** Messplatzaufbau zur Magneto-PL-Spektroskopie: **Laser:** wahlweise gepulster (82 MHz, 1.5 ps) und frequenzverdoppelter Titan-Saphir Laser oder GaN Laser-Diode (448 nm bzw. 405 nm), **GK:** Graukeil zur Justage der mittleren Leistung des Laserstrahls, **GLP:** Glan-Laser-Prisma (Linearpolarisator), **λ/2-R:** λ/2-Rhombus, **λ/4-R:** wahlweise eingesetzter λ/4-Rhombus (Zirkularpolarisator), **FS:** Fingerspiegel (Spiegelfläche  $\approx 6 \text{ mm}^2$ ), **L1, L2:** Linsen, **LHe-K:** Helium-Badkryostat mit supraleitendem „Split-Coil“ Magneten ( $B_{max} = 8 \text{ T}$ ), **PL:** Photolumineszenz, **PEM + LP:** photoelastischer Modulator in Kombination mit Linearpolarisator, **FL:** Interferenz- und (oder) Bandkantenfilter, **CCD:** CCD-Kamera (Detektor 1), **PC1+PC2:** Computersystem, **MCP:** Micro-Channel-Plate (Detektor 2), **C:** 2-Kanal Photonen-zähler. Zur spektralen Analyse des PL-Signals dient ein Doppelmonochromator mit zwei  $1200 \text{ mm}^{-1}$  Gittern.

### 3.1.1 Messplatzaufbau

Abb. 3.1 zeigt den Aufbau des verwendeten Magneto-PL-Messplatzes. Als Lichtquelle dienen an diesem Messplatz wahlweise zwei cw<sup>1</sup> GaN Laser-Dioden mit 448 nm und 405 nm sowie ein gepulstes Titan-Saphir Lasersystem (Ti:Sa). Als Pumplaser für diesem Lasertyp dient ein Argon-Ionen Laser im „Multi-Line“-Modus<sup>2</sup>. Der Spiegelsatz des Ti:Sa ist so gewählt, dass Emissionswellenlängen im Bereich von 840 nm bis 1000 nm stufenlos einstellbar sind. Mittels eines akusto-optischen Modulators innerhalb der gefalteten Resonatorgeometrie können nach dem Prinzip der aktiven Modenkopplung ultrakurze Laserpulse von nominell 1.5 ps Dauer erzeugt werden. Mit einer Repetitionsrate des Lasersystems von 82 MHz entspricht der zeitliche Abstand zwischen zwei Laserpulsen damit etwa 12 ns.

Zur spektroskopischen Untersuchung von Materialsystemen mit einer Bandlücke größer als 1.476 eV ( $\approx 840 \text{ nm}$ ) muss die Energie des Laserlichts erhöht werden. Dies geschieht mittels eines frequenzverdoppelnden BBO-Kristalls<sup>3</sup>, mit dem - je nach Emissionswellenlänge des Lasers - Licht im sichtbaren Spektralbereich von 420 nm bis 500 nm zur Verfü-

<sup>1</sup>cw: continuous wave bedeutet „Dauerstrich-Betrieb“

<sup>2</sup>Multi-Line: Laser emittiert sämtliche für diesen Typ möglichen Wellenlängen im Bereich 454.5 nm - 514.5 nm.

<sup>3</sup>BBO: BBO steht für BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>.

gung steht. Zur Trennung der infraroten Fundamentalmode (TEM<sub>00</sub>-Mode<sup>4</sup>) und zweiten Harmonischen sind nach dem frequenzverdoppelnden Kristall dichroitische Strahlteiler in das System integriert, die den blauen Anteil des Lichts reflektieren und den infraroten transmittieren. Jedoch kann auf diese Weise keine vollständige Trennung der beiden Harmonischen erzwungen werden, so dass zusätzlich zu den Strahlteilern ein Kurzpassfilter (BG39<sup>5</sup>) in den Strahlengang eingebaut werden muss, um eine etwaige Erwärmung und Beschädigung der Proben durch die Fundamentalmode zu verhindern. Zur Realisierung einer wohl definierten Polarisation des Laserlichts wird der Laserstrahl durch eine Anordnung von breitbandigen optischen Komponenten geführt. Da durch einige integrierte Umlenkspiegel die lineare Polarisation der frequenzverdoppelten TEM<sub>00</sub>-Mode an Qualität verliert, wird der Laserstrahl mittels eines Glan-Laser-Prismas (GLP) zunächst vollständig linear polarisiert. Ein nachfolgender  $\lambda/2$ -Rhombus gestattet eine stufenlose Drehung der Polarisationssebene. Für Experimente mit zirkular polarisiertem Licht kann bei Bedarf zusätzlich ein  $\lambda/4$ -Rhombus integriert werden, dessen Orientierung bezüglich der Polarisationssebene des einfallenden Strahls um  $\pm 45^\circ$  gedreht ist. Auf diese Weise lassen sich die gewünschten linearen ( $\pi_x$ ,  $\pi_y$ ) und zirkularen ( $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$ ) Polarisationszustände realisieren. Anschließend wird der Strahl mittels eines kleinen Fingerspiegels in den Kryostaten eingekoppelt. Mittels einer Linse vor dem Einkoppelfenster des Kryostaten kann der Strahl mit einem Durchmesser von bis zu  $60 \mu\text{m}$  auf der Probenoberfläche fokussiert werden.

Der für Magnetolumineszenz-Experimente verwendete Kryostat ist mit einem supraleitenden „Split-Coil“ Magneten ausgestattet, der Untersuchungen mit Magnetfeldern bis zu  $\pm 8 \text{ T}$  gestattet. Durch Drehen des Kryostaten kann das Magnetfeld sowohl senkrecht (Faraday-Geometrie) zur Probenoberfläche als auch parallel (Voigt-Geometrie) dazu orientiert werden. Zur optimalen Kühlung sind die Proben auf einem Kaltfinger aufgebracht, welcher sich im flüssigen Helium befindet. Durch Abpumpen der Probenkammer wird der Dampfdruck des Heliums reduziert und ab einem bestimmten Druck findet ein Übergang des Heliums in den suprafluiden Zustand ( $\lambda$ -Punkt) statt. Dieser Zustand des Heliums bietet zwei entscheidende Vorteile: Zum einen gewährleistet suprafluides Helium einen optimalen Abtransport der durch das Laserlicht erzeugten Wärme und zum anderen weist flüssiges Helium unterhalb des  $\lambda$ -Punkts keine Siedebällchen mehr auf, welche den Laserstrahl und das emittierte PL-Licht streuen können. Auf diese Weise lassen sich Temperaturen von ca.  $1.5 \text{ K}$  realisieren.

Das von der Probe emittierte PL-Signal wird durch die Linse vor dem Kryostaten kollimiert und mittels einer zweiten Linse auf den vertikalen Eingangsspalt eines Doppel-Monochromators (Jobin Yvon HRD-1,  $0.6 \text{ m}$ ) mit zwei  $1200 \text{ mm}^{-1}$  Gittern fokussiert. Der kleine Fingerspiegel im breiten Strahlengang der PL stört dabei aufgrund seiner sehr geringen Abmessungen nur wenig. Zusätzlich ist noch ein Langpass-Filter<sup>6</sup> vor dem Monochromatorspalt notwendig, um direkte Reflexe des Lasers von der Probenoberfläche, den Kryostatenfenstern und der Einkoppellinse sowie indirekt gestreutes Laserlicht zu blocken. Zur Detektion des zeitintegrierten PL-Signals dient eine nach der ersten Mono-

<sup>4</sup>TEM<sub>00</sub>) ist die „transversal-elektrische“ Grundmode des Lasersystems

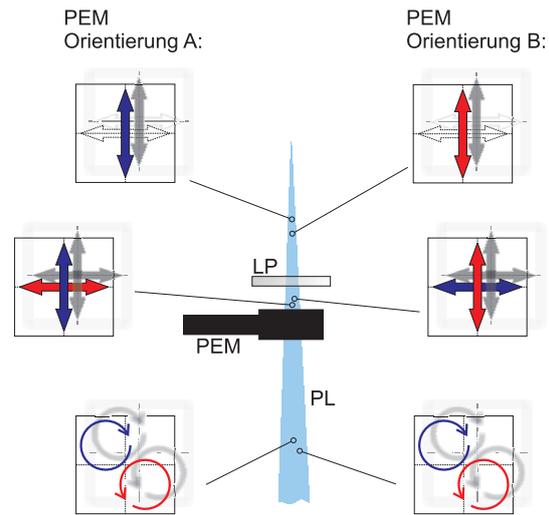
<sup>5</sup>BG39-Blauglas: Transmission für  $420 \text{ nm} - 500 \text{ nm}$ :  $> 90 \%$

<sup>6</sup>Geeignete Filter: Gelbglas (GG455, GG475), Interferenzfilter (Semrock Razor Edge  $458 \text{ nm}$ )

chromatorstufe angebrachte, stickstoffgekühlte CCD-Kamera<sup>7</sup>. Das System verfügt damit über eine spektrale Auflösung von  $\approx 0.2$  meV.

Zur Analyse der PL-Polarisation können unmittelbar vor dem Eintrittsspalt Folienpolarisatoren (Linearpolarisator,  $\lambda/4$ -Plättchen) eingebaut werden. Diese Methode wird beim Arbeiten mit der CCD-Kamera als Detektorsystem verwendet. Sie birgt jedoch den Nachteil, dass jede manuelle Einstellung der Polarisatoren mit einer geringfügigen Dejustage des Strahlengangs einhergeht. Aus diesem Grund ist die Genauigkeit dieser Polarisationsanalyse beschränkt. Ein wesentlich besseres Resultat kann durch eine photoelastische Modulation des PL-Signals erzielt werden. Zu diesem Zweck wird anstelle der manuell einstellbaren Folienpolarisatoren ein photoelastischer Modulator (PEM) gefolgt von einem Linearpolarisator in den Strahlengang eingesetzt. Der PEM kann hierbei als  $\lambda/4$ -, wie auch als  $\lambda/2$ -Verzögerungsplättchen mit einer Operatorfrequenz von 50 kHz beziehungsweise 100 kHz betrieben werden. Das heißt, der PEM wechselt mit einer Frequenz von 50 kHz ( $\lambda/4$ ) beziehungsweise 100 kHz ( $\lambda/2$ ) zwischen den orthogonalen Polarisationszuständen  $\sigma^+$  und  $\sigma^-$  beziehungsweise  $\pi_x$  und  $\pi_y$ .

In Abb. 3.2 ist die Funktionsweise des PEM als  $\lambda/4$ -Plättchen dargestellt. Die zirkular polarisierten Komponenten des PL-Lichts werden beim Passieren des PEM in Orientierung A in horizontal und vertikal polarisiertes Licht umgewandelt. Der nachfolgende, vertikal orientierte Linearpolarisator selektiert dann genau eine dieser beiden Komponenten. Ändert sich die Stellung des PEM (Orientierung B) so passiert nun die andere Polarisationskomponente den Linearpolarisator. Das gleiche Prinzip liegt beim  $\lambda/2$  Betrieb des PEM vor, welcher die Analyse des linearen Polarisationsgrades der PL gestattet. Als Detektor dient ein an die zweite Monochromatorstufe angebrachtes Micro-Channel-Plate, das durch einen 2-Kanal Photonen-zähler ausgelesen wird. Dieser ist über ein Triggersignal mit dem PEM synchronisiert, so dass die beiden Polarisationskomponenten jeweils in Kanal 1 oder Kanal 2 des Photonen-zählers registriert werden. Die Ansteuerung, das Auslesen und das Speichern der Messdaten erfolgt computergesteuert. Diese Messmethode ermöglicht auf Grund der hohen Taktfrequenz eine quasi gleichzeitige Messung der beiden Polarisationsanteile des PL-Signals und damit die Bestimmung der Polarisation mit einer Genauigkeit von 1 % bis 2 %. Bei mehrmaliger Durchführung des Experiments kann mit dieser Methode der Polarisationsgrad mit einer Genauigkeit in der Größenordnung von 0.1 % bestimmt werden.



**Abb. 3.2:** Schematische Darstellung der PL-Polarisationsanalyse mittels photoelastischer Modulation.

<sup>7</sup>CCD: Charged-Coupled-Device

## 3.2 Zeitaufgelöste Photolumineszenzspektroskopie

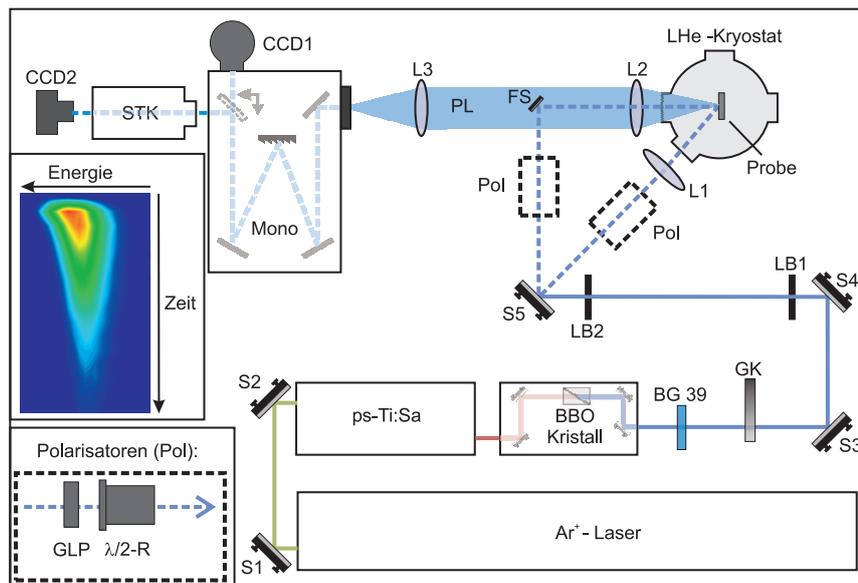
Die dynamische Entwicklung des PL-Signals kann mittels zeitaufgelöster Photolumineszenzspektroskopie untersucht werden. Dieses Verfahren liefert einen Einblick in die Anregungs- und Rekombinationsdynamik von exzitonischen Zuständen in Halbleitermaterialien. Bei direkten Halbleitermaterialien, wie den in dieser Arbeit untersuchten CdSe/ZnSe Strukturen, treten Rekombinationsprozesse im Piko- bis Nanosekundenbereich auf.

### 3.2.1 Der ps-Messplatz

Ein schematischer Aufbau mit skizzierter Funktionsweise des zeitaufgelösten Messplatzes ist in Abb. 3.3 dargestellt. Zur Realisierung einer Zeitauflösung von einigen wenigen Pikosekunden werden  $\delta$ -förmige Laserpulse mit einer Pulsdauer von einigen wenigen Femto- oder Pikosekunden benötigt. Zur Erzeugung dieser ultrakurzen Laserpulse wird das in Kapitel 3.1 beschriebene Titan-Saphir Lasersystem verwendet, das Laserpulse von ca. 1.5 ps bereitstellt. Der durch einen BBO-Kristall frequenzverdoppelte Strahl wird mittels einiger Umlenkspiegel und einer Linse auf die zu untersuchenden Strukturen fokussiert. Zur räumlichen Arretierung des Strahlverlaufs sind zwei Irisblenden in den Aufbau integriert, so dass der Laser beim Justieren oder Verfahren der Emissionswellenlänge stets auf denselben Bereich der Probe fokussiert werden kann. Diese Methode ermöglicht die Detektion des Photolumineszenzsignals und der Exzitonlebensdauer auch unter strikt resonanten Bedingungen. Um eine Anregung mit wohl definiertem linear polarisiertem Licht zu gewährleisten, werden ein Linearpolarisator sowie ein  $\lambda/2$ -Plättchen in den Aufbau integriert. Die Proben sind auf einem Kaltfinger befestigt, der sich analog zum Aufbau des Magnetmessplatzes in einem flüssigen Heliumbad befindet, das aus den genannten Gründen unter den  $\lambda$ -Punkt in den superfluiden Zustand gepumpt wird.

Wie Abb. 3.3 zeigt, stehen für die Einkopplung des Laserlichts in den Kryostaten zwei Möglichkeiten zur Verfügung. Zum einen kann der Strahl unter einem Winkel von  $45^\circ$  auf die Probe gelenkt werden, was die Reflexion des Strahls in Detektionsrichtung verhindert und somit den Einsatz eines Bandkantenfilters zum Blocken des Lasers erübrigt. Dies ist insbesondere für Untersuchungen nahe der Resonanzenergie der untersuchten Proben notwendig, um die Photonen des Lasers und der Photolumineszenz zu trennen. Jedoch sind mit diesem Messaufbau nur resonante Untersuchungen an unstrukturierten Proben möglich, da die Genauigkeit der Strahlpositionierung durch die Irisblenden beschränkt ist. Für Untersuchungen, die eine hohe Ortsauflösung und damit eine exakte Positionierung des Lasers erforderlich machen, kann der Strahl senkrecht auf den Kryostaten eingekoppelt werden. Hierbei muss jedoch die Wellenlänge des Lichts so gewählt werden, dass die an Linse und Kryostatenfenster reflektierten Photonen des Lasers mittels eines geeigneten Bandkantenfilters geblockt werden können.

Das emittierte PL-Signal wird auf den Eintrittspalt eines Monocromators (Yobin-Yvon) fokussiert. Für die spektrale Auflösung stehen zwei verschiedene Gitter mit  $1200 \text{ mm}^{-1}$  und  $300 \text{ mm}^{-1}$  zur Verfügung. Mittels eines Umlenkspiegels am Ausgang des Monochromators kann die Photolumineszenz wahlweise zeitintegriert oder zeitaufgelöst untersucht werden. Hierfür stehen zwei verschiedene Detektorsysteme zur Verfügung: Eine stickstoffgekühlte



**Abb. 3.3:** Messplatzskizze für zeitaufgelöste PL-Spektroskopie: **S1 - S5:** Umlenkspiegel. **BBO:** Kristall zur Frequenzverdopplung. **BG 39:** Kurzpassfilter. **GK:** Graukeil zum Variieren der Laserleistung. **LB1, LB2:** Irisblenden zur Justage des Strahls. **Pol:** Polarisatoren (siehe Bildeinschub unten links). **L1 - L3:** Linsen. **FS:** Fingerspiegel. **PL:** Photolumineszenz. **Mono:** Monochromator mit wahlweise  $300\text{ mm}^{-1}$  oder  $1200\text{ mm}^{-1}$  Gitter. **CCD1, CCD2:** CCD-Kamera zur Detektion des zeitintegrierten (CCD1) und zeitaufgelösten Signals (CCD2). **STK:** Streak-Kamera. Bildeinschub links: Contour-Plot des spektral und zeitlich aufgelösten PL-Signal gemessen mit CCD2.

CCD-Kamera dient zur spektralen Analyse und Justage der zeitintegrierten Photolumineszenz. Zur Realisierung der zeitaufgelösten Detektion wird eine Streak-Kamera<sup>8</sup> gefolgt von einer thermoelektrisch gekühlten CCD-Kamera verwendet.

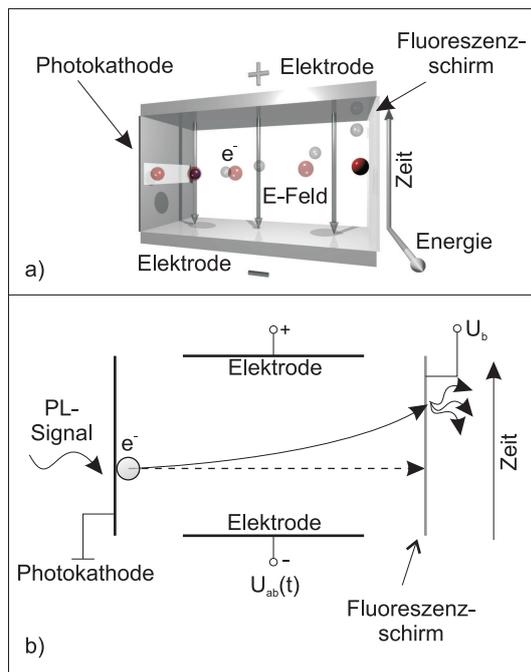
### 3.2.2 Funktionsweise der Streak-Kamera

Im Gegensatz zu anderen Systemen bieten Streak-Kameras durch Vorschalten eines Gitterspektrographen den Vorteil, dass mit ihnen die PL-Dynamik nicht nur für eine bestimmte Emissionswellenlänge, sondern simultan für den gesamten Bereich des Emissionsspektrums bestimmt werden kann. Hierbei ermöglicht das verwendete System durch drei unterschiedliche zeitliche Auflösungsgrenzen die Photolumineszenz in einem Zeitfenster von etwa 600 ps bis 3 ns zu beobachten, welches deutlich geringer ist als der durch die Repetitionsrate des Lasersystems bestimmte Puls-zu-Puls Abstand von etwa 12 ns. Abb. 3.4 zeigt das Prinzip und die Funktionsweise des verwendeten Systems.

Nachdem das Photolumineszenzlicht den Monochromator passiert hat, trifft es auf die Streak-Kamera. Mittels einer Eingangsoptik wird das spektral aufgelöste PL-Licht auf eine im sichtbaren Spektralbereich empfindliche Photokathode<sup>9</sup> abgebildet. Ein auf die

<sup>8</sup>Typ: „Imacon 500“ der Firma „Headland Photonics“.

<sup>9</sup>Photokathode: S20-Charakteristik (Empfindlichkeit für 400 nm - 600 nm > 20 mA/W)



**Abb. 3.4:** Aufbau und Funktionsweise einer Streak-Kamera.

aus, die einer entsprechend stärkeren vertikalen Ablenkung im elektrischen Feld ausgesetzt sind als Elektronen zu einem früheren Zeitpunkt. Nach dem Passieren des elektrischen Wechselfeldes treffen die Elektronen auf einen Fluoreszenzschirm. In Kombination mit einer thermoelektrisch gekühlten Kamera lässt sich bei genügend langer Integrationszeit ein zweidimensionales Intensitätsprofil erzeugen, das mittels eines Computersystems und einer geeigneten Spektroskopiesoftware<sup>10</sup> detektiert werden kann. Auf diese Weise erhält man auf der y-Achse (245 Kanäle) die spektrale Position und auf der x-Achse den zeitliche Verlauf der Photolumineszenz (575 Kanäle). Für die Realisierung eines möglichst hohen zeitlichen Auflösungsvermögens ist zum einen auf eine möglichst gute Phasenstabilität der Laserpulsfolge zu achten und zum anderen sind Wegunterschiede im Strahlverlauf des optischen Systems zu berücksichtigen. Auch muss ein Kompromiss zwischen spektraler und zeitlicher Auflösung akzeptiert werden, da Energie und Zeit aufgrund der Heisenbergschen Unschärferelation

$$\Delta E \cdot \Delta t \geq \hbar \quad (3.1)$$

miteinander verknüpft sind. Das im Rahmen dieser Arbeit verwendete System verfügt über eine Zeitauflösung in der Größenordnung von etwa  $\pm 20$  ps.

<sup>10</sup>CSMA Version 2.4

Kathode treffendes Photon löst durch Photoeffekt ein Sekundärelektron aus, das sich durch eine Beschleunigungsspannung  $U_b$  auf einen gegenüberliegenden Fluoreszenzschirm zu bewegt. Dabei passiert das Elektron zwei Kondensatorplatten, an die eine hochfrequente, mit der Pulsfolge des Lasers synchronisierte Wechselspannung  $U_{ab}(t)$  angelegt ist. Dadurch ist das Elektron neben der stationären Beschleunigungsspannung einem zeitabhängigen elektrischen Feld ausgesetzt und erfährt damit eine Ablenkung senkrecht zur ursprünglichen Flugrichtung. Die Stärke des elektrischen Wechselfeldes nimmt mit steigender Zeit zu. Der Startpunkt und die Periodizität des Feldes werden durch das Lasersystem vorgegeben. Abhängig vom Zeitpunkt bezüglich des Laserpulses erfährt ein erzeugtes Elektron damit eine unterschiedlich starke Ablenkung im elektrischen Feld. PL-Photonen, die zu einem späteren Zeitpunkt auf die Photokathode treffen, lösen dort Elektronen



# 4 Herstellung niederdimensionaler Strukturen

Niederdimensionale Halbleiterstrukturen zeichnen sich durch einen Einschluss der Ladungsträger in einer oder mehreren Raumrichtungen aus. Erreicht wird dies, indem man Material mit einer geringeren Bandlücke, z.B. CdSe in Material mit einer höheren Bandlücke einbettet (z.B. ZnSe). Die so entstandene Halbleiterheterostruktur bildet ein Einschlusspotential für Elektronen und Löcher und es treten Quantisierungseffekte auf, falls der dadurch bedingte räumliche Einschluss der Ladungsträger in der Größenordnung der de-Broglie-Wellenlänge liegt. Die Struktur der erlaubten Energieniveaus ist vergleichbar mit einem im Potentialkasten eingeschlossenem Teilchen (siehe z.B. [Sak95, Nol03a, Mes91]). Im Rahmen dieser Arbeit werden ausschließlich Strukturen mit dreidimensionalem Einschluss der Ladungsträger behandelt, die wegen ihrer diskreten Zustandsdichte als Quantenpunkte oder „künstliche Atome“ bezeichnet werden.

## 4.1 Herstellung von Quantenpunkten durch Molekular-Strahl-Epitaxie

Zur Herstellung nulldimensionaler Strukturen sind im Laufe der letzten Jahre eine Reihe technologisch moderner Konzepte und Methoden erforscht und entwickelt worden. So gelang es im Jahr 1986 einer Forschergruppe um *M. A. Reed* [Ree86] von *Texas Instruments* mittels lithographischer Verfahren nulldimensionale Strukturen zu erzeugen und damit erstmals einen dreidimensionalen Einschluss einzelner Ladungsträger zu realisieren. Jedoch birgt diese Methode den Nachteil einer stark limitierten minimal erreichbaren Objektgröße bei einem im Vergleich dazu recht aufwendigem technologischem Verfahren. So ist es nicht verwunderlich, dass zur Herstellung niederdimensionaler Halbleiterstrukturen in den vergangenen 20 Jahren weitere Methoden und Konzepte entwickelt werden mussten. Heutzutage steht mit der so genannten „Selbstorganisation“ von Quantenpunkten mittels MBE-Wachstum<sup>1</sup> (siehe z.B. [Her96, Far95]) ein interessantes Verfahren im Hinblick auf anwendungsorientierte Halbleiterstrukturen und Bauteile zur Verfügung. Jedoch muss an dieser Stelle erwähnt werden, dass im Gegensatz zur Herstellung von zweidimensionalen Nanostrukturen durch epitaktisches Wachstum die gezielte Realisierung von so genannten „künstlichen Atomen“ noch sehr hohe Anforderungen an Forschung und Entwicklung stellt.

Bei der Herstellung selbstorganisierter Quantenpunkte mittels MBE-Wachstum werden

---

<sup>1</sup>MBE: Molecular-Beam-Epitaxy

Halbleitermaterialien mit stark unterschiedlichen Gitterkonstanten und Bandlücken aufeinander aufgebracht. Hierbei werden durch Materialverdampfung erzeugte Teilchenstrahlen auf ein den Verdampfungsquellen gegenüberliegendes Substrat abgeschieden. In verschiedenen Materialsystemen stellt sich zunächst ein zweidimensionales Schichtenwachstum<sup>2</sup> ein, ehe ab einer kritischen Schichtdicke aufgrund der zunehmenden Gitterverspannung die Formation kleiner Inseln von der Größe einiger weniger Nanometer einsetzt. Ein solcher durch „Selbstorganisation“ bedingter 2D-3D Übergang des Wachstumsprozesses bewirkt einen dreidimensionalen Ladungsträgereinschluss und wird als „Stranski-Krastanov“-Modus bezeichnet, dessen prominentester Vertreter das InAs/GaAs Materialsystem ist [Leo93]. Zwar besitzen die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten CdSe/ZnSe-Heterostrukturen<sup>3</sup> eine vergleichbare Gitterfehlpassung von ca. 7% wie das InAs/GaAs Materialsystem, jedoch ist die Ausbildung eines 2D „wetting-layers“ weniger stark ausgeprägt. Vielmehr bilden sich bei den II-VI Verbindungshalbleitern bereits ab einer Schichtdicke von etwas mehr als 0.5 Monolagen mit Cd angereicherte Inseln, die einen dreidimensionalen Einschluss der Ladungsträger bewirken. Dieses Verhalten kann neben den Gitterverspannungen auch von chemischen Vorgängen wie Bindungsionizität, Oberflächenmigrations- und Diffusionsprozessen abhängen [Per00, Pas02]. Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten CdMnSe/ZnSe- und CdSe/ZnMnSe-Proben wurden durch epitaktisches Wachstum einer nominell 1.3 Monolagen starken CdMnSe beziehungsweise nominell 2.53 Monolagen dicken CdSe Schicht auf einer ca. 50 nm starken Zn(Mn)Se Schicht realisiert. Abschließend wurden die Quantenpunkte zum Schutz vor mechanischen Beschädigungen erneut mit Zn(Mn)Se überwachsen. Ein detaillierter Schichtaufbau der Proben ist im Anhang B (Probenregister) zu finden.

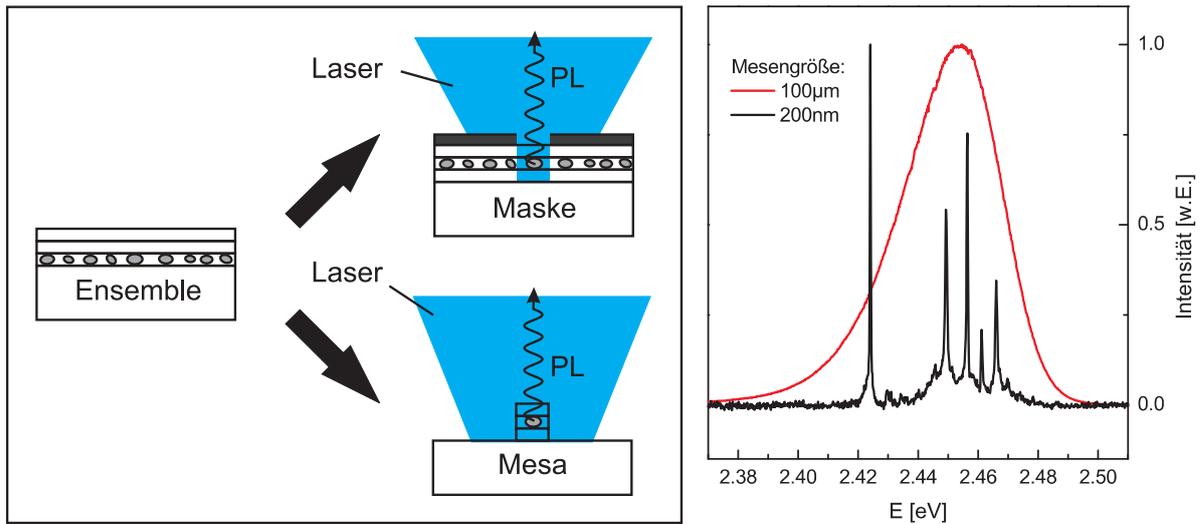
## 4.2 Nanostrukturierung - spektroskopischer Zugang zu einzelnen Quantenpunkten

Die Flächendichte der mittels MBE-Verfahren hergestellten Quantenpunktensembles liegt je nach Wachstumsmethode im Bereich zwischen etwa  $10^{10}$  -  $10^{12}$   $\text{cm}^{-2}$ . Der spektroskopische Zugang zu einzelnen Quantenpunkten des Ensembles, die ihrer Dichte entsprechend einen durchschnittlichen mittleren Abstand von ca. 30 nm bis 100 nm voneinander besitzen, ist durch verschiedene technologische Ansätze, die eine Ortsauflösung im Nanometerbereich gewährleisten, realisierbar. Eine konventionelle Fernfeldoptik mit typischen Linsenbrennweiten im Bereich von ca. 10 cm ermöglicht im sichtbaren Spektralbereich aufgrund von Beugungseffekten lediglich eine Ortsauflösung<sup>4</sup> im Bereich einiger  $10 \mu\text{m}$  und ist somit nicht geeignet einzelne Quantenpunkte gezielt optisch anzuregen. In den letzten Jahren sind jedoch optische wie auch auf Lithographie basierende Verfahren entwickelt worden, die das spektroskopische Vordringen in den Nanometerbereich und damit den Zugang zu einzelnen Quantenpunkten ermöglichen.

<sup>2</sup>auch (engl.) „wetting layer“ genannt

<sup>3</sup>Gitterkonstanten: CdSe  $\rightarrow$  6.054; ZnSe  $\rightarrow$  5.668 [Mad96]

<sup>4</sup>Die Ortsauflösung ist in diesem Fall durch den Durchmesser des Laserspots auf der Probenoberfläche begrenzt.



**Abb. 4.1: Links:** Nanostrukturierung der Probenoberfläche zur Selektion einzelner Quantenpunkte aus dem gewachsenen Ensemble (oben  $\Rightarrow$  Lochmaske, unten  $\Rightarrow$  Mesa). **Rechts:** Spektren von CdSe Quantenpunkten gemessen an  $100\ \mu\text{m}$  (rot) und  $200\ \text{nm}$  (schwarz) großen Mesen.

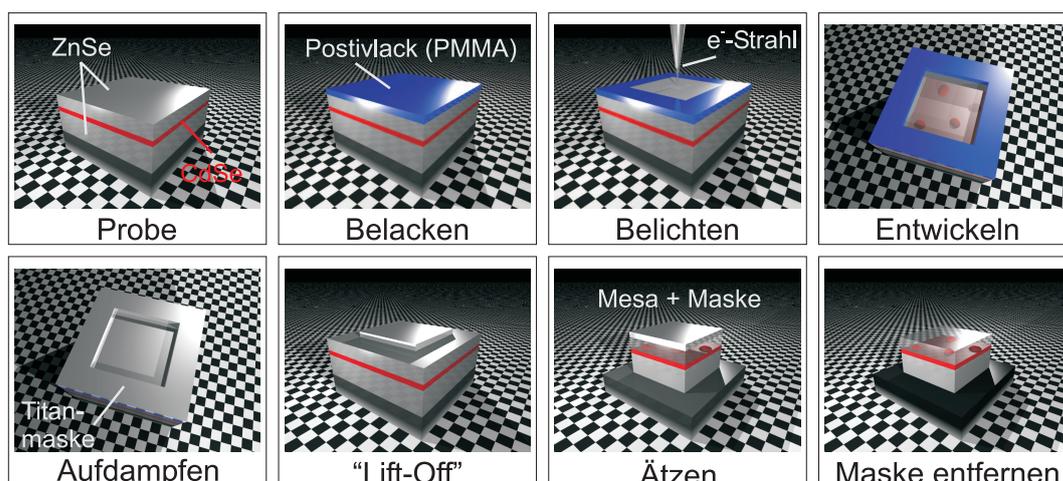
### 4.2.1 $\mu$ -Photolumineszenz und Nahfeldmikroskopie

Eine Erfolg versprechende Methode bietet hier die so genannte  $\mu$ -Photolumineszenz. Bei dieser Methode wird an Stelle herkömmlicher Linsen ein Mikroskopobjektiv mit möglichst großer numerischer Apertur verwendet, um eine beugungsbegrenzte Ortsauflösung im sub- $\mu\text{m}$  Bereich zu realisieren [Zre94, Bru94]. Störende und die Auflösung begrenzende Beugungseffekte des Fernfeldes können jedoch komplett umgangen werden, indem man das nicht der Beugung unterliegende Nahfeld des Lichts ausnutzt. Diese Technik wird als so genannte Nahfeldmikroskopie oder SNOM<sup>5</sup> bezeichnet. Dabei wird das Laserlicht mit der Wellenlänge  $\lambda$  durch eine sehr dünne Spitze einer Glasfaser mit einer Öffnung  $d$  kleiner als die Wellenlänge des Lichts ( $d \ll \lambda$ ) auf die Probe gelenkt. Das zu detektierende Photolumineszenzlicht wird zumeist ebenfalls durch die Glasfaser eingesammelt, ehe es in einem Spektrometer spektral zerlegt und von einem Detektor (z.B. CCD-Kamera) aufgezeichnet wird. Mit dieser Methode lässt sich eine laterale Auflösung im Bereich von  $30\ \text{nm}$  erzielen [Hes94], so dass durch geeignetes „Abtasten“ der Probenoberfläche einzelne Quantenpunkte angeregt und spektroskopisch untersucht werden können. Außerdem kann neben der spektralen Information auch eine Aussage über die räumliche Verteilung der Emission von Quantenpunkten getroffen werden, wie beispielsweise dem von *D. Bertram* experimentell nachgewiesenen „Zwei-Farben-Blinken“<sup>6</sup> eines einzelnen GaAs/(AlGa)As Quantenpunkts [Ber99], oder dem Auftreten von Multiexziton-Prozessen in ein und demselben Quantenpunkt [Dek98].

Der Nachteil dieser Technik liegt jedoch an den hohen Anforderungen bezüglich der Stabi-

<sup>5</sup>SNOM: engl.: **S**canning **N**ear **F**ield **O**ptical **M**icroscopy

<sup>6</sup>Experimentell beobachteter zeitlicher Wechsel der PL-Intensität zwischen Grundzustand und angeregtem Zustand, wobei die Gesamtintensität beider Emissionslinien konstant bleibt.



**Abb. 4.2:** Schematische Darstellung der einzelnen Arbeitsschritte zur Herstellung von einzelnen Mesenstrukturen mittels Elektronenstrahlolithographie und nasschemischen Ätzverfahren.

lität des Aufbaus und in der Reproduzierbarkeit der Messergebnisse, das heißt exakt den gleichen Quantenpunkt erneut gezielt anregen zu können. Zudem birgt die Detektionsmethode mittels Glasfaseroptik die Schwierigkeit, das resultierende PL-Signal vollständig in die Faser einzukoppeln, was im Allgemeinen zu einer deutlich verringerten Lichttransmission und damit detektierbarer Signalstärke führt.

#### 4.2.2 Lithographische Strukturierungsmethoden

Neben den oben genannten Möglichkeiten der orts aufgelösten PL-Spektroskopie gestatten die modernen Methoden der Elektronenstrahlolithographie in Verbindung mit nasschemischen Ätzverfahren eine laterale Strukturierung der Probenoberfläche. Hierbei wird die Ortsauflösung nicht durch sensible Optiken realisiert, sondern durch „mechanische Isolation“ einzelner Quantenpunkte aus dem Ensemble. Eine dieser Techniken, die als Nanoaperturtechnik bezeichnet wird [Gam96a], bedient sich einer auf die Probenoberfläche aufbrachten, lichtundurchlässigen und mittels Elektronenstrahlolithographie strukturierten Lochmaske<sup>7</sup>. Die „Fenster“ der Maske, auch Nanoaperturen genannt, besitzen eine Größe von einigen  $\mu\text{m}$  bis hin zu einigen zehn nm und ihr gegenseitiger Abstand ist deutlich größer als der Durchmesser des zur spektroskopischen Untersuchung verwendeten Laserstrahls. Hierbei können nur die wenigen unterhalb der Apertur angeregten Quantenpunkte zur Photolumineszenz beitragen, so dass mit Hilfe dieser Technik einzelne Quantenpunkte selektiert werden können. Neben diesem Ausblenden unerwünschter Quantenpunkte kann man diese auch komplett von der Probe entfernen. Dies geschieht indem man so genannte Mesen aus dem Probenmaterial ätzt. In Abb. 4.1 ist das Prinzip beider Strukturierungsmethoden schematisch gegenübergestellt. Das Spektrum einer ca. 200 nm großen Mesa zeigt deutliche scharfe Linien, die einem exzitonischen Übergang in

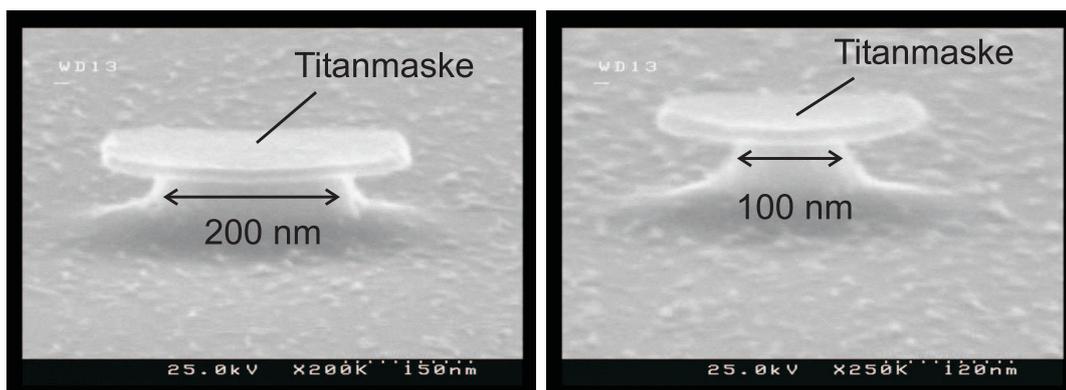
<sup>7</sup>Als Metall wird hier eine ca. 100 nm dicke Aluminiumschicht aufgedampft.

einzelnen Quantenpunkten zugeordnet werden können.

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten strukturierten Proben wurden ausschließlich mittels Mesen-Technologie präpariert. Dies bietet gegenüber der Lochmasken-Methode den Vorteil, dass lediglich die innerhalb der Mesen platzierten Quantenpunkte erhalten bleiben. Dadurch kann bei der Untersuchung dieser Strukturen eine mögliche Wechselwirkung zwischen den angeregten Quantenpunkten und den verdeckten Nachbarn (Lochmaske) ausgeschlossen werden und das beobachtete Spektrum als Signal einzelner, unabhängiger Quantenpunkte gedeutet werden<sup>8</sup>.

Im Folgenden soll das Prinzip der Mesenpräparation mit Hilfe der Elektronenstrahlolithographie und nasschemischer Ätzverfahren kurz erläutert werden. Die einzelnen Technologieschritte sind in Abb. 4.2 schematisch skizziert.

Im ersten Arbeitsschritt wird auf die von Verunreinigungen befreite Probenoberfläche eine dünne Schicht eines gegenüber Elektronenstrahlen empfindlichen Positiv-Photolacks (PMMA) gleichmäßig aufgeschleudert. Nachdem der Lack ausgebacken und damit ausgehärtet ist, erfolgt nach einem vorgegebenen Muster, das der späteren Probenstruktur entspricht, die Belichtung mit einem fokussierten Elektronenstrahl<sup>9</sup>. Durch anschließende chemische Entwicklung des Lacks mit stark verdünnter Flusssäure lassen sich die belichteten Bereiche von der Probenoberfläche ablösen und es entsteht ein negatives Abbild des gewünschten Musters. Auf diese Negative wird eine dünne, wenige Nanometer starke Metallschicht aus Titan aufgedampft. Anschließend wird der restliche unbelichtete Lack mit der darüber liegenden Titanmaske entfernt<sup>10</sup>, so dass lediglich an den Stellen der künftigen Mesen das Titan auf der Probenoberfläche verbleibt. Die Titanfelder bilden eine Schutzmaske beim nachfolgenden Ätzprozess. Bei diesem Vorgang wird die so präparierte Probe abhängig von der gewünschten Ätztiefe eine bestimmte Zeit einer  $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7:\text{HBr}:\text{H}_2$ -Lösung ausgesetzt und das Halbleitermaterial wird bis hinunter zum GaAs Substrat entfernt. Dabei kann die Ätzlösung an den mit Titan bedeckten Stellen nicht angreifen und



**Abb. 4.3:** Elektronenmikroskopische Aufnahme zweier je 200 und 100 nm großer Mesen vor dem Entfernen der vor dem Ätzprozess schützenden Titanmaske.

<sup>8</sup>siehe hierzu Kapitel 9

<sup>9</sup>Fokus des  $e^-$ -Strahls  $< 4$  nm

<sup>10</sup>Dieser Prozess wird „Lift-Off“ genannt.

das Halbleitermaterial bleibt erhalten. Auf diese Weise entstehen kleine „Türmchen“, die so genannten Mesen mit einer wohl definierten Größe von wenigen  $\mu\text{m}$  bis hin zu einigen zehn nm<sup>11</sup>.

Wurde beim Herstellungsprozess darauf geachtet, dass benachbarte Mesen einen gegenseitigen Abstand besitzen, der deutlich größer ist als der Fokusbereich des Lasers, so ermöglicht diese Methode den spektroskopischen Zugang zu einzelnen Quantenpunkten (vgl. Spektrum aus Abb. 4.1). Abschließend wird die fertig strukturierte Probe einem organischen Reinigungsprozess unterzogen, bei dem die restliche Titanmaske entfernt wird. Abb. 4.3 zeigt eine elektronenmikroskopische Aufnahme einer einzelnen, wenige nm großen Mesa.

---

<sup>11</sup>An den Stellen der Titanmaske kann die Ätzlösung nur an der Seite angreifen. Dies bedingt eine maximal erreichbare Ätztiefe und eine minimale Größe der Mesen ( $\geq 60$  nm).

# 5 Photolumineszenzsignal semimagnetischer Quantenpunkte

In diesem Abschnitt werden zunächst die zeitintegrierten PL-Spektren der in den folgenden Kapiteln dieser Arbeit behandelten II-VI Quantenpunkte unter nicht resonanten und resonanten Anregungsbedingungen näher untersucht. Weiter wird auf die für semimagnetische Quantenpunkte beobachtete  $\text{Mn}^{2+}$  Lumineszenz eingegangen und die Auswirkungen auf die Energie und Intensität der Quantenpunktlumineszenz in An- und Abwesenheit magnetischer Felder diskutiert. Hier zeigt sich insbesondere für Proben mit einer relativ hohen  $\text{Mn}^{2+}$  Dotierung ein resonanter Energietransfer zwischen den photogenerierten Ladungsträgern der Quantenpunkte und den  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen. Abschließend wird mit Hinblick auf die weiteren Arbeiten kurz auf wesentliche Eigenschaften der Polarisationsdynamik der Quantenpunktlumineszenz eingegangen sowie eine Abschätzung der durch das MBE-Wachstum realisierten Quantenpunktdichte durchgeführt.

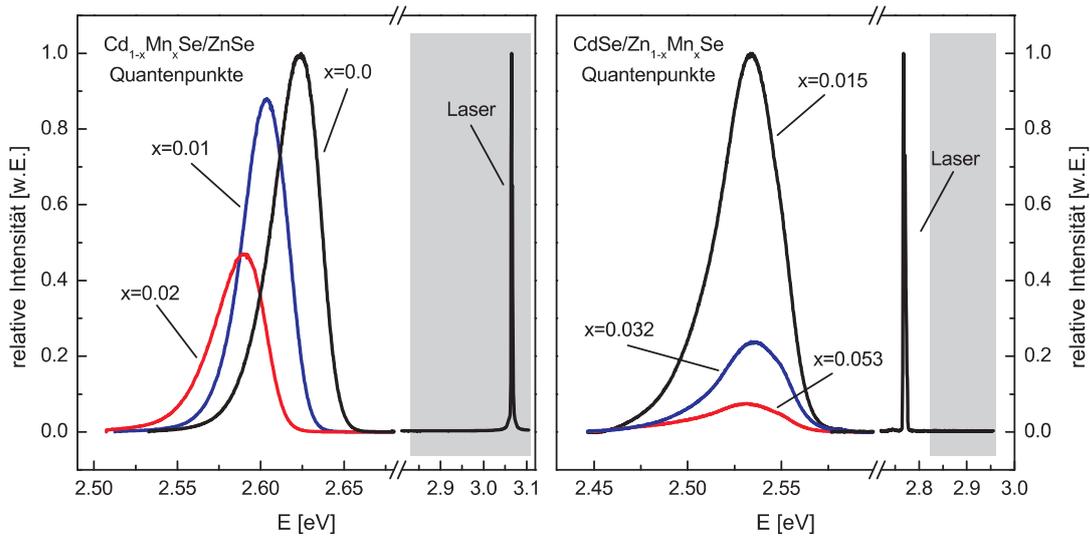
## 5.1 Photolumineszenzspektren

Zunächst soll das PL-Signal der mittels MBE-Wachstum hergestellten, semimagnetischen  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkte diskutiert werden (vgl. hierzu Kapitel 4.1, Seite 33). Hierbei wurden 1.3 Monolagen  $\text{Mn}^{2+}$  dotiertes  $\text{CdSe}$  mit Mangankonzentrationen von  $x = 0.0$ ,  $x = 0.01$  und  $x = 0.02$  in eine einige zehn Nanometer dicke  $\text{ZnSe}$  Schicht eingebettet. Ein detaillierter Schichtaufbau der Proben mit der Bezeichnung CB2210 (0 %  $\text{Mn}^{2+}$ ), CB2133 (1 %  $\text{Mn}^{2+}$ ) und CB2134 (2 %  $\text{Mn}^{2+}$ ) ist im Probenregister (Anhang B) zu finden.

Abb. 5.1 (links) zeigt die Spektren einer Serie der untersuchten  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkte mit verschiedenem  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt für Anregungsenergien oberhalb der  $\text{ZnSe}$  Bandkante<sup>1</sup> (nicht resonant,  $E_{\text{Laser}} \approx 3.06 \text{ eV} \rightarrow \lambda_{\text{Laser}} = 405 \text{ nm}$ ). Die Halbwertsbreite der gezeigten Spektren beträgt zwischen 31 meV und 36 meV und spiegelt die inhomogene Größenverteilung der Quantenpunkte wieder. Die absoluten Intensitäten der Spektren sind dabei auf die PL-Intensität der  $\text{CdSe}/\text{ZnSe}$  Probe normiert. Mit steigendem  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt weist die Emissionsenergie der Quantenpunkte eine zunehmende Rotverschiebung auf, die nach *C. S. Kim et al.* [Kim00] auf den Einbau von  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen in die II-VI Gitterstruktur zurückzuführen ist. Des Weiteren ist eine starke Abnahme der Intensität zu beobachten. So kann für Quantenpunkte mit 1 %  $\text{Mn}^{2+}$  eine relative Intensität von ca. 88 % der undotierten Probe festgestellt werden. Für Quantenpunkte mit einem  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt von 2 % beträgt dagegen das Maximum der Intensität lediglich ca.

---

<sup>1</sup> $E_{\text{ZnSe}} \approx 2.82 \text{ eV}$  [Mad96]

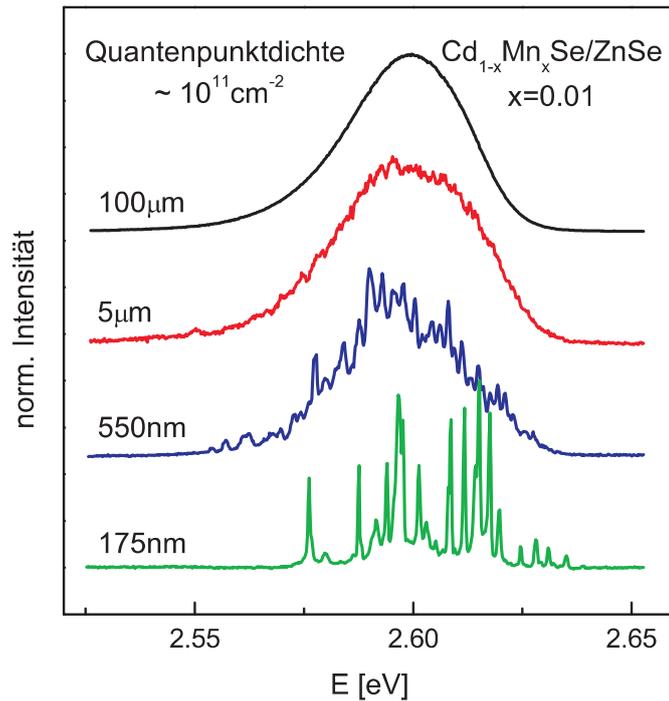


**Abb. 5.1: Links:** PL-Spektren von  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkten mit einer Schichtdicke von nominell 1.3 Monolagen und unterschiedlichen  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentrationen von  $x = 0.0$  (CB2210),  $x = 0.01$  (CB2133) und  $x = 0.02$  (CB2134) unter nicht resonanten Anregungsbedingungen ( $\lambda_{\text{Laser}} = 405 \text{ nm}$ ). **Rechts:** PL-Signal von  $\text{CdSe}/\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$  Quantenpunkten mit  $x = 0.015$  (CB3216),  $x = 0.032$  (CB3215) und  $x = 0.053$  (CB3217). Die Anregungsenergie beträgt  $E_{\text{exc}} = 2.7675 \text{ eV}$  ( $\lambda_{\text{laser}} = 448 \text{ nm}$ ). Die grau unterlegten Bereiche entsprechen Energien oberhalb der ZnSe Bandkante.

47%. Dieses Verhalten lässt sich ebenfalls für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten  $\text{CdSe}/\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$  Quantenpunktstrukturen beobachten. Die rechte Darstellung in Abb. 5.1 zeigt die Spektren von nominell 2.53 monolagigen  $\text{CdSe}$  Quantenpunkten, die in eine  $\text{ZnMnSe}$  Matrix mit unterschiedlicher  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration eingebettet sind, für eine Anregungsenergie unterhalb der ZnSe Bandkante. Hierbei sind die Intensitäten relativ zur Probe mit 1.5% (Probenname: CB3216)  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt normiert. Mit steigendem  $\text{Mn}^{2+}$  Anteil in der ZnSe Barriere zeigt sich eine drastische Abnahme der Intensität auf ca. 24% für 3.2% (CB3215) und ca. 7% für 5.3%  $\text{Mn}^{2+}$  (CB3217).

## 5.2 Bestimmung der Quantenpunktdichte

Für die spektroskopische Untersuchung der epitaktisch hergestellten Proben ist die Flächendichte und damit die Anzahl an Quantenpunkten pro  $\text{cm}^2$  von großer Bedeutung. Typischerweise lassen sich mit MBE-Wachstum Quantenpunktdichten im Bereich von  $10^{10} \text{ cm}^{-2}$  bis  $10^{12} \text{ cm}^{-2}$  realisieren. Eine Möglichkeit die Flächendichte dieser nulldimensionalen Strukturen zu bestimmen, besteht in elektronenmikroskopischen Aufnahmen der Probenoberfläche. Diese Methode birgt jedoch den Nachteil, dass man den Wachstumsprozess zunächst unterbrechen muss und die Quantenpunkte nicht mit einer abschließenden Deckschicht überwachen kann. Das nachträgliche Überwachen der Quan-



**Abb. 5.2:** PL-Signal von  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkten mit  $x = 0.01$  (Probe CB2133-3). Die untersuchten Mesen besitzen Kantenlängen von  $a = 100 \mu\text{m}$ ,  $a = 5 \mu\text{m}$ ,  $a = 550 \text{ nm}$  und  $a = 175 \text{ nm}$ . Die Flächendichte der Quantenpunkte kann zu  $\rho_{QP} \approx 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  abgeschätzt werden (Anregung mit:  $\lambda_{\text{Laser}} = 405 \text{ nm}$ ).

tenpunkte<sup>2</sup> führt zur Durchmischung zwischen dem Quantenpunktmaterial und dem Material der Deckschicht.

Eine zerstörungsfreie und technisch weniger anspruchsvolle Methode, um Aufschluss über die Flächendichte der gewachsenen Quantenpunkte zu erhalten, stellt die optische Spektroskopie dar. Dazu werden mittels der in Kapitel 4.2.2 gezeigten Methoden der Nanostrukturierung Mesen verschiedener Größe erzeugt, die aufgrund ihrer kleinen Abmessungen nur noch wenige Quantenpunkte enthalten.

Abb. 5.2 zeigt exemplarisch das PL-Signal einiger Mesen mit unterschiedlicher Abmessung für  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkte (Probe CB2133-3) mit  $x = 0.01$ . Mit abnehmender Mesengröße weisen die Spektren zunehmend diskrete Einzellinien auf. Die Linien lassen sich angesichts der  $\delta$ -förmigen Zustandsdichte eines einzelnen Quantenpunkts (vgl. Kapitel 2.3) Exzitonen zuschreiben [Gam96b, Lan98, Sch97, Zre94]. Dies kann als Nachweis des nulldimensionalen Charakters der untersuchten Strukturen angesehen werden. Die Quantenpunktdichte lässt sich aus den gemessenen Spektren durch einfaches Abzählen der Einzellinien und anschließender Division durch die entsprechende Mesenfläche ermitteln. Damit kann für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben die Quantenpunktdichte zu  $\rho_{QP} \approx 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  abgeschätzt werden. Daraus ergibt sich ein mittlerer Abstand zwischen den einzelnen Quantenpunkten von ca.  $\bar{d}_{QP} \approx 35 \text{ nm}$ .

<sup>2</sup>Im Fall der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Quantenpunktstrukturen besteht die Deckschicht aus einigen Nanometern ZnSe.

Typischerweise besitzen solche Quantenpunkte eine laterale Ausdehnung in der Größenordnung von 6 – 10 nm [Kü98, Ast06]. Da der Bohr-Radius<sup>3</sup>  $a_B$  der Exzitonen in CdSe beziehungsweise ZnSe deutlich kleiner ist als der mittlere Abstand  $\bar{d}_{QP}$  der Quantenpunkte, kann ein Überlapp der Wellenfunktionen von in benachbarten Quantenpunkten lokalisierten Ladungsträgern ausgeschlossen und die mittels MBE-Wachstum hergestellten Nanostrukturen können unter diesem Gesichtspunkt als unabhängige, voneinander getrennte Objekte betrachtet werden.

### 5.3 PL-Spektrum versus Anregungsenergie

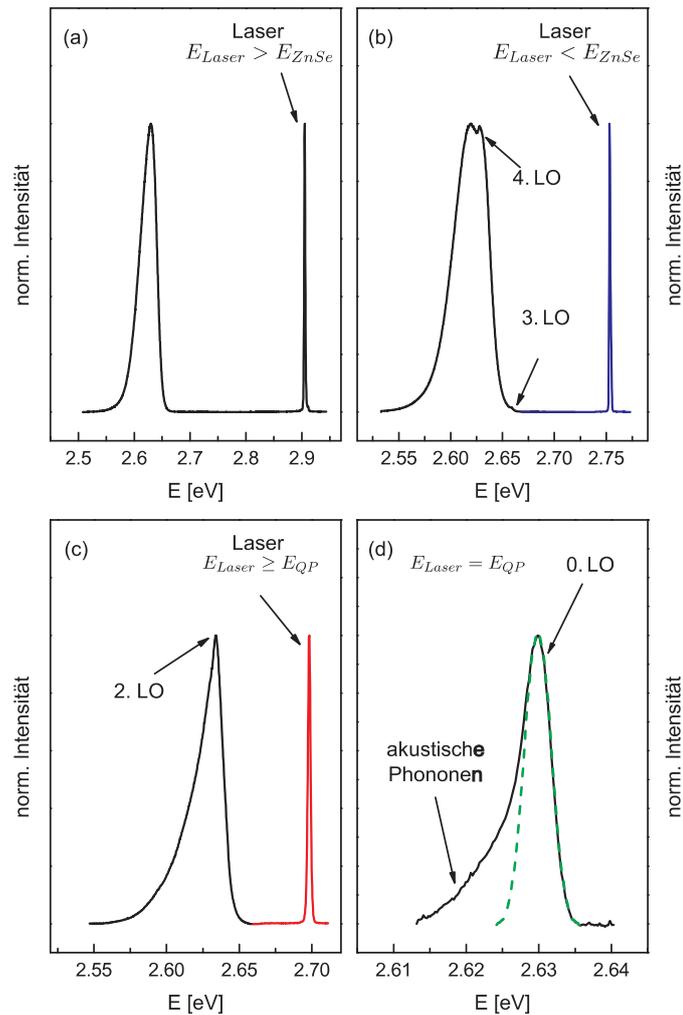
Durch schrittweise Veränderung der Energie des zur optischen Anregung verwendeten Lasers von nicht resonanten zu strikt resonanten Bedingungen lässt sich eine starke Veränderung der spektralen Form der Quantenpunktlumineszenz beobachten. Abb. 5.3 zeigt das Spektrum eines CdSe/ZnSe Quantenpunktensembles für verschiedene Wellenlängen des zur Anregung verwendeten, frequenzverdoppelten Titan-Saphir Lasersystems.

Für nicht resonante Anregung (Abb. 5.3a), also Laserenergien oberhalb der ZnSe Bandkante, ist die für Quantenpunktensembles typische inhomogene Verbreiterung des Spektrums mit einer Halbwertsbreite von ca. 34 meV zu beobachten. Verschiebt man dagegen die Energie des Lasers unter die ZnSe Bandkante, so ist mit abnehmendem Abstand der Laserenergie vom Quantenpunktgrundzustand  $E_{QP}$  eine deutliche Verformung der Spektren zu erkennen. So beträgt die Halbwertsbreite des Spektrums für eine Anregungsenergie unterhalb der ZnSe Bandkante mit  $E_{laser} \approx 2.698$  eV lediglich 20 meV. Im Fall der strikt resonanten Anregung ( $E_{laser} = E_{QP}$ ) nimmt diese auf ca. 5 meV ab. Zusätzlich zeigen die Spektren an einigen Stellen für Anregungsenergien  $E_{laser} < E_{ZnSe}$  (Abb. 5.3b) und  $E_{laser} \geq E_{QP}$  (Abb. 5.3c) so genannte LO-Phononen-Replika. Diese entstehen durch ultraschnelle Relaxation<sup>4</sup> der Ladungsträger in niederenergetische Zustände. Dabei wird die Überschussenergie in Form von LO-Phononen an das Kristallgitter abgegeben. Die Energie dieser longitudinal-optischen Gitterschwingungen ist materialspezifisch und beträgt für ZnSe  $E_{LO}^{ZnSe} \approx 31.4$  meV [Mel01]. Betrachtet man den Energieunterschied zwischen den Phononen-Replika und der Laserlinie für resonante Anregung (Abb. 5.3b), so beträgt diese Differenz in etwa das drei- bzw. vierfache der Energie eines LO-Phonons. Mit abnehmendem Energieunterschied zwischen Quantenpunktgrundzustand und Laserenergie nimmt die Zahl der zur Relaxation benötigten LO-Phononen ab. So deutet das Phononen-Replika unter quasi resonanten Bedingungen (Abb. 5.3c) auf zwei LO-Phononen hin, während unter strikt resonanter Anregungsenergie keine Phononen mehr für den Relaxationsprozess notwendig sind. Man spricht hier auch von der so genannten Null-Phonon-Linie (Abb. 5.3d). Die Linienbreite des PL-Signals entspricht im Wesentlichen des nullten LO Phonons (durch grün gestrichelte Kurve angedeutet). Die asymmetrische Form auf der niederenergetischen Seite des Spektrums wird einem phonon-assistierten Rekombinationsprozess zugeordnet. Dabei handelt es sich um eine

<sup>3</sup>Bohr-Radius in CdSe:  $a_B \approx 5.4$  nm [Fu,99, Gu,03]

Bohr-Radius ZnSe:  $a_B \approx 9.0$  nm [Lad07, Nur92]

<sup>4</sup>Relaxationszeit  $< 1$  ps

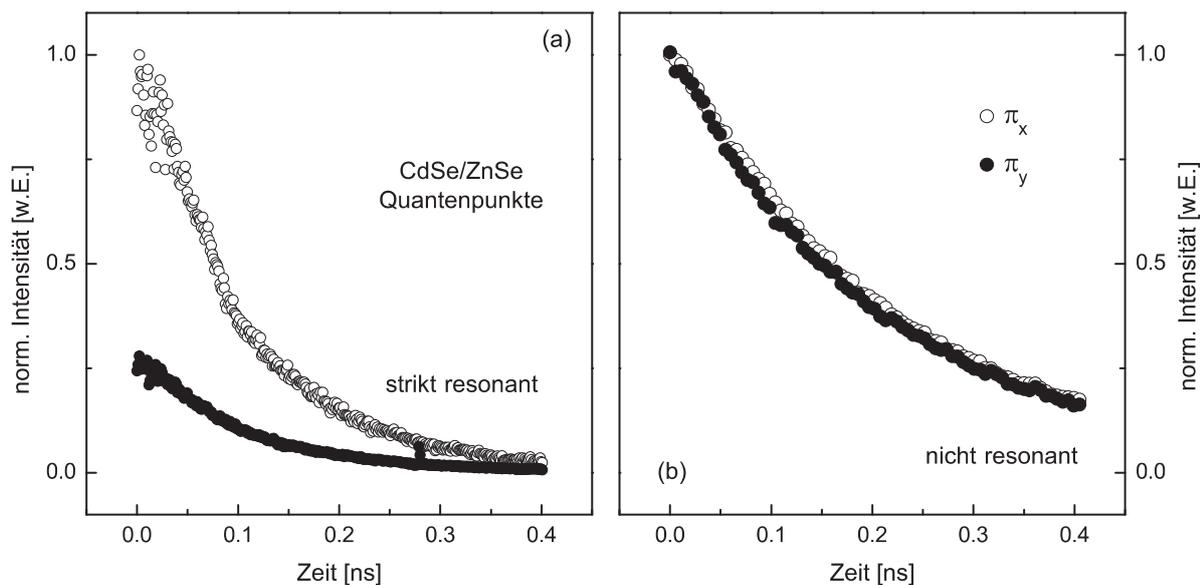


**Abb. 5.3:** PL-Signal eines CdSe/ZnSe Quantenpunktensembles für unterschiedliche Anregungsbedingungen: (a)  $E_{\text{Laser}} > E_{\text{ZnSe}}$  (nicht resonant), (b)  $E_{\text{Laser}} < E_{\text{ZnSe}}$ , (c)  $E_{\text{Laser}} \geq E_{\text{QP}}$  (quasi resonant) und (d)  $E_{\text{Laser}} = E_{\text{QP}}$  (strikt resonant). Bei den Erhöhungen des PL-Signals handelt es sich um LO-Phononen-Replika.

exzitonische Wechselwirkung mit akustischen Phononen [Bor01, Gou01, Bes01, Pal04].

Im Allgemeinen erweist sich die Untersuchung der Null-Phonon-Linie unter strikt resonanter Anregung mittels zeitintegrierter PL-Spektroskopie als relativ schwierig, da Laser und Quantenpunkt PL die gleiche Energie besitzen und die Intensität des Laserstreulichts um einige Größenordnungen dominiert. Die Verwendung einer Streak-Kamera ermöglicht die zeitliche Trennung zwischen den ultrakurzen Laserpulsen ( $\sim 1.5$  ps) und dem zeitlichen Verlauf des PL-Signals.

Abb. 5.4 zeigt den zeitlichen Verlauf der beiden linear polarisierten PL-Komponenten ( $\pi_x$ ,  $\pi_y$ ) unter strikt resonanten (Abb. 5.4a) und nicht resonanten (Abb. 5.4b) Anregungsbedingungen. Aus den beiden linear polarisierten Anteilen des PL-Signals kann der wie folgt definierte lineare Polarisationsgrad bestimmt werden:



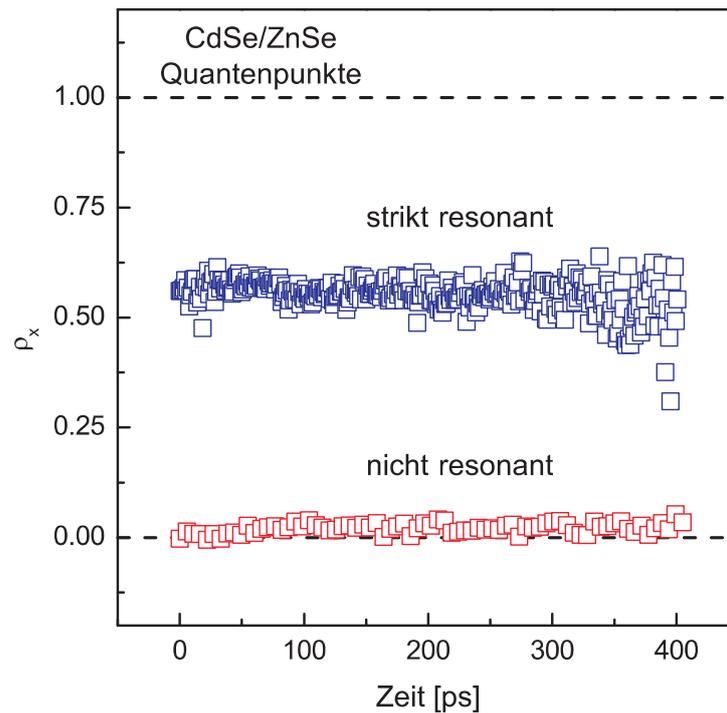
**Abb. 5.4:** Zeitlicher Verlauf des PL-Signals von CdSe/ZnSe Quantenpunkten mit linear polarisiertem Laserlicht unter (a) strikt resonanten und (b) nicht resonanten Anregungsbedingungen. Offene Symbole bezeichnen die Polarisationskomponente der PL, die der Polarisation des Lasers entspricht. Volle Symbole stehen für die dazu orthogonale Polarisationskomponente.

$$\rho_x = \frac{I_x - I_y}{I_x + I_y} \quad (5.1)$$

$I_x$  und  $I_y$  bezeichnen hier die  $\pi_x$ - beziehungsweise  $\pi_y$  polarisierte Komponente der Quantenpunkt PL.

Unter strikt resonanter Anregung zeigt sich ein nahezu zeitlich konstanter Polarisationsgrad von  $\rho_x \approx 0.6$ , während unter nicht resonanten Bedingungen lediglich eine verschwindend geringe lineare Polarisation der Quantenpunkt PL zu beobachten ist (Abb. 5.5). Dies zeigt deutlich, dass unter strikt resonanter Anregung die Polarisation der photogenerierten Ladungsträger sehr effektiv in den Quantenpunktgrundzustand übertragen wird. Die Tatsache eines zeitlich konstanten Polarisationsgrades unter strikt resonanter Anregung führt nach *Paillard et al.* [Pai01] zur Schlussfolgerung, dass sich weder der Spin der Elektronen noch der Löcher im betrachteten Zeitintervall ändern. Im Gegensatz dazu wurde für höherdimensionale Strukturen eine rasche Depolarisation des PL-Signals beobachtet. So konnte auf Basis von epitaktisch hergestellten ZnSe Quantenfilmen ein Depolarisationsverhalten der Photolumineszenz auf der Zeitskala von wenigen zehn ps gemessen werden [Oes01, Che04]. Somit stellt die im Rahmen der exzitonischen Lebensdauer zeitunabhängige Polarisation der PL ein weiteres Indiz für den nulldimensionalen Charakter der untersuchten Strukturen dar.

In detaillierten Untersuchungen der Polarisationsdynamik konnte gezeigt werden, dass der Polarisationsgrad der Photolumineszenz mit abnehmender Phononenzahl, die für den Relaxationsprozess in den Quantenpunktgrundzustand nötig ist, stetig zunimmt [Sch05].



**Abb. 5.5:** Zeitlicher Verlauf des linearen Polarisationsgrades für CdSe/ZnSe Quantenpunkte unter strikt resonanten (blaue Quadrate) und nicht resonanten Anregungsbedingungen (rote Quadrate).

Hierzu wurde die Überschussenergie der photogenerierten Ladungsträger gezielt durch Variation der Laserenergie auf ganzzahlige Vielfache der ZnSe LO-Phononenenergie eingestellt [Sch03a].

Die durchgeführten Untersuchungen verdeutlichen den Einfluss der Anregungsenergie auf den Polarisationsgrad der Photolumineszenz und damit den Transfer der Spininformation der Ladungsträger in den Quantenpunktgrundzustand (vgl. Abb. 5.5). Da im Fall der zeitintegrierten PL-Spektroskopie strikt resonante Anregungsbedingungen nur sehr schwer zu realisieren sind, werden die in den folgenden Kapiteln dieser Arbeit behandelten Untersuchungen der zirkularen beziehungsweise linearen Polarisation der Quantenpunkt PL mit Anregungsenergien oberhalb des Quantenpunktgrundzustands, jedoch unterhalb der ZnSe Barriere durchgeführt. Diese Methode stellt einen Kompromiss zwischen dem Erhalt der Spininformation und der experimentellen Durchführbarkeit dar.

## 5.4 Magnetfeldabhängigkeit der PL-Intensität

Die in Abb. 5.1b beobachtete deutliche Abnahme der PL-Intensität für semimagnetische CdSe/Zn<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se Quantenpunkte widerspricht der für CdSe/ZnSe typischen, um einige Größenordnungen stärkeren Lichtemission, da diese Quantenpunkte als sehr effiziente Relaxations- und Rekombinationszentren für Ladungsträger bekannt sind. Die Konsequenz ist demnach die Existenz eines zusätzlichen, optisch inaktiven Rekombinationska-

nals, der einen Transfers der Energie der photogenerierten Ladungsträger auf die 3d Elektronenzustände der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen erlaubt [Lee06, Lee05c, Kim00, Bha94, Naw95]. Abhängig von der  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration dominiert dieser Energieübertrag den Rekombinationsprozess, solange die Grundzustandsenergie der Quantenpunkte und damit die Energie der Ladungsträger die Übergangsenergie innerhalb des  $\text{Mn}^{2+}$  Systems übersteigt [Lee06, Oka99, Bac01, Kim00, Seu01a]. Dieser als eine Art Auger-Prozess [Naw95] bekannte Energieübertrag bewirkt eine Anregung vom  ${}^6\text{A}_1$  ( $S = 5/2$ ) Grundzustand in den angeregten Zustand  ${}^4\text{T}_{1(2)}$  ( $S = 3/2$ ) innerhalb der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen [Naw95, Oml91, Lee05c, Vin72]. Solch ein Energietransfer findet auf einer Zeitskala von wenigen ps statt [Hef86, Wu,97]. Die Überschussenergie der photogenerierten Ladungsträger wird dabei durch Phononen des Kristallgitters aufgenommen. Neben der Energieerhaltung muss auch der Drehimpuls und damit der Spin des Systems erhalten bleiben [Fal03]. Die Drehimpulserhaltung bewirkt damit eine Auswahl möglicher, erlaubter Übergänge. So muss die Summe der Ladungsträger- (z.B. Elektronen<sup>5</sup>) und  $\text{Mn}^{2+}$  Spins vor und nach dem Transferprozess übereinstimmen. Es gilt [Naw95, Lee05c]:

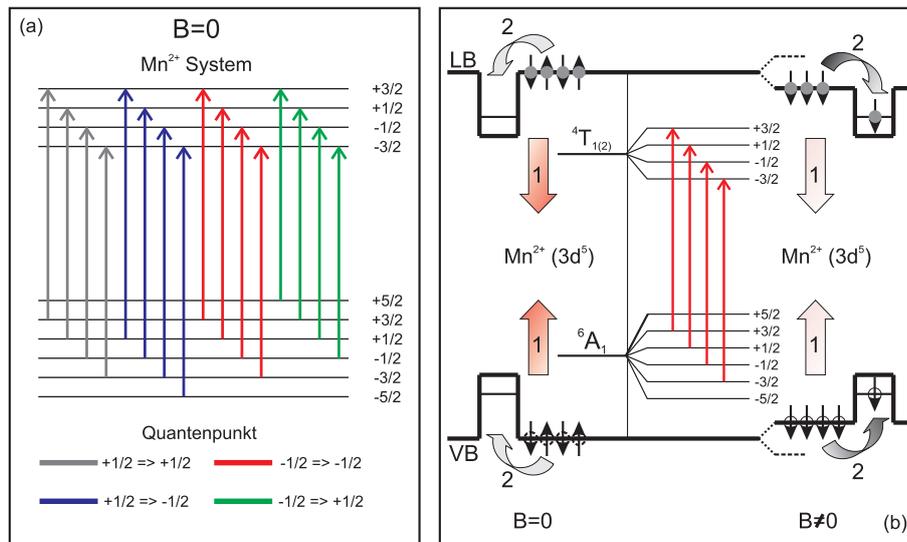
$$\mu + \sigma = \mu' + \sigma' \quad (5.2)$$

$\sigma$  und  $\sigma'$  sind die Spinorientierungen der Elektronen vor und nach dem Auger-Übergang und können den Wert  $\pm 1/2$  annehmen.  $\mu$  und  $\mu'$  repräsentieren die Spinprojektionen der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen für den  $S = 5/2$ - und  $S = 3/2$ -Zustand. Ohne externes Magnetfeld sind die Spins der Elektronen und der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen ( $S = 5/2$  Zustand) zufällig orientiert, so dass insgesamt 16 mögliche Übergänge (vgl. Abb. 5.6a) existieren [Lee05c, Kim00, Naw95]. Aus diesem Grund dominiert der nicht strahlende Auger-Transfer den Rekombinationsprozess zulasten der Quantenpunkt PL. Abb. 5.6b zeigt schematisch den Rekombinationsmechanismus in Ab- und Anwesenheit eines äußeren Magnetfelds.

Aufgrund der Abhängigkeit der Auswahlregeln von der z-Projektion der Ladungsträger- und  $\text{Mn}^{2+}$  Spins ändert sich die Wahrscheinlichkeit des Auger-Prozesses drastisch durch Anwesenheit eines in Wachstumsrichtung der Proben orientierten Magnetfelds. Sind die Quantenpunkte einem solchen Feld ausgesetzt, so unterliegen die Elektronenzustände einer für semimagnetische Halbleiter typischen relativ starken Zeeman-Aufspaltung [Bes04, Fur88, Gaj79, Pre01] und der Elektronenspin erfährt eine starke Polarisation. Im Fall vollständiger Spin-Polarisation (vgl. Abb. 5.6 für  $B \neq 0$ ) sind die meisten der ursprünglich erlaubten 16 Auger-Übergänge nach der Auswahlregel gemäß Gl. (5.2) verboten. Es verbleiben vier Anregungskanäle [Kim00, Naw95] von  ${}^6\text{A}_1 \rightarrow {}^4\text{T}_{1(2)}$  mit konstanter Spinprojektion ( $\mu = \mu'$ ) [Lee05c], da durch die Polarisation der Elektronen  $\sigma = \sigma' = \pm 1/2$  gilt (vgl. Abb. 5.6).

Mit zunehmendem Magnetfeld werden schrittweise die  $\text{Mn}^{2+}$  Spins ebenfalls polarisiert, so dass die Wahrscheinlichkeit einer Auger-Anregung proportional zu  $\exp(-g_{Mn}\mu_B B/k_B T)$  abnimmt [Naw95, Lee05c, Kim00].  $g_{Mn}$  ist der Landé-g-Faktor der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen ( $g_{Mn} \approx 2$

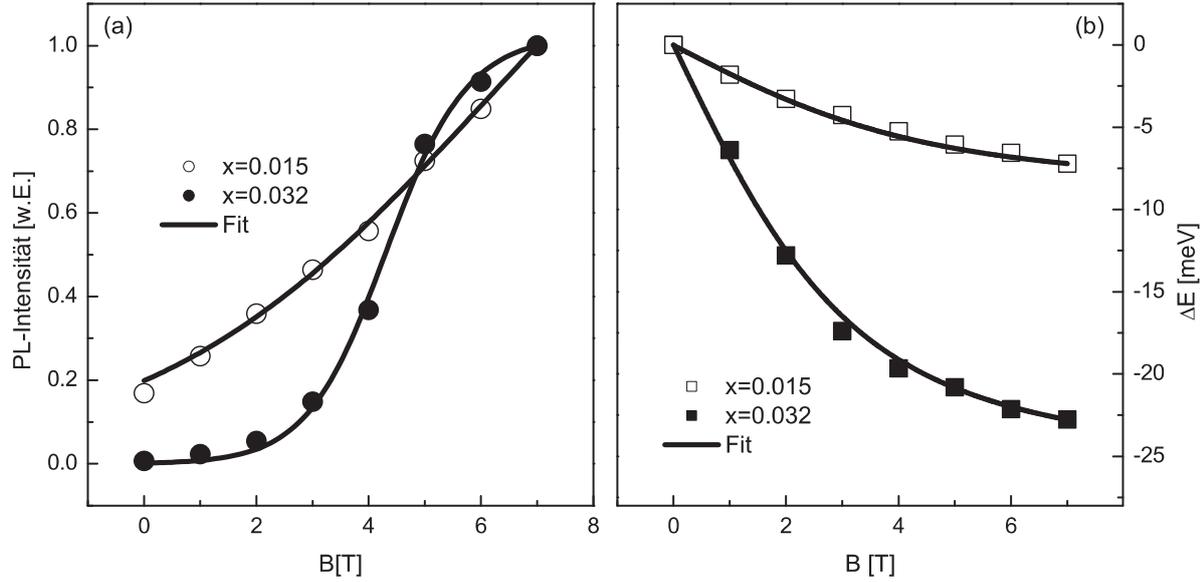
<sup>5</sup>Im Folgenden wird der Auswahlmechanismus anhand des Elektronenspins diskutiert. Analog gilt dies auch für die Löcher.



**Abb. 5.6:** (a) Mögliche Auger-Übergänge der Mn<sup>2+</sup> Ionen ohne Magnetfeld. (b) Schematische Darstellung möglicher Rekombinationsprozesse (vgl. [Lee05c]). Für  $B = 0$  dominiert der Auger-Prozess (Kanal 1) mit einer stark unterdrückten Quantenpunktlumineszenz (Kanal 2). Für  $B \neq 0$  wird die Anregung des Mn<sup>2+</sup> Systems geblockt und die Quantenpunkt-PL dominiert. Die erlaubten Übergänge der Mn<sup>2+</sup> Ionen sind in der Mitte dargestellt ( $B \neq 0$ ).

[Lég05]),  $\mu_B$  das Bohrsche Magneton und  $k_B$  die Boltzmann-Konstante.  $B$  und  $T$  stehen für die magnetische Feldstärke und die Umgebungstemperatur.

Abb. 5.7a zeigt den Intensitätsverlauf der  $\sigma^+$ -Komponente der Quantenpunktlumineszenz für nominelle Mn<sup>2+</sup> Konzentrationen von 1.5% und 3.2%. Die Intensitäten wurden dabei auf den Wert für  $B = 7$  T normiert. Für beide Proben lässt sich ein kontinuierlicher Anstieg des PL-Signals beobachten. Während dagegen für Quantenpunkte mit  $x = 0.015$  lediglich ein Anstieg der PL-Intensität von etwas mehr als einem Faktor fünf auftritt, weist die Probe mit  $x = 0.032$  eine Zunahme der PL-Intensität im externen Magnetfeld über mehrere Größenordnungen auf. Die Ursache hierfür ist in der unterschiedlich starken Mn<sup>2+</sup> Dotierung zu suchen. Es ist bekannt, dass semimagnetische Strukturen durch den Einbau von Mn<sup>2+</sup> deutlich modifizierte optische Eigenschaften aufweisen, wie zum Beispiel ein starke magnetfeldabhängige Energieverschiebung durch die Bildung magnetischer Polaronen und einer durch die sp-d Austauschwechselwirkung [Fur88, Goe88] zwischen Exzitonen und Mn<sup>2+</sup> System bedingten Zeeman-Aufspaltung ([Mer99, Bes04]. Abb. 5.7b zeigt die Energieverschiebung der CdSe/Zn<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se Proben in Abhängigkeit der magnetischen Feldstärke bezogen auf die spektrale Position bei  $B = 0$ . Das PL-Signal der Quantenpunkte mit einem Mn<sup>2+</sup> Gehalt von 1.5% weist hierbei mit steigendem Magnetfeld eine deutlich geringere spektrale Verschiebung auf als Proben mit höherem Mn<sup>2+</sup> Anteil im Barrierenmaterial. Für  $x = 0.015$  wird für  $B = 7$  T eine Rotverschiebung des PL-Spektrums um ca. 7.2 meV beobachtet und für  $x = 0.032$  eine Verschiebung um ca. 22 meV. Die durchgezogenen Linien in Abb. 5.7b repräsentieren Fitfunktionen nach Gl. (2.2).



**Abb. 5.7:** Intensität der  $\sigma^+$  polarisierten PL-Komponente (a) und spektrale Verschiebung  $\Delta E$  (b) des PL-Signals in Abhängigkeit der magnetischen Feldstärke für  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentrationen von  $x = 0.015$  und  $x = 0.032$ .

Basierend auf den Arbeiten von *Nawrocki et al.* [Naw95] kann die Magnetfeldabhängigkeit der Photolumineszenz folgendermaßen beschrieben werden [Kim00]:

$$I(B) = \frac{\text{const}}{1 + (\tau_r/\tau_{T0}) p(B)}, \quad (5.3)$$

mit  $\text{const} = I_0 \left(1 + 5/24 \frac{\tau_r}{\tau_{T0}}\right)$ .  $\tau_r$  ist die Exzitonlebensdauer und  $\tau_{T0}$  die Lebensdauer nicht strahlender Übergänge<sup>6</sup>. Die Abhängigkeit vom äußeren Magnetfeld ist durch den Term  $p(B)$  gegeben:

$$p(B) = \sum_{\sigma=\pm 1/2} \sum_{\sigma'=\pm 1/2} \sum_{\mu=-5/2}^{+5/2} p_e^\sigma(B) p_h^{\sigma'}(B) p_{Mn}^\mu(B) C_{\mu\mu'}^{\sigma\sigma'} \quad (5.4)$$

$p_h$ ,  $p_e$  und  $p_{Mn}$  sind die Besetzungswahrscheinlichkeiten des Valenz- und Leitungsbands sowie des  $\text{Mn}^{2+}$  ( $3d^5$ ) Grundzustands. Die entsprechende Spinprojektion ist durch die oberen Indizes ( $\sigma$ ,  $\sigma'$  und  $\mu$ ) gegeben.  $C_{\mu\mu'}^{\sigma\sigma'}$  bezeichnet die Clebsch-Gordan Koeffizienten. Die Besetzungswahrscheinlichkeiten aus Gl. (5.4) lassen sich unter Berücksichtigung der thermischen Verteilung als

$$p_e(B) = \frac{1}{Z_e} \cdot \exp[-x N_0 \alpha \langle S_z \rangle \sigma / k_B T] \quad \text{und}$$

<sup>6</sup>Neben dem Energietransfer auf das  $\text{Mn}^{2+}$  System existieren weitere nicht strahlende Rekombinationsmöglichkeiten. Jedoch dominiert der Auger-Transfer auf das  $\text{Mn}^{2+}$  System, so dass diese vernachlässigt werden können [Wu,97].

$$p_h(B) = \frac{1}{Z_h} \cdot \exp[-xN_0\beta\langle S_z \rangle \sigma' / k_B T] \quad (5.5)$$

ausdrücken, mit  $Z_{e(h)} = \sum_{-1/2}^{+1/2} p_{e(h)}^\sigma$  und  $\alpha, \beta$  als s-d beziehungsweise p-d Austauschkonstanten.  $xN_0$  ist die Anzahl der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen pro Volumeneinheit und  $\langle S_z \rangle$  repräsentiert die mittlere Komponente der  $\text{Mn}^{2+}$  Spins in Magnetfeldrichtung. Hierbei gilt für die Magnetfeldabhängigkeit von  $\langle S_z \rangle$  [Gaj79]:

$$\langle S_z \rangle = S_{eff} \mathcal{B}_{5/2} \left( \frac{\frac{5}{2} g_{Mn} \mu_B B}{k_B T_{eff}} \right), \quad (5.6)$$

mit  $S_{eff}$  und  $T_{eff}$  als phänomenologischen Parametern der antiferromagnetischen Wechselwirkung benachbarter  $\text{Mn}^{2+}$  Spins [Gaj79, Sch06a].  $\mathcal{B}_{5/2}(\chi)$  ist die Brillouin-Funktion des  $\text{Mn}^{2+}$  Spin-5/2 Systems (vgl. Kapitel 2.2, Gl. (2.1) & Gl. (2.2)).

Die Besetzungswahrscheinlichkeit  $p_{Mn}^\mu$  des  $\mu$ -ten Feinstrukturniveaus eines isolierten  $\text{Mn}^{2+}$  Ions lässt sich durch folgenden Ausdruck beschreiben:

$$p_{Mn}^\mu = \frac{1}{Z_{Mn}} \cdot \exp[-\nu\mu], \quad (5.7)$$

mit  $Z_{Mn} = \frac{\sinh[3\nu]}{\sinh[\nu/2]}$  und  $\nu = g_{Mn} \mu_B B / k_B T$  [Kim00]. Jedoch muss hier der Tatsache Rechnung getragen werden, dass aufgrund der statistischen Verteilung der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen, diese nicht als vollständig isolierte Störstellen des Gitters betrachtet werden können. In semimagnetischen Strukturen kommt es mit steigender  $\text{Mn}^{2+}$  zur so genannten Cluster-Bildung der  $\text{Mn}^{2+}$  Spins [Oss93, Fur88]. Insbesondere die dadurch auftretenden antiferromagnetisch gekoppelten  $\text{Mn}^{2+}$ -Paare sind bei niedrigen Feldstärken magnetisch inaktiv und können deshalb nicht zur resultierenden Magnetisierung beitragen. Dieser Anteil des Mangans ist somit auch nicht an einen gemäß den Auswahlregeln in Gl. (5.2) möglichen Auger-Übergang beteiligt [Kim00].

*Nawrocki et al.* [Naw95] berücksichtigten die Mn-Mn Wechselwirkung durch einen phänomenologischen Ansatz basierend auf einer Wahrscheinlichkeit  $p_0$  für die statistische Besetzung der verschiedenen Spinzustände eines  $\text{Mn}^{2+}$  Ions:

$$p_{Mn}^\mu = \frac{1}{6} p_0 + \frac{1 - p_0}{Z_{Mn}} \cdot e^{-\nu\mu} \quad (5.8)$$

In erster Näherung ist es jedoch ausreichend nur den konstanten Anteil von Gl. (5.8) zu berücksichtigen. Damit lässt sich unter Berücksichtigung von Gl. (5.5) folgender Ausdruck für  $p(B)$  ableiten:

$$p(B) \approx p_0 \cdot \exp \left[ -xN_0 S_{eff} (\alpha\sigma + \beta\sigma') \mathcal{B}_{5/2} \left( \frac{\frac{5}{2} g_{Mn} \mu_B B}{k_B T_{eff}} \right) / k_B T \right] \quad (5.9)$$

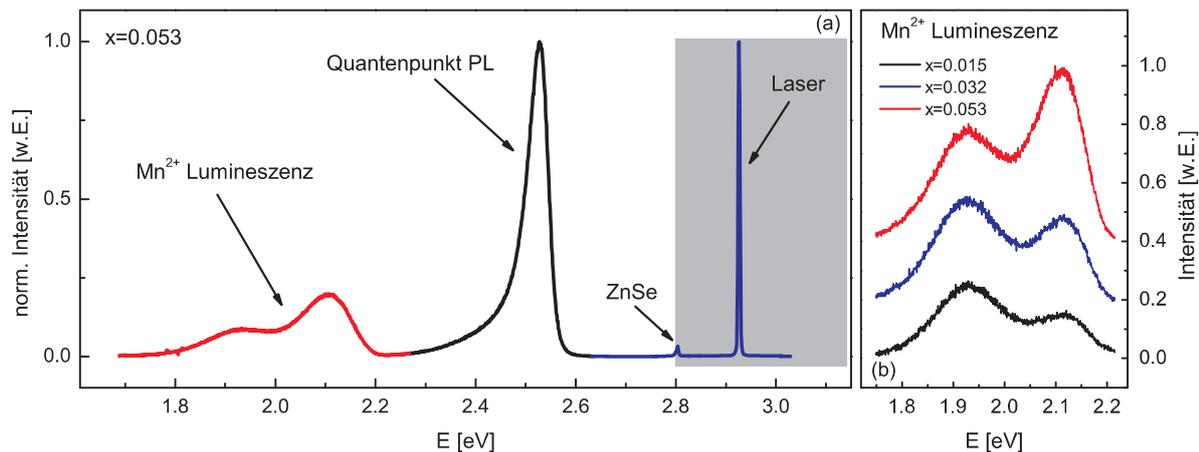
Der nach Gl. (5.3) bestimmte theoretische Verlauf der Quantenpunktlumineszenz ist in Abb. 5.7 als durchgezogene Linie eingezeichnet.

## 5.5 $\text{Mn}^{2+}$ Lumineszenz

Die durch den Auger-Prozess auf den  ${}^4T_{1(2)}$  Zustand der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen übertragenen Energie wird in Form von Lumineszenz ( ${}^4T_{1(2)} \rightarrow {}^6A_1$ ) freigesetzt, so dass die Elektronen des  $\text{Mn}^{2+}$  Systems wieder den Grundzustand  ${}^6A_1$  besetzen können. Die Zeitskala dieses an die optischen Auswahlregeln gebundenen Übergangs wird in der Literatur kontrovers diskutiert und zwischen einigen ms für Volumenkristalle und einigen ns für Strukturen mit reduzierter Dimensionalität [Bha94, Bus76, Gum81, Che05] angegeben. Abb. 5.8a zeigt das Spektrum der Probe mit 5.3%  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt. Neben der Quantenpunkt PL sind weitere Signale im Spektrum zu erkennen. Für Anregungsenergien oberhalb der ZnSe Bandkante zeigt sich bei 2.82 eV deutlich die Lumineszenz des ZnSe und für den Bereich zwischen 1.8 eV und 2.2 eV ein relativ breites Signal, das der Lumineszenz der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen zugeordnet werden kann.

In Abb. 5.8b ist das Lumineszenzsignal der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen für verschiedene Mangankonzentrationen gezeigt. Die Anregungsenergie des hierzu verwendeten gepulsten Titan-Saphir Lasers liegt oberhalb der ZnSe Bandkante. Die Spektren zeigen neben den aus der Literatur bekannten Werten für den internen  $\text{Mn}^{2+}$  Übergang [Bac01, Seu01a, Kim00, Bha94] bei  $E_{S2} \approx 2.12$  eV ein weiteres Maximum S1 bei ca.  $E_{S1} \approx 1.93$  eV. Die große Halbwertsbreite des beobachteten  $\text{Mn}^{2+}$  Signals resultiert aus einer inhomogenen Verbreiterung der diskreten Zustände der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen durch den Einbau in die ZnSe Matrix.

Vergleichbare Beobachtungen wurden an kolloidalen CdS Nanopartikeln durchgeführt. Diese zeigen ein ähnliches Emissionsspektrum wie in Abb. 5.8b. Hierbei wird das niederenergetische Maximum der  $\text{Mn}^{2+}$  Lumineszenz als Signal der an Oberflächendefekten lokalisierten  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen interpretiert [Zho02].



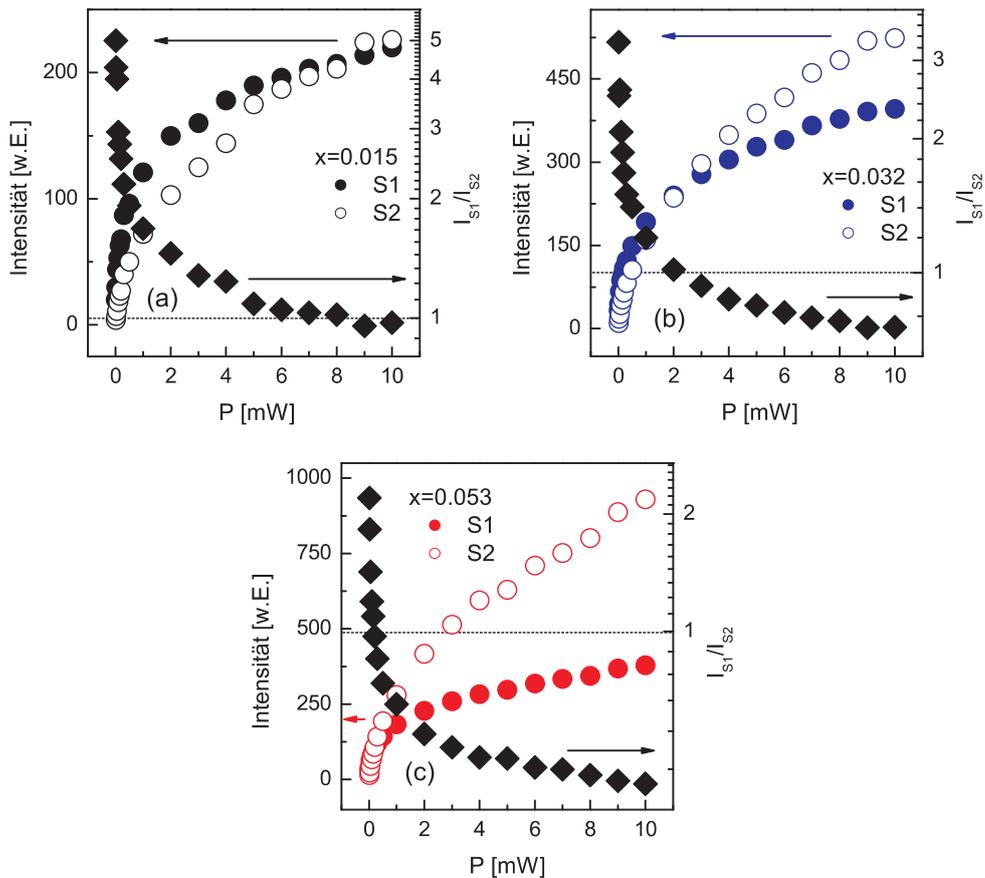
**Abb. 5.8:** (a) PL-Spektrum für 5.3%  $\text{Mn}^{2+}$ . Neben der Quantenpunkt PL (2.53 eV) ist für eine Laserenergie oberhalb der ZnSe Bandkante das PL-Signal der ZnSe (2.82 eV) und der  $\text{Mn}^{2+}$  Lumineszenz zu erkennen. Der grau hinterlegte Teil des Spektrums markiert den Bereich oberhalb der ZnSe Bandkante. (b) Spektrum der  $\text{Mn}^{2+}$  Lumineszenz für  $x = 0.015$ ,  $x = 0.032$  und  $x = 0.053$ . Das  $\text{Mn}^{2+}$  Signal zeigt spektrale Maxima bei 1.93 eV und 2.12 eV.

Ein analoges Verhalten ist auch für epitaktisch hergestellte semimagnetische Nanostrukturen denkbar. Aufgrund der Unterschiede zwischen den Gitterkonstanten von ZnSe und CdSe treten beim Übergang vom CdSe zur Zn(Mn)Se Barriere starke Gitterverspannungen auf, die zu Stapelfehlern des Kristalls führen können. Es liegt die Vermutung nahe, dass die an diesen Stellen des Kristalls lokalisierten  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen durch die veränderte Gitterumgebung eine reduzierte Lumineszenzenergie aufweisen, als der  ${}^4T_{1(2)} \rightarrow {}^6A_1$  Übergang des regulär in den Kristall eingebauten  $\text{Mn}^{2+}$ . Als Ursache hierfür kommt eine von *Bhargava* und *Gallagher* [Bha94, Bha96] vorgeschlagene Hybridisierung der s-p Zustände des Barrierenmaterials und der d Zustände der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen in Frage. Nach *Bol et al.* sollte dies eine Energieverschiebung des Emissionsbandes der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen nach sich ziehen [Bol98]. Ein Indiz dafür ist dem von der  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration abhängigen Intensitätsverhältnis der Maxima S1 und S2 zu entnehmen. Beim Betrachten von Abb. 5.8b fällt auf, dass sich die relative Intensität beider Maxima mit zunehmender  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration verschiebt. So überwiegt bei einem  $\text{Mn}^{2+}$  Anteil von 1.5 % und 3.2 % der energetisch niedrigere Teil der  $\text{Mn}^{2+}$  Lumineszenz, während für eine Dotierung von 5.3 % der Bereich bei ca. 2.12 eV das Spektrum dominiert. Dies deutet an, dass mit steigendem  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt der ZnSe Barriere eine Sättigung der an Defektstellen lokalisierten  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen auftritt. Analog dazu sollte die Intensität der beiden Maxima eine deutliche Abhängigkeit von der Leistungsdichte des anregenden Laserlichts und damit indirekt von der Anzahl der generierten Ladungsträger aufweisen.

Abb. 5.9 zeigt den Intensitätsverlauf der beiden Maxima S1 und S2 in Abhängigkeit der Anregungsleistung des verwendeten Lasersystems<sup>7</sup>. Mit steigender  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration ist für den Intensitätsverlauf von S1 eine zunehmende Sättigung zu beobachten, während die Intensität von S2 mit steigender Anregungsleistung weiter zunimmt. Die rechte Skalierung von Abb. 5.9 zeigt für alle drei untersuchten Proben das Verhältnis  $I_{S1}/I_{S2}$  der beiden Maxima. Mit zunehmender  $\text{Mn}^{2+}$  Dotierung verschiebt sich der Umkehrpunkt beider Intensitäten ( $I_{S1}/I_{S2} = 1$ ) zu niedrigeren Anregungsleistungen. Während für eine  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration von  $x = 0.015$  (Abb. 5.9a) die Umkehr des Intensitätenverhältnisses erst für eine Laserleistung von ca. 8 mW zu beobachten ist, weisen die beiden Maxima für  $x = 0.032$  (Abb. 5.9b) und  $x = 0.053$  (Abb. 5.9c) bereits für  $P = 2$  mW beziehungsweise  $P = 0.15$  mW die gleiche Intensität auf.

Diese Beobachtung kann folgendermaßen verstanden werden: Während des Wachstumsprozesses besetzen die  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen zunächst bevorzugt die Defektstellen des Kristallgitters, bevor eine reguläre Lokalisierung innerhalb der ZnSe Matrix erfolgt. Da die Proben mit identischen Wachstumsparametern hergestellt wurden und lediglich die  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration variiert, sollte die Zahl der Defektstellen in allen Proben von vergleichbarer Größenordnung sein. Mit zunehmendem  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt verschiebt sich damit das Verhältnis zwischen den an Defektstellen lokalisierten und den in die ZnSe Matrix eingebetteten  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen zugunsten der regulär im Barrierenmaterial eingebauten Dotierung. Damit ergibt sich folglich mit steigendem  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt ein Übergewicht des Maximums bei  $E_{S2} = 2.12$  eV des Lumineszenzspektrums (vgl. Abb. 5.8b) beziehungsweise eine Verschiebung des Intensitätsgleichgewichts zwischen  $S_1$  und  $S_2$  hin zu geringeren Anregungs-

<sup>7</sup>Laser: Ti:Sa,  $E_{exc} = 2.931$  eV

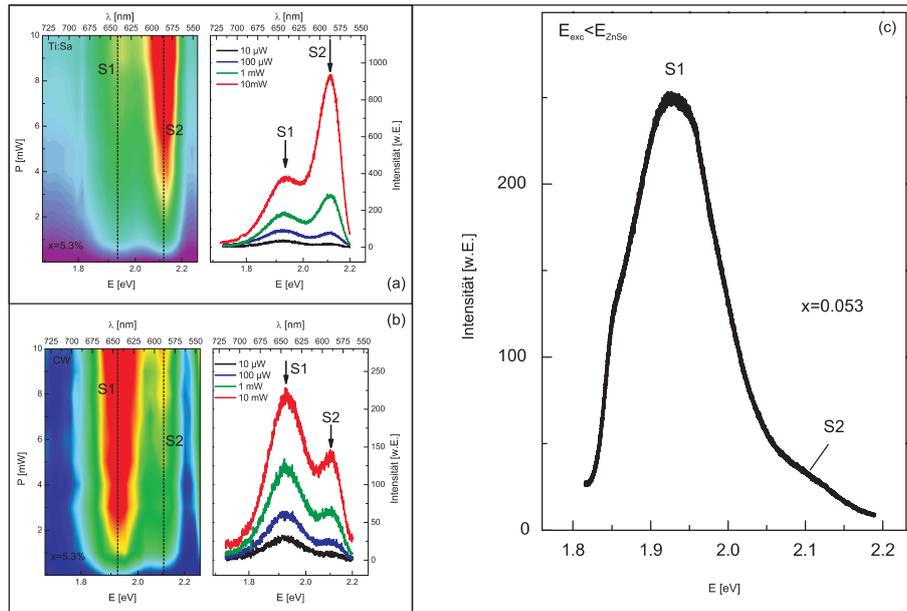


**Abb. 5.9:**  $Mn^{2+}$  Lumineszenz der beiden Intensitätsmaxima S1 und S2 in Abhängigkeit der Anregungsleistung (Ti:Sa;  $E_{exc} = 2.931$  eV) für (a)  $x = 0.015$ , (b)  $x = 0.032$  und (c)  $x = 0.053$ . Zudem ist das Verhältnis der beiden Maxima  $I_{S1}/I_{S2}$  dargestellt (rechte Achse).

leistungen (siehe Abb. 5.9).

Weiter zeigt die  $Mn^{2+}$  Lumineszenz eine starke Abhängigkeit von der zur Anregung verwendeten Laserenergie sowie der Pulsart. In Abb. 5.10 ist jeweils der Verlauf der  $Mn^{2+}$  Lumineszenz für verschiedene Anregungsleistungen unter gepulster (Abb. 5.10a) und cw-Anregung (Abb. 5.10b) dargestellt. Die Photonenenergie beider Lasersysteme liegt dabei oberhalb der ZnSe Bandkante. Die Verwendung des frequenzverdoppelten Lichts des gepulsten Titan-Saphir Lasers bewirkt dabei eine deutlich höhere effektive Leistungsdichte als ein cw-Lasersystem. Dadurch tritt bereits für relativ geringe mittlere Anregungsleistungen eine Sättigung des Signals der an den Defektstellen lokalisierten  $Mn^{2+}$  Ionen auf und das Maximum S2 der im Barrierenmaterial eingebetteten  $Mn^{2+}$  Ionen dominiert das Lumineszenzspektrum. Im Fall der cw-Anregung reicht die vergleichbare mittlere Anregungsleistung und damit die optisch erzeugte Ladungsträgerdichte nicht aus, um eine Sättigung von S1 zu bewirken und damit eine Umkehr des Intensitätsverhältnisses  $I_{S1}/I_{S2}$  zu erzwingen.

Weiter ist das Spektrum der  $Mn^{2+}$  Lumineszenz in Abb. 5.10c unter Verwendung einer cw

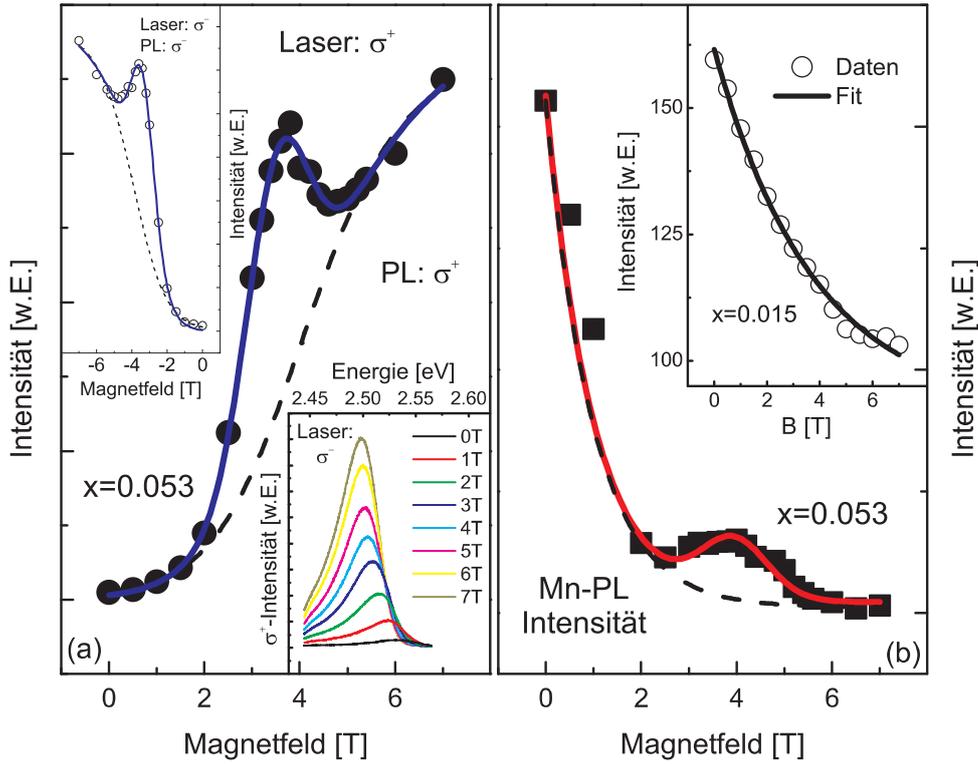


**Abb. 5.10:**  $Mn^{2+}$  Lumineszenz ( $x = 0.053$ ) für Anregungsenergie oberhalb ( $E_{exc} = 2.931$  eV) der ZnSe Bandkante mit (a) gepulstem und (b) cw-Laserlicht. (c) cw-Anregung unterhalb ( $E_{exc} = 2.749$  eV) der ZnSe Bandkante.

GaN Laserdiode mit einer Photonenenergie unterhalb der ZnSe Bandkante gezeigt ( $E_{exc} = 2.749$  eV). Im Gegensatz zu nicht resonanten Anregungsbedingungen kann in diesem Fall lediglich das Maximum S1 beobachtet werden, während S2 kaum zum Spektrum der  $Mn^{2+}$  Lumineszenz beiträgt. Dieses Ergebnis bestätigt den bereits diskutierten Verdacht der an Defektstellen lokalisierten  $Mn^{2+}$  Ionen beim Übergang des Kristallgitters vom CdSe zum ZnSe Barrierenmaterial. Während für Laserenergien oberhalb der ZnSe Bandkante ( $E_{exc} > E_{ZnSe}$ ) die optisch erzeugten Ladungsträger innerhalb des Barrierenmaterials erzeugt werden und somit bei der Relaxation in die CdSe Quantenpunkte sehr effektiv ihre Energie per Auger-Prozess an die im ZnSe lokalisierten  $Mn^{2+}$  Ionen übertragen können, erfolgt die Anregung von Ladungsträgern für Energien unterhalb der ZnSe Bandkante lediglich innerhalb der CdSe Quantenpunkte. Diese können demnach ihre Energie nur noch an  $Mn^{2+}$  Ionen übertragen, die in unmittelbarer Umgebung der Quantenpunkte lokalisiert sind, also an den Defektstellen an der Oberfläche der Quantenpunkte.

## 5.6 Resonanter Energietransfer zwischen Ladungsträgern und $Mn^{2+}$ Ionen

Die Unterdrückung der Auger-Rekombination in semimagnetischen Quantenpunkten führt mit zunehmendem Magnetfeld zu einem deutlichen Anstieg der PL-Intensität. In Kapitel 5.4 wurde dies für Proben mit einem nominellen  $Mn^{2+}$  Gehalt von  $x = 0.015$  und  $x = 0.032$  gezeigt. Ein wesentlich interessanteres Resultat zeigt jedoch die spektroskopische Untersuchung der Probe mit einer  $Mn^{2+}$  Dotierung von  $x = 0.053$  der ZnSe Barriere.



**Abb. 5.11:** (a) Intensität der zirkular polarisierten PL-Komponenten von CdSe/Zn<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se Quantenpunkten mit  $x = 0.053$  unter zirkular polarisierter Anregung und  $E_{exc} < E_{ZnSe}$  als Funktion der magnetischen Feldstärke. (b) Verlauf der Mn<sup>2+</sup> Lumineszenz für  $x = 0.015$  (oben rechts) und  $x = 0.053$ . Der theoretisch zu erwartende Verlauf ist jeweils als gestrichelte Linie eingezeichnet.

In Abb. 5.11a ist die Intensität der  $\sigma^+$  polarisierten Komponente des PL-Signals in Abhängigkeit des externen Magnetfeldes dargestellt. Das zur optischen Anregung verwendete Laserlicht besitzt dabei eine Energie unterhalb der ZnSe Bandkante, so dass nach Kapitel 5.5 der Auger-Transfer zwischen den photogenerierten Ladungsträgern der Quantenpunkte und den 3d Elektronen der bevorzugt an Defektstellen des Kristallgitters lokalisierten Mn<sup>2+</sup> Ionen auftritt. Im Gegensatz zu Quantenpunkten mit geringerer Mn<sup>2+</sup> Konzentration ( $x = 0.015$  und  $x = 0.032$ ) weist die  $\sigma^+$  Komponente des PL-Signals für  $\sigma^+$  polarisierte Laserphotonen mit steigendem Magnetfeld eine deutlich erhöhte Intensität zwischen  $B = 2.5$  T und  $B = 5$  T auf. Der nach Gl. (5.3) zu erwartende theoretische Verlauf ist als gestrichelte, schwarze Linie eingezeichnet. Für  $\sigma^-$  polarisiertes Laserlicht kann dagegen ein kontinuierlicher Anstieg des PL-Signals mit zunehmender magnetischer Feldstärke beobachtet werden (vgl. Abb. 5.11a unten). Jedoch ist die absolute Intensität der PL-Spektren im Vergleich zu  $\sigma^+$  polarisierter Anregung deutlich reduziert. Analoge Beobachtungen liefert die entgegengesetzte Orientierung des Magnetfeldes. Durch die erzwungene Umkehr der Zeeman-Aufspaltung tritt in diesem Fall die Überhöhung für die  $\sigma^-$  Komponente des PL-Signals unter entsprechender Anregungspolarisation auf (vgl. Abb. 5.11a oben).

Dem gegenübergestellt ist in Abb. 5.11b der Intensitätsverlauf der  $\text{Mn}^{2+}$  Lumineszenz gezeigt. Da der Energieübertrag auf das  $\text{Mn}^{2+}$  System den in Gl. (5.2) gezeigten Auswahlregeln unterworfen ist, weist auch die Intensität des  ${}^4T_{1(2)} \rightarrow {}^6A_1$  Übergangs der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen eine starke Magnetfeldabhängigkeit auf. Mit steigender Feldstärke werden letztlich auch die Elektronen der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen polarisiert, so dass die Wahrscheinlichkeit für einen möglichen Auger-Transfer exponentiell mit  $e^{-\frac{g_{\text{Mn}}\mu_B B}{k_B T}}$  abnimmt [Lee05c]. Im Gegensatz zu Quantenpunkten mit  $x = 0.015$ , die eine exponentielle Intensitätsabnahme der  $\text{Mn}^{2+}$  Lumineszenz aufweisen (Abb. 5.11b oben), zeigt die  $\text{Mn}^{2+}$  Intensität der Probe mit  $x = 0.053$  analog zur Quantenpunkt PL eine deutliche Überhöhung zwischen  $B = 2.5$  T und  $B = 5$  T. Der theoretisch zu erwartende Verlauf ist wiederum als gestrichelte, schwarze Linie in Abb. 5.11b eingezeichnet.

Eine Erklärung für dieses Phänomen liefert Abb. 5.12. Hier ist die Energieverschiebung des  $\sigma^+$  polarisierten Eigenzustandes im externen Magnetfeld für links und rechts zirkular polarisierte Anregung gezeigt (Abb. 5.12a). Nach *Gaj et al.* und Gl. (2.2) ist für die Zeeman-Verschiebung der  $\sigma^+$  Komponente ein Brillouin-artiger Verlauf zu erwarten [Gaj79]:

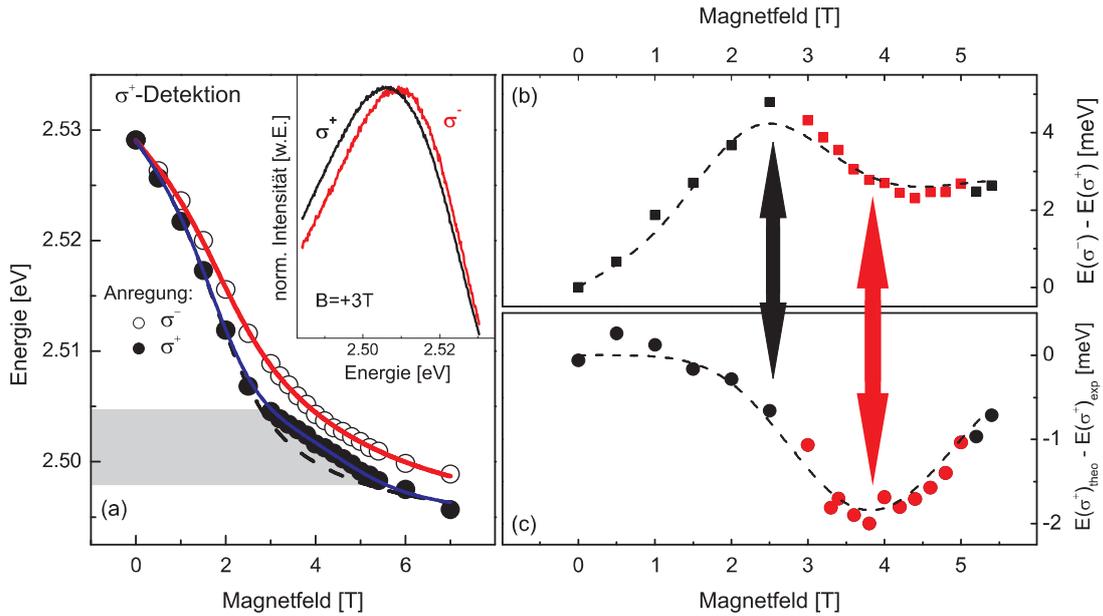
$$E = E_0 - \frac{1}{2}(\alpha - \beta)N_0x\gamma S_{eff}\mathcal{B}_{5/2} \left( \frac{5g_{\text{Mn}}\mu_B B}{2k_B T_{eff}} \right) \quad (5.10)$$

$N_0\alpha = 260$  meV und  $N_0\beta = -1310$  meV sind die s-d beziehungsweise s-p Austauschenergien von Elektronen und Löchern mit den  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen.  $x$  beschreibt die  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration der Probe und  $\gamma < 1$  berücksichtigt die Tatsache, dass nur ein Teil der Ladungsträgerwellenfunktion mit den  $\text{Mn}^{2+}$  Spins überlappt und damit in Wechselwirkung treten kann.  $S_{eff} < 5/2$  und  $T_{eff}$  sind phänomenologische Parameter, die einer antiferromagnetischen Wechselwirkung benachbarter  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen Rechnung tragen. Aus der Literatur ergibt sich für  $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$  mit  $x = 0.053$  in etwa  $S_{eff} \approx 1.6$  [Twa84, Fat94].

Wie Abb. 5.12 zeigt, weist der Energieverlauf der  $\sigma^+$  polarisierten PL-Komponente für beide Anregungspolarisationen keinen reinen Brillouin-artigen Verlauf auf. Aufgrund der zunehmenden Polarisation der  $\text{Mn}^{2+}$  3d Elektronen mit steigender Feldstärke, kann die effektive Temperatur des  $\text{Mn}^{2+}$  Systems  $T_{eff}$  nicht mehr als konstant angenommen werden. Um nun die experimentellen Daten mit Hilfe von Gl. (5.10) beschreiben zu können, wird für  $T_{eff}$  in Anlehnung an die Untersuchungen von *König et al.* an  $(\text{Cd},\text{Mn})\text{Te}/(\text{Cd},\text{Mg})\text{Te}$  Quantenfilmen folgender phänomenologischer Ansatz gewählt [Kön00]:

$$T_{eff} = T_a + T_b \exp[-\nu B^2] \quad (5.11)$$

Gl. (5.11) besagt, dass für hinreichend große  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentrationen die effektive Temperatur nicht mehr als konstant angenommen werden kann. Die Ausrichtung der  $\text{Mn}^{2+}$  Spins im externen Magnetfeld führt zu einer höheren Ordnung des Systems. Dieser Tatsache wird phänomenologisch durch eine Abnahme der effektiven Temperatur  $T_{eff}$  mit steigendem Magnetfeld Rechnung getragen. Der Term  $T_a + T_b$  beschreibt dabei die effektive Temperatur für  $B = 0$ .



**Abb. 5.12:** (a) Zeeman-Verschiebung des  $\sigma^+$  Zustands für  $\sigma^-$  (○) und  $\sigma^+$  polarisiertes Laserlicht (●). (b) Energiedifferenz des PL-Signals zwischen  $\sigma^-$  und  $\sigma^+$  Anregung sowie (c) Differenz zwischen theoretisch und experimentell bestimmter spektraler Position des PL-Spektrums unter  $\sigma^+$  polarisierter Anregung in Abhängigkeit des externen Magnetfelds.

Für Anregung mit  $\sigma^-$  polarisiertem Laserlicht ist der aus Gl. (5.10) und Gl. (5.11) resultierende theoretische Verlauf der Zeeman-Verschiebung als rote Kurve in Abb. 5.12a eingezeichnet. Die effektive Temperatur beträgt dabei für  $B = 4$  T in etwa  $T_{eff} \approx 6.3$  K. Im Gegensatz dazu ist die Rotverschiebung des PL-Signals für  $\sigma^+$  Anregung stärker ausgeprägt. Abb. 5.12b zeigt die Energiedifferenz zwischen den beiden zirkularen Polarisationszuständen des Laserlichts. Für ca.  $B \approx 2.5$  T erreicht der Unterschied der spektralen Positionen beider Spektren (vgl. Abb. 5.12a oben) mit 4 meV seinen maximalen Wert und nimmt für Feldstärken bis  $B \approx 5$  T auf ungefähr 2.2 meV ab. Damit liegt der Rückgang der Energieverschiebung zwischen  $\sigma^+$  und  $\sigma^-$  polarisierter Anregung im selben Magnetfeldbereich, wie die in Abb. 5.11 gezeigte Überhöhung des PL und  $\text{Mn}^{2+}$  Lumineszenzsignals. Mit den unter  $\sigma^-$  polarisierter Anregung gewonnenen Parametern kann der nach Gl. (5.10) und Gl. (5.11) zu erwartende theoretische Verlauf der Zeeman-Verschiebung für  $\sigma^+$  polarisierte Anregung ermittelt werden (gestrichelte Kurve in Abb. 5.12a). Für die effektive Temperatur der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen erhält man dabei mit  $T_{eff} \approx 4.2$  K einen um etwa 2 K geringeren Wert. Weiter zeigt Abb. 5.12c die Differenz zwischen der theoretisch ermittelten und der experimentell bestimmten spektralen Position des PL-Signals. Hierbei nimmt der Unterschied zwischen Experiment und Theorie ab ca. 2.5 T (schwarzer Pfeil) zu und erreicht seinen maximalen Wert bei ungefähr  $B \approx 3.8$  T (roter Pfeil) und entspricht damit ebenfalls der magnetischen Feldstärke, für die eine Überhöhung der Quantenpunkt PL beziehungsweise der  $\text{Mn}^{2+}$  Lumineszenz festgestellt wurde.

Die im Vergleich zu  $\sigma^+$  Anregung erhöhte effektive Temperatur unter Verwendung von  $\sigma^-$  polarisiertem Laserlicht lässt auf einen optischen Heizmechanismus des  $\text{Mn}^{2+}$  Systems

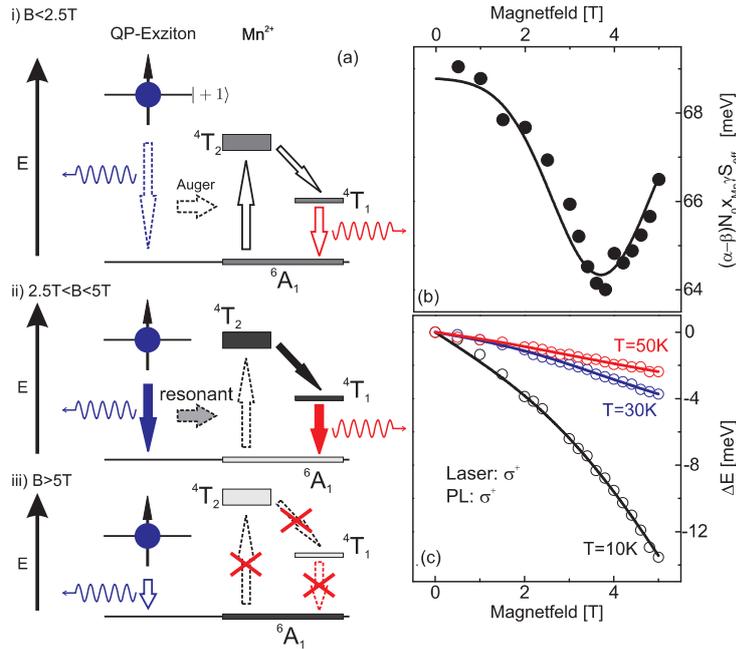
schließen. Da für beide Laserpolarisationen jeweils der  $\sigma^+$  polarisierte Zustand detektiert wird, unterliegen die mit  $\sigma^-$  polarisiertem Licht erzeugten Ladungsträger einem „Spin-Flip“-Prozess vom höheren in das energetisch niedrigere Zeeman-Niveau. Die dadurch freigesetzte Überschussenergie der Ladungsträger wird durch Phononen des Kristallgitters auf das  $\text{Mn}^{2+}$  System übertragen. Ein solcher Prozess ist als indirekter Heizmechanismus bekannt [Kel01, Kne06b, Kne06a] und resultiert in einer reduzierten Austauschwechselwirkung zwischen den 3d Elektronen der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen und den photogenerierten Ladungsträgern<sup>8</sup>. Im Experiment äußert sich dies durch eine Abnahme der Zeeman-Aufspaltung im Vergleich zur Anregung mit  $\sigma^+$  polarisiertem Licht.

Damit kann zwar die Energiedifferenz der Zeeman-Aufspaltung zwischen  $\sigma^+$  und  $\sigma^-$  polarisierter Anregung verstanden werden, jedoch erklärt der dafür verantwortliche optische Heizvorgang des  $\text{Mn}^{2+}$  Systems nicht die Abnahme der Zeeman-Verschiebung für  $\sigma^+$  Anregung und Magnetfeldwerten im Bereich zwischen 2.5 T und 5 T.

Die Ursache hierfür ist in einem resonanten Energietransfer zwischen den Quantenpunkten und dem  $\text{Mn}^{2+}$  System zu suchen. So konnten *Agekyan et al.* im  $\text{ZnMnSe}$  Volumenkristall die Übergangsenergie der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen vom  ${}^6A_1$  Grundzustand in den angeregten Zustand  ${}^4T_2$  zu etwa 2.52 eV bestimmen [Age02]. Durch den Einbau des  $\text{Mn}^{2+}$  in niederdimensionale Strukturen und der bevorzugten Lokalisierung der Ionen an den Defektstellen des Kristalls ist analog zur beobachteten  $\text{Mn}^{2+}$  Lumineszenz eine Reduktion der Übergangsenergie für die  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen im Bereich zwischen 2.505 eV und 2.497 eV (vgl. grau hinterlegter Bereich in Abb. 5.12) denkbar. Für Feldstärken zwischen 2.5 T und 5 T entspricht damit die Energie der Quantenpunkt PL genau der Übergangsenergie zwischen dem Grundzustand  ${}^6A_1$  und dem angeregten Zustand  ${}^4T_2$  der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen. Da in diesem Fall die Ladungsträger keine Überschussenergie bezüglich des internen  $\text{Mn}^{2+}$  Übergangs besitzen, kann ein effektiver Energietransfer zwischen Quantenpunkten und  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen ohne Beteiligung von Phononen des Kristallgitters auftreten. Durch diesen Transfer wird die Austauschwechselwirkung von Elektronen und Löchern der Quantenpunkte mit dem Grundzustand der 3d Elektronen der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen unterdrückt und die Zeeman-Verschiebung des Exzitonzustands in diesem Bereich reduziert. Gl. (5.10) berücksichtigt die sp-d Austauschwechselwirkung zwischen den Exzitonen und dem  $\text{Mn}^{2+}$  System durch den Term  $(\alpha - \beta)N_0x\gamma S_{eff}$ , der im Fall eines resonanten Energietransfers zwischen beiden Systemen nicht mehr als konstant angenommen werden kann. In Abb. 5.13b sind die aus den experimentellen Daten ermittelten Werte der Austauschkonstante in Abhängigkeit der Magnetfeldstärke gezeigt. In Übereinstimmung mit den oben angeführten Überlegungen kann für eine Feldstärke von  $B \approx 3.8$  T ein minimaler Wert der Austauschkonstanten von  $(\alpha - \beta)N_0x\gamma S_{eff} \approx 64$  meV ermittelt werden. Die Abhängigkeit des Austauschterms zwischen Exziton und  $\text{Mn}^{2+}$  System von der magnetischen Feldstärke folgt in erster Näherung einer Gauß-Funktion. In Abb. 5.12a repräsentiert die blaue Kurve die theoretische Beschreibung der Daten durch eine entsprechende Modifikation des Austauschterms in Gl. (5.10).

In Abb. 5.13a ist der Mechanismus eines solch resonanten Energietransfers dargestellt, der auch eine Erklärung für die Überhöhung der  $\text{Mn}^{2+}$  Lumineszenz und der PL-Intensität

<sup>8</sup>vgl. Kapitel 6.4 und Kapitel 6.5.



**Abb. 5.13:** (a) Schematische Darstellung des Auger-Transfers vom Quantenpunkt auf das Mn<sup>2+</sup> System für i)  $B < 2.5$  T, ii)  $2.5 \text{ T} < B < 5$  T und iii)  $B > 5$  T. (b) sp-d Austauschterm und (c) Energieverschiebung für  $T = 10$  K,  $T = 30$  K und  $T = 50$  K als Funktion der magnetischen Feldstärke.

der Quantenpunkte liefert. Im Fall eines resonanten Energietransfers können die Mn<sup>2+</sup> Ionen effektiv in den angeregten <sup>4</sup>T<sub>2</sub> Zustand versetzt werden. Durch Relaxation in das energetisch tiefere <sup>4</sup>T<sub>1</sub> Niveau können die Mn<sup>2+</sup> Ionen anschließend durch Emission eines Photons in den Grundzustand zurückkehren. Demnach führt der resonante Energietransfer trotz eines mit steigendem Magnetfeld zunehmend unterdrückten Auger-Übergangs zu einer deutlich stärkeren Besetzung der angeregten Mn<sup>2+</sup> Zustände und damit zu einer Überhöhung der in Abb. 5.11b gezeigten Mn<sup>2+</sup> Lumineszenz.

*Bol et al* zeigen, dass die Mn<sup>2+</sup> Lumineszenz im Gegensatz zur Quantenpunkt PL unabhängig von der Größe der untersuchten Nanostrukturen eine Lebensdauer von ca. 1.9 ms aufweist [Bol98, Zho02]. Zwar beobachteten einige Forschergruppen auch einen Abfall der Mn<sup>2+</sup> Intensität im Bereich einiger ns (ZnS:Mn) [Soo96] beziehungsweise  $\mu$ s (ZnTe:Mn) [Ito97], doch stellte sich im Fall der untersuchten ZnS:Mn Nanokristalle bald heraus, dass diese wie zunächst vermutet auf Quantisierungseffekten beruhende dramatische Verkürzung der Rekombinationszeit tatsächlich auf eine durch Kristalldefekte verursachte spektrale Überlagerung der ZnS und Mn<sup>2+</sup> Lumineszenz zurückzuführen ist. In allen bisher durchgeführten Untersuchungen an Mn<sup>2+</sup> dotierten Systemen überragt die dem Mangan zugeschriebene Rekombinationszeit stets die für Quantenpunkte typischen Werte im Bereich einiger zehn bis hundert ps um mehrere Größenordnungen. Damit wird durch Anregung mit einem cw-Lasersystem im Fall eines resonanten Energietransfers zwischen Quantenpunkt und Mangan eine Entvölkerung des Grundzustandes und eine Besetzungsinversion der Mn<sup>2+</sup> Niveaus möglich. Ist der <sup>4</sup>T<sub>1,(2)</sub> Zustand gesättigt, stehen

die Elektron-Loch Paare gänzlich für die Quantenpunktlumineszenz zur Verfügung. Die PL-Intensität der Quantenpunkte weist damit unter zeitintegrierter Detektion parallel zur  $\text{Mn}^{2+}$  Lumineszenz eine deutliche Zunahme der PL-Intensität auf. Beim nicht resonanten, Auger-artigen Energieübertrag auf das  $\text{Mn}^{2+}$  System wird die Überschussenergie der Ladungsträger von Phononen aufgenommen. Dieser Prozess ist irreversibel. Im resonanten Fall dagegen werden zur Energieerhaltung keine Phononen benötigt, so dass der direkte Energietransfer einen prinzipiell reversiblen Prozess darstellt.

Für Magnetfelder  $B > 5$  T liegt die Quantenpunktenergie unterhalb der Übergangsenergie der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen. In diesem Fall können die Ladungsträger ihre Energie lediglich vor der Relaxation in den Quantenpunktgrundzustand an das  $\text{Mn}^{2+}$  System abgeben und folglich tritt keine Besetzungsinversion der  $\text{Mn}^{2+}$  Zustände auf. Damit unterliegt die  $\text{Mn}^{2+}$  Lumineszenz wie auch die PL-Intensität der Quantenpunkte einem exponentiellen Abfall beziehungsweise dem in Gl. (5.3) angegebenen theoretischen Verlauf.

Eine theoretische Beschreibung des Intensitätsverlaufs kann phänomenologisch durch eine Gauß-Verteilung des resonanten Energietransfers beschrieben werden.

$$\Delta I = I_{res} \cdot \exp \left[ -\kappa (B - B_{res})^2 \right] \quad (5.12)$$

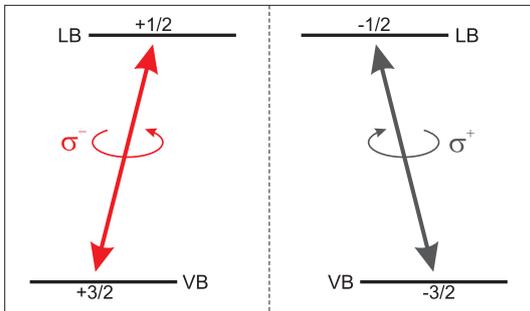
$I_{res}$  stellt dabei die absolute Änderung der Intensität des PL-Signals beziehungsweise der  $\text{Mn}^{2+}$  Lumineszenz im resonanten Fall  $B_{res} \approx 3.8$  T dar. Die entsprechenden Kurven sind in Abb. 5.11a und Abb. 5.11b als durchgezogene Linien dargestellt.

Abschließend sei noch angemerkt, dass der resonante Energietransfer zwischen den Quantenpunkten und dem  $\text{Mn}^{2+}$  System nur für tiefe Temperaturen ( $T \approx 2$  K) beobachtet werden kann. In Abb. 5.13c ist die Zeeman-Verschiebung für unterschiedliche Umgebungstemperaturen dargestellt. Für  $T = 10$  K beträgt die maximale Energieverschiebung der Quantenpunkt PL lediglich ca. 16 meV und für  $T = 50$  K sogar weniger als 3 meV. Damit reicht die Zeeman-Verschiebung nicht aus, um einen resonanten Energietransfer zwischen den Quantenpunkten und dem  $\text{Mn}^{2+}$  System zu erreichen. Die Ursache stellt dabei ein mit steigender Umgebungstemperatur einsetzender Heizmechanismus dar, der die sp-d Austauschwechselwirkung reduziert. Auch sollte erwähnt werden, dass ein resonanter Energietransfer für  $B > 0$  nur unter  $\sigma^+$  polarisierter Anregung beobachtet werden kann. Dieses Resultat unterstreicht damit die Abhängigkeit des Auger-Übergangs von der Spinprojektion der photogenerierten Ladungsträger (vgl Kapitel 5.4).



## 6 Faraday-Geometrie: Eigenschaften der QP-Polarisation

Die Polarisation des von niederdimensionalen Halbleiterstrukturen emittierten Photolumineszenzsignals genießt in der modernen Festkörperphysik ein besonderes Interesse, da sie Rückschlüsse auf die Orientierung und Dynamik der Spins der photogenerierten Ladungsträger zulässt [Pfa05]. Abb. 6.1 verdeutlicht dies. Optische Untersuchungen bezüglich des Zusammenhangs zwischen dem Spin der Ladungsträger und der Polarisation des emittierten PL-Signals bildeten somit grundlegende Experimente an Halbleiternanostrukturen im Hinblick auf optische Kontrolle der Ladungsträgerspins [Dzh98, Dzh97b, Pet05, Kop05, Sal01]. Quantenpunktstrukturen gelten hierbei als ein vielversprechender Ansatz für neue, spinbasierende Bauelemente [Los98], wie zum Beispiel kontrollierbare Spinfilter [Efr01] oder so genannte „Spinspeicher“, deren Zustand optisch [Kro04, Ebb05] oder elektrisch ausgelesen werden kann [Wol01].



**Abb. 6.1:** Zirkular polarisierte Übergänge zwischen dem Leitungsband ( $S_z = \pm\frac{1}{2}$ ) und dem Valenzband (Schwerlochband:  $S_z = \pm\frac{3}{2}$ ).

In diesem Kapitel wird deshalb der zirkulare Polarisationsgrad des Photolumineszenzsignals semimagnetischer Quantenpunkte untersucht. Es zeigt sich eine starke Abhängigkeit des Polarisationsgrades vom äußeren Magnetfeld in Faraday-Geometrie wie auch vom Polarisationszustand des zur Anregung verwendeten Laserlichts. Weiter gibt eine solche zeitintegrierte Messung Aufschluss über den effektiven Landé-g-Faktor der Quantenpunkte und der Spinrelaxationszeiten in Abhängigkeit der  $Mn^{2+}$  Dotierung. Dabei bedient man sich einer Messmethode, die bereits von *Mackowski et al.* angewandt wurde, um mit Hilfe eines 3-Niveau Modells Informationen über die Relaxation der Ladungsträgerspins in CdTe Quantenpunkten aus den zeitintegrierten Messdaten zu extrahieren [Mac03]. Weiter wird eine Möglichkeit aufgezeigt, den Polarisationsgrad und damit die Besetzung der Spinzustände sowie den effektiven g-Faktor durch optische Methoden zu verändern.

Die verwendete Versuchsanordnung entspricht im Wesentlichen dem in Kapitel 3.1.1, Abb. 3.1 vorgestelltem Aufbau. Für zirkular polarisierte Anhebungsbedingungen wurde zusätzlich zu den sich im Strahlengang des Lasers befindlichen Polarisatoren (Glan-Laser-Prisma,  $\lambda/2$ -Rhombus) noch ein  $\lambda/4$ -Rhombus eingesetzt. Die zirkulare Polarisation des

Die verwendete Versuchsanordnung entspricht im Wesentlichen dem in Kapitel 3.1.1, Abb. 3.1 vorgestelltem Aufbau. Für zirkular polarisierte Anhebungsbedingungen wurde zusätzlich zu den sich im Strahlengang des Lasers befindlichen Polarisatoren (Glan-Laser-Prisma,  $\lambda/2$ -Rhombus) noch ein  $\lambda/4$ -Rhombus eingesetzt. Die zirkulare Polarisation des

Lasers kann dann durch Verkippen des  $\lambda/2$ -Rhombus exakt eingestellt werden. Zur Erzeugung von Ladungsträgern dient das gepulste und frequenzverdoppelte Titan-Saphir Lasersystem, dessen Wellenlänge so gewählt wird, dass die Anregungsenergie unterhalb der ZnSe Bandlücke der untersuchten Proben liegt. Diese befinden sich im Helium-Bad des in Abb. 3.1 skizzierten Magnetkryostaten bei einer Temperatur von ca. 1.5 K. Zur Detektion der zirkularen Polarisationskomponenten des PL-Signals kommt die in Abb. 3.2 gezeigte Methode der photoelastischen Modulation zum Einsatz.

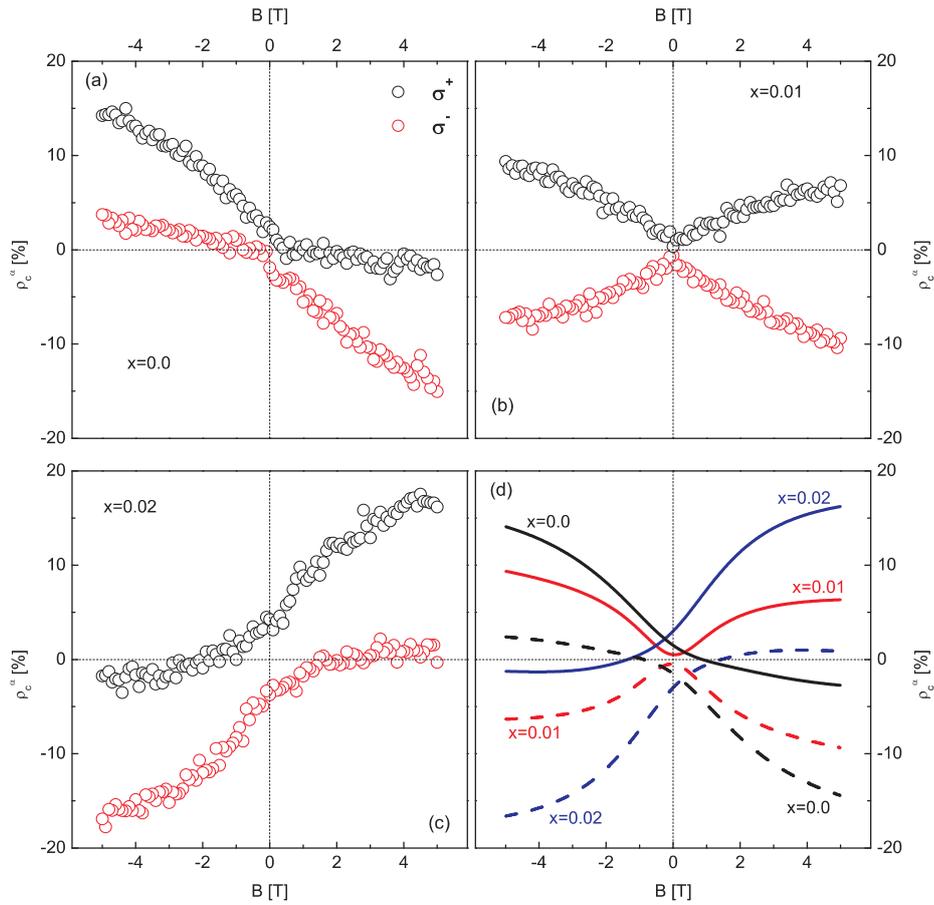
## 6.1 PL-Polarisation von $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$ Quantenpunkten

Um den zirkularen Polarisationsgrad der Quantenpunkt PL zu bestimmen, müssen die Intensitäten des links- wie auch des rechts-zirkular polarisierten Anteils des PL-Signals ermittelt werden. Die Messungen werden dabei jeweils am Maximum des PL-Spektrums bei  $B = 0$  mit geringer spektraler Auflösung durchgeführt. Für Quantenpunktensemble mit einer geringen  $\text{Mn}^{2+}$  Dotierung und den damit moderaten g-Faktoren kann somit die spektrale Verschiebung des Signals aufgrund der Zeeman-Aufspaltung vernachlässigt werden. Der zirkulare Polarisationsgrad des PL-Signals ist wie folgt definiert:

$$\rho_c^\alpha(B) = \frac{I_+^\alpha(B) - I_-^\alpha(B)}{I_+^\alpha(B) + I_-^\alpha(B)}, \text{ mit: } \alpha = \sigma^+ \text{ oder } \sigma^- \quad (6.1)$$

$\alpha$  bezeichnet dabei die Polarisation des Lasers ( $\sigma^+$  oder  $\sigma^-$ ).  $I_+^\alpha(B)$  und  $I_-^\alpha(B)$  steht für die Intensitäten der  $\sigma^+$  beziehungsweise  $\sigma^-$  polarisierten Komponenten des PL-Spektrums in Abhängigkeit der Anregungspolarisation und des externen Magnetfeldes. Abb. 6.2 zeigt die experimentell beobachteten Polarisationskurven  $\rho_c^\alpha(B)$  für drei verschiedene Quantenpunktproben mit unterschiedlichem  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt in Abhängigkeit der magnetischen Feldstärke und der Anregungspolarisation.

Für Quantenpunkte ohne  $\text{Mn}^{2+}$  Dotierung (Abb. 6.2a) zeigen die Polarisationskurven  $\rho_c^{\sigma^+}(B)$  und  $\rho_c^{\sigma^-}(B)$  ein deutliches punktsymmetrisches Verhalten bezüglich  $\rho_c^{\sigma^\pm}(0) = 0$ . Ausgehend von  $B = -5$  T wird für  $\sigma^+$  polarisierte Anregung ein zirkularer Polarisationsgrad von  $\rho_c^{\sigma^+} \approx 15\%$  beobachtet, der durch Reduktion der magnetischen Feldstärke kontinuierlich abnimmt. Ohne ein äußeres Magnetfeld weisen die Quantenpunkte eine im Rahmen der Messgenauigkeit sehr geringe Polarisation der Photolumineszenz in der Größenordnung von etwa 1 % auf. Weiter zeigt die Änderung der Magnetfeldorientierung einen deutlichen Einfluss auf das Verhalten des Polarisationsgrades. Zum einen ändert die Polarisation ihr Vorzeichen und stellt damit einen ersten Hinweis auf eine Umbesetzung der zum PL-Signal beitragenden Spinzustände dar. Weiter steigt der Wert des Polarisationsgrades im Gegensatz zu  $B < 0$  vergleichsweise schwach an, so dass für  $B = +5$  T lediglich ein Wert von  $\rho_c^{\sigma^+}(B) \approx -4\%$  erreicht wird. Aufgrund der bereits erwähnten Punktsymmetrie beim Wechsel der Anregungspolarisation lässt sich ein analoger Verlauf für  $\sigma^-$  polarisiertes Laserlicht beobachten, jedoch mit umgekehrten Vorzeichen des Polarisationsgrades unter entgegengesetzter Orientierung der magnetischen Feldstärke.



**Abb. 6.2:** Zirkularer Polarisationsgrad  $\rho_c(B)$  der Quantenpunkt PL für Proben mit verschiedenem  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt in Abhängigkeit eines externen Magnetfeldes (Faraday-Geometrie): (a)  $x = 0.0$  (Probe: CB2210), (b)  $x = 0.01$  (Probe: CB2133) und (c)  $x = 0.02$  (Probe: CB2134). Die Anregung erfolgt sowohl mit  $\sigma^+$  (schwarze Quadrate) als auch mit  $\sigma^-$  (rote Quadrate) polarisiertem Laserlicht. (d) Nach Gl. (6.2) bzw. Gl. (6.3), Gl. (6.8) und Gl. (6.15) berechneter Verlauf des zirkularen Polarisationsgrades für  $\sigma^+$  (durchgezogene Linien) und  $\sigma^-$  polarisierter Anregung (gestrichelte Linien).

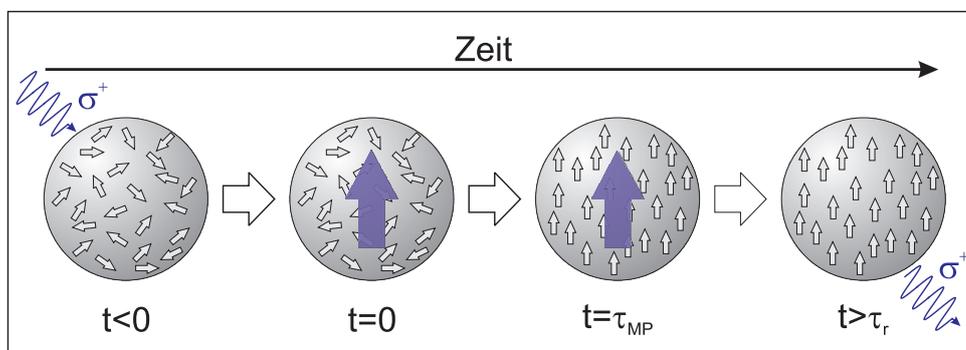
Dotiert man die Quantenpunkte dagegen mit Mangan, so ändert sich der Polarisationsverlauf vollständig im Vergleich zu reinen CdSe/ZnSe Quantenpunkten. Für eine  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration von  $x = 0.01$  (Abb. 6.2b) erreicht der Polarisationsgrad für  $\sigma^+$  polarisierte Anregung lediglich einen Wert von  $\rho_c^{\sigma^+}(-5 \text{ T}) \approx +10\%$ , der mit abnehmender Feldstärke für  $B = 0$  auf unter 1% abfällt. Für positive Magnetfeldwerte steigt die Polarisation des PL-Signals erneut an, ohne dass sich wie im Fall der Probe mit  $x = 0.0$  das Vorzeichen der Polarisation umkehrt. Das bedeutet, dass im Gegensatz zu CdSe/ZnSe Quantenpunkten, die für Feldstärken des Magnetfeldes im Bereich zwischen  $-5 \text{ T} < B < +5 \text{ T}$  stets eine negative Steigung des zirkularen Polarisationsgrades aufweisen ( $\frac{d}{dB}\rho_c^{\sigma^\pm}(B) < 0$ ), sich für Quantenpunkte mit 1% Mangan das Vorzeichen der Steigung  $\frac{d}{dB}\rho_c^{\sigma^\pm}(B)$  umkehrt ( $\frac{d}{dB}\rho_c^{\sigma^+}(B < 0) < 0$ ,  $\frac{d}{dB}\rho_c^{\sigma^+}(B > 0) > 0$ ). Es ist lediglich eine leichte Asymmetrie zwischen negativen und positiven Feldstärken zu verzeichnen und die Polarisation beträgt

für  $B = +5$  T in etwa  $+7\%$ . Auch kann beim Wechsel von rechts- auf links-zirkular polarisiertes Laserlicht erneut ein punktsymmetrisches Verhalten der Polarisationskurven bezüglich der Orientierung des externen Magnetfeldes festgestellt werden.

In Abb. 6.2c ist der zirkuläre Polarisationsverlauf für Quantenpunkte mit  $2\%$  Mangan gezeigt. Erhöht man die  $\text{Mn}^{2+}$  Dotierung, so führt dies im Vergleich zu undotierten CdSe/ZnSe Quantenpunkten zu einem Vorzeichenwechsel des Polarisationsgrades ( $\frac{d}{dB}\rho_c^{\sigma^\pm}(B) > 0$ ). Im Fall der  $\sigma^+$  polarisierten Anregung weist die Photolumineszenz einen Polarisationsgrad von etwa  $-2\%$  für  $B = -5$  T auf. Mit abnehmender magnetischer Feldstärke nimmt auch die Polarisation langsam ab und passiert den Wert  $\rho_c^{\sigma^+} = 0$  für eine magnetische Feldstärke von ca.  $B \approx -2$  T. Ohne äußeres Magnetfeld zeigen die Quantenpunkte im Unterschied zu den Proben mit geringem oder keinem Mangananteil eine erhöhte Polarisation des PL-Signals von  $\rho_c^{\sigma^+}(0) > +2\%$ . Ändert man erneut die Orientierung des Magnetfeldes so lässt sich ein kontinuierlicher Anstieg des Polarisationsgrades beobachten, der schließlich für  $B = +5$  T einer Sättigung entgegen strebt und einen Wert von  $\rho_c^{\sigma^+}(+5 \text{ T}) \approx +18\%$  erreicht. Analog zu den bisher untersuchten Proben äußert sich auch hier ein Wechsel von  $\sigma^+$  auf  $\sigma^-$  polarisiertes Laserlicht durch eine Punktsymmetrie der Polarisationskurven bezüglich des Punktes  $\rho_c^{\sigma^\pm}(0) = 0$ .

Diese für alle untersuchten Proben beobachtete Punktsymmetrie bezüglich der Orientierung des Magnetfeldes und der zirkulären Polarisation des Laserlichts kann folgendermaßen interpretiert werden: Ein Wechsel von  $\sigma^+$  auf  $\sigma^-$  polarisierte Anregung stellt mathematisch eine Zeitinversion dar. Da abgesehen vom Vorzeichen eine solche Inversion zusammen mit der Invertierung der Magnetfeldorientierung eine Invarianz des zirkulären Polarisationsgrades zur Folge hat, lässt dies die Schlussfolgerung zu, dass innerhalb der Proben keine ferro- oder antiferromagnetische Anordnung oder Wechselwirkung zwischen den  $\text{Mn}^{2+}$  Spins auftritt.

An dieser Stelle sei nochmals auf den im Vergleich zu Quantenpunkten mit einem  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt von  $x = 0.0$  und  $x = 0.01$  signifikant erhöhten Polarisationsgrad bei  $B = 0$  für  $x = 0.02$  hingewiesen. Den Beobachtungen an CdMnTe Nanostrukturen von *Mackowski et al.* zur Folge ist dies ein Indiz für die Bildung von magnetischen Polaronen in semimagne-



**Abb. 6.3:** Bildung eines magnetischen Polarons durch transiente Ausrichtung der  $\text{Mn}^{2+}$  Spins im Austauschfeld eines polarisierten Exzitons.  $\tau_{MP}$  und  $\tau_r$  bezeichnen die Polaron-Bildungszeit beziehungsweise die Exzitonlebensdauer.

tischen Quantenpunkten [Mac04]. Durch den Einbau von  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen tritt eine Austauschwechselwirkung zwischen den Elektronen im Leitungsband, den Löchern im Valenzband und den  $3d$  Elektronen der  $\text{Mn}^{2+}$  Spins auf, die es dem Exziton ermöglicht, durch die Formation von magnetischen Polaronen seine Energie zu erniedrigen. Dies geschieht im Wesentlichen durch eine spontane Ausrichtung der  $\text{Mn}^{2+}$  Spins innerhalb des Exziton-Bohr-Radius nach der Spinorientierung der photogenerierten Ladungsträger (siehe Abb. 6.3). Die dadurch bedingte Magnetisierung der Probe äußert sich in einem erhöhten zirkularen Polarisationsgrad für  $B = 0$ . Der Entstehungsprozess des magnetischen Polarons muss damit auf einer Zeitskala stattfinden, die kleiner oder vergleichbar mit der Lebensdauer beziehungsweise der Spinrelaxationszeit der Exzitonen ist. Im weiteren Verlauf dieses Kapitels wird die Lebensdauer bestimmt und die Spinrelaxationszeit abgeschätzt. Als Untergrenze kann hier die von *Seufert et al.* ermittelte Bildungszeit für nulldimensionale Polaronen an ähnlichen Quantenpunktstrukturen zu ca. 125 ps angegeben werden [Seu01a].

Abschließend ist anzumerken, dass aufgrund der relativ geringen Polarisation der Quantenpunkt PL für 2% Mangan die Formation magnetischer Polaronen nur einen minimalen Beitrag zum Verlauf des Polarisationsgrades liefert und somit ohne Bedenken in der weiteren Diskussion vernachlässigt werden kann. Bestätigt wird dies durch frühere zeitaufgelöste Studien an schwach dotierten semimagnetischen Quantenpunkten mit  $x \leq 0.02$ . *Scheibner et al.* konnten zeigen, dass die Polarisations- und Spindynamik auf der Zeitskala der Exzitonlebensdauer keinen Veränderungen unterworfen ist und somit für  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentrationen  $\leq 2\%$  Fluktuationen der Probenmagnetisierung sowie die Formation beziehungsweise ein maßgeblicher Einfluss magnetischer Polaronen ausgeschlossen werden können [Sch03b].

Da weder die Bildung von Polaronen noch eine ferro- oder antiferromagnetische Kopplung zwischen den  $\text{Mn}^{2+}$  Spins eine zufriedenstellende Erklärung für den beobachteten Verlauf der Polarisationskurven liefert, müssen weitere Effekte in Betracht gezogen werden. Zum einen ist zu berücksichtigen, dass durch zirkular polarisiertes Laserlicht  $\sigma^\pm$  die Besetzungswahrscheinlichkeit für den entsprechenden Grundzustand  $|\pm 1\rangle$  der Quantenpunkte deutlich erhöht ist. Diese so genannte optische Orientierung [Dzh98] der Ladungsträgerspins zwingt daher dem System eine bestimmte Vorpolarisation auf. Des Weiteren muss der mit steigendem Magnetfeld zunehmenden Zeeman-Aufspaltung der Quantenpunktzustände Rechnung getragen werden. Abhängig vom Vorzeichen des Exziton-g-Faktors und der Orientierung des Magnetfeldes liegt entweder der Zustand  $|+1\rangle$  oder der Zustand  $|-1\rangle$  energetisch tiefer. Unter der Voraussetzung, dass die Anregung mit unpolarisiertem Licht erfolgt und somit keine bevorzugte Besetzung des der Laserpolarisation entsprechenden Spinzustandes vorliegt, ist zu erwarten, dass durch Spinrelaxation der Ladungsträger im zeitlichen Mittel der jeweils energetisch tiefere Zustand verstärkt besetzt wird. Dies legt die Vermutung nahe, dass der zwischen CdSe/ZnSe und Quantenpunkten mit 2%  $\text{Mn}^{2+}$  auftretende Wechsel bezüglich der Steigung des Polarisationsverlaufs ( $\frac{d}{dB}\rho_c^\alpha < 0 \implies \frac{d}{dB}\rho_c^\alpha > 0$ ) auf einen Vorzeichenwechsel des Exziton-g-Faktors zurückgeführt werden kann. Ein ähnliches Verhalten konnte für analoge Strukturen auch durch zeitaufgelöste Kerr-Rotation beobachtet werden. Hier zeigte sich ausgehend von undotierten Quantenpunkten mit zunehmendem  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt eine Vorzeichenumkehr des

gemessenen Kerr-Signals [Sch06a]. Aus dem Absolutwert der Steigung des zirkularen Polarisationsgrades kann allerdings nur bedingt auf das Vorzeichen des Exziton-g-Faktors geschlossen werden, da neben der optischen Orientierung auch das Verhältnis der Spinrelaxationszeit und der Rekombinationszeit der Ladungsträger eine Rolle spielt. Für eine detaillierte Analyse der Quantenpunktpolarisation müssen daher die zum Kurvenverlauf beitragenden Anteile, die optische Orientierung  $\rho_O$  und die durch die Zeeman-Aufspaltung bedingte Relaxation  $\rho_R$  aus den gemessenen Polarisationskurven gewonnen werden. Dies ist dadurch möglich, dass der Beitrag der optischen Orientierung von der Polarisation des Anregungslasers abhängt, während der Relaxationsanteil polarisationsunabhängig ist und lediglich der Orientierung des externen Magnetfeldes unterliegt. Deshalb kann der jeweils für  $\sigma^+$  und  $\sigma^-$  polarisierte Anregung beobachtete Verlauf des zirkularen Polarisationsgrades unter Berücksichtigung beider Beiträge folgendermaßen dargestellt werden:

links-zirkular polarisierte Anregung:

$$\rho_c^{\sigma^+}(B) = \rho_R(B) + \rho_O(B) \quad (6.2)$$

rechts-zirkular polarisierte Anregung:

$$\rho_c^{\sigma^-}(B) = \rho_R(B) - \rho_O(B) \quad (6.3)$$

Durch geeignete Kombination von Gl. (6.2) und Gl. (6.3) können  $\rho_O(B)$  und  $\rho_R(B)$  aus den experimentellen Daten ermittelt werden.

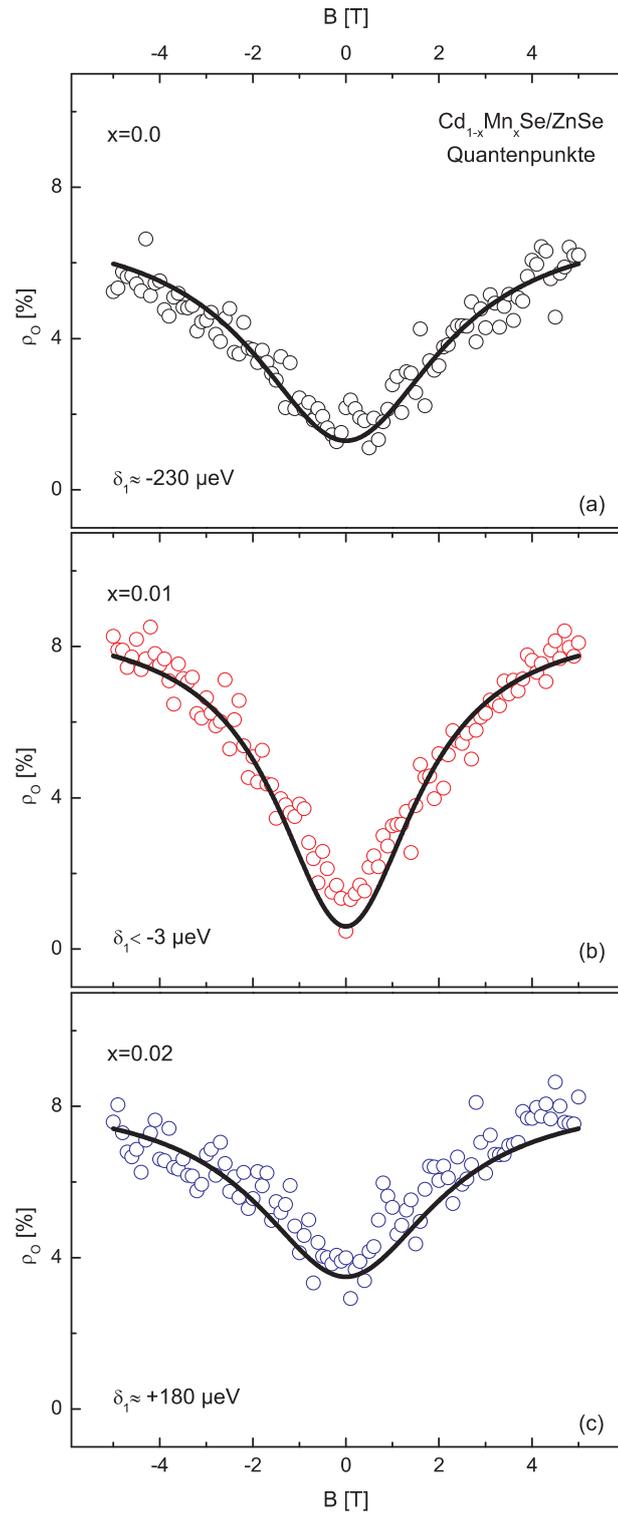
## 6.2 Vorpolarisation - optische Orientierung

Die Vorpolarisation oder optische Orientierung durch zirkular polarisierte Anregung des Quantenpunktensembles kann aus Gl. (6.2) und Gl. (6.3) durch Subtraktion gewonnen werden. Dadurch wird der von der Polarisation des Laserlichts unabhängige Relaxationsanteil aufgehoben und man erhält die Vorpolarisation des Systems in Abhängigkeit des äußeren Magnetfeldes:

Optische Orientierung:

$$\rho_O(B) = \frac{1}{2} |\Delta P| = \frac{1}{2} \left| \left( \rho_c^{\sigma^+}(B) - \rho_c^{\sigma^-}(B) \right) \right| \quad (6.4)$$

Abb. 6.4 zeigt den nach Gl. (6.4) ermittelten Anteil der Vorpolarisation am zirkularen Polarisationsgrad für die Quantenpunktproben mit  $x = 0.0$  (Abb. 6.4a),  $x = 0.01$  (Abb. 6.4b) und  $x = 0.02$  (Abb. 6.4c). Alle drei Kurven zeigen mit zunehmender magnetischer Feldstärke einen deutlichen Anstieg von  $\rho_O$ . Für  $x = 0.0$  erreicht die optische Orientierung bei  $B = \pm 5$  T einen Wert von ca. 6%. Dies entspricht bei Anregung mit der Polarisation des jeweils energetisch tiefer liegenden Zustands einem Anteil von etwa 40% am gemessenen Polarisationsgrad. Mit steigender  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration werden für  $\rho_O$  bei  $B = \pm 5$  T



**Abb. 6.4:** Optische Orientierung  $\rho_O$  semimagnetischer  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkte für (a)  $x = 0.0$ , (b)  $x = 0.01$  und (c)  $x = 0.02$ . Die durchgezogenen Linien stellen den theoretischen Verlauf dar.  $\delta_1$  bezeichnet die Feinstrukturaufspaltung der Eigenzustände für  $B = 0$ .

Beiträge von ca. 8 % beobachtet. Durch direkte Anregung des energetisch günstigeren Zustands beträgt demnach für  $B = \pm 5$  T der Anteil der Vorpolarisation zum zirkularen Polarisationsgrad zwischen 80 % und 90 % ( $x = 0.01$ ) beziehungsweise 44 % ( $x = 0.02$ ). Das „V“-förmige Verhalten der optischen Orientierung für die untersuchten Quantenpunkte zeigt deutlich die Abhängigkeit der Vorpolarisation vom zirkular polarisierten Anteil der Eigenzustände. In Kapitel 2.6 wurde gezeigt, dass für asymmetrische Quantenpunktstrukturen sich die optisch aktiven Eigenzustände durch Linearkombination der reinen und energetisch entarteten zirkularen Zustände eines symmetrischen Quantenpunkts darstellen lassen. Die Vorpolarisation oder optische Orientierung der Ladungsträger kann durch einen so genannten Pseudospin  $\vec{S}$  beschrieben werden. Nach *Dzhioev et al* [Dzh98] ergibt sich zwischen der optische Orientierung  $\rho_O$  und dem Pseudospin  $\vec{S}$  folgender Zusammenhang:

$$\rho_O = 2S_z \quad (6.5)$$

Der entsprechende Pseudospin-Hamiltonian

$$\mathcal{H} = \frac{\hbar}{2}(\omega\sigma_x + \Omega_{\parallel}\sigma_z) \quad (6.6)$$

berücksichtigt die Feinstrukturaufspaltung  $\delta_1 = \hbar\omega$  der optisch aktiven Zustände für  $B = 0$  und im Fall  $B \neq 0$  die Zeeman-Aufspaltung  $\hbar\Omega_{\parallel} = g_x\mu_B B$ .  $g_x$  beschreibt dabei den effektiven Exziton-g-Faktor und  $\sigma_x$  beziehungsweise  $\sigma_z$  stehen für die entsprechenden Pauli-Matrizen. Nach Gl. (6.6) rotiert der Pseudospin um den Vektor  $\vec{\Omega} = (\omega\sigma_x + \Omega_{\parallel}\sigma_z)$  mit der Larmor-Frequenz  $\Omega = \sqrt{\Omega_{\parallel}^2 + \omega^2}$ .

Für ausreichend lange exzitonische Lebensdauern  $\tau_r$  der Quantenpunkte gilt  $\omega\tau_r \gg 1$  und die zeitlich gemittelte Orientierung des Pseudospins  $\vec{S}$  kann durch Projektion des initialen Pseudospins  $\vec{S}_0$  auf  $\vec{\Omega}$  ausgedrückt werden [Dzh98]:

$$\vec{S} = \frac{(\vec{S}_0\vec{\Omega})\Omega}{\Omega^2} \quad (6.7)$$

Für zirkular polarisierte Anregung ergibt sich für den anfänglichen Pseudospin  $S_{0,x} = 0$ ,  $S_{0,y} = 0$  und  $S_{0,z} = P_c^0$ . Unter Berücksichtigung der durch Superposition der linear polarisierten Eigenzustände für  $B = 0$  von null verschiedenen Vorpolarisation  $\rho_O(0)$  (vgl. Kapitel 7 und Kapitel 8) kann die in Abb. 6.4 gezeigte optische Orientierung wie folgt beschrieben werden [Dzh98]:

$$\rho_O(B) = P_c^0 \frac{\Omega_{\parallel}^2}{\omega^2 + \Omega_{\parallel}^2} + \rho_O(0) \quad (6.8)$$

$P_c^0$  ist dabei die initiale Polarisation der photogenerierten Ladungsträger durch zirkular polarisierte Anregung unter Berücksichtigung der Tatsache, dass aufgrund von Streu- und Relaxationsprozessen nicht alle Ladungsträger ihre anfängliche Spinorientierung beibehalten und somit auch für sehr hohe Magnetfelder stets eine Vorpolarisation  $< 100$  % beobachtet wird.

Die durchgezogenen Kurven in Abb. 6.4 zeigen den nach Gl. (6.8) bestimmten theoretischen Verlauf der Vorpolarisation mit zunehmender Magnetfeldstärke. Hierzu wurde für die Zeeman-Aufspaltung auf die im nachfolgenden Kapitel 6.3 bestimmten Exziton-g-Faktoren zurückgegriffen. Damit gestattet Abb. 6.8 die Abschätzung der Feinstrukturaufspaltung  $\delta_1$ . Für das CdSe/ZnSe Quantenpunktensemble wird ein Wert von  $\delta_1 \approx -230 \mu\text{eV}$  gefunden. Dies ist in sehr guter Übereinstimmung mit den aus der Literatur bekannten Werten von  $|\delta_1|$  für CdSe/ZnSe Quantenpunkte die zwischen  $200 \mu\text{eV}$  und  $300 \mu\text{eV}$  angegeben werden [Pul99, Kul99]. Dotiert man die Quantenpunkte mit  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen ( $x = 0.01$ ), so ist zunächst eine Abnahme der Feinstrukturaufspaltung zu beobachten. So weist die Probe mit einem  $\text{Mn}^{2+}$  Anteil von 1 % eine Feinstrukturaufspaltung von lediglich  $\delta_1 < -3 \mu\text{eV}$  auf. Mit steigendem Mangengehalt ( $x = 0.02$ ) steigt die durch die Austauschwechselwirkung zwischen den Ladungsträgern und den  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen bedingte Aufspaltung der Zustände für  $B = 0$  an und man erhält einen Wert von  $\delta_1 \approx +180 \mu\text{eV}$ . Das hier angegebene Vorzeichen der Feinstrukturaufspaltung ist auf das Vorzeichen des exzitonischen g-Faktors bezogen. Somit ist zwischen den Quantenpunkten mit  $x = 0.0$  und  $x = 0.02$  eine Umkehr der Feinstrukturaufspaltung zu beobachten.

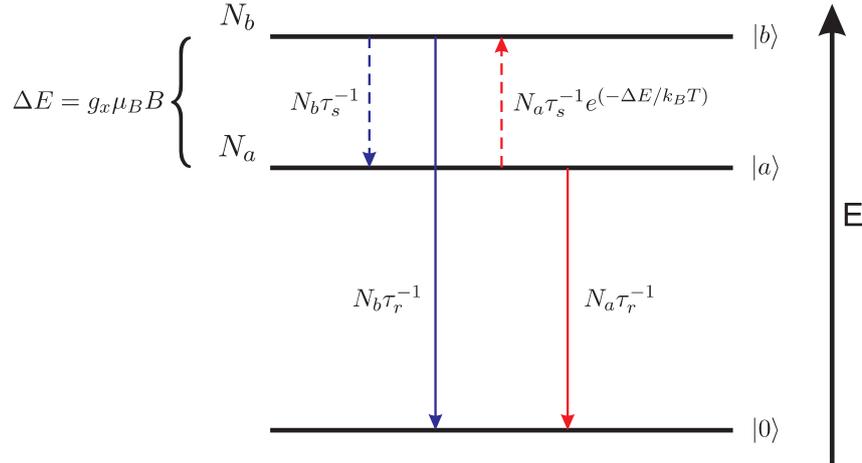
## 6.3 Ladungsträgerrelaxation - Bestimmung des g-Faktors und der Spinrelaxationszeit $\tau_s$

Im folgenden Teil der Arbeit soll der zum zirkularen Polarisationsgrad beitragende Anteil der Zeeman-Aufspaltung  $\rho_R(B)$  genauer betrachtet werden. Dies ist deshalb von besonderem Interesse, da sich aus der Ladungsträgerrelaxation Informationen über den Exziton-g-Faktor  $g_x$  und die Spinrelaxationszeit  $\tau_s$  ableiten lassen. Mit Hilfe der Gleichungen (6.2) und (6.3) kann der Relaxationsanteil aus den für  $\sigma^+$  und  $\sigma^-$  polarisierter Anregung gemessenen Polarisationsdaten wie folgt bestimmt werden:

Ladungsträgerrelaxation:

$$\rho_R = \frac{1}{2}\Sigma P = \frac{1}{2} \left( \rho_c^{\sigma^+} - \rho_c^{\sigma^-} \right) \quad (6.9)$$

Um aus den ermittelten Werten eine Abschätzung des exzitonischen g-Faktors und der Spinrelaxationszeit zu erhalten, wird in Anlehnung an *Mackowski et al.* [Mac03] ein einfaches 3-Niveau System zur Beschreibung der relevanten Relaxationsprozesse angenommen: Abb. 6.5 zeigt ein solches 3-Niveau System mit den Zuständen  $|a\rangle$  und  $|b\rangle$ , die abhängig von der Zeeman-Aufspaltung die zirkular polarisierten Eigenzustände  $|\pm 1\rangle$  repräsentieren.  $|0\rangle$  bezeichnet den Endzustand durch strahlende Rekombination der angeregten Elektron-Loch Paare. Weiter sind die entsprechenden Relaxationsprozesse dargestellt. Hierbei ist zu beachten, dass im Allgemeinen die Spinrelaxation von einem energetisch günstigeren Zustand in den höher gelegenen Zustand nicht gleich der Relaxation vom höheren in den niedrigeren Zustand gesetzt werden kann. Diese Asymmetrie bezüglich des Relaxationsprozesses läßt sich mit dem Bestreben der Ladungsträger erklären stets den energetisch



**Abb. 6.5:** Schematische Darstellung der möglichen Relaxationsprozesse (vgl. [Mac03]).

günstigeren Zustand besetzen zu wollen. Aufgrund thermischer Prozesse kann jedoch eine Streuung in den höher gelegenen Zustand erfolgen. Gewichtet man die Wahrscheinlichkeit eines solchen Vorgangs mit dem Boltzmannfaktor  $\exp[-\Delta E/k_B T]$ , so kann die entsprechende Relaxationsrate zu  $N_a \tau_s^{-1} \cdot \exp[-\Delta E/k_B T]$  angegeben werden [Mac03]. Der Term  $\Delta E$  entspricht der Zeeman-Aufspaltung zwischen den beteiligten Zuständen und  $\tau_s$  ist die Spinrelaxationszeit.  $N_b \tau_s^{-1}$  entspricht dann der Relaxationsrate vom energetisch höheren in den tiefer gelegenen Zustand und  $N_{a,b} \tau_r^{-1}$  stellt die Rekombinationsrate der Elektron-Loch Paare dar, wobei mit  $\tau_r$  die Lebensdauer der Exzitonen bezeichnet ist.

Der Relaxationsanteil des zirkularen Polarisationsgrades kann nun mittels Ratengleichungen für die Besetzung der beiden Zustände beschrieben werden. Für die Zustände  $|a\rangle$  und  $|b\rangle$  gilt dann:

Zustand  $|a\rangle$ :

$$\frac{dN_a}{dt} = G^a - \frac{N_a}{\tau_r} + \frac{N_b}{\tau_s} - N_a \frac{e^{-\Delta E/k_B T}}{\tau_s} \quad (6.10)$$

Zustand  $|b\rangle$ :

$$\frac{dN_b}{dt} = G^b - \frac{N_b}{\tau_r} - \frac{N_b}{\tau_s} + N_a \frac{e^{-\Delta E/k_B T}}{\tau_s} \quad (6.11)$$

$N_a$  und  $N_b$  repräsentieren dabei die Besetzung des unteren beziehungsweise des oberen Energieniveaus.  $G^{a,b}$  stellt die Bildungsrate von Exzitonen für eine dem Zustand  $|a\rangle$  oder  $|b\rangle$  entsprechende Polarisation des Lasers dar ( $\sigma^+$  oder  $\sigma^-$  Polarisation) und kann dementsprechend die Werte  $G^{a,b} = 0$  oder  $G^{b,a} = 1$  annehmen<sup>1</sup>. Dies beruht auf der vereinfachenden Annahme, dass anfangs lediglich die der Laserpolarisation entsprechenden Spinzustände besetzt werden. Nimmt man weiter an, dass sich bei zeitintegrierter Messung für  $N_a$  und  $N_b$  ein festes Besetzungsverhältnis einstellt, so können die Ratengleichungen (6.10) und (6.11) für den stationären Fall  $\frac{dN_a}{dt} = 0$  und  $\frac{dN_b}{dt} = 0$  gelöst werden.

<sup>1</sup> $\sigma^a$  Polarisation:  $G^a = 1$  und  $G^b = 0$ ;  $\sigma^b$  Polarisation:  $G^a = 0$  und  $G^b = 1$  mit:  $a, b = \pm$

Für  $\sigma^a$  polarisierte Anregung erhält man dann:

$$\begin{aligned} N_a^a &= \frac{\tau_r e^{\Delta E/k_B T} (\tau_r + \tau_s)}{\tau_r + e^{\Delta E/k_B T} (\tau_r + \tau_s)} \\ N_b^a &= \frac{\tau_r^2}{\tau_r + e^{\Delta E/k_B T} (\tau_r + \tau_s)} \end{aligned} \quad (6.12)$$

Die oberen Indizes bezeichnen hier die Polarisation des zur Anregung verwendeten Laserlichts. Analog lässt sich die Besetzung der Eigenzustände durch  $\sigma^b$  polarisiertes Licht darstellen:

$$\begin{aligned} N_a^b &= \frac{\tau_r^2 e^{\Delta E/k_B T}}{\tau_r + e^{\Delta E/k_B T} (\tau_r + \tau_s)} \\ N_b^b &= \frac{\tau_r (\tau_r + \tau_s e^{\Delta E/k_B T})}{\tau_r + e^{\Delta E/k_B T} (\tau_r + \tau_s)} \end{aligned} \quad (6.13)$$

Der durch Ladungsträgerrelaxation bedingte Anteil  $\rho_R(B)$  des zirkularen Polarisationsgrades kann nun folgendermaßen bestimmt werden:

$$\rho_R(B) = \frac{1}{2} \Sigma P = \frac{1}{2} [P^a + P^b], \quad (6.14)$$

mit  $P^a = \frac{N_a^a - N_b^a}{N_a^a + N_b^a}$  und  $P^b = \frac{N_a^b - N_b^b}{N_a^b + N_b^b}$ . Durch Einsetzen der Gleichungen (6.12) und (6.13) in Gl. (6.14) erhält man:

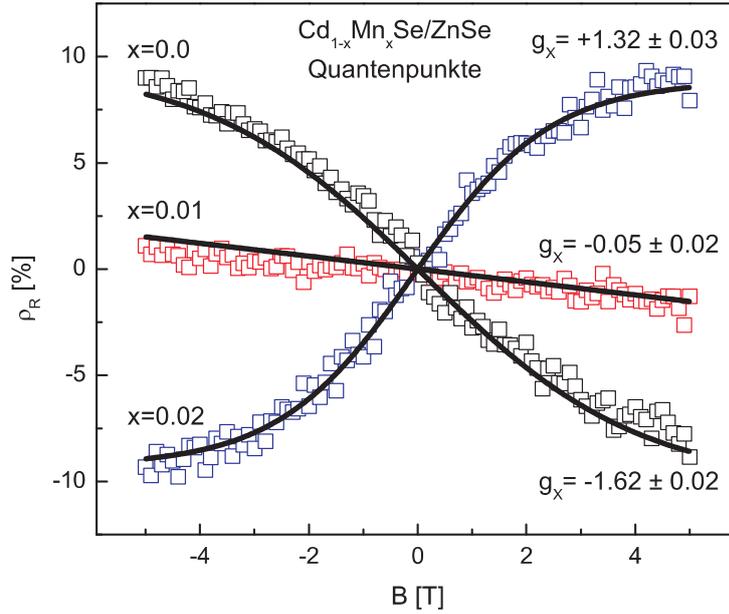
$$\rho_R(B) = \frac{1}{2} \Sigma P = \frac{N_a^b}{N_a^b + N_b^b} - \frac{N_b^a}{N_a^a + N_b^a}$$

und damit:

$$\rho_R(B) = \frac{\tau_r (e^{\Delta E/k_B T} - 1)}{\tau_r + e^{\Delta E/k_B T} (\tau_r + \tau_s)} \quad (6.15)$$

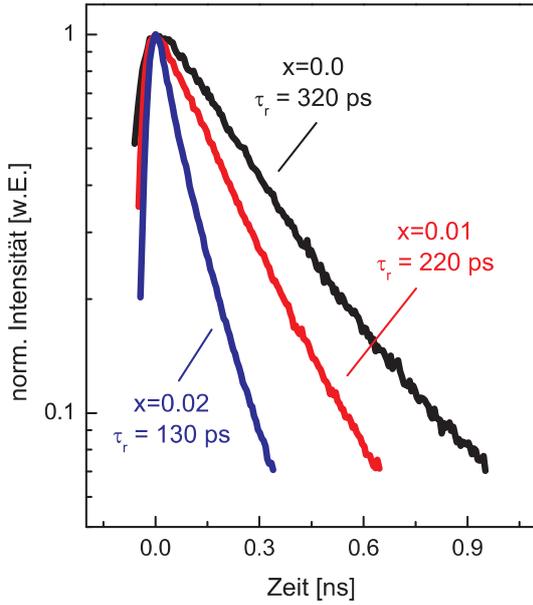
Abb. 6.6 zeigt den nach Gl. (6.9) experimentell bestimmten Verlauf der Ladungsträgerrelaxation  $\rho_R(B)$  in Abhängigkeit des äußeren Magnetfeldes.

Für Quantenpunkte mit  $x = 0.0$  erreicht  $\rho_R$  für  $B = -5$  T einen Wert von ca.  $+8\%$ . Durch Reduzieren der magnetischen Feldstärke und einer damit abnehmenden Zeeman-Aufspaltung  $\Delta E = g_x \mu_B B$  der Eigenzustände stellt sich für  $B = 0$  T ein Relaxationsanteil von  $0\%$  ein. Ändert man die Orientierung des Magnetfeldes, so hat dies eine entgegengesetzte Zeeman-Aufspaltung zur Folge und  $\rho_R$  nimmt für  $B = -5$  T einen Wert von  $-8\%$  an. Wie Abb. 6.6 zeigt, beträgt der maximale Wert des Relaxationsanteils für  $x = 0.01$  lediglich in etwa  $\pm 1\%$  für  $B = \mp 5$  T. Dies spricht für eine sehr geringe Zeeman-Aufspaltung der Eigenzustände im externen Magnetfeld und kann damit auf einen verschwindend kleinen Exziton-g-Faktor  $g_x$  zurückgeführt werden. Der in Abb. 6.2c beobachtete zirkulare Polarisationsgrad wird somit maßgeblich von der optischen Orientierung durch Wahl der



**Abb. 6.6:** Zirkulare Polarisation durch Ladungsträgerrelaxation für  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkte mit  $x = 0.0$  (schwarz Quadrate),  $x = 0.01$  (rote Quadrate) und  $x = 0.02$  (blaue Quadrate). Die durchgezogenen Linien sind nach Gl. (6.15) berechnete Fitkurven durch die experimentellen Daten.

Anregungspolarisation bestimmt, während die Ladungsträgerrelaxation lediglich einen minimalen Beitrag liefert. Quantenpunkte mit einem Mangananteil von 2 % dagegen weisen im Vergleich mit undotierten  $\text{CdSe}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkten einen Vorzeichenwechsel von  $\rho_R$  auf. Dies kann durch eine Inversion der Zeeman-Aufspaltung im äußeren Magnetfeld und damit durch einen Vorzeichenwechsel des effektiven Exziton-g-Faktors erklärt werden. Um nun mit Hilfe von Gl. (6.15) die effektiven g-Faktoren zu bestimmen und eine Abschätzung der Spinrelaxationszeiten vornehmen zu können, müssen zunächst die dafür benötigten Exzitonlebensdauern ermittelt werden. Hierzu steht, wie in Kapitel 3.2, Abb. 3.3 dargestellt, ein ps-Versuchsaufbau mit Streak-Kamera zur Verfügung. In Abb. 6.7 ist der zeitliche Verlauf des PL-Signals der Quantenpunktensembles zusammen mit den ermittelten Lebensdauern  $\tau_r$  gezeigt. Für Quantenpunkte mit  $x = 0.0$ ,  $x = 0.01$  und  $x = 0.02$  wird eine Lebensdauer von  $\tau_r = (320 \pm 20)$  ps,  $\tau_r = (220 \pm 20)$  ps und  $\tau_r = (130 \pm 20)$  ps beobachtet. Die Abnahme von  $\tau_r$  mit steigendem  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt kann zunächst einem verstärkten Auftreten von nicht strahlenden Rekombinationskanälen durch einen Energietransfer auf das  $\text{Mn}^{2+}$  System zugeschrieben werden [Bac01, Seu01a, Kur00, Kim00]. Eine ausführliche Behandlung der Rekombinationsdynamik erfolgt in Kapitel 9. Der magnetfeldabhängige Auger-Transfer auf die  $\text{Mn}^{2+}$  wurde bereits in Kapitel 5.4 an  $\text{CdSe}/\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$  Quantenpunkten untersucht. Da die hier betrachteten  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Proben eine vergleichsweise geringe  $\text{Mn}^{2+}$  Dotierung aufweisen, ist mit zunehmendem Magnetfeld keine merkliche Änderung der Rekombinationsdynamik zu erwarten. Auch die Gesamtintensität der Quantenpunkt PL ändert sich im Magnetfeld um weniger als einen Faktor zwei. Damit kann  $\tau_r$  als konstant angenommen werden.



**Abb. 6.7:** Zeitlicher Verlauf der Quantenpunkt PL gemessen am Intensitätsmaximum. Die Exzitonlebensdauer beträgt  $\tau_r = (320 \pm 20)$  ps ( $x = 0.0$ ),  $\tau_r = (220 \pm 20)$  ps ( $x = 0.01$ ) und  $\tau_r = (130 \pm 20)$  ps ( $x = 0.02$ ).

werden. Wegen des Vorzeichenwechsels von  $\rho_R(B)$  weist die Probe mit 2%  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt einen positiven g-Faktor  $g_x \approx +1.32$  und eine Spinrelaxationszeit von etwa  $\tau_s \approx 1.2$  ns auf.

Damit konnte gezeigt werden, dass der beim Vergleich von CdSe/ZnSe und  $\text{Mn}^{2+}$  dotierten Quantenpunkten beobachtete Vorzeichenwechsel des zirkularen Polarisationsgrades mit einer Umkehr der Zeeman-Aufspaltung einhergeht [Lee05b]. In semimagnetischen Nanostrukturen tritt wegen der Wechselwirkung der photogenerierten Ladungsträger mit den  $3d$  Elektronen der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen neben dem Band-g-Faktor  $g_0$  ein weiterer Term  $g_{sp-d}$  auf. Damit kann der effektive g-Faktor in semimagnetischen Materialien durch

$$g_x = \frac{\Delta E}{\mu_B B} = g_0 + g_{sp-d} \quad (6.16)$$

ausgedrückt werden [Bac01, Lee90].  $\Delta E = \Delta E_0 + \Delta E_{sp-d}$  beschreibt hier die effektive Zeeman-Aufspaltung, die sich aus dem intrinsischen Zeeman-Effekt  $\Delta E_0$  und dem durch die sp-d Austauschwechselwirkung bedingten Anteil  $\Delta E_{sp-d}$  zusammensetzt [Cha03]. Für  $\Delta E_{sp-d}$  gilt [Sch06a, Bac01]:

$$\Delta E_{sp-d} = (\alpha - \beta) x N_0 S_{eff} \mathcal{B}_{5/2} \left( \frac{5\mu_B g_{Mn} B}{2k_B T_{eff}} \right) \quad (6.17)$$

Die durchgezogenen Kurven in Abb. 6.6 zeigen den mittels Gl. (6.15) bestimmten theoretischen Verlauf der Ladungsträgerrelaxation. Mit der in Abb. 6.7 ermittelten Exzitonlebensdauer verbleiben somit der Exziton-g-Faktor  $g_x$  und die Spinrelaxationszeit  $\tau_s$  als mögliche Fitparameter. Für CdSe/ZnSe Quantenpunkte erhält man mit  $\tau_s \approx 3.2$  ns und  $g_x \approx -1.62$  einen guten Fit an die experimentellen Daten. Der so ermittelte Wert für den effektiven Exziton-g-Faktor ist in sehr guter Übereinstimmung mit dem aus der Literatur bekannten Wert des intrinsischen Band-g-Faktor [Sch06a, Kul99, Pul99]. Wie bereits diskutiert, zeigen die untersuchten Quantenpunkte mit  $x = 0.01$  nur eine sehr geringe Polarisation durch die Relaxation der Ladungsträger. Dieser auf eine geringe Zeeman-Aufspaltung zurückgeführte Effekt liefert für den g-Faktor mit  $g_x \approx -0.05$  einen verschwindend kleinen Wert. Aufgrund dessen kann im Gegensatz dazu ein mit  $\tau_s \approx 9$  ns vergleichsweise hoher Wert für die Spinrelaxationszeit beobachtet

$g_{Mn} \approx 2$  [Bac02] stellt den g-Faktor der  $Mn^{2+}$  Ionen dar,  $x$  deren Konzentration und  $\mathcal{B}_{5/2} \left( \frac{5\mu_B g_{Mn} B}{2k_B T_{eff}} \right)$  ist die Brillouin-Funktion des Mangan 5/2-Spinsystems.  $\alpha$  und  $\beta$  repräsentieren die Austauschkonstanten für die Elektronen und Löcher [Twa84]. Der Ausdruck beinhaltet weiter phänomenologische Parameter  $S_{eff}$  und  $T_{eff}$  zur Beschreibung einer antiferromagnetischen Wechselwirkung zwischen benachbarten  $Mn^{2+}$  Spins [Gaj79]. Die Zahl der Kationen pro Einheitsvolumen ist durch  $N_0$  angegeben [Bac01].

Nach Gl. (6.16) und Gl. (6.17) ergibt sich in Übereinstimmung mit dem Experiment für  $x = 0.0$  ein g-Faktor von  $g_x = g_0$ . Andererseits zeigt Gl. (6.16) auch, dass es mit steigendem Mangengehalt möglich sein sollte, den Wert des Exziton-g-Faktors auf null einzustellen. Dieses Verhalten lässt sich für die Probe mit  $x = 0.01$  beobachten, da sich hier der intrinsische g-Faktor  $g_0$  und  $g_{sp-d}$  nahezu aufheben ( $g_0 \approx -g_{sp-d}$ ). Im Fall höherer  $Mn^{2+}$  Konzentrationen dominiert  $g_{sp-d}$  und für den exzitonischen g-Faktor stellt sich in Übereinstimmung mit dem experimentellen Ergebnis ein positiver Wert ein. Da die magnetischen Eigenschaften  $Mn^{2+}$  dotierter Halbleiter im Wesentlichen durch die Brillouin-Funktion des paramagnetischen Spinsystems beeinflusst werden, stellt sich für  $g_{sp-d}$  eine Abhängigkeit vom äußeren Magnetfeld [Cha03] ein. Im Fall geringer Dotierungen und moderater magnetischer Felder kann jedoch für die Brillouin-Funktion eine Reihenentwicklung in erster Ordnung durchgeführt werden:

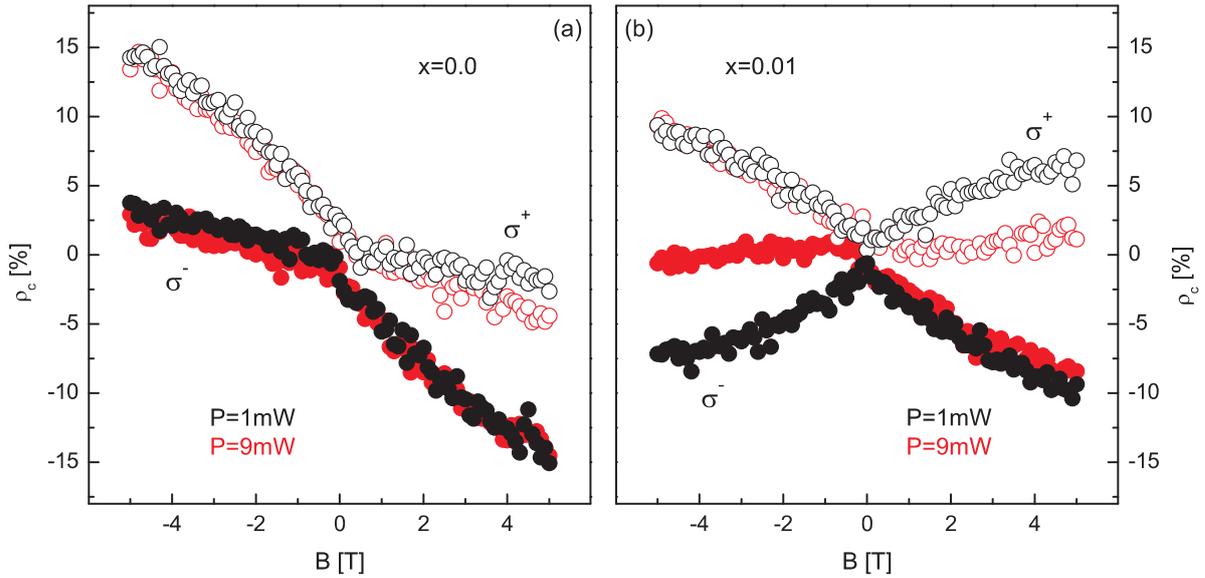
$$\mathcal{B}_{5/2} \left( \frac{5\mu_B g_{Mn} B}{2k_B T_{eff}} \right) \approx \frac{7\mu_B g_{Mn} B}{6k_B T_{eff}} + \mathcal{O} [B^2] \quad (6.18)$$

Damit erhält man die in Abb. 6.6 ermittelten konstanten Werte für den Exziton-g-Faktor. Abschließend sei angemerkt, dass nach Gl. (6.16) und Gl. (6.17) der Vorzeichenwechsel des g-Faktors für wesentlich kleiner  $Mn^{2+}$  Konzentrationen im Bereich von ca. 0.1 % zu erwarten ist. Der beobachtete Vorzeichenwechsel für  $x = 0.01$  lässt sich deshalb auf eine relativ geringe Überlagerung zwischen der Exzitonwellenfunktion und den  $Mn^{2+}$  Ionen zurückführen. Weiter ist bekannt, dass durch Eindringen der Ladungsträgerwellenfunktion in das nicht magnetische ZnSe Barrierenmaterial und durch den dreidimensionalen Einschluss der Ladungsträger im Quantenpunkt stark reduzierte Austauschkonstanten auftreten können [Mer99].

## 6.4 Optische Manipulation des g-Faktors

Im Gegensatz zu CdSe/ZnSe Quantenpunkten variiert der Polarisationsgrad des PL-Signals für semimagnetische Nanostrukturen stark mit der Anregungsleistung des verwendeten Lasersystems. In Abb. 6.8 ist der zirkulare Polarisationsverlauf der untersuchten Quantenpunktensembles mit  $x = 0.0$  (Abb. 6.8a) und  $x = 0.01$  (Abb. 6.8b) für zwei verschiedene Anregungsleistungen des Titan-Saphir Lasersystems dargestellt.

Für Quantenpunkte mit  $x = 0.0$  kann keine Abhängigkeit des Polarisationsgrades von der Anregungsleistung des Laserlichts beobachtet werden. Ein anderes Bild zeigen dagegen semimagnetische Quantenpunkte: Die Probe mit einer nominellen  $Mn^{2+}$  Ionen Konzentration von 1 % weist für  $\sigma^+$  polarisierte Anregung und einer Laserleistung von  $P = 9$  mW im Bereich positiver Magnetfelder eine drastische Abnahme der PL-Polarisation auf. So



**Abb. 6.8:** Zirkularer Polarisationsverlauf unter  $\sigma^+$  (offene Kreise) beziehungsweise  $\sigma^-$  polarisierter Anregung (gefüllte Kreise) und unterschiedlicher Anregungsleistung (schwarz: 1 mW; rot: 9 mW) des Titan-Saphir Lasersystems für (a) Quantenpunkte mit  $x = 0.0$  und (b)  $x = 0.01$ .

wird für  $B = +5$  T lediglich ein Polarisationsgrad von  $\rho_c^{\sigma^+} \approx +2\%$  beobachtet. Für die entgegengesetzte Orientierung der magnetischen Feldstärke kann hingegen keine Veränderung des Polarisationsgrades beobachtet werden. Analog zu den vorangegangenen Untersuchungen (Abb. 6.2) zeigt sich beim Wechsel von  $\sigma^+$  zu  $\sigma^-$  polarisierter Anregung ein punktsymmetrisches Verhalten der Leistungsabhängigkeit. Vergleicht man den Verlauf für  $x = 0.01$  und  $P = 9$  mW mit dem Verhalten für  $x = 0.0$ , so erkennt man, dass sich der Polarisationsgrad dem beobachteten Kurvenverlauf für CdSe/ZnSe Quantenpunkte annähert. Augenscheinlich wird dadurch der Einfluss der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen auf den zirkularen Polarisationsgrad unterdrückt.

Dieses Verhalten semimagnetischer Strukturen wird in der Literatur als optischer Heizprozess des Mangansystems bezeichnet, der zu einer drastischen Reduzierung der sp-d Austauschwechselwirkung zwischen den Ladungsträgern und den 3d Elektronen der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen führt. So konnten *Koudinov et al.* an semimagnetischen  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$  Quantenfilmen eine deutliche Abnahme des Polarisationsgrades mit steigender Anregungsleistung beobachten [Kou03].

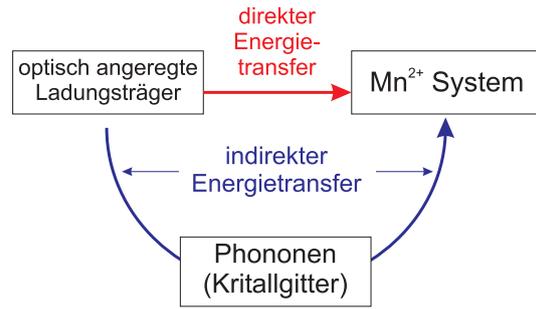
Für einen solchen Heizprozess sind im Wesentlichen zwei Mechanismen verantwortlich (siehe Abb. 6.9): Zum einen kann durch „Spin-Flip“-Prozesse der optisch angeregten Ladungsträger die dabei freigesetzte Energie direkt auf das  $\text{Mn}^{2+}$  System übertragen werden und damit zu einem Anstieg der Temperatur des  $\text{Mn}^{2+}$  Systems beitragen [Kne06b, Kne06a]. Da bei diesem Prozess keine weiteren Wechselwirkungen mit der Umgebung des Kristallgitters auftreten<sup>2</sup>, spricht man bei diesem Vorgang auch von einem direkten Heizmechanismus. Jedoch ist es für die Effizienz eines solchen direkten Energietransfers

<sup>2</sup>beispielsweise Wechselwirkung mit Phononen

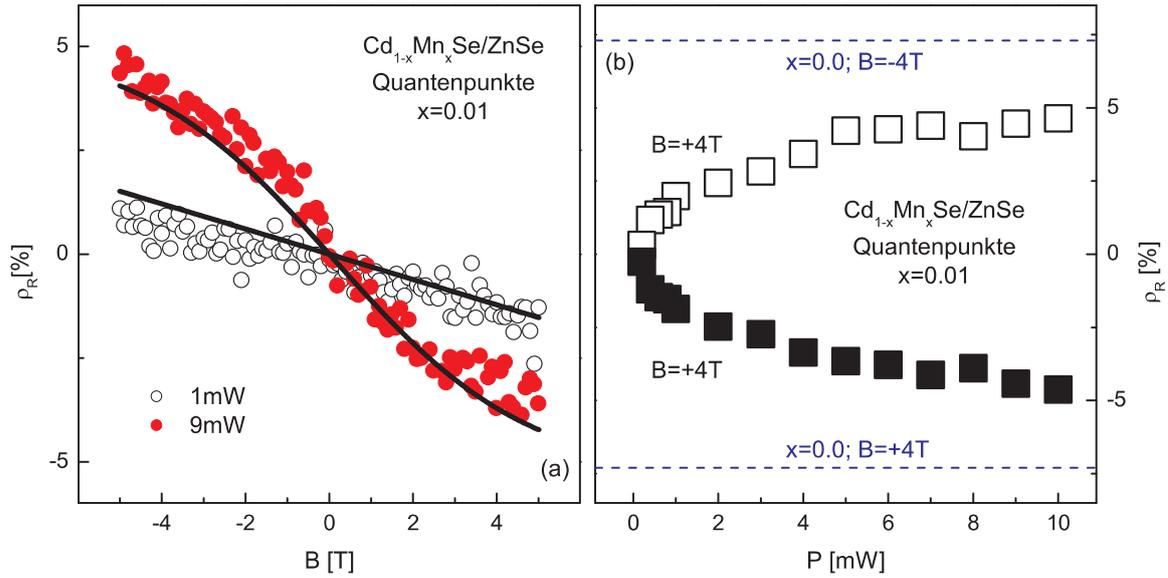
notwendig, dass die gesamte Überschussenergie vollständig auf das  $\text{Mn}^{2+}$  System übertragen werden kann. Ohne zusätzliche Wechselwirkungen setzt die Energieerhaltung voraus, dass die im äußeren Magnetfeld bedingte Zeeman-Aufspaltung der photogenerierten Ladungsträger und der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen die gleiche Größenordnung aufweisen. Da jedoch in semimagnetischen Strukturen die Zeeman-Aufspaltung der Ladungsträger zum Teil sehr große Werte annimmt, ist ein solcher Prozess nur in wenigen Fällen energetisch möglich [Hun05b]. Viel häufiger findet man einen indirekten Heizmechanismus vor. Dabei wird die Überschussenergie der Ladungsträger über Phononen des Kristallgitters abgegeben, so dass die Energieerhaltung erfüllt werden kann.

Der Anteil von direkten und indirekten Heizmechanismen wird zurzeit noch kontrovers diskutiert. So konnte an (Zn,Mn)Se Quantenfilmen [Yak04, Kel01], n-dotierten (Cd,Mn)Te [Kön00] sowie undotierten (Cd,Mn)Te Quantenfilmen [Kul96] eine Dominanz des direkten Energietransfers nachgewiesen werden. Andererseits favorisieren experimentelle Untersuchungen anderer Arbeitsgruppen an (Cd,Mn)Te Volumenhalbleitern [Far96], (Cd,Mn)Te Quantenfilmen [Kou03] und (Cd,Mn)Se Quantenpunkten [Hun05a, Hun05b] einen indirekten Transfer als führenden Heizmechanismus.

Aufgrund der moderaten g-Faktoren der untersuchten Quantenpunktproben kann ein direkter Energietransfer als Ursache des beobachteten Heizprozesses nicht von vornherein ausgeschlossen werden. Für eine genauere Analyse soll im Folgenden die Abhängigkeit des durch die Zeeman-Aufspaltung bedingten Relaxationsanteils der zirkularen Polarisation für Quantenpunkte mit  $x = 0.01$  genauer untersucht werden. Abb. 6.10a zeigt den Verlauf von  $\rho_R(B)$  als Funktion des externen Magnetfelds für eine Anregungsleistung von  $P = 1 \text{ mW}$  (schwarz) und  $P = 9 \text{ mW}$  (rot). Während für eine geringe Leistung des Lasers ein maximaler Wert von  $\rho_R(\pm 5 \text{ T}) \approx \mp 1 \%$  beobachtet werden kann, ist dieser für  $P = 9 \text{ mW}$  erhöht und beträgt für  $B = \pm 5 \text{ T}$  in etwa  $\mp 4.7 \%$ . Die durchgezogenen Linien repräsentieren den nach Gl. (6.15) bestimmten theoretischen Verlauf. Wie Abb. 6.10b für Magnetfeldwerte von  $B = \pm 4 \text{ T}$  zeigt, ist  $\rho_R$  mit zunehmender Anregungsleistung keiner sprunghaften Veränderung unterworfen, sondern nimmt kontinuierlich mit der Laserleistung zu und nähert sich schrittweise dem für undotierte Quantenpunkte gemessenen Wert an. Dies lässt den Schluss zu, dass durch optisches Heizen des  $\text{Mn}^{2+}$  Systems die sp-d Austauschwechselwirkung unterdrückt und damit die Zeeman-Aufspaltung der Exzitonzustände erhöht wird und sich für hohe Anregungsleistungen an der Aufspaltung der Zustände für undotierte Quantenpunkte orientiert. Nach Gl. (6.16) zieht dies eine Änderung des effektiven exzitonischen g-Faktors nach sich. Mittels der Fitkurven aus Abb. 6.10a und Gl. (6.15) kann für eine Anregungsleistung von  $P = 9 \text{ mW}$  der Wert des g-Faktors zu  $g_x \approx -1.47$  bestimmt werden. Dieser um etwa einen Faktor 30 höhere

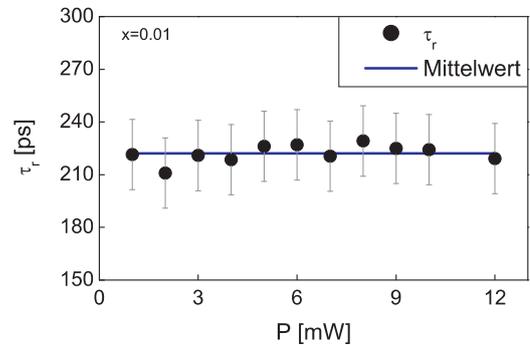


**Abb. 6.9:** Schematische Darstellung der am Energietransfer beteiligten Energie-reservoirs. Photogenerierte Ladungsträger können ihre Überschussenergie direkt (rot) oder indirekt über Phononen des Kristallgitters (blau) auf das  $\text{Mn}^{2+}$  System übertragen.



**Abb. 6.10:** (a)  $\rho_R$  als Funktion des externen Magnetfeldes für Quantenpunkte mit 1%  $\text{Mn}^{2+}$  und Anregungsleistungen von  $P = 1 \text{ mW}$  (schwarz) und  $P = 9 \text{ mW}$  (rot). Die durchgezogenen Kurven repräsentieren den theoretischen Verlauf nach Gl. (6.15). (b)  $\rho_R$  für  $B = \pm 4 \text{ T}$  als Funktion der Anregungsleistung  $P$ .

Wert entspricht in etwa dem für  $\text{CdSe/ZnSe}$  Quantenpunkte ermittelten exzitonischen  $g$ -Faktor von  $g_x \approx -1.62$ . Auch die Spinrelaxationszeit gleicht mit  $\tau_s \approx 4 \text{ ns}$  nahezu dem für  $x = 0.0$  gewonnenen Wert von  $\tau_s \approx 3.2 \text{ ns}$  und unterstreicht damit den quasi nicht magnetischen Charakter der mit 1%  $\text{Mn}^{2+}$  dotierten semimagnetischen Quantenpunkte im Fall hoher optischer Anregungsleistungen. Abschließend sei angemerkt, dass die optische Manipulation der magnetooptischen Eigenschaften semimagnetischer Quantenpunkte ausschließlich den direkten und indirekten Heizmechanismen des  $\text{Mn}^{2+}$  Systems zugeschrieben werden kann. Die Bildung von Multi-Exziton-Komplexen oder die Besetzung angeregter Quantenpunktzustände aufgrund der hohen Anregungsleistungen als mögliche Ursache können durch folgende Überlegungen ausgeschlossen werden: Zum einen ist zu erwarten, dass die Bildung höherer exzitonischer Komplexe den in Abb. 6.8b gezeigten zirkularen Polarisationsgrad unabhängig von der Anregungspolarisation und der Orientierung des Magnetfeldes beeinflusst. Zum anderen sollte die Bildung von Biexzitonen sowie die Besetzung angeregter Quantenpunktzustände deutlichen Einfluss auf die Rekombinationsrate  $\tau_r^{-1}$  der Ladungsträger haben [Bac99a, Wim06, Aki06]. Wie Abb. 6.11 zeigt, ist bis zu Anregungsleistungen von  $P = 12 \text{ mW}$  keine Änderung der Exzitonlebensdauer  $\tau_r$  zu verzeichnen. Somit



**Abb. 6.11:**  $\tau_r$  in Abhängigkeit der Anregungsleistung für Quantenpunkte mit 1%  $\text{Mn}^{2+}$ .

können angeregte Zustände oder Multi-Exziton-Komplexe als Ursache der beobachteten Polarisationsänderung ausgeschlossen werden.

## 6.5 Temperatur des $\text{Mn}^{2+}$ Spinsystems

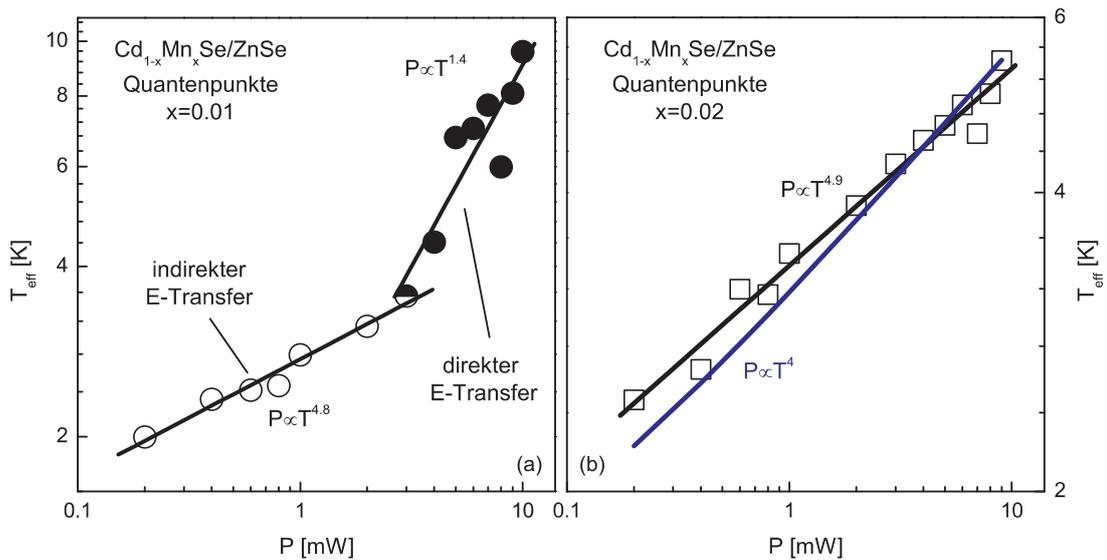
Nachdem im vorangegangenen Kapitel die Abhängigkeit von  $\rho_R$  von der optischen Anregungsleistung untersucht wurde, können auf dieser Grundlage die Beiträge von direkten und indirekten Heizmechanismen bestimmt werden. Dabei bedient man sich Gl. (6.15) und Gl. (6.18). Zusammen mit dem in Abb. 6.10 dargestellten leistungsabhängigen Verhalten von  $\rho_R$  kann die effektive Temperatur  $T_{eff}$  der  $\text{Mn}^{2+}$  Spins für unterschiedliche Anregungsleistungen ermittelt werden.

Abb. 6.12a zeigt den Verlauf der Temperatur des  $\text{Mn}^{2+}$  Systems als Funktion der Laserleistung in doppel-logarithmischer Darstellung. Für geringe Anregungsleistungen bis zu  $P \approx 3 \text{ mW}$  (offene Kreise) steigt die Temperatur mit zunehmender Leistung nur relativ langsam an und lässt sich für  $P \approx 3 \text{ mW}$  auf etwa 3.5 K abschätzen. Ab einer kritischen Leistung von  $P > 3 \text{ mW}$  steigt die Systemtemperatur deutlich stärker an (ausgefüllte Kreise) und weist für  $P = 10 \text{ mW}$  einen Wert von 9.5 K auf. Die durchgezogenen Linien repräsentieren Fitfunktionen an die experimentellen Daten. Im Fall geringer Anregungsleistungen bis zu  $P = 3 \text{ mW}$  zeigt der Temperaturverlauf eine  $P \propto T^{4.8}$  Abhängigkeit. In der Literatur wird das Verhalten des indirekten Heizmechanismus mit  $P \propto T^4$  angegeben [Sha74, Kne06a] und lässt deshalb den Schluss zu, dass im Bereich kleiner Anregungsleistungen hauptsächlich der durch Phononen assistierte Heizmechanismus zur Temperaturerhöhung beiträgt.

Im Gegensatz dazu weist die Temperaturänderung für größere Anregungsleistungen eine  $P \approx T^{1.4}$  Abhängigkeit auf. Hierbei ist der Exponent im Vergleich zum indirekten Heizprozess um mehr als einen Faktor drei reduziert. Der starke Temperaturanstieg deutet auf einen direkten Heizmechanismus des  $\text{Mn}^{2+}$  System hin. Dies erscheint unter der Voraussetzung gerechtfertigt, dass die Zahl der photogenerierten Ladungsträger proportional zur Anregungsleistung steigt und damit der Energieübertrag von den Ladungsträgern auf das  $\text{Mn}^{2+}$  System linear mit der Laserleistung zunehmen kann. Somit ist für den Temperaturverlauf  $T_{eff}$  und der Leistung  $P$  ein in erster Ordnung nahezu linearer Zusammenhang zu erwarten.

Auf diese Weise kann für die Quantenpunkte mit 1 %  $\text{Mn}^{2+}$  sowohl der direkte wie auch der indirekte Heizmechanismus nachgewiesen werden. Der sukzessive Anstieg des Exziton-g-Faktors mit zunehmender Laserleistung ermöglicht dabei das Einsetzen des direkten Energietransfers für  $P \geq 3 \text{ mW}$ . Ähnliche Resultate wurden bisher an semimagnetischen Quantenfilmen erzielt, die mittels zeitaufgelöster PL-Spektroskopie untersucht wurden und ebenfalls direkte und indirekte Transfermechanismen aufwiesen [Kne06a].

Analog kann die effektive Temperatur der  $\text{Mn}^{2+}$  Spins für Quantenpunkte mit  $x = 0.02$  abgeschätzt werden. Abb. 6.12b zeigt den Temperaturverlauf in Abhängigkeit der Anregungsleistung. In doppel-logarithmischer Darstellung ergibt sich ein näherungsweise linearer Verlauf, der sich proportional zu  $P \propto T^{4.9}$  verhält. Es ist zu erkennen, dass die effektive Temperatur bei gleicher Anregungsleistung deutlich langsamer ansteigt als für



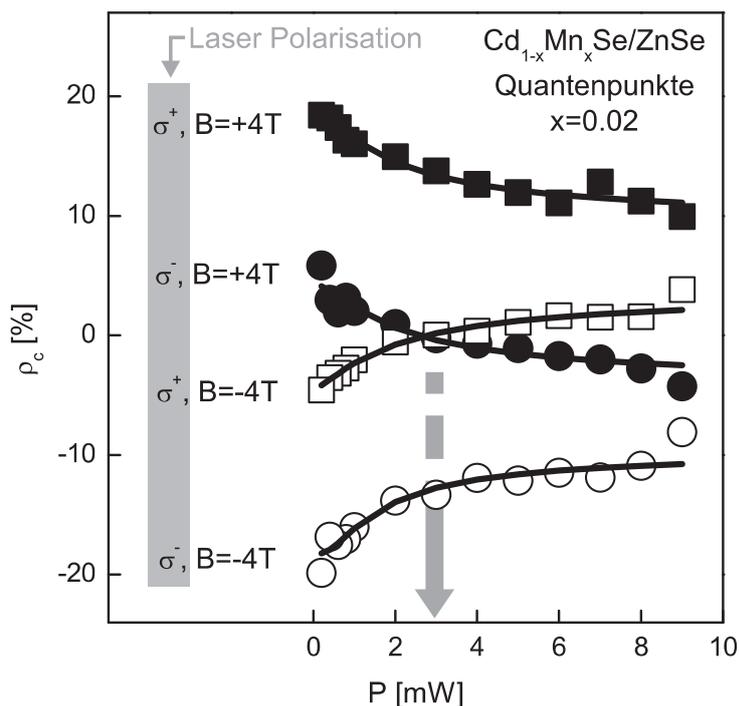
**Abb. 6.12:** Effektive Temperatur  $T_{eff}$  des  $Mn^{2+}$  Systems für (a)  $x = 0.01$  und (b)  $x = 0.02$  in Abhängigkeit der Anregungsleistung.

Quantenpunkte mit  $x = 0.01$ . Aufgrund des höheren  $Mn^{2+}$  Gehalts und des deutlich größeren Exziton-g-Faktors ist in diesem Fall kein direkter Energietransfer mehr möglich und die beobachtete Temperaturzunahme kann auf einen indirekten Heizmechanismus zurückgeführt werden. Zum Vergleich ist der für diesen - durch Phononen des Kristallgitters vermittelten - indirekten Energieübertrag zu erwartende Verlauf  $P \propto T^4$  eingezeichnet (blaue Kurve).

## 6.6 Inversion des Polarisationsgrades

In den vorherigen beiden Kapiteln wurde eine Möglichkeit aufgezeigt, den Wert des Exziton-g-Faktors und folglich die Polarisation der Quantenpunkt PL mittels optischer Heizmechanismen des  $Mn^{2+}$  Systems zu manipulieren. Dies wirft die Frage auf, inwiefern dadurch eine Vorzeichenumkehr des zirkularen Polarisationsgrades und damit eine effektive Umbesetzung der Spinzustände in Halbleiterquantenpunkten realisiert werden kann. Voraussetzung dafür ist ein relativ geringer Polarisationsgrad von einigen wenigen Prozent, wie er für Quantenpunkte mit 2%  $Mn^{2+}$  für  $B < 0$  und  $\sigma^+$  beziehungsweise  $B > 0$  und  $\sigma^-$  polarisiertem Laserlicht auftritt (vgl. Abb. 6.2).

Abb. 6.13 zeigt den zirkularen Polarisationsgrad für Quantenpunkte mit einem  $Mn^{2+}$  Gehalt von 2% für Magnetfeldwerte von  $B = \pm 4$  T sowie einer Anregungspolarisation von  $\sigma^+$  beziehungsweise  $\sigma^-$  mit zunehmender Laserleistung von 0.2 mW auf 9 mW. Für  $\sigma^+$  polarisierte Anregung und  $B = +4$  T ändert sich der zirkulare Polarisationsgrad von +18% auf +10%. Kehrt man die Orientierung des Magnetfelds und der Anregungspolarisation um, so ist der gleiche Verlauf des Polarisationsgrades jedoch mit umgekehrtem Vorzeichen zu verzeichnen. Andererseits beobachtet man eine von der Anregungsleistung unabhängige Änderung des zirkularen Polarisationsgrades um ca. 14% beim Wechsel der



**Abb. 6.13:** Zirkularer Polarisationsgrad  $\rho_c$  der Quantenpunkt PL für  $x = 0.02$  in Abhängigkeit der Laserleistung  $P$ , der Anregungspolarisation  $\sigma^+$  (Quadrate) und  $\sigma^-$  (Kreise) sowie der Orientierung des Magnetfeldes  $B = +4$  T (ausgefüllte Symbole) und  $B = -4$  T (offene Symbole). Für  $\sigma^-$  polarisierte Anregung und  $B = +4$  T ( $\bullet$ ) ebenso wie für  $\sigma^+$  und  $B = -4$  T ( $\square$ ) kann eine Vorzeichenumkehr von  $\rho_c$  durch Variation der Laserleistung erzwungen werden. Die durchgezogenen Linien wurden mittels Gl. (6.19) bestimmt. Der Pfeil kennzeichnet den Nulldurchgang der Polarisationskurven für  $P \approx 3$  mW.

zirkularen Anregungspolarisation bei gleichbleibender Ausrichtung des Magnetfelds. Dieser Unterschied im Polarisationsgrad ist auf die bereits in Kapitel 6.2 diskutierte, vom Magnetfeld unabhängige, optische Orientierung  $\rho_O$  der photogenerierten Ladungsträger zurückzuführen [Kus05]. Für  $\sigma^+$  polarisierte Anregung und einem äußeren Magnetfeld von  $B = -4$  T ( $\square$ ) weist der zirkulare Polarisationsgrad einen Vorzeichenwechsel auf.  $\rho_c$  beträgt für  $P = 0.2$  mW ca.  $-4\%$  und passiert bei  $P \approx 3$  mW den Wert  $\rho_c = 0$ . Für größere Anregungsleistungen nimmt  $\rho_c$  positive Werte an und erreicht für  $P = 9$  mW ca.  $+3\%$ . Analog dazu lässt sich für  $\sigma^-$  polarisiertes Laserlicht bei gleichzeitiger Umkehr der Magnetfeldorientierung ebenfalls ein Vorzeichenwechsel bei  $P \approx 3$  mW beobachten ( $\bullet$ ) und damit eine effektive Umverteilung der besetzten Spinzustände realisieren. In Abb. 6.12b (Kapitel 6.5) konnte dieser Prozess als ein durch Phononen assistierter indirekter Energietransfer identifiziert werden.

Der Verlauf der in Abb. 6.13 dargestellten Polarisationskurven kann wiederum unter Zuhilfenahme des in Abb. 6.5 gezeigten 3-Niveau Modells als Funktion der Zeeman-Aufspaltung und der effektiven Temperatur des Spinsystems beschrieben werden. Unter Verwendung von Gl. (6.15) und unter Berücksichtigung der in Abb. 6.4c (Kapitel 6.2, Seite 67) gezeigten optischen Orientierung  $\rho_O$  lässt sich der zirkulare Polarisationsgrad durch folgenden

Ausdruck darstellen:

$$\rho_c(B) = \rho_R(B) + \rho_O(B)$$

$$\rho_c(B) = \frac{\tau_r (e^{\Delta E/k_B T} - 1)}{\tau_r + e^{\Delta E/k_B T} (\tau_r + \tau_s)} + \rho_O(B) \quad (6.19)$$

Für  $|B| = 4 \text{ T}$  beträgt die optische Orientierung je nach Anregungspolarisation etwa  $\rho_O \approx \pm 7\%$ , die Lebensdauer  $\tau_r = 130 \text{ ps}$  und die Spinrelaxationszeit  $\tau_s = 1.2 \text{ ns}$  (vgl. Kapitel 6.4).

Nach *Gaj et al.* [Gaj79] kann die Zeeman-Aufspaltung  $\Delta E$  eines paramagnetischen Systems mit Hilfe einer Brillouin-Funktion beschrieben werden. Nach Gl. (6.18) liefert die Reihenentwicklung der Brillouin-Funktion in erster Ordnung

$$\Delta E \propto \frac{\mu_B g_{Mn} B}{T_{eff}}. \quad (6.20)$$

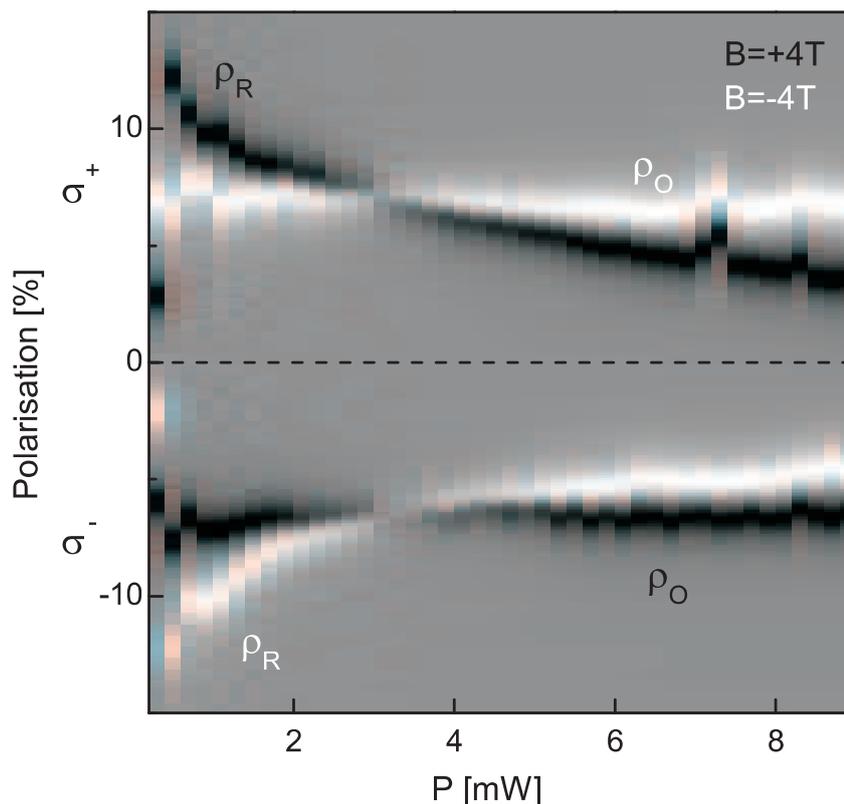
Für eine theoretische Beschreibung der experimentellen Daten muss der Transfer der Überschussenergie von optisch angeregten Ladungsträgern auf das  $\text{Mn}^{2+}$  System berücksichtigt werden. Dieser indirekte auf Phononen basierende Effekt weist eine  $P \propto T^4$  Abhängigkeit auf (vgl. Seite 79). Zusammen mit Gl. (6.20) kann die Exponentialfunktion aus Gl. (6.19) folgendermaßen geschrieben werden:

$$e^{\frac{\Delta E}{k_B T}} \propto e^{\frac{1}{T^2}} \propto e^{\frac{1}{\sqrt{P}}} \quad (6.21)$$

Die durchgezogenen Linien in Abb. 6.13 zeigen den aus Gl. (6.19) und Gl. (6.21) ermittelten bestmöglichen theoretischen Verlauf in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Daten.

Es sei nochmals darauf hingewiesen, dass der beobachtete Vorzeichenwechsel des zirkularen Polarisationsgrades allein durch die Veränderung der Anregungsleistung bei geeigneter Wahl der Anregungspolarisation und der Magnetfeldorientierung zustande kommt. Neben dem Magnetfeld und der Polarisation des Lasers steht damit ein weiterer Kontrollparameter bezüglich der exzitonischen Spinzustände und deren Besetzung in semimagnetischen Quantenpunktsystemen zur Verfügung. Dies ist deshalb erwähnenswert, da der Vorzeichenwechsel der PL-Polarisation keine Umkehr der Zeeman-Aufspaltung erzwingt. Abb. 6.14 verdeutlicht dies anhand der Werte des durch die Zeeman-Aufspaltung bedingten Relaxationsanteils  $\rho_R$ . Dieser nimmt zwar mit steigender Anregungsleistung kontinuierlich ab, weist aber keinen Nulldurchgang und somit auch keinen Vorzeichenwechsel des effektiven g-Faktors im Bereich von  $P = 0.2 \text{ mW}$  bis  $P = 9 \text{ mW}$  auf.

Da weder  $\rho_O$  noch die Exzitonlebensdauer  $\tau_r$  eine Abhängigkeit von der Laserleistung aufweisen, sondern lediglich der durch die Zeeman-Aufspaltung der Spinzustände verursachte Relaxationsanteil  $\rho_R$  des zirkularen Polarisationsgrades einer deutlichen Abnahme unterworfen ist (Abb. 6.14), kann die Bildung von Multi-Exziton-Komplexen als mögliche Ursache für den Polarisationswechsel erneut ausgeschlossen werden.

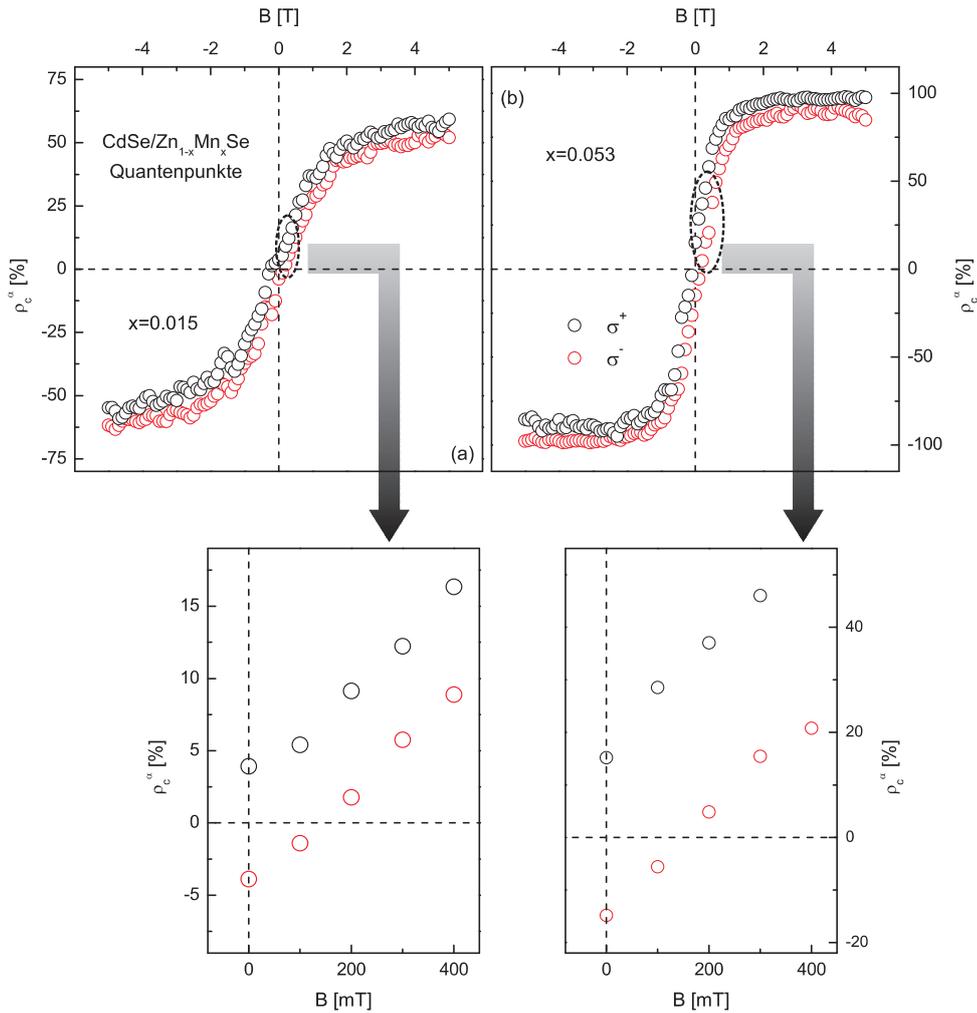


**Abb. 6.14:**  $\rho_R$  und  $\rho_O$  für  $\sigma^+$  und  $\sigma^-$  polarisierte Anregung und einem externen Magnetfeld von  $B = \pm 4$  T als Funktion der Laserleistung.

## 6.7 PL-Polarisation von $\text{CdSe}/\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ Quantenpunkten

Die bisherigen Untersuchungen an  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkten zeigen deutlich den Einfluss der optischen Orientierung  $\rho_O$  auf die Polarisations-eigenschaften dieser Strukturen. Zum Abschluss dieses Kapitels soll nun ein Vergleich mit Quantenpunktproben, die eine semimagnetische  $\text{ZnMnSe}$  Barriere enthalten, durchgeführt werden. In Abb. 6.15 sind die Polarisationskurven für Quantenpunkte mit nominell  $x = 0.015$  (Abb. 6.15a) und  $x = 0.053$   $\text{Mn}^{2+}$  (Abb. 6.15b) für  $\sigma^+$  und  $\sigma^-$  polarisierte Anregung dargestellt.

Für beide Proben ergibt sich analog zu  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkten mit  $x = 0.02$  ein s-förmiger Verlauf des zirkularen Polarisationsgrades in Abhängigkeit des äußeren Magnetfelds. Jedoch liegen die gemessenen Werte des Polarisationsgrades deutlich über den beobachteten Werten der  $\text{Cd}_{0.98}\text{Mn}_{0.02}\text{Se}/\text{ZnSe}$  Probe und erreichen im Fall hoher Feldstärken für eine  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration von nominell  $x = 0.053$  nahezu 100 %. Dies lässt den Schluss zu, dass trotz vergleichbarem prozentualen  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt der Überlapp der Exzitonwellenfunktion mit den im Barrierenmaterial lokalisierten  $\text{Mn}^{2+}$  Spins deutlich stärker ausfällt und damit die sp-d Austauschwechselwirkung die Zeeman-Aufspaltung dominiert. Gestützt wird diese Annahme durch den vergleichsweise geringen Unterschied des Polarisationsgrades zwischen  $\sigma^+$  und  $\sigma^-$  polarisierter Anregung. Weiter zeigt sich

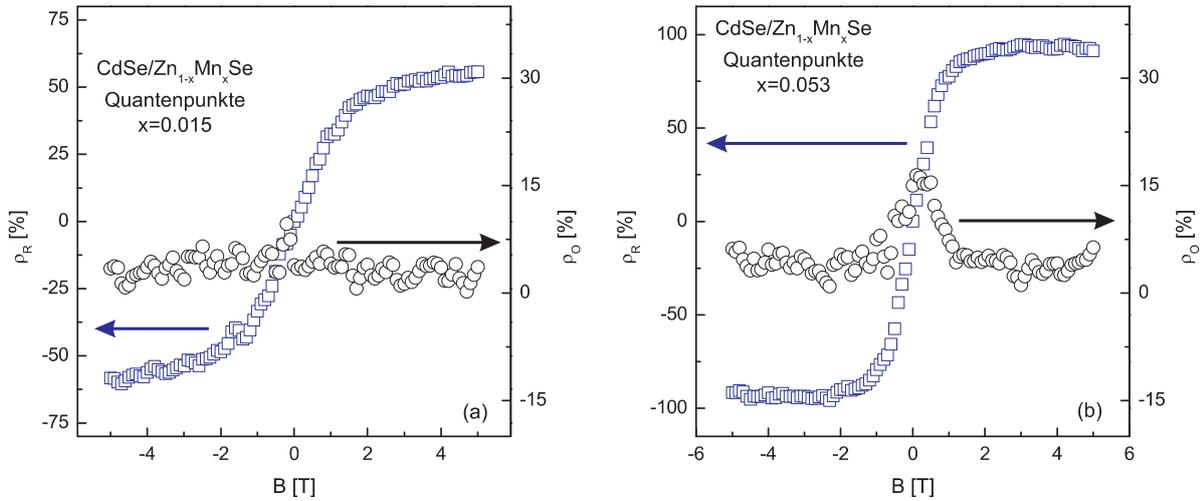


**Abb. 6.15:** Zirkularer Polarisationsgrad  $\rho_c$  gemessen an  $\text{CdSe}/\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$  Quantenpunkten als Funktion des externen Magnetfelds für  $\sigma^+$  (schwarz) und  $\sigma^-$  polarisierte (rot) Anregung. Die Messung wurde für unterschiedliche  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentrationen durchgeführt: (a)  $x = 0.015$  und (b)  $x = 0.053$ .

ohne Magnetfeld eine deutliche zirkulare Polarisation des PL-Signals von ca.  $\rho_c^{\sigma^\pm} \approx \pm 4\%$  für  $x = 0.015$  beziehungsweise  $\rho_c^{\sigma^\pm} \approx \pm 15\%$  für  $x = 0.053$  und ist wie in Abb. 6.3 illustriert ein Indiz für die Formation magnetischer Polaronen. Analog zu den durchgeführten Untersuchungen an  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Proben kann auf Grundlage von Gl. (6.2) und Gl. (6.3) der gemessene Polarisationsverlauf in den durch Ladungsträgerrelaxation  $\rho_R$  und durch optische Orientierung  $\rho_0$  bedingten Anteil zerlegt werden.

Abb. 6.16 zeigt den Verlauf von  $\rho_R$  und  $\rho_0$  als Funktion des Magnetfelds für eine nominelle  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration von  $x = 0.015$  (Abb. 6.16a) und  $x = 0.053$  (Abb. 6.16b). Hierbei ist der Relaxationsanteil des zirkularen Polarisationsgrades  $\rho_R$  jeweils auf der linken Achse der beiden Abbildungen dargestellt. Die rechte Achse zeigt den Wert der optischen Orientierung  $\rho_0$ .

$\rho_R$  zeigt wie auch für die  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Proben einen s-förmigen Verlauf mit positiver



**Abb. 6.16:** Verlauf von  $\rho_R$  (rechte Achse) und  $\rho_O$  (linke Achse) in Abhängigkeit des externen Magnetfelds für CdSe/Zn<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se Quantenpunkte mit (a)  $x = 0.015$  und  $x = 0.053$ .

Steigung. Dies deutet wiederum auf einen positiven Wert des effektiven g-Faktors hin. Im Gegensatz zu  $\rho_R$  weist  $\rho_O$  einen vergleichsweise geringen, nahezu vom Magnetfeld unabhängigen Wert auf, so dass der Verlauf des zirkularen Polarisationsgrades maßgeblich von  $\rho_R$  und damit von der Zeeman-Aufspaltung der Eigenzustände bestimmt wird. Lediglich für  $B = 0$  ist eine leichte Erhöhung der Vorpolarisation zu beobachten, die durch Bildung magnetischer Polaronen verstanden werden kann.

Eine prinzipiell mögliche theoretische Beschreibung der experimentellen Daten durch Gl. (6.15) erscheint aufgrund der im Vergleich zu Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se/ZnSe Quantenpunkten deutlich höheren Zeeman-Aufspaltung der Exzitonzustände nicht mehr sinnvoll. Die im Fall einer moderaten Mn<sup>2+</sup> Dotierung ermöglichte Annahme einer nahezu konstanten Spinrelaxationszeit  $\tau_s$  ist für barrierendotierte Quantenpunkte mit einer vergleichsweise starken Austauschwechselwirkung zwischen Ladungsträger- und Mn<sup>2+</sup> Spins nicht mehr zulässig. Vielmehr ist zu erwarten, dass mit zunehmender Aufspaltung der Zustände im externen Magnetfeld die Spinrelaxationszeit deutlich abnimmt. Die Dominanz des durch Ladungsträgerrelaxation bedingten Anteils  $\rho_R$  an der zirkularen Polarisation der Quantenpunkt PL lässt jedoch vermuten, dass die Spinrelaxationszeit  $\tau_s$  Werte in der Größenordnung der Exzitonlebensdauer  $\tau_r$  annimmt.  $\tau_r$  konnte in den barrierendotierten Quantenpunkten für  $B = 0$  ungefähr zwischen 30 ps und 40 ps bestimmt werden. Auch ist zu erwarten, dass mit zunehmender magnetischer Feldstärke die Lebensdauer der Quantenpunkte zunimmt. Der rasche Anstieg der PL-Intensität mit zunehmendem Magnetfeld zeigt, dass mit steigender Feldstärke die nicht strahlenden Rekombinationskanäle zwischen den Ladungsträgern und den Mn<sup>2+</sup> Ionen unterdrückt werden. Damit nimmt die Rekombinationsrate der Ladungsträger insgesamt stetig ab und die Exzitonlebensdauer kann nicht mehr wie im Fall geringer Mn<sup>2+</sup> Konzentrationen als nahezu konstant angenommen werden.

# 7 Linear-zirkularer Polarisationstransfer

Durch Selbstorganisation gewachsene II-VI Quantenpunkte weisen oftmals eine starke Asymmetrie auf. Die Ausrichtung solcher Quantenpunkte findet bevorzugt entlang der [110]-Achse des Kristalls statt [Mah06, Mah07b]. Weiter weisen II-VI Quantenpunkte im Vergleich zu (Ga,In)As Systemen eine signifikant höhere Elektron-Loch Austauschwechselwirkung auf [Nir95, Kul99], die eine linear polarisierte Feinstrukturaufspaltung des Grundzustands entlang der [110] und  $[1\bar{1}0]$ - Achse des Kristalls [Kul99, Sch03a, Sch03b] nach sich zieht. Diese Anisotropie der Quantenpunkte ist für viele Anwendungen von Nachteil, jedoch birgt sie eine Reihe interessanter physikalischer Einblicke in die quantenmechanische Natur niederdimensionaler Systeme. So konnten *Astakhov et al.* [Ast06] eine Überführung der zirkular beziehungsweise linear polarisierten optischen Anregung in eine linear beziehungsweise zirkular polarisierte PL-Emission von CdSe Quantenpunkten nachweisen. Dieser Effekt basiert auf einer Interferenz zwischen linear und zirkular polarisierten photonischen Zuständen und wurde bereits Anfang der 90er Jahre von *Ivchenko et al.* für niederdimensionale Strukturen theoretisch vorhergesagt [Ivc91]. Wenig später konnte eine durch im Magnetfeld verursachte Konvertierung der Polarisation an Typ-II GaAs/AlAs Übergittern [Dzh97b], InAlAs/AlGaAs [Dzh98, Dzh97a] und CdSe Quantenpunkten [Kus05] experimentell beobachtet werden. Im Folgenden wird die Konvertierung der linearen Anregungspolarisation auf die zirkulare Polarisation des PL-Signals im externen Magnetfeld für semimagnetische Quantenpunkte untersucht. Hierbei soll insbesondere ein Zusammenhang mit den in Kapitel 6 gemessenen Polarisationskurven geknüpft werden.

Der Versuchsaufbau entspricht der in Kapitel 3.1.1, Abb. 3.1 gezeigten Anordnung. Zur Anregung wird das linear polarisierte Licht eines GaN Diodenlasers mit  $\lambda = 448$  nm verwendet. Die Polarisationsebene des Lichts kann mittels eine  $\lambda/2$ -Rhombus in  $10^\circ$  Schritten gegenüber der [110]-Kristallachse verkippt werden. Zur Detektion der  $\sigma^+$  und  $\sigma^-$  Komponenten des PL-Signals kommt die in Kapitel 3.1.1 erläuterte Methode der photoelastischen Modulation zum Einsatz. Das Magnetfeld ist dabei entlang der Wachstumsrichtung der Proben orientiert ( $B||z$  - Faraday Geometrie). Zunächst sollen jedoch die zur Beschreibung der experimentellen Daten notwendigen theoretischen Grundlagen des so genannten „Pseudospin“-Modells erläutert werden.

## 7.1 Der „Pseudospin“-Formalismus

Polarisiertes Licht kann mit Hilfe von Stokes-Koordinaten als Zustand auf der Oberfläche einer Poincaré-Kugel dargestellt werden. Der im folgenden erläuterte Mechanismus verbindet diese Koordinaten mit einem Spinzustand, so dass jedem Punkt auf der Kugeloberfläche ein so genannter Pseudospin  $\vec{S} = [S_1, S_2, S_3]$  zugeordnet werden kann. Hierbei gilt folgende Verknüpfung zwischen den Stokes-Koordinaten  $\rho^l, \rho^r, \rho_c$  und dem Pseudospin  $\vec{S}$  [Dzh97b, Kus05]:

$$\rho^r = S_1, \quad \rho^l = S_2, \quad \rho_c = S_3 \quad (7.1)$$

Hierbei verhalten sich  $S_1, S_2$  und  $S_3$  wie die  $x$ -,  $y$ - und  $z$ -Projektion eines Spins auf die Achsen des realen Raums.  $\rho^r$  ist die lineare Polarisation entlang der [110] Kristallachse,  $\rho^l$  entlang der [100] Achse.  $\rho_c$  ist parallel zur [001] Achse orientiert und beschreibt die zirkulare Polarisation des PL-Signals.

Für die longitudinale Orientierung des Magnetfeldes kann der Hamilton-Operator als Summe eines Austausch- und eines Zeeman-Terms beschrieben werden [Dzh97b]:

$$\mathcal{H} = \frac{\hbar}{2} (\omega\sigma_1 + \Omega_{||}\sigma_3) \quad (7.2)$$

$\hbar\omega$  beschreibt die durch Elektron-Loch Austauschwechselwirkung bestimmte Aufspaltung  $\delta_1$  der linear polarisierten Exzitonzustände für  $B = 0$  und  $\hbar\Omega_{||} = g_x\mu_B B$  die durch das Magnetfeld herbeigeführte Zeeman-Aufspaltung.  $\sigma_1$  und  $\sigma_3$  stellen die erste und dritte Pauli-Matrix dar. Nach Gl. (7.2) rotiert der Pseudospin  $\vec{S}$  um den Vektor  $\vec{\Omega} = (\omega, 0, \Omega_{||})$  mit der effektiven Larmor-Frequenz  $|\vec{\Omega}| = \sqrt{\Omega_{||}^2 + \omega^2}$ .

Die Dynamik der PL-Polarisation kann nun mittels des Pseudospinvektors  $\vec{S}$  folgendermaßen beschrieben werden [Mei84, Ast06]:

$$\frac{\partial \vec{S}}{\partial t} = \vec{\Omega} \times \vec{S} - \frac{\vec{S} - \vec{P}_{eq}}{\tau_s} - \frac{\vec{S} - \vec{P}_{ex}}{\tau_r} \quad (7.3)$$

$\tau_r$  und  $\tau_s$  bezeichnen die Exzitonlebensdauer und die Spinrelaxationszeit der Ladungsträger.  $\vec{P}_{eq}$  und  $\vec{P}_{ex}$  sind die sich einstellende intrinsische Polarisation der Quantenpunktzustände und die Anregungspolarisation des verwendeten cw-Lasers. Die Anregungspolarisation kann durch  $\vec{P}_{ex} = [P^r, P^l, P_c]$  ausgedrückt werden.  $P^r$  und  $P^l$  entsprechen dabei einer linearen Polarisation des Lasers entlang der [110] beziehungsweise der [100] Kristallachse.  $P^z$  bezeichnet die Anregung mit zirkular polarisiertem Licht. Die intrinsische Polarisation kann analog dazu als  $\vec{P}_{eq} = [Y_{lin}, 0, Y_{zirk}]$  dargestellt werden.  $Y_{lin}$  beschreibt den intrinsischen linearen Polarisationsanteil aufgrund der Feinstrukturaufspaltung  $\delta_1 = \hbar\omega$  der Quantenpunkte ohne äußeres longitudinales Magnetfeld. Für  $B \neq 0$  treten wegen der steigenden Zeeman-Aufspaltung vermehrt zirkular polarisierte Zustände auf, deren Polarisation durch den Term  $Y_{zirk}$  berücksichtigt wird. Für cw-Anregung und zeitintegrierter Detektion stellt sich für die Polarisation des PL-Signals ein Gleichgewichtszustand ( $\frac{\partial \vec{S}}{\partial t} = 0$ ) ein, für den Gl. (7.3) unter Berücksichtigung von Gl. (7.1) wie folgt gelöst werden kann:

$$\begin{aligned}
\rho' &= \frac{T}{\tau_r} \left[ \frac{1 + \omega^2 T^2}{1 + (\omega^2 + \Omega_{\parallel}^2) T^2} P'' - \frac{\Omega_{\parallel} T}{1 + (\omega^2 + \Omega_{\parallel}^2) T^2} P^l + \frac{\omega \Omega_{\parallel} T^2}{1 + (\omega^2 + \Omega_{\parallel}^2) T^2} P^z \right] \\
&\quad + \frac{T}{\tau_s} \left[ \frac{1 + \omega^2 T^2}{1 + (\omega^2 + \Omega_{\parallel}^2) T^2} Y_{lin} \right] + \frac{T}{\tau_r} \left[ \frac{\tau_r}{\tau_s} \frac{\omega \Omega_{\parallel} T^2}{1 + (\omega^2 + \Omega_{\parallel}^2) T^2} Y_{zirk} \right] \\
\rho^l &= \frac{T}{\tau_r} \left[ \frac{\Omega_{\parallel} T}{1 + (\omega^2 + \Omega_{\parallel}^2) T^2} P'' + \frac{1}{1 + (\omega^2 + \Omega_{\parallel}^2) T^2} P^l - \frac{\omega T}{1 + (\omega^2 + \Omega_{\parallel}^2) T^2} P^z \right] \\
&\quad + \frac{T}{\tau_s} \left[ \frac{\Omega_{\parallel} T}{1 + (\omega^2 + \Omega_{\parallel}^2) T^2} Y_{lin} - \frac{\omega T}{1 + (\omega^2 + \Omega_{\parallel}^2) T^2} Y_{zirk} \right] \\
\rho_c &= \frac{T}{\tau_r} \left[ \frac{\omega \Omega_{\parallel} T^2}{1 + (\omega^2 + \Omega_{\parallel}^2) T^2} P'' + \frac{\omega T}{1 + (\omega^2 + \Omega_{\parallel}^2) T^2} P^l + \frac{1 + \Omega_{\parallel}^2 T^2}{1 + (\omega^2 + \Omega_{\parallel}^2) T^2} P^z \right] \\
&\quad + \frac{T}{\tau_s} \left[ \frac{\omega \Omega_{\parallel} T^2}{1 + (\omega^2 + \Omega_{\parallel}^2) T^2} Y_{lin} + \frac{1 + \Omega_{\parallel}^2 T^2}{1 + (\omega^2 + \Omega_{\parallel}^2) T^2} Y_{zirk} \right]
\end{aligned} \tag{7.4}$$

$T$  beschreibt die Spindephasierung der Ladungsträger mit  $T^{-1} = \tau_r^{-1} + \tau_s^{-1}$ . Der dritte Ausdruck aus Gl. (7.4) zeigt allgemein die Konvertierung der Anregungspolarisation  $\vec{P}_{ex}$  in zirkular polarisiertes Photolumineszenzlicht unter Berücksichtigung der intrinsischen Polarisationsanteile  $Y_{lin}$  und  $Y_{zirk}$ .

Im Fall der linear polarisierten Anregung gilt  $P'' \neq 0$ ,  $P^l \neq 0$  und  $P_c = 0$ . Damit ergibt sich für  $\vec{P}_{ex} = [P'', P^l, 0]$  und der Ausdruck aus Gl. (7.4) für die zirkulare Polarisation  $\rho_c$  kann vereinfacht in folgender Form geschrieben werden:

$$\rho_c = \frac{T}{\tau_r} \left[ \frac{\omega T}{1 + (\omega^2 + \Omega_{\parallel}^2) T^2} P^l + \frac{\omega \Omega_{\parallel} T^2}{1 + (\omega^2 + \Omega_{\parallel}^2) T^2} P'' + f(Y_{lin}, Y_{zirk}) \right] \tag{7.5}$$

Verkippt man nun schrittweise die Polarisationssebene des linear polarisierten Laserstrahls, so kann  $P^l$  und  $P''$  durch  $P^l = P_0^l \sin(2\alpha)$  und  $P'' = P_0'' \cos(2\alpha)$  ausgedrückt werden.  $P_0^l$  und  $P_0''$  nehmen dabei Werte zwischen 0 und 1 an. Da die Anregung nicht unter strikt resonanten Bedingungen erfolgt, ist davon auszugehen, dass sich für  $P_0''$  und  $P_0^l$  Werte  $< 1$  einstellen. Aus Gl. (7.5) ergibt sich damit für die zirkulare Polarisation des PL-Signals folgende Form:

$$\rho_c = a \cdot \sin(2\alpha) + b \cdot \cos(2\alpha) + C = A \sin(2\alpha + \Delta\varphi) + C, \tag{7.6}$$

mit:  $a \propto \frac{\omega T}{1+(\omega^2+\Omega_{||}^2)T^2} \cdot P_0^l$ ,  $b \propto \frac{\omega\Omega_{||}T^2}{1+(\omega^2+\Omega_{||}^2)T^2} \cdot P_0^{l'}$ ,  $C \propto f(Y_{lin}, y_{zirk})$ ,  $A = \sqrt{a^2 + b^2}$  und  $\tan \Delta\varphi = \frac{b}{a}$ .  $\alpha$  ist der Winkel, den die Polarisationssebene des Lasers mit der [110] Achse der Probe einschließt.

## 7.2 Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se/ZnSe Quantenpunkte

### 7.2.1 Linear-zirkular Konvertierung ohne Magnetfeld

Zunächst wird die linear-zirkular Konvertierung (LZK) für CdSe/ZnSe Quantenpunkte ohne äußeres Magnetfeld untersucht. Für  $B = 0$  vereinfacht sich Gl. (7.5) mit  $\vec{\Omega} = [\omega, 0, 0]$  zu

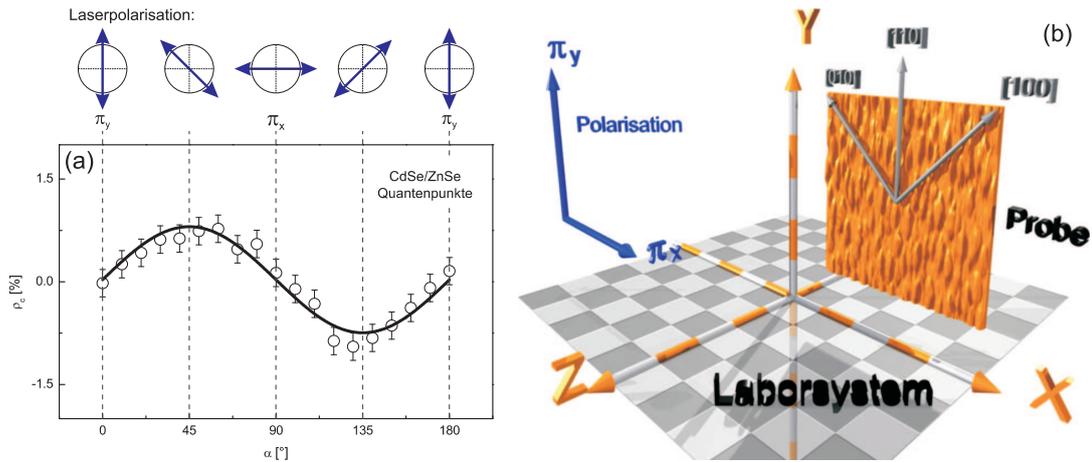
$$\rho_c = \frac{T}{\tau_r} \frac{\omega T}{1 + (\omega T)^2} P^l. \quad (7.7)$$

Für die Konstante  $C$  aus Gl. (7.6) gilt  $C \propto f(Y_{lin}, Y_{zik}) = 0$  und  $b = 0$ . Der zirkulare Polarisationsgrad folgt dem Verlauf einer Sinusfunktion  $\rho_c = a \cdot \sin(2\alpha)$ , wie aus Abb. 7.1a hervorgeht. Die Ausrichtung der Probe erfolgt parallel zu den Raumkoordinaten des Laborsystems ( $y \parallel [110]$ ,  $x \parallel [\bar{1}\bar{1}0]$ ), so dass die Quantenpunkte entlang der y-Achse orientiert sind. Dieser Zusammenhang ist in Abb. 7.1b schematisch dargestellt.

Unter  $\pi_y$  polarisierter Anregung ( $P^{l'} \neq 0$ ,  $P^l = 0$ ) parallel zur [110] Achse der Probe ( $\alpha = 0$ ) kann keine zirkulare Polarisation der Quantenpunkt PL gemessen werden. Ein analoges Verhalten lässt sich für Anregung mit  $\pi_x$  polarisiertem Licht beobachten, wobei die Polarisationssebene des Lasers entlang der [110] Achse der Probe ausgerichtet ist. In beiden Fällen wird jeweils einer der beiden linear polarisierten Eigenzustände der Quantenpunkte besetzt, so dass keine kohärente Überlagerung zwischen den Zuständen auftritt, die eine Emission von zirkular polarisiertem Licht ermöglichen würde. Orientiert man dagegen die Polarisationssebene des Lasers parallel zur [100] beziehungsweise [010] Achse ( $P^{l'} = 0$ ,  $P^l \neq 0$ ), so kann eine Superposition beider Zustände erzwungen werden, die mit  $\rho_c \approx \pm 0.8\%$  zu einer nicht verschwindenden zirkularen Polarisation des PL-Signals führt. Diese Beobachtungen sind im Einklang mit den ebenfalls an CdSe/ZnSe Quantenpunkten durchgeführten Untersuchungen von *Astakhov et al.* [Ast06] und wird durch Gl. (7.4) beziehungsweise Gl. (7.5) korrekt wiedergegeben.

Im Folgenden soll nun untersucht werden, wie sich die Konvertierung der linearen Anregungspolarisation des Lasers in zirkular polarisierte Emission im externen Magnetfeld ändert. Im Fall  $B \neq 0$  gilt  $\Omega_{||} \neq 0$  und der Pseudospin  $\vec{S}$  präzediert damit um den Vektor  $\vec{\Omega} = [\omega, 0, \Omega_{||}]$ . Dies hat zu Folge, dass nach Gl. (7.5) die Terme  $\frac{\omega\Omega_{||}T^2}{1+(\omega^2+\Omega_{||}^2)T^2}$  sowie  $f(Y_{lin}, y_{zirk})$  einen Beitrag zur zirkularen Polarisation leisten und Gl. (7.7) in ihrer vereinfachten Darstellung nicht mehr gilt. Weiter soll der Einfluß einer Dotierung mit Mn<sup>2+</sup> Ionen untersucht werden.

Jedoch kann ohne Magnetfeld Gl. (7.7) dazu genutzt werden, eine Abschätzung der Feinstrukturaufspaltung  $\delta_1 = \hbar\omega$  der optisch aktiven Zustände vorzunehmen. Nimmt man an, dass für die Spinrelaxationszeit  $\tau_s \gg \tau_r$  und  $\omega T \gg 1$  gilt, so kann mit  $\tau_r \approx 320$  ps die



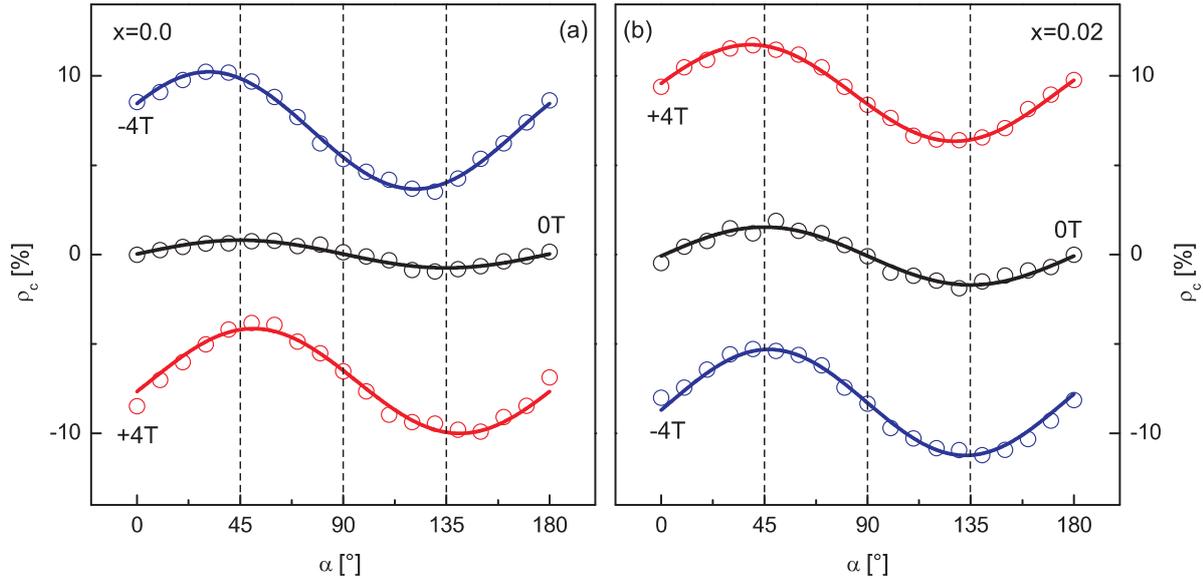
**Abb. 7.1:** (a) Linear-zirkular Konvertierung (LZK) für CdSe/ZnSe Quantenpunkte.  $\rho_c$  ist in Abhängigkeit des Winkels  $\alpha$  zwischen der Polarisationssebene des linear polarisierten Lasers und der Orientierung der Quantenpunkte entlang der  $[110]$  Achse des Kristalls dargestellt. Die durchgezogene Linie beschreibt eine Fitkurve an die experimentellen Daten mit  $\rho_c = A \sin 2\alpha$ . (b) Zusammenhang zwischen Laborkoordinaten (orange) und den Kristallachsen der Probe (grau). Die Polarisation des Lasers ist blau eingetragen ( $\pi_x$ ,  $\pi_y$ ).

Feinstrukturaufspaltung zu  $\delta_1 \approx -250 \mu\text{eV}$  bestimmt werden. Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit der in Kapitel 6.2 ermittelten Aufspaltung von  $\delta_1 \approx -230 \mu\text{eV}$ .

### 7.2.2 Linear-zirkular Konvertierung im longitudinalen Magnetfeld ( $\vec{B} \parallel \vec{z}$ )

Im nächsten Schritt wird die Konvertierung der linear polarisierten Anregung in zirkular polarisiertes PL-Signal im externen Magnetfeld parallel zur Wachstumsrichtung der  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Proben (Faraday Geometrie) untersucht. Abb. 7.2 zeigt den gemessenen zirkularen Polarisationsgrad in Abhängigkeit des Winkels  $\alpha$  zwischen der  $[110]$  Kristallachse und der Polarisationssebene des linear polarisierten Laserstrahls für Quantenpunkte mit einer  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration von  $x = 0.0$  (Abb. 7.2a) und  $x = 0.02$  (Abb. 7.2b). Die Messungen wurden für Magnetfelder von  $B = -4 \text{ T}$  (blau),  $B = 0$  (schwarz) und  $B = +4 \text{ T}$  (rot) durchgeführt.

Unabhängig vom  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt der untersuchten Quantenpunkte kann mit zunehmender magnetischer Feldstärke eine vertikale Verschiebung der zirkularen Polarisationskurven beobachtet werden. Für Quantenpunkte mit  $x = 0.0$  bedeutet dies, dass der sinusförmige Polarisationsverlauf im Fall  $B = \pm 4 \text{ T}$  um ca.  $\mp 7\%$  gegenüber dem Polarisationsgrad ohne Magnetfeld verschoben ist. Die Probe mit  $x = 0.02$  zeigt sogar eine Verschiebung von  $\pm 8.5\%$ . Damit unterliegt die vertikale Verschiebung, die durch den für  $B \neq 0$  nicht verschwindenden Beitrag des Terms  $f(Y_{lin}, Y_{zirk})$  hervorgerufen wird, beim Übergang von  $x = 0.0$  auf  $x = 0.02$  einem Vorzeichenwechsel. Dieser Wechsel erfolgt parallel zu der in Kapitel 6 beobachteten Vorzeichenumkehr des zirkularen Polarisationsgrades und lässt



**Abb. 7.2:** LZK gemessen an  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkten mit (a)  $x = 0.0$ , (b)  $x = 0.02$  für äußere Magnetfelder von  $B = 0$  T (schwarz),  $B = +4$  T (rot) und  $B = -4$  T (blau). Die entsprechenden Fitkurven sind als durchgezogene Linien eingezeichnet.

damit einen Zusammenhang mit dem Exziton-g-Faktor und der Zeeman-Aufspaltung der Eigenzustände vermuten. Mit

$$f(Y_{lin}, y_{zirk}) = + \frac{T}{\tau_s} \left[ \frac{\omega \Omega_{||} T^2}{1 + (\omega^2 + \Omega_{||}^2) T^2} Y_{lin} + \frac{1 + \Omega_{||}^2 T^2}{1 + (\omega^2 + \Omega_{||}^2) T^2} Y_{zirk} \right] \quad (7.8)$$

ändert der Beitrag der intrinsischen linearen Polarisation  $Y_{lin}$  abhängig von der Orientierung des Magnetfeldes und dem Wert des Exziton-g-Faktors das Vorzeichen, während der Term  $Y_{zirk}$  eine vom Vorzeichen der Zeeman-Aufspaltung unabhängige vertikale Verschiebung der Polarisationskurven bewirkt. Da jedoch für beide Proben eine symmetrische Verschiebung der zirkularen Polarisation für positive und negative Magnetfeldwerte beobachtet werden kann, lässt dies auf einen verschwindend geringen Beitrag der intrinsischen zirkularen Quantenpunktpolarisation schließen. Mit  $Y_{zirk} \approx 0$  unterstreicht dies die Dominanz von  $Y_{lin}$  und damit die ausgeprägte Asymmetrie der Quantenpunkte. Weiter weisen die Kurven für  $B \neq 0$  eine deutliche Änderung des Polarisationsgrades abhängig von der Polarisationssebene des Lasers auf und lassen damit auf eine zunehmende Interferenz zwischen den Eigenzuständen schließen. Dies geht auch aus Tab. 7.1 hervor. Hier sind zur besseren Übersicht sämtliche aus Gl. (7.6) gewonnenen Fitparameter zusammengefasst. Zusätzlich sind neben der absoluten Änderung der zirkularen Polarisation  $2A$  bezüglich der Polarisationssebene des Lasers und der vertikalen Verschiebung  $C$  die aus Gl. (6.15) und Abb. 6.6 (vgl. Kapitel 6.3) erhaltenen Werte für  $\rho_R$  angegeben.

Beim Vergleich von  $\rho_R$  und der Konstanten  $C$  (beide in Tab. 7.1 blau dargestellt) zeigt sich eine gute Übereinstimmung zwischen beiden Werten. Damit kann die beobachtete

**Tab. 7.1:** Parameter  $2A$ ,  $C$  und  $\Delta\varphi$  für  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkte mit  $x = 0.0$  (oben) und  $x = 0.02$  (unten). Zum Vergleich ist  $\rho_R(B)$  aufgelistet (vgl. Abb. 6.6).

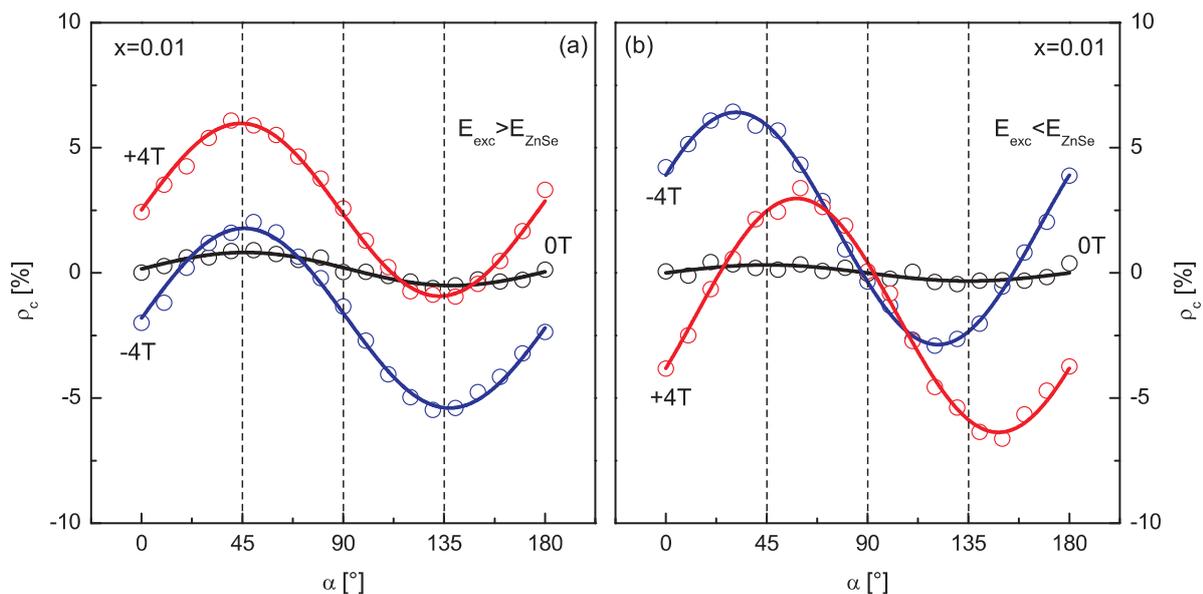
$x = 0.0$	$2A$ [%]	$C$ [%]	$\Delta\varphi$ [°]	$\rho_R(B)$ [%]
+4 T	6.1	-7.0	-7.7	-6.9
-4 T	6.6	+6.9	+8.1	+7.1
0 T	1.6	<0.1	<1	<0.1
$x = 0.02$	$2A$ [%]	$C$ [%]	$\Delta\varphi$ [°]	$\rho_R(B)$ [%]
+4 T	5.5	+8.5	<3	+8.8
-4 T	5.9	-8.3	<3	-8.7
0 T	3.2	<0.1	<1	<0.1

vertikale Verschiebung der Polarisationskurven auf einen mit steigendem Magnetfeld zunehmenden Relaxationsanteil  $\rho_R$  des zirkularen Polarisationsgrades zurückgeführt werden. Dies äußert sich auch in Gl. (7.5) durch die Abhängigkeit des Terms  $f(Y_{lin}, Y_{zirk})$  von der durch die Zeeman-Aufspaltung bestimmten Larmor-Präzession  $\Omega_{||}$  und der Spinrelaxationszeit  $\tau_s$ .

Weiter tritt für  $x = 0.0$  und  $x = 0.02$  in Anwesenheit eines äußeren Magnetfelds eine Phasenverschiebung  $\Delta\varphi$  der in Abb. 7.2 gezeigten Polarisationskurven auf. In Tab. 7.1 ist  $\Delta\varphi$  für Magnetfelder von  $B = \pm 4$  T angegeben. Die Phasenverschiebung des Signals wird durch den im Magnetfeld nicht verschwindenden Term  $\frac{T}{\tau_r} \frac{\omega\Omega_{||}T^2}{1+(\omega^2+\Omega_{||}^2)T^2} P^{l'}$  aus Gl. (7.5) hervorgerufen und weist nach Gl. (7.7) einen linearen Zusammenhang mit der Zeeman-Aufspaltung der Exzitonzustände auf. Dies äußert sich im Vorzeichenwechsel der Phasenverschiebung beim Vergleich der undotierten Quantenpunkte und der Probe mit 2%  $\text{Mn}^{2+}$ . Dabei fällt auf, dass für Quantenpunkte mit  $x = 0.02$  die Phasenverschiebung  $\Delta\varphi$  trotz vergleichbarer Absolutwerte des g-Faktors um mehr als einen Faktor zwei kleiner ist. Für die Phasenverschiebung  $\Delta\varphi$  gilt nach Gl. (7.5) und Gl. (7.6)  $\tan \Delta\varphi = \frac{b}{a} \propto \Omega_{||}T$ . Im Fall kleiner Werte für die Phasenverschiebung ist damit  $\Delta\varphi \propto T$ . Eine Erklärung für die beobachtete Abnahme von  $\Delta\varphi$  mit steigender  $\text{Mn}^{2+}$  liefert eine Gegenüberstellung der Spindephasierungszeiten  $T$  für die untersuchten Proben. Während  $\text{CdSe}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkte eine Spindephasierungszeit von  $T \approx 290$  ps besitzen, weist die mit 2%  $\text{Mn}^{2+}$  dotierte Probe einen mit  $T \approx 117$  ps um mehr als einen Faktor zwei reduzierten Wert auf<sup>1</sup>.

Abb. 7.3 zeigt die linear-zirkular Konvertierung für Quantenpunkte mit  $x = 0.01$  für Anregungsenergien  $E_{exc}$  oberhalb (Abb. 7.3a) und unterhalb (Abb. 7.3b) der ZnSe Bandkante. Für  $E_{exc} > E_{\text{ZnSe}}$  kann keine Phasenverschiebung der Polarisationskurven beobachtet

<sup>1</sup> $T$  wurde aus den in Kapitel 6 ermittelten Werte für  $\tau_r$  und  $\tau_s$  bestimmt.



**Abb. 7.3:** LZK gemessen an  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkten mit  $x = 0.01$  für Anregungsenergien  $E_{exc}$  oberhalb (a) und unterhalb (b) der Bandkante.

werden. Eine Dephasierung und damit eine Unterdrückung der Interferenz zwischen den Eigenzuständen liefert dabei keine zufriedenstellende Erklärung, da sowohl für  $B = 0$  als auch für  $B = \pm 4\text{ T}$  eine sinusförmige Abhängigkeit des zirkularen Polarisationsgrades von der Laserpolarisation auftritt. Dies deutet auf einen verschwindend geringen Einfluss der Laserpolarisation entlang der  $[100]$  beziehungsweise  $[010]$  Achse des Kristallgitters hin. Ein weiteres interessantes Merkmal weist die vertikale Verschiebung des Polarisationsgrades für Magnetfeldwerte von  $\pm 4\text{ T}$  auf. Trotz des in Kapitel 6 bestimmten, sehr geringen, aber dennoch negativen Exziton-g-Faktors zeigt die Verschiebung analog zur Probe mit  $x = 0.02$  einen negativen beziehungsweise positiven Wert für negative beziehungsweise positive Feldstärken. Als mögliche Ursache dafür kommt zum einen unter nicht resonanten Anregungsbedingungen eine scheinbar deutlich höhere Symmetrie des Quantenpunktensembles in Betracht. Ein Indiz für diese Tatsache liefert die parallel zur Zeeman-Aufspaltung geringe Feinstrukturaufspaltung  $\delta_1 = \hbar\omega$  der Eigenzustände. Dies hätte jedoch zur Folge, dass für  $E_{exc} > E_{\text{ZnSe}}$  der intrinsische zirkular polarisierte Anteil  $Y_{zirk}$  überwiegt. Unter der Voraussetzung, dass  $Y_{zirk}$  an das Vorzeichen des Magnetfelds gebunden ist, kann damit eine Erklärung für die beobachtete vertikale Verschiebung der PL-Polarisation gefunden werden.

Abb. 7.3 zeigt den Polarisationsverlauf für eine Energie der Laserphotonen unterhalb der ZnSe Bandkante. Zunächst fällt auf, dass im Gegensatz zu  $E_{exc} > E_{\text{ZnSe}}$  das Vorzeichen der vertikalen Verschiebung invertiert ist. Für  $B = \pm 4\text{ T}$  kann ein Wert von  $C \approx \mp 2\%$  ermittelt werden und ist damit im Einklang mit den aus Kapitel 6 bekannten Werten von  $\rho_R$ . Da die Verschiebung der Polarisationskurven für positive und negative Magnetfeldorientierung symmetrisch verläuft, überwiegt in diesem Fall die intrinsische lineare Polarisation der Quantenpunkte. Während dagegen für  $B = 0$  die Amplitude der

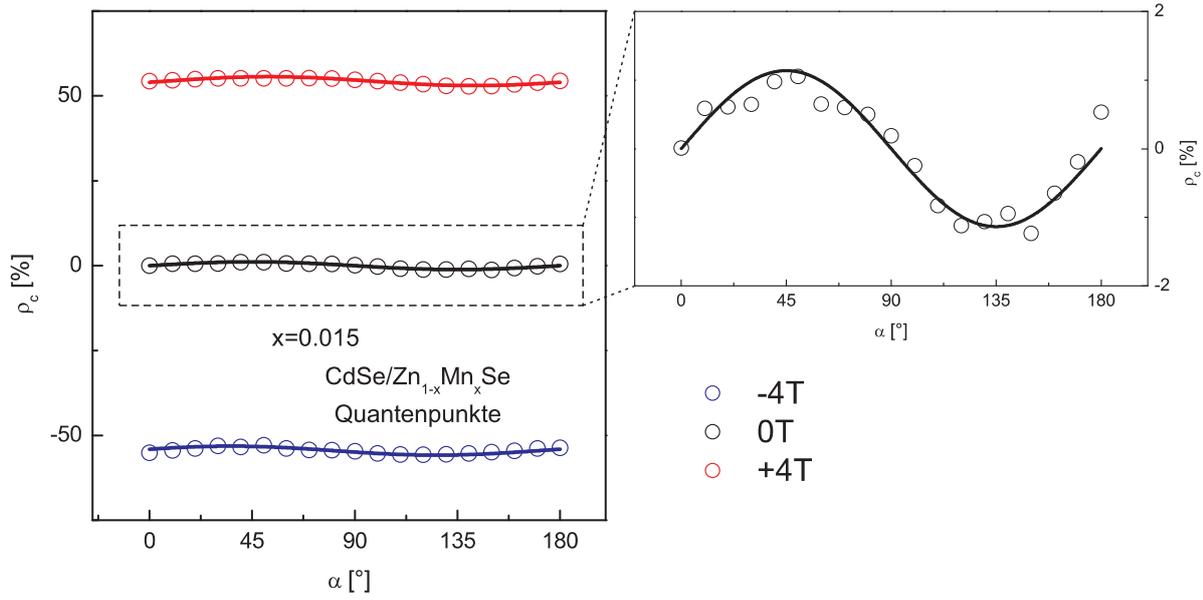
PL-Oszillation einen sehr kleinen Wert aufweist, zeigt sich im Vergleich zu nicht resonanter Anregung eine deutlich stärkere Variation des zirkularen Polarisationsgrades für  $B = \pm 4 \text{ T}$  und legt damit eine ausgeprägte Interferenz zwischen den Eigenzuständen der Quantenpunkte nahe. Für  $B = 0$  und  $\delta_1 < 3 \mu\text{eV}$  ergibt sich  $\omega T < 1$ . In diesem Fall setzt die Spindephasierung der Ladungsträger ein, bevor diese einen vollständigen Präzessionszyklus durchlaufen haben und unterbindet damit kohärente Überlagerungen der exzitonischen Zustände. Anders dagegen für  $B \neq 0$ . Hier gilt ab einem Magnetfeld von etwas mehr als  $1 \text{ T}$   $\omega T > 1$ . Dies ermöglicht damit eine Interferenz zwischen den Eigenzuständen und somit eine Konvertierung der linearen Anregungspolarisation in zirkular polarisiertes PL-Licht.

Weiter zeigen die Quantenpunkte mit geringer Zeeman-Aufspaltung ( $x = 0.01$ ) eine im Vergleich zu  $x = 0.0$  und  $x = 0.02$  deutlich erhöhte Phasenverschiebung  $\Delta\varphi$  und unterstreichen damit den Einfluss der Anregungspolarisation entlang der  $[100]$  beziehungsweise  $[010]$  Achse des Kristallgitters für ein solches System. Im Fall  $B = \pm 4 \text{ T}$  kann eine Phasenverschiebung von  $\Delta\varphi \approx \mp 30^\circ$  beobachtet werden. Mit dem Exziton-g-Faktor  $g_x \approx -0.05$  und einer Spindephasierungszeit  $T \approx 215 \text{ ps}$  lässt sich das Verhältnis der Beiträge für eine Orientierung der Laserpolarisation entlang der  $[110]$  und parallel zur  $[100]$  Richtung  $P_0'/P_0^l$  zu ca.  $15\%$  bestimmen. Im Vergleich ergibt sich für die Proben mit einem  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt von  $x = 0.0$  und  $x = 0.02$  lediglich ein Beitrag von  $P_0'/P_0^l \approx 0.1\%$ .

### 7.3 CdSe/Zn<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se Quantenpunkte

Die vorangegangenen Untersuchungen haben gezeigt, dass für Quantenpunkte mit einer verschwindend geringen Zeeman-Aufspaltung der Exzitonzustände im Magnetfeld die linear-zirkular Konvertierung des PL-Signals am stärksten ausgeprägt zu sein scheint. Um dies zu bestätigen, soll an dieser Stelle ein Vergleich mit CdSe/Zn<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se Quantenpunkten erfolgen, die eine deutlich größere Zeeman-Aufspaltung besitzen. In Abb. 7.4 ist die zirkulare Polarisation des PL-Signals für Quantenpunkte mit einer nominellen  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration der ZnSe Barriere von  $x = 0.015$  als Funktion der Orientierung des linear polarisierten Laserstrahls dargestellt.  $\alpha = 0^\circ$  entspricht dabei analog zu Abb. 7.1 einer linearen Polarisation entlang der  $[110]$  Achse der Probe. Die Untersuchung wird für Magnetfelder von  $B = 0$  und  $B = \pm 4 \text{ T}$  durchgeführt.

Wie bei Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se/ZnSe Quantenpunkten zeigt sich ohne Magnetfeld und einer Anregungspolarisation parallel zur  $[110]$  beziehungsweise  $[\bar{1}\bar{1}0]$  Achse des Gitters ( $P^l = 0$ ,  $P^{l'} \neq 0$ ) keine Konvertierung der linearen Anregungspolarisation in zirkular polarisierte PL-Emission. Dagegen beobachtet man für eine Laserpolarisation entlang zur  $[100]$  beziehungsweise  $[010]$  Achse einen maximalen Wert der zirkularen Polarisation von  $\rho_c \approx 1.2\%$ . Im Gegensatz zu den Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se/ZnSe Quantenpunkten mit vergleichbarer  $\text{Mn}^{2+}$  Dotierung kann auch im äußeren Magnetfeld keine Phasenverschiebung der Polarisationskurven beobachtet werden. Dies lässt den Schluss zu, dass eine Orientierung der Polarisations Ebene entlang der  $[110]$  beziehungsweise  $[\bar{1}\bar{1}0]$  Richtung lediglich einen vernachlässigbaren Beitrag zur zirkularen Polarisation beisteuert und sich damit für  $\Omega_{\parallel} T \ll 1$  ergibt. Zwar weisen diese Quantenpunkte im Vergleich zu den untersuchten Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se/ZnSe Proben



**Abb. 7.4:** LZK gemessen an CdSe/Zn<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se Quantenpunkten mit  $x = 0.015$  für  $B = 0$  T (schwarz),  $B = +4$  T (rot) und  $B = -4$  T (blau). Die entsprechenden Fitkurven sind als durchgezogene Linien eingezeichnet.

eine wesentlich größere Zeeman-Aufspaltung auf, doch ist aufgrund der stärkeren Mn<sup>2+</sup> Dotierung von einer deutlich geringeren Spindephasierungszeit  $T$  auszugehen. Nach Kapitel 9 besitzen diese Quantenpunkte eine um einen Faktor vier geringere Lebensdauer als die Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se/ZnSe Probe mit vergleichbarem Mn<sup>2+</sup> Anteil von  $x = 0.02$ . Aus den in Kapitel 6 durchgeführten Untersuchungen und Überlegungen kann die Spinrelaxationszeit  $\tau_s$  in der Größenordnung der Exzitonlebensdauer angenommen werden und führt damit zu einer deutlich schnelleren Spindephasierung der Ladungsträger.

**Tab. 7.2:** Werte von  $2A$ ,  $C$  sowie  $\rho_R(B)$  gemessen an CdSe/Zn<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se Quantenpunkten mit  $x = 0.015$  für  $B = +4$  T,  $B = -4$  T und  $B = 0$  T.

$x = 0.015$	$2A$ [%]	$C$ [%]	$\rho_R(B)$ [%]
+4 T	2.6	+54.3	+55.2
-4 T	2.7	-54.5	-55.6
0 T	2.8	-	-

Weiter weisen die Polarisationskurven im externen Magnetfeld eine deutliche vertikale Verschiebung auf und unterstreichen damit die Dominanz der intrinsischen Polarisation  $Y_{lin}$  und somit den stark asymmetrischen Charakter der Quantenpunkte. So kann für Feldstärken von  $\pm 4$  T eine zirkulare Polarisation des PL-Signals von mehr als  $\rho_c > 50\%$  beobachtet werden. Im Gegensatz dazu unterliegt die Amplitude des sinusförmigen Po-

larisationsverlaufs mit steigendem Magnetfeld keiner wesentlichen Änderung. In Tab. 7.2 sind die entsprechenden Parameter zusammengefasst.

Ein Vergleich zwischen den aus Kapitel 6.7 gewonnenen Werten für  $\rho_R$  und den Fitparametern aus Tab. 7.2 bestätigt den Zusammenhang zwischen  $\rho_R$  und  $C$ . Weiter fällt auf, dass die Amplitude der Oszillationskurven für  $B = \pm 4$  T deutlich geringer ausfällt als für Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se/ZnSe Quantenpunkte. Dies unterstreicht den bereits in Kapitel 6.7 hervorgerufenen Aspekt, dass im Gegensatz zu Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se/ZnSe Quantenpunkten der durch die Zeeman-Aufspaltung bedingte Relaxationsanteil  $\rho_R$  den zirkularen Polarisationsgrad maßgeblich dominiert. Vergleichbare Ergebnisse konnten auch für CdSe/Zn<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se Proben mit  $x = 0.032$  und  $x = 0.053$  erzielt werden.



# 8 Polarisation unter Voigt-Geometrie

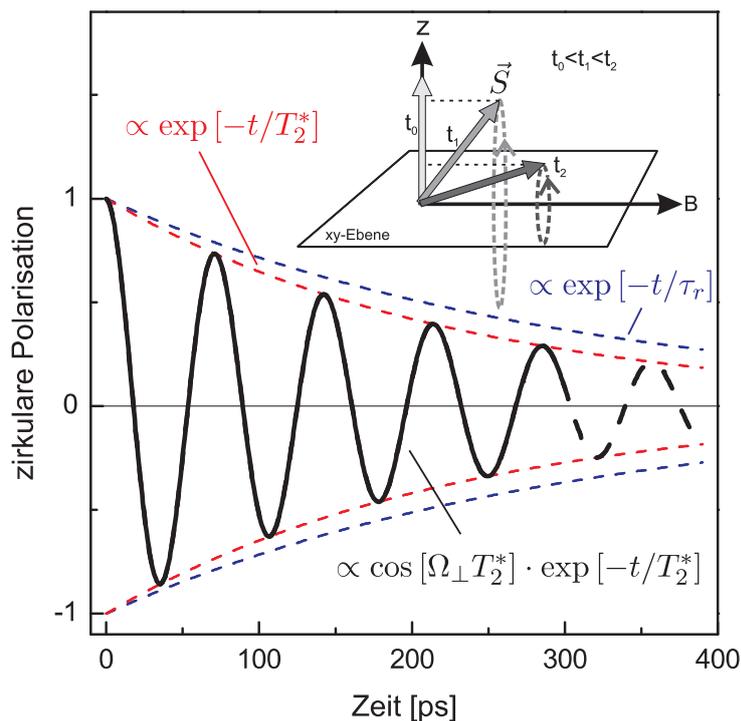
Im nachfolgenden Kapitel soll der Verlauf des zirkularen Polarisationsgrades  $\rho_c(B)$  für die  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Quantenpunktproben in Abhängigkeit eines äußeren Magnetfelds in Voigt-Geometrie untersucht werden. Hierzu wird wiederum der in Kapitel 3.1.1, Abb. 3.1 dargestellte Versuchsaufbau verwendet. Zur optischen Anregung von Ladungsträgern dient das zirkular polarisierte Licht einer GaN Laserdiode mit einer Wellenlänge von  $\lambda = 448 \text{ nm}$ . Damit liegt die Energie der Photonen mit  $E_{exc} \approx 2.7678 \text{ eV}$  unterhalb der ZnSe Bandkante des Barrierenmaterials der untersuchten Proben. Die Orientierung des Magnetfelds in Voigt-Geometrie, also senkrecht zur Wachstumsrichtung der Proben ( $\vec{B} \perp \vec{z}$ ), kann hierbei durch eine um  $90^\circ$  verdrehte Ausrichtung des Magnetkryostaten erreicht werden. Auch bei den nachfolgenden Experimenten werden die Proben im Heliumbad bei einer Temperatur von etwa  $1.5 \text{ K}$  gehalten. Das Hauptaugenmerk bei diesen Untersuchungen liegt auf dem so genannten Hanle-Effekt, der auf Präzession der in z-Richtung polarisierten photogenerierten Ladungsträgerspins um das dazu senkrecht orientierte Magnetfeld basiert. Es zeigt sich, dass der Polarisationsgrad des zeitintegrierten PL-Signals mit zunehmender Magnetfeldstärke drastisch abnimmt. Lediglich für Quantenpunkte mit einem  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt von  $1\%$ , die eine besonders geringe Feinstrukturaufspaltung  $\delta_1$  und in Faraday-Geometrie einen nahezu verschwindenden Exziton-g-Faktor aufweisen, zeigt sich abhängig von der Orientierung des Magnetfelds und der Laserpolarisation ein asymmetrisches Verhalten des Polarisationsgrades mit steigender Feldstärke.

## 8.1 Der Hanle-Effekt

### 8.1.1 Grundlagen

Unter dem Hanle-Effekt versteht man die Abnahme der Polarisation der Lumineszenz durch ein von außen an das System angelegtes transversales Magnetfeld. Der experimentelle Nachweis gelang erstmals Wilhelm Hanle im Jahr 1924 anhand der Resonanzfluoreszenz von Quecksilbergas [Han91]. Bis zur ersten Beobachtung im Festkörper vergingen noch gut zwanzig Jahre, ehe R. R. Parson hierzu Untersuchungen an p-dotiertem GaSb durchführte [Par69].

Bedeutung für die moderne Festkörperphysik ultra-schneller Systeme erlangt der Hanle-Effekt durch die Präzession photogenerierter Ladungsträgerspins um das transversale Magnetfeld  $\vec{B}$  mit der Larmor-Frequenz  $\Omega_\perp = \mu_B g_\perp B / \hbar$ .  $\mu_B$  ist hierbei das Bohrsche Magneton und  $g_\perp$  der g-Faktor in der Probenebene. Das bedeutet, falls der zirkular polarisierte Laserstrahl senkrecht zum Magnetfeld steht, gilt  $\vec{S}_0 \perp \vec{B}$ , so dass die Spinkomponente  $S_z$  entlang der Wachstumsrichtung der Proben periodisch mit der Larmor-Frequenz



**Abb. 8.1:** Schematische Darstellung des Hanle-Effekts. Verwendete Parameter:  $g_{\perp} = 1$ ,  $B = 1 \text{ T}$ ,  $\tau_r = 300 \text{ ps}$  und  $\tau_s = 1 \text{ ns}$ .

$\Omega_{\perp}$  oszilliert [Mei84]. Ein solches Szenario ist in Abb. 8.1 dargestellt. Durch die Relaxation der Ladungsträgerspins  $\tau_s$  und aufgrund der endlichen Rekombinationsdauer der photogenerierten Ladungsträger  $\tau_r$  nimmt die mittlere Spinkomponente  $S_z$  mit der Zeit ab. Die effektive Lebensdauer der Ladungsträgerspins beziehungsweise die Spindephasierungszeit  $T_2^*$  mehrerer Ladungsträgerspins eines Quantenpunktensembles kann damit folgendermaßen ausgedrückt werden [Mei84]:

$$\frac{1}{T_2^*} = \frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_s} \quad (8.1)$$

Mit steigendem Magnetfeld vollführt der Ladungsträgerspin  $\vec{S}$  in der Zeit  $T_2^*$  eine zunehmende Anzahl an Präzessionen um die Richtung des externen Feldes  $\vec{B}$ , wodurch der mittlere Betrag der Komponente  $S_z$  abnimmt. Nach dem Pseudospin-Modell gilt jedoch für die so genannten Stokes-Parameter  $\rho_c \approx S_z$ . Damit beschreibt  $S_z$  direkt die beobachtbare zirkuläre Polarisation  $\rho_c$  des PL-Signals. Die mit der Larmor-Präzession um das transversale Magnetfeld verbundene Zeitabhängigkeit der Komponente  $S_z$  beziehungsweise des zirkulären Polarisationsgrades  $\rho_c$  kann damit durch folgenden Ausdruck beschrieben werden.

$$\rho_c(B, t) = \rho_0 \cos(\Omega_{\perp} t) \cdot \exp[-t/T_2^*] \quad (8.2)$$

Der Term  $\exp[-t/T_2^*]$  beschreibt dabei die zeitliche Dephasierung der Ladungsträgerspins und  $\cos(\Omega_\perp t)$  den von der Larmor-Präzession stammenden oszillierenden Anteil von  $S_z(t)$ . Die Konstante  $\rho_0$  ist eine systemabhängige Größe und spiegelt die mit der anfänglichen Spinorientierung  $\vec{S}_0$  verbundene initiale zirkulare Polarisation wieder.

Der Verlauf des zeitintegrierten Polarisationsgrades kann nun durch Integration und zeitliche Mittelung der Spinkomponente  $S_z(t)$  erfolgen. Hierbei stellt die Rekombination der Ladungsträger  $\tau_r$  eine Obergrenze dar, so dass der Anteil für  $t > \tau_r$  keinen nennenswerten Einfluss mehr auf den Polarisationsverlauf nimmt. Damit kann zur zeitlichen Mittelung der Spinkomponente  $S_z$  Gl. (8.2) von  $t = 0$  bis  $t \rightarrow \infty$  integriert werden und man erhält für  $\rho_c(B)$ :

$$\rho_c(B) = \frac{\rho_0}{\tau_r} \int_{t=0}^{t \rightarrow \infty} \cos(\Omega_\perp t) \cdot \exp[-t/T_2^*] dt = \frac{\rho(0)}{1 + (\Omega_\perp T_2^*)^2}, \quad (8.3)$$

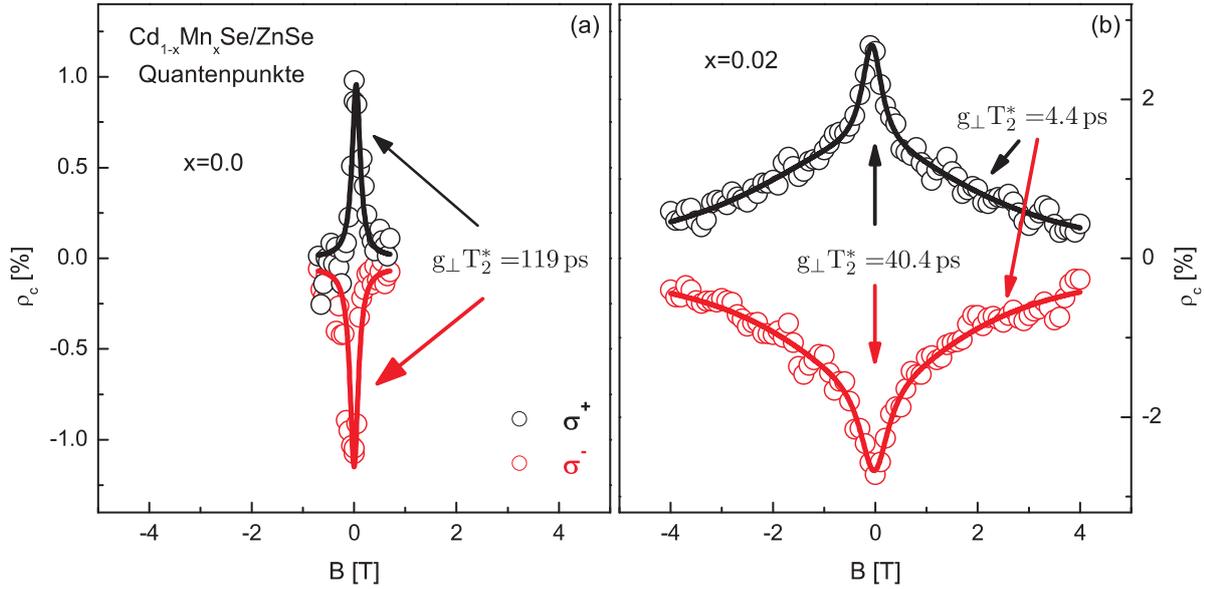
mit  $\rho(0) = \frac{\rho_0}{1 - \tau_r/\tau_s}$  [Eps01]. Nach Gl. (8.3) erhält man einen Lorentz-förmigen Verlauf des zirkularen Polarisationsgrades  $\rho_c(B)$  in Abhängigkeit des transversalen Magnetfelds  $\vec{B}$ , dessen Breite durch den g-Faktor  $g_\perp$  sowie die Spindephasierungszeit  $T_2^*$  bestimmt wird. Damit stellt der Hanle-Effekt eine einfache Möglichkeit dar, mittels zeitintegrierter PL-Spektroskopie die Spindephasierungszeit  $T_2^*$  zu ermitteln. Bei bekanntem g-Faktor muss hierzu lediglich der zirkulare Polarisationsgrad für  $B = 0$  und die Halbwertsbreite der Polarisationskurve  $B_{1/2} = \frac{\hbar}{g_\perp \mu_B T_2^*}$  bestimmt werden. Abhängig vom untersuchten System variiert der Wert für  $B_{1/2}$  zwischen 0.1 mT und wenigen Tesla [Mei84]. Umgekehrt erlaubt Gl. (8.3) für bekannte Zeiten  $\tau_r$  und  $\tau_s$  eine Abschätzung des g-Faktors in Voigt-Geometrie. Analog kann Gl. (8.3) auch durch den in Kapitel 7.1 vorgestellte Pseudospin-Formalismus gewonnen werden. Die zeitliche Änderung des effektiven Spins  $\vec{S}$  kann durch Gl. (7.3) ausgedrückt werden. Der stationäre Fall  $\frac{d}{dt}\vec{S} = 0$  und die Näherung  $\vec{\Omega} \perp \vec{S}_0$  liefern dann ebenfalls den in Gl. (8.3) gezeigten Ausdruck für den zirkularen Polarisationsgrad.

### 8.1.2 Experimentelle Ergebnisse

Abb. 8.2 zeigt den experimentell bestimmten Verlauf des zirkularen Polarisationsgrades  $\rho_c(B)$  in Abhängigkeit des transversalen Magnetfelds für Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se/ZnSe Quantenpunkte mit  $x = 0.0$  (Abb. 8.2a) und  $x = 0.02$  (Abb. 8.2b). Die Messungen wurden dabei sowohl für  $\sigma^+$  (schwarze Symbole) wie auch für  $\sigma^-$  polarisiertes Laserlicht (rote Symbole) durchgeführt.

Für Quantenpunkte ohne Mn<sup>2+</sup> Dotierung zeigt sich der nach Gl. (8.3) erwartete Lorentz-förmige Verlauf des Hanle-Signals mit einer maximalen zirkularen Polarisation für  $B = 0$  von  $\rho(0) \approx \pm 1.1\%$ . Mit steigender Magnetfeldstärke lässt sich für beide Anregungspolarisationen eine rasche Abnahme des zirkularen Polarisationsgrades beobachten.

Die Halbwertsbreite der Hanle-Kurve beträgt lediglich  $B_{1/2} \approx \pm 40$  mT. Aus dem theoretischen Verlauf gemäß Gl. (8.3) kann die für die Breite des Signals charakteristische Größe  $gT_2^*$  zu ca. 119 ps bestimmt werden. Nach *Flissikowski et al.* wird die Larmor-Präzession eines einzelnen Ladungsträgerspins durch die Austauschspaltung  $\delta_1$  des Quantenpunktgrundzustands bestimmt [Fli01]. Da jedoch bei der Untersuchung am Ensemble viele

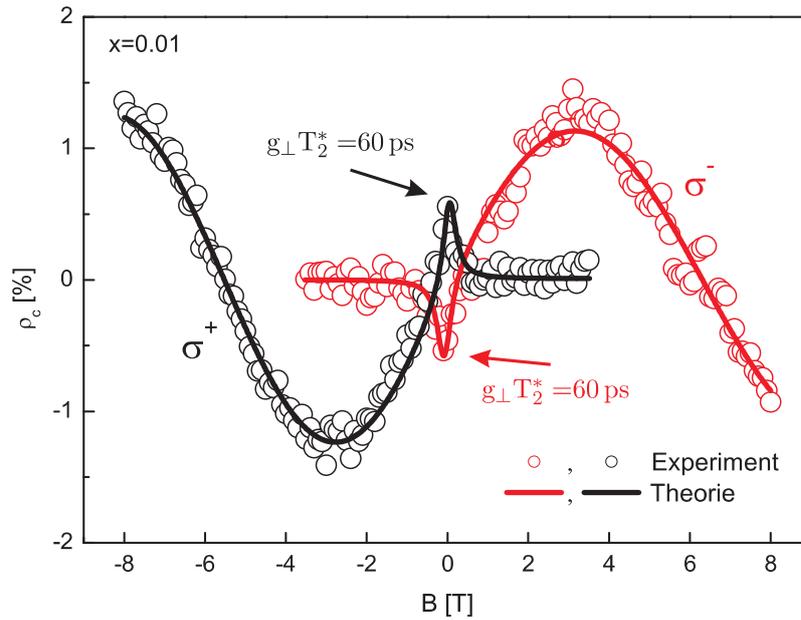


**Abb. 8.2:** Hanle-Signal gemessen an  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkten mit einer  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration von (a)  $x = 0.0$  und (b)  $x = 0.02$  für  $\sigma^+$  (schwarz) und  $\sigma^-$  polarisierte Anregung (rot). Die durchgezogenen Kurven beschreiben den Lorentz-artigen Verlauf nach Gl. (8.3).

Quantenpunkte mit unterschiedlicher Austauschaufspaltung zum Hanle-Signal beitragen, hängt dessen Verlauf maßgeblich von der Homogenität der Quantenpunkte ab. Deshalb ist davon auszugehen, dass die über  $\delta_1$  bestimmte Spindephasierung ( $T_2^* > \hbar/|\delta_1|$ ) nur als unterste Grenze anzusehen ist. Im Fall von  $\text{CdSe}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkten kann ein unterer Wert für  $T_2^*$  unter der Annahme relativ großer Spinrelaxationszeiten  $\tau_s \gg \tau_r$  abgeschätzt werden. Dadurch wird  $T_2^*$  näherungsweise durch die Exzitonlebensdauer  $\tau_r$  bestimmt. Mit  $T_2^* \approx \tau_r = 320$  ps (vgl. Kapitel 6.3, Abb. 6.7) ergibt sich für die Obergrenze des g-Faktors ein Wert von ca.  $|g_{\perp}| \approx 0.4$ . Beim Vergleich mit dem g-Faktor unter Faraday-Geometrie zeigt sich in Übereinstimmung mit Kapitel 2.6.2, dass für  $\vec{B} \perp \vec{z}$  die Zeeman-Aufspaltung der beiden Quantenpunktgrundzustände lediglich eine untergeordnete Rolle spielt.

Erhöht man den  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt der Quantenpunkte auf nominell 2% (Abb. 8.2b), so ist eine deutliche Verbreiterung des Hanle-Signals zu verzeichnen. Im Vergleich zu reinen  $\text{CdSe}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkten beträgt die charakteristische Halbwertsbreite der Polarisationskurven für  $\sigma^+$  (schwarz) und  $\sigma^-$  polarisierte Anregung (rot)  $B_{1/2} \approx 1$  T und ist damit in etwa 25 mal größer. Weiter fällt auf, dass der Verlauf des zirkularen Polarisationsgrades nicht mehr durch Gl. (8.3) beschrieben werden kann. Stattdessen kann eine gute Anpassung an die experimentellen Daten durch die Addition zweier Lorentz-Kurven mit deutlich unterschiedlichen Werten für  $g_{\perp} T_2^*$  gewonnen werden. Diese für den Dephasierungsprozess der Ladungsträger relevante Größe kann aus dem theoretischen Verlauf der Kurven bestimmt werden. Im Vergleich zu  $\text{CdSe}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkten ergeben sich mit  $g_{\perp} T_2^* \approx 4.4$  ps und  $g_{\perp} T_2^* \approx 40.4$  ps deutlich geringere Werte.

Ähnliche Resultate wurden bereits von *Epstein et al.* [Eps01] an selbstorganisierten  $\text{InAs}$  Quantenpunkten erzielt. Die Autoren kommen dabei zu dem Schluss, dass eine solche



**Abb. 8.3:** Zirkularer Polarisationsverlauf für Quantenpunkte mit  $x = 0.01$  in Abhängigkeit der transversalen Magnetfeldstärke ( $\vec{B} \perp \vec{z}$ ) unter zirkular polarisierter Anregung ( $\sigma^+ \rightarrow$  schwarz;  $\sigma^- \rightarrow$  rot). Die durchgezogenen Kurven beschreiben den nach Gl. (8.4) theoretischen Verlauf der zirkularen Polarisation  $\rho_c$ .

Form des Hanle-Signals ein Indiz für eine biexponentielle Dephasierung der Ladungsträgerspins darstellt. So konnten *Gupta et al.* [Gup99] an CdSe Quantenpunkten mittels Faraday-Rotation eine inhomogene Dephasierung der Ladungsträgerspins mit einer multiperiodischen Larmor-Präzession beobachten. Auch die durch den Einbau von Mangan auftretende sp-d Austauschwechselwirkung zwischen den photogenerierten Ladungsträgern und dem Elektronenspin der  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen beeinflusst maßgeblich das Dephasierungsverhalten. Mittels Kerr-Rotation konnte an CdMnSe/ZnSe Quantenpunkten mit einer  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration von 2% bereits ein biexponentielles Dephasierungsverhalten der  $\text{Mn}^{2+}$  Spins beobachtet werden [Sch06a].

Ein überraschendes Ergebnis weisen dagegen Quantenpunkte mit einem nominellen  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt von  $x = 0.01$  auf. Abb. 8.3 zeigt den Verlauf des zirkularen Polarisationsgrades der Quantenpunkt PL in Abhängigkeit eines transversalen Magnetfelds für  $\sigma^+$  (schwarz) und  $\sigma^-$  (rot) polarisierte Anregung. Im Gegensatz zu den Proben mit  $x = 0.0$  und  $x = 0.02$  spielt der Lorentz-artige Hanle-Verlauf mit einem maximalen Wert bei  $B = 0$  von  $\rho(0) \approx 0.6\%$  und einer Halbwertsbreite von ungefähr  $B_{1/2} \approx 190$  mT lediglich eine untergeordnete Rolle. Während unter  $\sigma^-$  polarisierter Anregung für negative Magnetfeldwerte der zirkulare Polarisationsgrad schnell auf  $\rho_c = 0$  abfällt, weist er für positive Feldstärken bis  $+8$  T einen periodischen Verlauf auf. Bei einer Feldstärke von etwa  $B \approx +0.3$  T kann ein Vorzeichenwechsel der zirkularen Polarisation beobachtet werden, die anschließend für  $B \approx +3$  T einen maximalen Wert von  $\rho_c \approx +1.2\%$  erreicht. Mit weiter steigender Feldstärke nimmt  $\rho_c$  ab und erfährt bei  $B \approx +6$  T eine erneute Vor-

zeichenumkehr. Im Bereich zwischen  $B = +6\text{ T}$  und  $B = +8\text{ T}$  steigt der Wert der zirkularen Polarisation auf  $\rho_c(+8\text{ T}) \approx 1.1\%$  an und dürfte ein erneutes Maximum bei etwa  $B = +9\text{ T}$  erreichen. Analog dazu weist der zirkulare Polarisationsverlauf unter  $\sigma^+$  polarisierter Anregung (schwarze Kurve) ein punktsymmetrisches Verhalten auf. Die Oszillationen des Polarisationsgrades für negative Magnetfeldwerte weisen ebenfalls eine Periodizität von  $B_{\text{Periode}} \approx 12\text{ T}$  auf. Für  $B > 0$  dagegen strebt der Polarisationsgrad Lorentz-förmig gegen  $\rho_c = 0$ .

Es bleibt festzuhalten, dass dieser Effekt lediglich für Quantenpunkte mit nahezu verschwindendem Exziton-g-Faktor und einer sehr geringe Feinstrukturaufspaltung  $\delta_1$  beobachtet werden konnte (siehe Kapitel 6). Dies legt die Vermutung einer magnetfeldabhängigen Superposition der in Voigt-Geometrie linear polarisierten Eigenzustände  $|\pi_x\rangle$  und  $|\pi_y\rangle$  nahe. Auch wenn die Ursache noch nicht im Detail verstanden ist, können die experimentellen Daten in Abb. 8.3 durch das Lorentz-förmige Hanle-Signal aus Gl. (8.3) und einem periodischen Ansatz beschrieben werden:

$$\rho_c = \rho_c^{\text{oszi}} \cdot \sin \varphi(B) + H(B), \quad (8.4)$$

$\rho_c^{\text{oszi}}$  beschreibt dabei den maximalen Wert des periodischen Anteils und der Term  $H(B)$  entspricht dem erwarteten Hanle-Signal nach Gl. (8.3).

Um mit Gl. (8.4) den Verlauf der experimentellen Daten wiederzugeben, wird für die Abhängigkeit der Phase  $\varphi$  vom externen Magnetfeld phänomenologisch ein linearer Ansatz  $\varphi(B) = 2\xi B$  gewählt. Mit dieser Annahme und einer je nach Orientierung des Magnetfelds und der Anregungspolarisation geeigneten Wahl für  $\rho_c^{\text{oszi}}$  kann der experimentelle Verlauf recht gut angepasst werden. Die entsprechende Wahl der Parameter ist in Tab. 8.1 zusammengefasst.

**Tab. 8.1:** Wahl der Parameter  $\varphi(B)$  und  $\rho_c^{\text{oszi}}$  in Abhängigkeit der Anregungspolarisation und der Orientierung des externen Magnetfeldes.

$\sigma^+, B > 0$	$\sigma^+, B < 0$	$\sigma^-, B > 0$	$\sigma^-, B < 0$	mit: $\varphi(B) = 2\xi B$
$\rho_c^{\text{oszi}} = 0$	$\rho_c^{\text{oszi}} \neq 0$	$\rho_c^{\text{oszi}} \neq 0$	$\rho_c^{\text{oszi}} = 0$	

Die durchgezogenen Linien in Abb. 8.3 zeigen den nach Gl. (8.4) bestimmten Verlauf für  $\sigma^+$  und  $\sigma^-$  polarisierte Anregung. Mit den Parametern  $\rho(0) = \pm 0.58\%$ ,  $gT_2^* = 60\text{ ps}$ ,  $\rho_c^{\text{oszi}} = 1.2\%$  und  $2\xi = 0.54\text{ rad} \cdot \text{T}^{-1}$  ergibt sich für beide Anregungspolarisationen eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten.

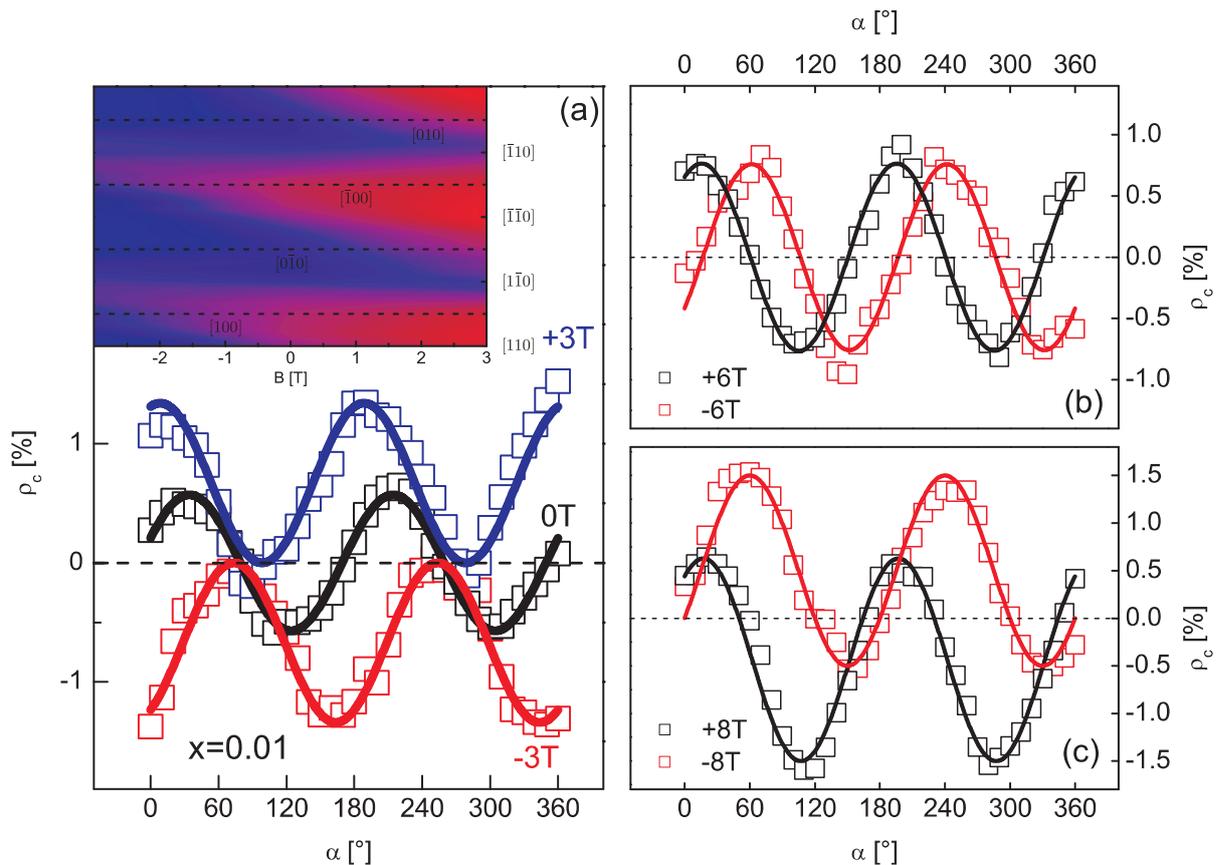
Diese Beobachtungen deuten somit darauf hin, dass  $\rho_c$  sowohl polarisations- sowie magnetfeldabhängig ist. Durch geeignete Wahl der entlang der z-Achse projizierten Anregungspolarisation und des Vorzeichens des entlang der x-Achse orientierten Magnetfeldes kann ein periodisch variierender Polarisationsverlauf des PL-Signals beobachtet werden. Im

umgekehrten Fall scheint durch Wahl der Anregungspolarisation und der Orientierung des Magnetfelds eine sich periodisch ändernde Superposition der linearen Eigenzustände unterdrückt zu sein.

## 8.2 Linear-zirkular Konvertierung in Voigt-Geometrie

Der periodische Charakter des zirkularen Polarisationsgrades der Quantenpunkt PL durch Superposition der in Voigt-Geometrie linear polarisierten Eigenzustände kann auch unter linear polarisierter Anregung beobachtet werden. Hierbei wird analog zu Kapitel 7 die Polarisations Ebene des linear polarisierten Laserstrahls schrittweise um den Winkel  $\alpha$  gegenüber der  $[110]$  Achse des Kristallgitters verdreht (vgl. Abb. 7.1) und jeweils die zirkulare Polarisation des PL-Signals bestimmt. Analog zu den Ergebnissen aus Kapitel 7.2 – mit einem externen Magnetfeld in Faraday-Geometrie – kann im Fall transversaler Magnetfelder eine vom Anregungswinkel abhängige Variation des zirkularen Polarisationsgrades durch Superposition der Eigenzustände beobachtet werden.

Abb. 8.4 zeigt den Verlauf des zirkularen Polarisationsgrades der Quantenpunkt PL in Abhängigkeit der Orientierung des linear polarisierten Anregungslasers für unterschiedli-



**Abb. 8.4:** Linear-zirkular-Konvertierung des PL-Signals für Quantenpunkte mit  $x = 0.01$  und einem transversalen Magnetfeld von (a)  $B = 0$ ,  $B = \pm 3$  T, (b)  $B = \pm 6$  T und (c)  $B = \pm 8$  T.

che Magnetfeldstärken. In Anlehnung an die Untersuchungen in Faraday-Geometrie weist der zirkulare Polarisationsgrad eine von der Polarisationssebene des Laserstrahls abhängigen sinusförmige Variation auf. Die durchgezogenen Linien repräsentieren Fitfunktionen mit

$$\rho_c = \rho_0 \sin(2\alpha + \varphi) + \rho_{off}(B). \quad (8.5)$$

Hierbei bezeichnet  $\rho_{off}(B)$  die vertikale Verschiebung und  $\rho_0$  die Amplitude der beobachteten Oszillation. Der Winkel  $\alpha$  kennzeichnet die Orientierung der Polarisationssebene des linear polarisierten Laserlichts. Für  $\alpha = 0$  ist der Laser entlang der  $[110]$  Achse des Kristallgitters polarisiert, während für  $\alpha = 45^\circ$  eine Orientierung des elektrischen Feldes entlang der  $[010]$  Achse und für  $\alpha = 90^\circ$  parallel zur  $[\bar{1}\bar{1}0]$  Richtung vorliegt (vgl. Abb. 7.1).

Für  $B = 0$  kann das Maximum des zirkularen Polarisationsgrades für eine Laserpolarisation entlang der  $[010]$  beziehungsweise  $[100]$  Achse des Kristallgitters beobachtet werden. Wie Abb. 8.4a zeigt, tritt mit steigenden Magnetfeldwerten eine Verschiebung dieser Orientierung bezüglich des Kristallgitters abhängig vom Vorzeichen des externen Magnetfelds auf. So zeigt sich für  $B = +3\text{ T}$  eine Verschiebung entgegen dem Uhrzeigersinn ausgehend von  $[010]$  in Richtung der  $[\bar{1}00]$  Achse, beziehungsweise von  $[100]$  nach  $[110]$ . Zudem nimmt  $\rho_{off}$  mit steigendem Magnetfeld zu und erreicht für  $B = +3\text{ T}$  einen Wert von  $\rho_{off} \approx \frac{1}{2}\rho_0$ , so dass der zirkulare Polarisationsgrad unabhängig von der Orientierung der Anregungspolarisation stets positive Werte ( $\rho_c(+3T) \geq 0$ ) aufweist. Für eine entgegengesetzte Ausrichtung der magnetischen Feldstärke ( $B = -3\text{ T}$ ) zeigt sich ein analoges Verhalten mit umgekehrtem Vorzeichen. Das bedeutet  $\rho_c$  nimmt negative Werte an ( $\rho_c \leq 0$ ) und die Verschiebung des Maximums erfolgt im Uhrzeigersinn von  $[010]$  in Richtung der  $[110]$  Achse, beziehungsweise ausgehend von  $[100]$  nach  $[1\bar{1}0]$  (vgl. Contour-Graphik in Abb. 8.4a).

Beim Vergleich des Polarisationsgrades für  $B = \pm 3\text{ T}$  mit dem Verlauf des Hanle-Signals aus Abb. 8.3 stellt man fest, dass dieser im Fall  $\sigma^-$  polarisierter Anregung ebenfalls für  $B = +3\text{ T}$  einen maximalen Wert aufweist. Analog verhält es sich mit dem Maximum des negativen Polarisationsgrades für  $B = -3\text{ T}$  und  $\sigma^+$  polarisiertem Laserlicht. In beiden Fällen ist die vertikale Verschiebung  $\rho_{off}$  der gemessenen Polarisationskurven gerade halb so groß wie der unter  $\sigma^+$  beziehungsweise  $\sigma^-$  polarisierter Anregung beobachtete Wert des zirkularen Polarisationsgrades. Anders ausgedrückt, verkörpert damit  $\rho_{off}$  gerade die Überlagerung des unter  $\sigma^+$  und  $\sigma^-$  Anregung gemessenen periodischen Anteils der zirkularen Polarisation aus Abb. 8.3 und entspricht damit, ähnlich den in Kapitel 6 bestimmten Werten von  $\rho_R$ , dem im Fall unpolarisierter Laseranregung zu erwartenden zirkularen Polarisationsgrad:

$$\rho_{off}(B) = \frac{1}{2} \left( \rho_c^{\sigma^+}(B) + \rho_c^{\sigma^-}(B) \right) \quad (8.6)$$

Der jeweils obere Index bezeichnet dabei die Polarisation des Laserlichts.

Um diesen Zusammenhang mit dem in Abb. 8.3 beobachteten Verlauf des Hanle-Signals zu verdeutlichen, wird die linear-zirkular Konvertierung des PL-Signals zusätzlich für Magnetfeldstärken von  $B = \pm 6$  T (Abb. 8.4b) und  $B = \pm 8$  T (Abb. 8.4c) untersucht. Für  $B = \pm 6$  T konnte in Abb. 8.3 unabhängig von der zirkularen Anregungspolarisation  $\sigma^\pm$  keine zirkulare Polarisation beobachtet werden. Für  $\sigma^-$  polarisiertes Laserlicht und  $B = +6$  T weist der periodisch variierende Beitrag der Polarisation eine Vorzeichenumkehr auf und im Fall  $\sigma^+$  polarisierter Anregung ist das Lorentz-förmige Hanle-Signal bereits auf  $\rho_c \approx 0$  abgefallen.

Entsprechendes gilt auch für die entgegengesetzte Polarisation des Lasers im Fall  $B = -6$  T, so dass eine Überlagerung von  $\sigma^+$  und  $\sigma^-$  polarisiertem Laserlicht zu keiner effektiven Polarisation der Quantenpunkt PL führen sollte. In Abb. 8.4b äußert sich dies durch den Wert der vertikalen Verschiebung, der für  $B = \pm 6$  T in Einklang mit Gl. (8.6) den Wert  $\rho_{off} \approx 0$  annimmt.

Ein analoges Verhalten lässt sich auch für Magnetfelder von  $B = \pm 8$  T beobachten. Der periodische Beitrag des in Abb. 8.3 gezeigten Polarisationsverlaufs nähert sich dabei unter geeigneter zirkular polarisierter Anregung seinem maximalen Wert an. Für  $\sigma^-$  polarisierte Anregung beträgt die PL-Polarisation  $\rho_c^{\sigma^-} (+8T) \approx -1.1\%$  beziehungsweise  $\rho_c^{\sigma^+} (+8T) \approx 0$  unter  $\sigma^+$  Polarisation. Entsprechend ergeben sich für  $B = -8$  T Polarisationswerte von  $\rho_c^{\sigma^-} (-8T) \approx 0$  und  $\rho_c^{\sigma^+} (-8T) \approx +1.3\%$ . Die hier beobachtete Abweichung der Polarisationswerte für positive und negative Magnetfeldwerte können auf eine in dieser Größenordnung limitierte Messgenauigkeit zurückgeführt werden. Vergleicht man den nach Gl. (8.6) aus diesen Daten bestimmten Wert der vertikalen Verschiebung, mit den für  $B = \pm 8$  T in Abb. 8.4c gezeigten Polarisationskurven, so ist auch hier eine sehr gute Übereinstimmung festzustellen. Der aus Abb. 8.4c ermittelte Wert für  $\rho_{off}$  beträgt  $\rho_{off}(\pm 8T) \approx 0.6\%$ .



# 9 Optische Wechselwirkung von Quantenpunkten

Halbleiterquantenpunkte werden in der Literatur als voneinander unabhängige quantenmechanische Systeme behandelt. Diese Annahme basiert dabei auf der Tatsache, dass mittels MBE-Wachstum generierte Quantenpunkte typischerweise eine Flächendichte in der Größenordnung  $\leq 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  oder  $\leq 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  aufweisen. Ein Vergleich zwischen dem sich daraus ergebenden mittleren Abstands einzelner Quantenpunkte eines Ensembles und dem Bohr-Radius der Exzitonen lässt die Annahme unabhängiger Nanoobjekte für gerechtfertigt erscheinen. Da Dank des technologischen Fortschritts diese „künstlichen Atome“ relativ einfach herzustellen sind, werden seit Jahren große Anstrengungen unternommen, eine Kopplung zwischen zumindest zwei Quantenpunkten zu realisieren. Motiviert werden diese Forschungsaktivitäten durch die Idee der Entwicklung neuartiger Halbleiterbauelemente zur optischen und elektronischen Informationsverarbeitung. So gelang es in letzter Zeit einigen Forschergruppen verschiedene Arten von Wechselwirkungen zwischen Quantenpunkten zu beobachten beziehungsweise zu realisieren [Bay01, Quy03, Kre05, Lya05, Lee05a, Sti06, Pet05], deren Reichweite sich auf einige wenige Nanometer beschränkt. Für optisch induzierte Wechselwirkungen erscheint der gezielte Einbau der Quantenpunkte in einen Mikroresonator als recht vielversprechender Ansatz. Auf diesem Forschungsgebiet konnte in den letzten Jahren bereits eine starke und schwache Wechselwirkung [Rei04, Obe04] zwischen dem exzitonischen Signal eines einzelnen Quantenpunkts und der ihn umgebenden Mikrokavität sowie superlineare Emissionseffekte<sup>1</sup> [Ren06a, Rei06] für verschiedene Materialsysteme beobachtet werden. Alle diese Beobachtungen jedoch basieren auf der Annahme von zunächst voneinander unabhängigen nulldimensionalen Systemen.

Nach *R. H. Dicke* [Dic54] kann jedoch ein spontan emittierendes System von Teilchen nicht als unabhängig betrachtet werden, da die Teilchen, beispielsweise Atome oder Moleküle, durch ihr gemeinsames Strahlungsfeld einer Wechselwirkung unterworfen sind. Die veränderte Abstrahlcharakteristik solcher Systeme ist unter dem Namen „Superradiance“ und „Subradiance“ bekannt. Im Laufe der Zeit gelang der experimentelle Nachweis an atomaren Systemen [Skr73, Pav85, DeV96] und im Jahr 2005 auch an polymeren Nanostrukturen [Bar05]. Jedoch blieb zunächst die Frage offen, ob auch inhomogen verbreiterte Festkörpersysteme wie Quantenpunkte einer Wechselwirkung über das gemeinsame Strahlungsfeld unterliegen können [Jod74, Sha00, Par05]. Erst kürzlich wurden experimentelle Daten an ZnO [Zha06] und CdSe Quantenpunkten [Sch07a] veröffentlicht, die eine solche Strahlungskopplung nahe legen. Beide Arbeitsgruppen beobachteten dabei im Fall

---

<sup>1</sup>z.B. „Lasing“ einzelner Quantenpunkte

einer kooperativen Kopplung der Quantenpunkte eine deutlich erhöhte Abstrahlcharakteristik und damit verbunden eine Abnahme der exzitonischen Lebensdauer. Anhand von CdSe Quantenpunkten konnte die spektrale Abhängigkeit der Wechselwirkung von der optischen Anregungs- und Detektionsenergie nachgewiesen werden. Weiter zeigte sich durch die gezielte Reduktion der Anzahl an Quantenpunkten, dass die Reichweite einer solchen optischen Interaktion im Bereich der emittierten Wellenlänge liegt und damit die Austauschwechselwirkung zwischen den Teilchenwellenfunktionen um einige Größenordnungen übertrifft [Sch07a].

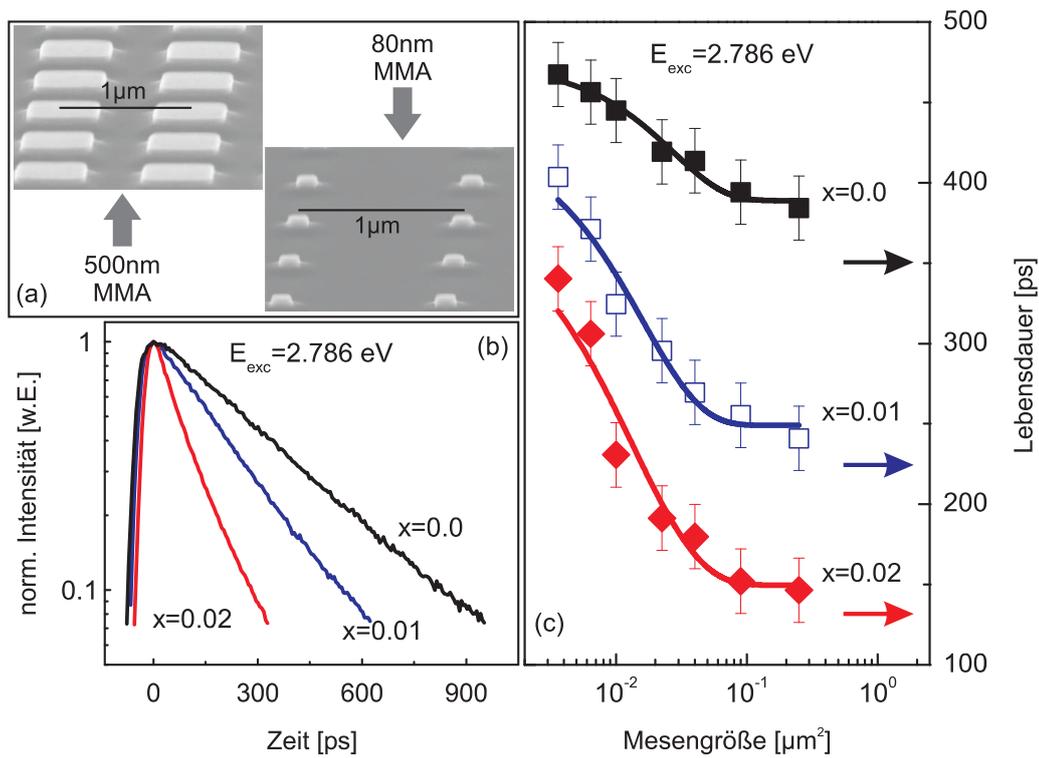
Im folgenden Kapitel soll nun der Frage nachgegangen werden, inwiefern semimagnetische Quantenpunkte ebenfalls Anzeichen einer kollektiven Emission aufweisen können, trotz einer im Vergleich zu reinen CdSe Quantenpunkten erhöhten nicht strahlenden Rekombinationsrate der photogenerierten Ladungsträger aufgrund eines Auger-artigen Energietransfers auf das  $\text{Mn}^{2+}$  System. Hierzu wird die Lebensdauer in Abhängigkeit der Zahl der angeregten Quantenpunkte sowie der Anregungs- und Detektionsenergie untersucht. Die Versuchsanordnung sowie die Funktionsweise der zur Detektion des zeitaufgelösten PL-Signals verwendeten Streak-Kamera sind in Kapitel 3.2 erläutert.

## 9.1 PL-Dynamik der CdMnSe/ZnSe Quantenpunkte

Zum Nachweis einer möglichen Wechselwirkung von Quantenpunkten muss die Zerfallsrate, also die Lebensdauer der Exzitonen, in Abhängigkeit der Zahl  $N$  an optisch angeregten Quantenpunkten untersucht werden. Nach *Shahbazyan et al.* sowie *Scheibner et al.* sollte die Stärke einer möglichen Strahlungskopplung zwischen benachbarten Quantenpunkten maßgeblich durch deren Anzahl bestimmt werden [Sch07a, Sha00].

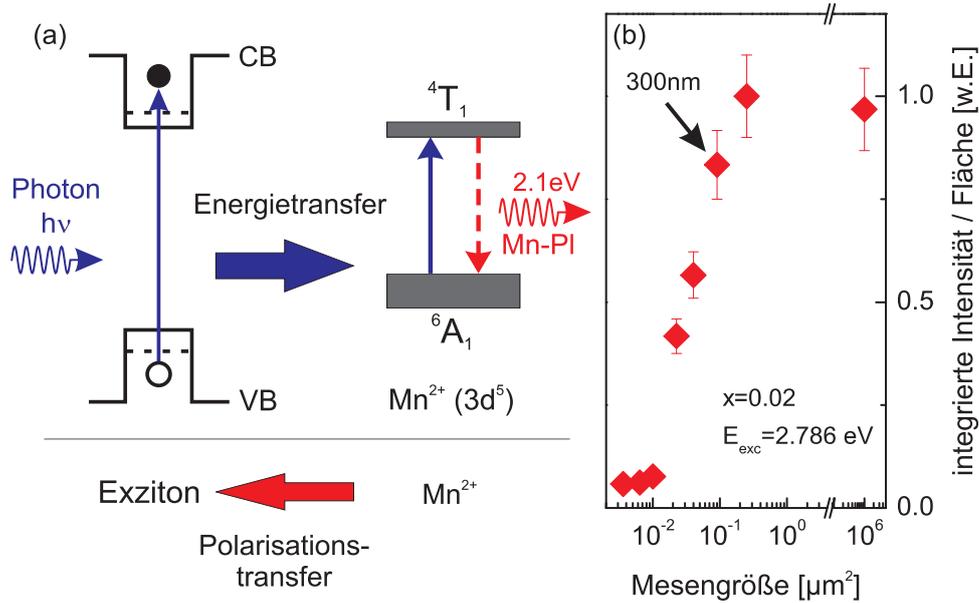
Den einfachsten Weg diesen Nachweis zu erbringen, stellt eine schrittweise, mechanische Wegnahme von einzelnen Quantenpunkten des Ensembles dar. Dies kann durch eine lithographische Strukturierung der Probenoberfläche erreicht werden. Dabei werden mittels nasschemischer Ätzverfahren (vgl. Kapitel 4.2.2) Mesen unterschiedlicher Größe und einer abnehmenden Zahl an Quantenpunkten realisiert. Eine zunehmende Miniaturisierung der Probenstruktur bedingt jedoch eine deutliche Intensitätsabnahme des zeitintegrierten PL-Signals. Um dieses Problem zu umgehen und zum Zweck einer statistischen Mittelung werden Mesen einer bestimmten Kantenlänge in einer gitterartigen Struktur zu so genannten „Multi-Mesen-Feldern“ oder „Multi-Mesa-Arrays“ (MMA) mit einer Größe von  $100\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$  zusammengefasst. Auf diese Weise kann man MMAs mit einer Mesengröße von 500 nm bis hinunter zu 60 nm herstellen. Der gegenseitige Abstand der einzelnen Mesen<sup>2</sup> beträgt dabei stets  $1\ \mu\text{m}$  und ist damit deutlich kleiner als der Durchmesser des zur Anregung verwendeten Laserspots ( $\approx 60\ \text{nm}$ ), so dass ein Ensemble von Mesen vom Lasertrahl beleuchtet wird. Als Beispiel sind in Abb. 9.1a Ausschnitte der elektronenmikroskopischen Aufnahmen zweier MMAs mit 500 nm und 80 nm großen Mesen gezeigt. Zunächst soll die Exzitonlebensdauer von  $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{ZnSe}$  Quantenpunkten mit  $x = 0.0$ ,  $x = 0.01$  und  $x = 0.02$  untersucht werden. Die Anregungsenergie des verwendeten Titan-Saphir Lasersystems beträgt dabei  $E_{exc} = 2.786\ \text{eV}$  und liegt damit unterhalb der

<sup>2</sup>Damit enthält ein MMA  $101 \times 101$  einzelne Mesen der gleichen Größe.



**Abb. 9.1:** (a) Elektronenmikroskopische Aufnahme eines MMA mit 80 nm und 500 nm großen Mesen mit einem gegenseitigen Abstand von  $1 \mu m$ . (b) Dynamik des PL-Signals gemessen am unstrukturierten Bereich der Proben für  $Cd_{1-x}Mn_xSe/ZnSe$  Quantenpunkte mit  $x = 0.0$  (schwarz),  $x = 0.01$  (blau) und  $x = 0.02$  (rot). (c) Exzitonlebensdauer für Quantenpunkte mit  $x = 0.0$ ,  $x = 0.01$  und  $x = 0.02$  in Abhängigkeit der MMA Mesenfläche. Die Anregungsenergie liegt unterhalb der ZnSe Bandkante ( $E_{exc} < E_{ZnSe}$ ). Alle Messungen wurden am Maximum der Intensität des zeitintegrierten PL-Spektrums durchgeführt (siehe Abb. 5.1).

ZnSe Bandkante von  $E_{ZnSe} \approx 2.82$  eV für  $T = 2$  K. Abb. 9.1b zeigt den zeitlichen Verlauf des PL-Signals für Quantenpunkte mit unterschiedlichem  $Mn^{2+}$  Gehalt jeweils am Intensitätsmaximum des zeitintegrierten Spektrums (vgl. Abb. 5.1a) für  $100 \mu m$  große Mesen. Da der Durchmesser des Laserspots deutlich kleiner als die Kantenlänge dieser Mesen ist, kann dieser Bereich der Probe im Vergleich zu den MMA als unstrukturiert bezeichnet werden. Mit steigender  $Mn^{2+}$  Konzentration tritt eine deutliche Abnahme der Exzitonlebensdauer auf. Die Lebensdauern betragen  $\tau_r = 350 \pm 20$  ps,  $\tau_r = 220 \pm 20$  ps und  $\tau_r = 130 \pm 20$  ps für Quantenpunkte mit  $x = 0.0$ ,  $x = 0.01$  und  $x = 0.02$ . Üblicherweise wird die Abnahme der Lebensdauer mit steigendem  $Mn^{2+}$  Gehalt in der Literatur mit einem Auger-ähnlichen nicht strahlenden Energietransfer auf das  $Mn^{2+}$  System erklärt [Seu01a]. Dieser zusätzliche Rekombinationsprozess scheint zunächst kontraproduktiv zu einer möglichen strahlungsbedingten Wechselwirkung der Quantenpunkte. Um zu klären, ob nun nicht strahlende Kanäle oder doch eine Strahlungskopplung benachbarter Quantenpunkte für die beobachtete Änderung der Rekombinationsrate semimagnetischer Quantenpunkte verantwortlich ist, muss die Zahl der optisch anregbaren Quantenpunkte



**Abb. 9.2:** (a) Schematische Darstellung des Energie- und Polarisationsstransfers zwischen den photogenerated Ladungsträgern und dem  $Mn^{2+}$  System. (b) Zeitintegrierte PL-Intensität pro effektiv angeregte Mesofläche für Quantenpunkte mit  $x = 0.02$ .

reduziert und die entsprechenden Lebensdauern bestimmt werden.

Abb. 9.1c zeigt den Verlauf der exzitonischen Lebensdauer für Quantenpunkte mit  $x = 0.0$ ,  $x = 0.01$  und  $x = 0.02$  in Abhängigkeit der Mesengröße der untersuchten MMAs und damit auch als Funktion der Quantenpunktanzahl. Für alle untersuchten Proben steigt die Lebensdauer mit abnehmender Kantenlänge der Mesen deutlich an. Beim Vergleich des Quantenpunktensembles und dem MMA mit 60 nm großen Mesen kann für CdSe/ZnSe Quantenpunkte eine Zunahme der Lebensdauer von ca. 110 ps beobachtet werden. Dieses Phänomen wurde kürzlich als kollektive Emission des Quantenpunktensembles interpretiert [Sch07a]. Erwähnenswert ist dabei die Tatsache, dass im Gegensatz zu den Messungen von Scheibner *et al.*, die unter quasi beziehungsweise strikt resonanten Anregungsbedingungen durchgeführt wurden, die Beobachtung aus Abb. 9.1c bereits für eine Anregungsenergie von  $E_{exc} = 2.786$  eV, also gerade unterhalb der ZnSe Bandkante, auftritt. Interessanterweise weisen Quantenpunkte mit einer  $Mn^{2+}$  Konzentration von 1 % sogar eine Änderung der Exzitonlebensdauer von 180 ps zwischen dem Ensemble und den 60 nm Mesen auf und ist damit im Vergleich zur CdSe/ZnSe Probe um einen Faktor 1.6 erhöht. Ein ähnliches Verhalten kann für  $x = 0.02$  beobachtet werden. Hier ändert sich die Lebensdauer beim Übergang vom Ensemble zu kleinen Mesen sogar um das 1.9-fache des Wertes, der für Quantenpunkte ohne  $Mn^{2+}$  Dotierung gemessen werden konnte.

Der Einbau von semimagnetischen Störstellen in die Gittermatrix der Quantenpunkte führt demnach verglichen mit den 60 nm großen Mesen zu einer deutlichen Abnahme der Lebensdauer des Quantenpunktensembles. Wäre hierfür allein der nicht strahlende Energietransfer auf das  $Mn^{2+}$  System verantwortlich, so würde dies aufgrund des starken Anstiegs der Lebensdauer mit abnehmender Mesengröße bedeuten, dass die nicht strah-

lenden Kanäle zunehmend an Einfluss verlieren. Als Konsequenz daraus müsste jedoch die zeitintegrierte PL-Intensität pro Quantenpunkt mit abnehmender Mesengröße zunehmen. Abb. 9.2b zeigt die zeitintegrierte Intensität pro effektiv bestrahlter Fläche als Funktion der Mesengröße für Quantenpunkte mit 2%  $\text{Mn}^{2+}$ . Für Mesen größer als 300 nm ist die Intensität zunächst konstant. Im Gegensatz zur obigen Schlussfolgerung nimmt die Intensität pro Fläche jedoch mit abnehmender Mesengröße deutlich ab. Damit kann der nicht strahlende Energietransfer als dominanter Effekt für die beobachtete Änderung von  $\tau_r$  ausgeschlossen werden. Zudem ist auch für Mesen mit unterschiedlicher Größe stets ein konstantes Verhältnis zwischen der Anzahl an Quantenpunkten und den  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen zu erwarten. Von diesem Standpunkt aus gesehen sollte allein durch nicht strahlende Rekombinationskanäle keine Veränderung der Exzitonlebensdauer für unterschiedlich große Mesen beobachtet werden können.

Dies lässt wiederum den Schluss zu, dass auch semimagnetische Quantenpunkte starke Indizien einer Strahlungskopplung zwischen benachbarten Quantenpunkten aufweisen. Der unstrukturierte Teil der Proben enthält dabei sehr viele benachbarte Quantenpunkte, die bei gleicher spektraler Lage emittieren und somit über ihr Strahlungsfeld miteinander in Wechselwirkung treten können. Reduziert man nun die Mesengröße und damit die Zahl der optisch angeregten Quantenpunkte, so sinkt auch die Wahrscheinlichkeit einer Kopplung. Mit einer Quantenpunktdichte von ca.  $10^{11} \text{ cm}^{-2}$  enthalten 60 nm große Mesen lediglich drei bis vier Quantenpunkte, so dass die Kopplungswahrscheinlichkeit benachbarter Quantenpunkte in diesen Mesen außerordentlich gering ausfällt und diese damit als unabhängig voneinander emittierende Objekte betrachtet werden können [Sch07a]. Damit kann der Beitrag der Auger-Rekombination an der Änderung der Exzitonlebensdauer mit steigendem  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt anhand der 60 nm MMAs bestimmt werden. Für Quantenpunkte mit 1%  $\text{Mn}^{2+}$  ist eine Abnahme der Lebensdauer um etwa 60 ps im Vergleich zu CdSe/ZnSe Quantenpunkten direkt auf einen nicht strahlenden Energietransfer zurückzuführen. Quantenpunkte mit  $x = 0.02$  weisen dagegen eine dementsprechend stärkere Variation der Lebensdauer von ca. 120 ps aufgrund der vermehrten nicht strahlenden Rekombinationskanäle auf.

Die eben diskutierten Beobachtungen legen demnach eine durch den Einbau von  $\text{Mn}^{2+}$  verstärkte Strahlungskopplung der Quantenpunkte in großen Ensembles nahe. Abb. 9.2a zeigt die schematische Darstellung eines möglichen Prozesses, bei dem einige der photogenerierten Elektron-Loch Paare ihre Energie auf das  $\text{Mn}^{2+}$  System übertragen. Dabei wird nach *Nawrocki et al.* [Naw95] neben der Energie auch der Drehimpuls der Ladungsträger transferiert. Als Konsequenz daraus sollten semimagnetische Quantenpunkte dann eine deutlich höhere Vorpolarisation besitzen als undotierte CdSe/ZnSe Proben. Die Zahl der Quantenpunkte, die identische Spinzustände besetzen und damit die gleiche Polarisation des PL-Signals aufweisen, ist somit erhöht. In der Tat konnte für die untersuchten semimagnetischen Quantenpunkte und einer Anregungsenergie unterhalb der ZnSe Bandkante eine deutlich erhöhte lineare Polarisation zwischen 5% und 6% beobachtet werden. Im Vergleich dazu liegt die lineare Polarisation des CdSe/ZnSe Quantenpunktensembles lediglich bei etwa 1% bis 2%. Der Verlust der Polarisation und damit der Spininformation wurde bereits an CdSe/ZnSe Quantenpunkten als möglicher Grund für eine Aufhebung der Strahlungskopplung im Falle der nicht resonanten Anregung identifiziert [Sch07a].

## 9.2 Modell: Funktionale Abhängigkeit von Lebensdauer und Mesengröße

Die in Abb. 9.1c gezeigte Änderung der exzitonischen Lebensdauer kann unter Berücksichtigung der Rekombinationsrate der über das gemeinsame Strahlungsfeld wechselwirkenden Quantenpunkte und der Zerfallsrate nicht koppelnder Quantenpunkte beschrieben werden. Unter Einbeziehung des nicht strahlenden Energietransfers auf das  $\text{Mn}^{2+}$  System nimmt die gesamte Rekombinationsrate folgende Form an:

$$\frac{1}{\tau_r(a)} = \frac{Q(a)}{\tau_c} + \frac{1 - Q(a)}{\tau_{nc}} + \gamma_{Mn} \quad (9.1)$$

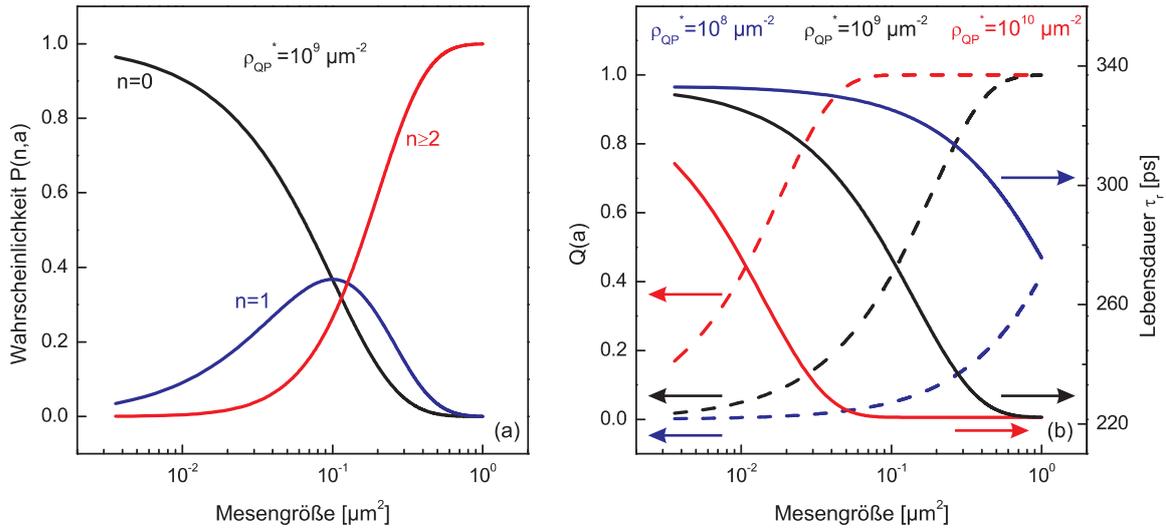
$\tau_r(a)$  beschreibt dabei die von der Mesenfläche  $a$  abhängige Lebensdauer der Exzitonen.  $\gamma_{Mn}$  steht für die Rekombinationsrate durch nicht strahlende Prozesse, die im Fall der semimagnetischen Proben vom Energietransfer auf das  $\text{Mn}^{2+}$  System dominiert wird.  $\tau_c$  und  $\tau_{nc}$  sind die strahlenden Rekombinationszeiten der über das Strahlungsfeld gekoppelten und ungekoppelten Quantenpunkte. Hierbei ist eine Gewichtung der entsprechenden Rekombinationsraten mit  $Q(a)$  beziehungsweise  $1 - Q(a)$  nötig. Von der Gesamtzahl der Mesen mit mindestens einem Quantenpunkt beschreibt  $Q(a)$  dabei den Anteil jener Mesen, welche zwei oder mehr über das Strahlungsfeld wechselwirkende Quantenpunkte enthalten:

$$Q(a) = \frac{P(n \geq 2, a)}{P(1, a) + P(n \geq 2, a)} = \frac{1 - P(0, a) - P(1, a)}{1 - P(0, a)} \quad (9.2)$$

$P(n, a)$  beschreibt die Wahrscheinlichkeit  $n$  gekoppelte Quantenpunkte in einer bestimmten Fläche  $a$  (Mesa) vorzufinden. Diese Wahrscheinlichkeit soll im Folgenden als Poisson-Verteilung mit dem Erwartungswert  $\rho_{QP}^* \cdot a$  angenommen werden [Sch07b]:

$$P(n, a) = \exp[-\rho_{QP}^* \cdot a] \cdot \frac{(\rho_{QP}^* \cdot a)^n}{n!} \quad (9.3)$$

$\rho_{QP}^*$  repräsentiert dabei die effektive Flächendichte der optisch wechselwirkenden Quantenpunkte. Im Vergleich zur tatsächlichen, durch das MBE-Wachstum bedingten Flächendichte von  $\rho_{QP} \approx 10^{11} \text{ cm}^{-2}$  sollte  $\rho_{QP}^*$  einen deutlich geringeren Wert aufweisen, da lediglich benachbarte Quantenpunkte mit identischer Grundzustandsenergie miteinander in Wechselwirkung treten können [Sch07b]. Aufgrund der Größenverteilung der Quantenpunkte des Ensembles und der dadurch bedingten inhomogenen Verbreiterung des PL-Signals, kann die effektive Dichte  $\rho_{QP}^*$  durch Vergleich der Halbwertsbreite des Ensembles  $\Gamma_E$  mit der eines einzelnen Quantenpunkts  $\Gamma_S$  abgeschätzt werden (vgl. Kapitel 5.2, Abb. 5.2). Man erhält mit  $\rho_{QP}^* = \frac{\Gamma_S}{\Gamma_E} \rho_{QP} \approx 0.01 \rho_{QP}$  einen um etwa zwei Größenordnungen reduzierten Wert für die effektive Dichte  $\rho_{QP}^*$ . Abb. 9.3a zeigt  $P(n, a)$  als Funktion der Mesengröße  $a$  für  $n = 0$ ,  $n = 1$  und  $n \geq 2$ . Für alle drei Kurven wird



**Abb. 9.3:** (a) Wahrscheinlichkeit  $P(n, a)$  für  $n = 0$  (schwarz),  $n = 1$  (blau) und  $n \geq 2$  potentiell gekoppelte Quantenpunkte in Abhängigkeit der Mesengröße  $a$  für eine Quantenpunktdichte  $\rho_{QP}^* = 10^9 \mu\text{m}^{-2}$ . (b) Verlauf der Lebensdauer  $\tau_r(a)$  (durchgezogene Linien) und  $Q(a)$  (gestrichelte Linien) für Quantenpunktdichten von  $\rho_{QP}^*$  (schwarz),  $0.1 \cdot \rho_{QP}^*$  (blau) und  $10 \cdot \rho_{QP}^*$  (rot). Verwendete Werte:  $\tau_{nc} = 400$  ps,  $\tau_c = 250$  ps,  $\gamma_{Mn} = 5 \cdot 10^{-4} \text{ps}^{-1}$ .

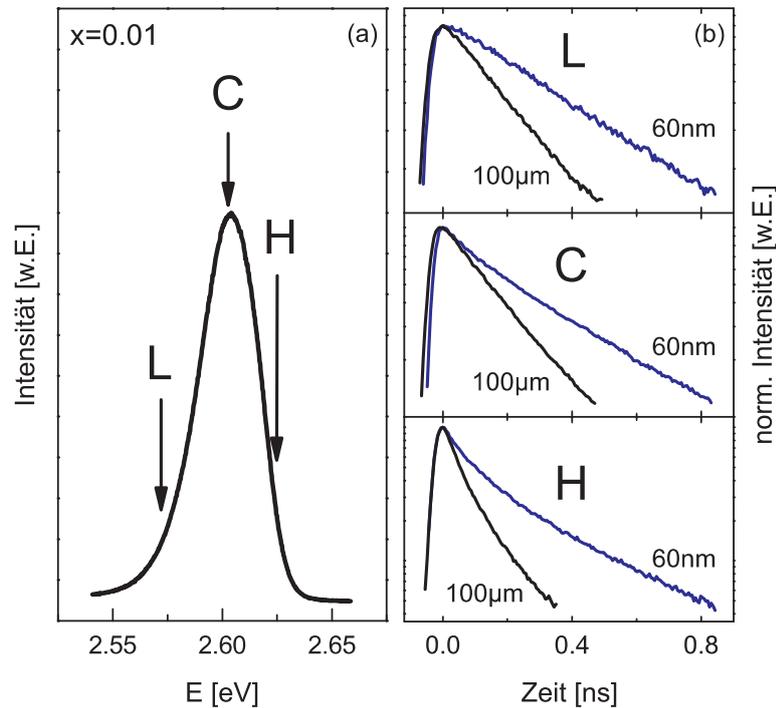
dabei eine effektive Quantenpunktdichte von  $\rho_{QP}^* = 10^9 \mu\text{m}^{-2}$  angenommen. Weiter sind der entsprechende Verlauf von  $Q(a)$  und der Lebensdauer  $\tau_r(a)$  nach Gl. (9.1) für Quantenpunktdichten von  $\rho_{QP}^* = 10^9 \mu\text{m}^{-2}$ ,  $0.1 \cdot \rho_{QP}^*$  und  $10 \cdot \rho_{QP}^*$  dargestellt (Abb. 9.3b). Hierbei wurden folgende Werte für  $\tau_c$ ,  $\tau_{nc}$  und  $\gamma_{Mn}$  verwendet:  $\tau_c = 250$  ps,  $\tau_{nc} = 400$  ps und  $\gamma_{Mn} = 5 \cdot 10^{-4} \text{ps}^{-1}$ .

Gemeinsam mit Gl. (9.3) und Gl. (9.2) kann Gl. (9.1) dazu verwendet werden, die mit abnehmender Mesengröße beobachtete Änderung der Lebensdauer  $\tau_r$  zu beschreiben (durchgezogene Linien in Abb. 9.1). Ein zu den experimentellen Daten guter Fitverlauf konnte mit  $\gamma_{Mn} \approx 0.0003 \text{ps}^{-1}$  und  $\gamma_{Mn} \approx 0.0006 \text{ps}^{-1}$  für Quantenpunkte mit einer  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration von 1% beziehungsweise 2% gefunden werden. Die Lebensdauer der ungekoppelten Quantenpunkte ergibt sich für alle untersuchten Proben jeweils im Bereich  $470 \text{ps} \leq \tau_{nc} \leq 490 \text{ps}$ . Dies ist in guter Übereinstimmung mit dem für CdSe/ZnSe Quantenpunkte gemessenen Wert eines 60 nm Multi-Mesa-Feldes und verdeutlicht damit den unabhängigen Charakter dieser Nanostrukturen. Folgerichtig konnte für die Probe ohne  $\text{Mn}^{2+}$  Dotierung eine Lebensdauer  $\tau_c$  der optisch wechselwirkenden Quantenpunkte in der Größenordnung der Lebensdauer des unstrukturierten Ensembles gefunden werden. Mit steigendem  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt der Quantenpunkte ergaben sich für  $\tau_c$  Werte von  $\tau_c = 260$  ps ( $x = 0.01$ ) beziehungsweise  $\tau_c = 160$  ps ( $x = 0.02$ ), die im Vergleich zu den Lebensdauern des Ensembles leicht erhöht erscheinen. Dies erlaubt eine Abschätzung des nicht strahlenden Energietransfers auf das  $\text{Mn}^{2+}$  System. Beiträge in der Größenordnung von 16% für  $x = 0.01$  und lediglich 8.8% für  $x = 0.02$  kennzeichnen damit die Strahlungskopplung zwischen benachbarten Quantenpunkten als den dominierenden Faktor des Rekombinationsprozesses.

Ein weiteres Indiz für eine Wechselwirkung der Quantenpunkte über ihr gemeinsames Strahlungsfeld liefert die effektive Dichte gekoppelter Quantenpunkte. Für CdSe/ZnSe Quantenpunkte ohne  $\text{Mn}^{2+}$  Dotierung beträgt  $\rho_{QP}^* \approx 5 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$  und entspricht damit bei einem auf ca.  $60 \mu\text{m}$  fokussierbaren Laserstrahl einer optischen Anregung von in etwa  $1.4 \cdot 10^5$  Quantenpunkten. Im Vergleich dazu besitzt die Probe mit 2%  $\text{Mn}^{2+}$  eine um einen Faktor zwei erhöhte effektive Dichte von  $\rho_{QP}^* \approx 1 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ .

### 9.3 Spektrale Abhängigkeit der Strahlungskopplung

Es ist zu erwarten, dass die Strahlungskopplung benachbarter Quantenpunkte aufgrund der inhomogenen Verbreiterung des zeitintegrierten PL-Signals am Intensitätsmaximum am stärksten ausgeprägt ist. An diesem Punkt des Spektrums, der die höchste Strahlungsdichte aufweist, emittieren demnach die meisten Quantenpunkte mit im Rahmen ihrer Linienbreite übereinstimmender Energie. Somit ist die Wahrscheinlichkeit für eine mögliche Kopplung spektral identischer Quantenpunkte über das gemeinsame Strahlungsfeld in diesem Bereich deutlich erhöht. Links und rechts des Intensitätsmaximums nimmt die Zahl der im gleichen spektralen Bereich emittierenden Quantenpunkte deutlich ab und somit sollte eine mögliche Wechselwirkung stark reduziert sein. Beim Vergleich der



**Abb. 9.4:** (a) Zeitintegriertes PL-Signal für semimagnetische Quantenpunkte mit  $x = 0.01$  und einem Intensitätsmaximum bei  $E_{max}^{int} \approx 2.60 \text{ eV}$ . Die Pfeile markieren drei verschiedene spektrale Positionen mit  $E < E_{max}^{int}$  (L),  $E = E_{max}^{int}$  (C) und  $E > E_{max}^{int}$  (H). (b) Zeitliche Entwicklung des PL-Signals an den spektralen Positionen L, C und H gemessen am Quantenpunktensemble (schwarz) und 60 nm großen Mesen (blau).

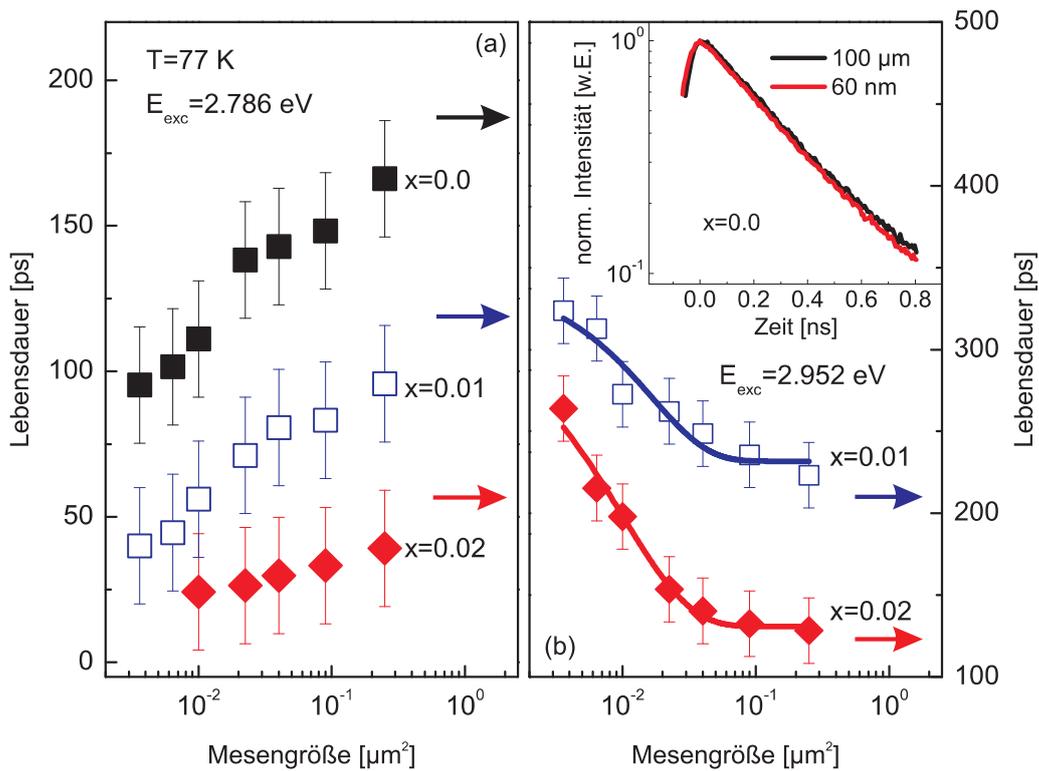
zeitlichen Entwicklung des PL-Signals des unstrukturierten Quantenpunktensembles und Feldern mit kleinen Mesen ist zu erwarten, dass der Unterschied der beobachteten Exzitonlebensdauern  $\tau_r$  deutlich abnimmt, je weiter man sich vom spektralen Bereich des Intensitätsmaximums entfernt. Für CdSe/ZnSe Quantenpunkte ohne  $\text{Mn}^{2+}$  Dotierung konnte eine Änderung der Lebensdauer beim Übergang vom Ensemble zu kleinen Mesen lediglich am Punkt des maximalen Strahlungsfelds, also am Maximum der zeitintegrierten Intensität beobachtet werden. Links und rechts dieses Punktes weisen die Lebensdauern des Ensembles im Vergleich zu MMAs mit 60 nm großen Mesen keinen messbaren Unterschied in der Lebensdauer auf [Sch07a]. In Abb. 9.4 ist die spektrale Abhängigkeit der Strahlungskopplung für semimagnetische Quantenpunkte mit  $x = 0.01$  gezeigt.

Der zeitliche Verlauf des PL-Signals ist für drei verschiedene spektrale Positionen  $L$ ,  $C$  und  $H$  dargestellt. Vergleicht man das Signal der unstrukturierten  $100 \mu\text{m}$  Probenoberfläche (schwarz) mit dem zeitlichen Abfall der PL-Intensität eines 60 nm MMAs (blau), so erkennt man eine von der spektralen Position unabhängige Zunahme der Exzitonlebensdauer für kleine Mesen. Im Gegensatz zu undotierten CdSe/ZnSe Quantenpunkten lässt dies den Schluss zu, dass eine mögliche Strahlungskopplung in semimagnetischen Quantenpunkten nicht lediglich auf den spektralen Bereich des Intensitätsmaximums beschränkt ist. Dies kann auf den in Kapitel 9.2 ermittelten größeren Wert der effektiven Dichte  $\rho_{QP}^*$  zurückgeführt werden.

## 9.4 Temperaturabhängigkeit und nicht resonante Dynamik

Ein weiterer Fingerzeig für eine Beeinflussung der Strahlungskopplung semimagnetischer Quantenpunkte durch Wechselwirkung der photogenerierten Ladungsträger mit den  $\text{Mn}^{2+}$  Ionen kann durch temperaturabhängige Untersuchungen gefunden werden. Hierzu werden alle drei untersuchten Proben mit  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentrationen von  $x = 0.0$ ,  $x = 0.01$  und  $x = 0.02$  lediglich mit flüssigem Stickstoff gekühlt. Damit kann eine Temperatur von  $T \geq 77 \text{ K}$  realisiert und damit eine Thermalisierung der in den Quantenpunkten lokalisierten  $\text{Mn}^{2+}$  Spins erreicht werden. Ein solches Heizen des  $\text{Mn}^{2+}$  Systems [Kne06b, Kne06a, Kel01, Hun05b] führt zwangsläufig zu einer drastischen Abnahme der PL-Polarisation [Sch06b, Sch07d] und ist damit ein Indiz für einen unterdrückten Polarisationstransfer zwischen dem  $\text{Mn}^{2+}$  System und dem Quantenpunktgrundzustand. Dies sollte wiederum zu einer deutlich reduzierten beziehungsweise vollständig unterdrückten Strahlungskopplung benachbarter Quantenpunkte führen. Weiter wird im Folgenden auch die Lebensdauer unter nicht resonanten Anregungsbedingungen untersucht. Hierzu wird eine Energie des Laserlichts oberhalb der ZnSe Bandkante ( $E_{\text{Laser}} = 2.952 \text{ eV}$ ) gewählt.

Abb. 9.4a zeigt die Exzitonlebensdauer in Abhängigkeit der untersuchten Mesengröße für Quantenpunkte mit  $x = 0.0$ ,  $x = 0.01$  und  $x = 0.02$ . Die Proben temperatur beträgt dabei  $T \geq 77 \text{ K}$  und die Energie des Laserlichts  $E_{\text{exc}} = 2.786 \text{ eV}$ . Es zeigt sich für alle drei untersuchten Proben, dass die Lebensdauer mit steigender Mesengröße der Multi-Mesa-Felder deutlich zunimmt. Weiter sind die beobachteten Lebensdauern des Quantenpunktensembles ( $100 \mu\text{m}$  Mesa) im Vergleich zu den Werten für niedrige Umge-



**Abb. 9.5:** (a) Exzitonlebensdauer ( $E_{\text{exc}} < E_{\text{ZnSe}}$ ) für  $T = 77\text{ K}$ . (b) Lebensdauer als Funktion der Mesengröße der untersuchten MMAs unter nicht resonanter Anregungsbedingung ( $E_{\text{exc}} = 2.952\text{ eV}$ ) für Quantenpunkte mit  $x = 0.01$  (blau) und  $x = 0.02$  (rot). Der Bildeinschub zeigt den zeitlichen Verlauf des PL-Signals gemessen an Quantenpunkten ohne  $\text{Mn}^{2+}$  Dotierung für eine unstrukturierte  $100\text{ }\mu\text{m}$  Mesa (schwarze Kurve) und ein  $60\text{ nm}$  MMA (rote Kurve).

lungstemperaturen ( $T \approx 1.5\text{ K}$ , vgl. Abb. 9.1b und Abb. 9.1c) deutlich geringer. Dies kann auf zusätzliche nicht strahlende Rekombinationskanäle zurückgeführt werden, wie ein möglicher Tunnelprozess der Ladungsträger aus den Quantenpunkten in den so genannten „wetting layer“ [Le 03]. Auch erhöht sich mit abnehmender Kantenlänge der Mesen das Verhältnis von Oberfläche zu Volumen der einzelnen lithographischen Strukturen, so dass durch die vergrößerte effektive Oberfläche zusätzliche nicht strahlende Rekombinationskanäle auftreten, die mit abnehmender Mesengröße eine deutlich reduzierte Lebensdauer nach sich ziehen können.

Für CdSe Quantenpunkte kann für  $T \geq 77\text{ K}$  eine Änderung der Lebensdauer von  $190\text{ ps}$  für das Quantenpunktensemble ( $100\text{ }\mu\text{m}$ ) auf  $95\text{ ps}$  für das  $60\text{ nm}$  MMA beobachtet werden. Ein ähnliches Bild weisen auch die semimagnetischen Proben mit  $x = 0.01$  und  $x = 0.02$  auf, jedoch sind sämtliche Lebensdauern um zusätzlich ca.  $69\text{ ps}$  ( $1\%$   $\text{Mn}^{2+}$ ) beziehungsweise  $120\text{ ps}$  ( $2\%$   $\text{Mn}^{2+}$ ) reduziert. Diese Abnahme der exzitonischen Lebensdauer mit steigendem  $\text{Mn}^{2+}$  Gehalt ist in Einklang mit der beobachteten Änderung der Lebensdauer ungekoppelter Quantenpunkte des  $60\text{ nm}$  MMAs bei tiefen Temperaturen (vgl. Abb. 9.1c). Damit kann die in Abb. 9.4a gezeigte Abnahme der Lebensdauer mit

steigender  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration auf den nicht strahlenden, Auger-artigen Energietransfer auf das  $\text{Mn}^{2+}$  System zurückgeführt werden.

Des Weiteren veranschaulicht das Verhalten der Lebensdauer unter hohen Temperaturen die starke Temperaturabhängigkeit der strahlungsinduzierten Kopplung räumlich und spektral benachbarter Quantenpunkte. Im Gegensatz zu tiefen Temperaturen ( $T \approx 1.5$  K) wird unter hohen Umgebungstemperaturen durch den Verlust der PL-Polarisation die optische Wechselwirkung der Quantenpunkte mit ihrem gemeinsamen Strahlungsfeld unterdrückt und nicht strahlende Rekombinationskanäle wie der Energietransfer auf das  $\text{Mn}^{2+}$  System oder Oberflächeneffekte dominieren den Rekombinationsprozess.

Alle bisherigen Untersuchungen zur Rekombinationsdynamik semimagnetischer Quantenpunkte wurden unter resonanter Anregungsbedingung durchgeführt, die einen Übertrag der Laserpolarisation auf die photogenerateden Ladungsträger des Quantenpunktgrundzustands ermöglicht. Als letzter Schritt soll im Folgenden das Verhalten der Exzitonlebensdauer unter nicht resonanter Anregung untersucht werden. Dabei wird die Energie des Laserlichts mit  $E_{exc} = 2.952$  eV oberhalb der ZnSe Bandkante eingestellt.

Abb. 9.4b zeigt den zeitlichen Verlauf des PL-Signals der CdSe Probe für die  $100 \mu\text{m}$  Mesa (schwarze Kurve) und für das MMA mit  $60 \text{ nm}$  großen Mesen. Weiter ist das Verhalten der Lebensdauer für semimagnetische Quantenpunkte mit  $x = 0.01$  und  $x = 0.02$  in Abhängigkeit der Mesengröße dargestellt. Für Quantenpunkte mit  $x = 0.0$  kann unter nicht resonanter Anregung keine Änderung der Lebensdauer durch Reduzierung der Zahl der optisch angeregten Quantenpunkte beobachtet werden. Diese deutet auf eine Unterdrückung der Strahlungskopplung benachbarter Quantenpunkte hin, da für Anregungsenergien oberhalb der Bandkante aufgrund von Streuprozessen die Relaxation der photogenerateden Ladungsträger in den Quantenpunktgrundzustand mit einem nahezu vollständigen Verlust der Polarisation einhergeht. Zusätzlich werden durch Anregungsenergien oberhalb der ZnSe Bandkante auch Ladungsträger in der Umgebung der Quantenpunkte generiert.

Im Gegensatz zu CdSe Quantenpunkten kann durch den Einbau von  $\text{Mn}^{2+}$  in das Kristallgitter auch unter nicht resonanter Anregung eine deutliche Zunahme der Lebensdauer mit abnehmender Mesengröße beobachtet werden. Für eine  $\text{Mn}^{2+}$  Konzentration von  $x = 0.01$  ergibt sich beim Wechsel vom unstrukturierten Teil der Probe ( $100 \mu\text{m}$  Mesa) zu einem  $60 \text{ nm}$  MMA eine Änderung der Lebensdauer von ca.  $110 \text{ ps}$ . Quantenpunkte mit  $x = 0.02$  weisen dagegen sogar eine Variation der Lebensdauer von  $140 \text{ ps}$  auf. Auch unter nicht resonanter Anregung kann für die  $60 \text{ nm}$  großen Mesen zwischen den Quantenpunkten mit  $1\%$  und  $2\%$  Mangan eine Abnahme der Exzitonlebensdauer von ca.  $60 \text{ ps}$  beobachtet werden. Diese ist wiederum dem nicht strahlenden, Auger-artigen Rekombinationsprozess zuzuschreiben. Die durchgezogenen Linien in Abb. 9.4b beschreiben den theoretischen Verlauf der Lebensdauer in Abhängigkeit der Mesengröße gemäß Gl. (9.1) mit Werten für  $\tau_c$  von  $\tau_c \approx 250 \text{ ps}$  ( $1\% \text{ Mn}^{2+}$ ) und  $\tau_c \approx 150 \text{ ps}$  ( $2\% \text{ Mn}^{2+}$ ). Für die Lebensdauer  $\tau_{uc}$  ungekoppelter Quantenpunkte ergeben sich jeweils Werte in der Größenordnung der undotierten CdSe Quantenpunkte. In Übereinstimmung mit den experimentellen und theoretischen Daten für Anregungsenergien unterhalb der ZnSe Bandkante kann die effektive Quantenpunktdichte ebenfalls in der Größenordnung  $\rho_{QP}^* \approx 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  bestimmt

werden.

Die Reichweite der optisch induzierten Wechselwirkung kann mit Hilfe der Daten aus Abb. 9.1c und Abb. 9.4b abgeschätzt werden. Die Lebensdauer steigt erst ab einem Mesendurchmesser  $< 300$  nm merklich an, während für Mesen  $> 300$  nm dagegen  $\tau_r$  nahezu konstant bleibt. Dies legt die Vermutung nahe, dass ein Quantenpunkt, der sich nahe dem Zentrum einer 300 nm großen Mesa befindet, auch noch mit dem gemeinsamen Strahlungsfeld solcher Quantenpunkte in Wechselwirkung treten kann, die sich am Rand der Mesa befinden. Somit kann die Reichweite der Strahlungskopplung in der Größenordnung von 150 nm abgeschätzt werden [Sch07a]. Dieses Ergebnis ist in gutem Einklang mit der effektiven Wellenlänge der emittierten Strahlung innerhalb der ZnSe Matrix, die für einen Brechungsindex von 2.7 [Pei99] ca. 180 nm beträgt [Sch07a].

# A Abbildungsverzeichnis

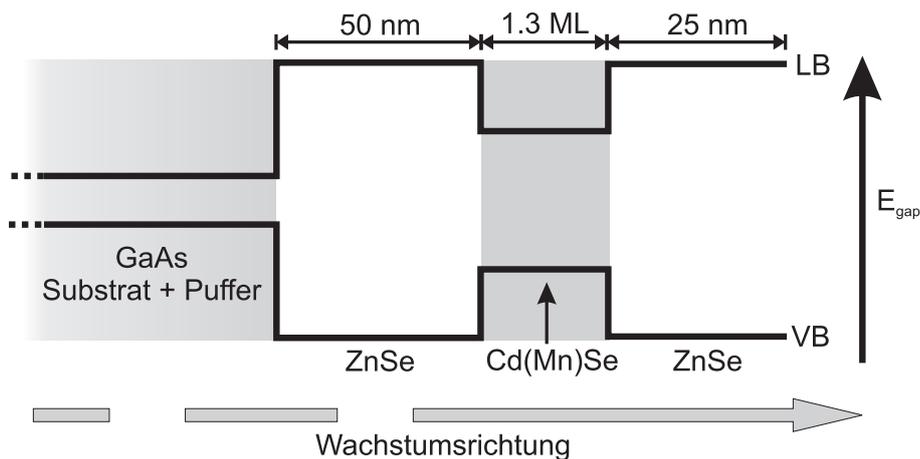
2.1	Zinkblende- und Wurtzitstruktur . . . . .	11
2.2	Zustandsdichte niederdimensionaler Halbleiterstrukturen . . . . .	15
2.3	Gesamtdrehimpuls $\vec{j}$ . . . . .	17
2.4	Bandstruktur: Schematische Darstellung . . . . .	19
2.5	Bloch- und Poincaré-Kugel . . . . .	20
2.6	Feinstrukturaufspaltung eines Quantenpunkts . . . . .	22
3.1	Aufbau des Magnetmessplatzes . . . . .	26
3.2	PL-Polarisationsanalyse mittels PEM-Technik . . . . .	28
3.3	Aufbau des ps-Messplatzes . . . . .	30
3.4	Aufbau und Funktionsweise einer Streak-Kamera . . . . .	31
4.1	Nanostrukturierung: Mesen- vs. Lochmasken-Technik . . . . .	35
4.2	Herstellung von Mesen . . . . .	36
4.3	FEM-Bilder zweier Mesen . . . . .	37
5.1	PL-Spektren semimagnetischer Quantenpunkte . . . . .	40
5.2	PL-Signal einzelner Mesen unterschiedlicher Größe . . . . .	41
5.3	CdSe/ZnSe QP-Spektren für verschiedene Anregungsenergien . . . . .	43
5.4	Zeitlicher Verlauf des PL-Signals . . . . .	44
5.5	Zeitlicher Verlauf des linearen Polarisationsgrades . . . . .	45
5.6	Schematische Darstellung des $Mn^{2+}$ ( $3d^5$ ) Übergangs . . . . .	47
5.7	Intensität und Energieverschiebung vs. Magnetfeld . . . . .	48
5.8	Spektrum mit $x = 0.053$ $Mn^{2+}$ . . . . .	50
5.9	$Mn^{2+}$ Lumineszenz vs. Anregungsleistung . . . . .	52
5.10	$Mn^{2+}$ Lumineszenz für unterschiedliche Laseranregung . . . . .	53
5.11	PL- und $Mn^{2+}$ -Intensität für Quantenpunkte mit $x = 0.053$ . . . . .	54
5.12	Energieverschiebung des $\sigma^+$ Zustands . . . . .	56
5.13	Resonanter Energietransfer . . . . .	58
6.1	$\sigma^+$ und $\sigma^-$ polarisierte Übergänge . . . . .	61
6.2	Zirkularer Polarisationsgrad der Quantenpunkt PL . . . . .	63
6.3	Ausbildung eines magnetischen Polarons . . . . .	64
6.4	Optische Orientierung $\rho_O$ . . . . .	67
6.5	3-Niveau Modell . . . . .	70
6.6	Polarisation durch Ladungsträgerrelaxation . . . . .	72
6.7	Exzitonlebensdauer $\tau_r$ . . . . .	73

6.8	$\rho_c$ in Abhängigkeit von $B$ und $P$ . . . . .	75
6.9	Schematische Darstellung des Heizprozesses . . . . .	76
6.10	$\rho_R$ als Funktion von $B$ und $P$ . . . . .	77
6.11	$\tau_r$ in Abhängigkeit der Laserleistung . . . . .	77
6.12	$T_{eff}$ in Abhängigkeit von $P$ für $x = 0.01$ und $x = 0.02$ . . . . .	79
6.13	$\rho_c$ in Abhängigkeit der Laserleistung $P$ für $x = 0.02$ . . . . .	80
6.14	$\rho_R$ und $\rho_O$ vs. $P$ für $x = 0.02$ $Mn^{2+}$ . . . . .	82
6.15	$\rho_c^{\sigma^{\pm}}(B)$ für $CdSe/Zn_{1-x}Mn_xSe$ Quantenpunkte . . . . .	83
6.16	$\rho_R(B)$ $\rho_O(B)$ für $CdSe/Zn_{1-x}Mn_xSe$ . . . . .	84
7.1	Linear-zirkular Konvertierung (LZK) für $CdSe/ZnSe$ Quantenpunkte . . . . .	89
7.2	LKZ für $Cd_{1-x}Mn_xSe/ZnSe$ Quantenpunkte . . . . .	90
7.3	LKZ für Quantenpunkte mit $x = 0.01$ . . . . .	92
7.4	LKZ für $CdSe/Zn_{1-x}Mn_xSe$ Quantenpunkte mit $x = 0.015$ . . . . .	94
8.1	Schematische Darstellung des Hanle-Effekts . . . . .	98
8.2	Hanle-Signal für $CdMnSe/ZnSe$ mit $x = 0.01$ und $x = 0.02$ . . . . .	100
8.3	$\rho_c(B)$ für $CdMnSe/ZnSe$ Quantenpunkte mit $x = 0.01$ und $\vec{B} \perp \vec{z}$ . . . . .	101
8.4	LZK in Voigt-Geometrie für $Cd_{1-x}Mn_xSe/ZnSe$ mit $x = 0.01$ . . . . .	103
9.1	$CdMnSe$ PL-Dynamik für $E_{exc} < E_{ZnSe}$ . . . . .	109
9.2	Energie- und Polarisationstransfer; PL-Intensität pro Mesafläche . . . . .	110
9.3	Mathematisches Modell der Strahlungskopplung . . . . .	113
9.4	Spektrale Abhängigkeit der Strahlungskopplung . . . . .	114
9.5	Temperaturabhängigkeit und nicht resonante Dynamik . . . . .	116

# B Probenregister

## Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se/ZnSe Quantenpunkte:

**Probennummer:** CB2210, CB2133 und CB2134  
**Hergestellt von:** T. Slobodskyy, G. Schmidt und L. W. Molenkamp  
**Ort:** Universität Würzburg, Physikalisches Institut,  
 Experimentelle Physik III  
**Herstellungsart:** Molekularstrahlepitaxie



Die Mn<sup>2+</sup> Ionen Konzentration in der 1.3 Monolagen dicken Cd(Mn)Se Schicht variiert wie folgt:

Probe	Mn <sup>2+</sup> Gehalt
CB2210	0 %
CB2133	1 %
CB2134	2 %

Die strukturierten Proben tragen die Bezeichnung **CB2210-3**, **CB2133-3** und **CB2134-3** (Einzel-Mesen-Layout P1) beziehungsweise **CB2133-TS1** und **CB2134-TS1** (Multi-Mesen-Layout P2).

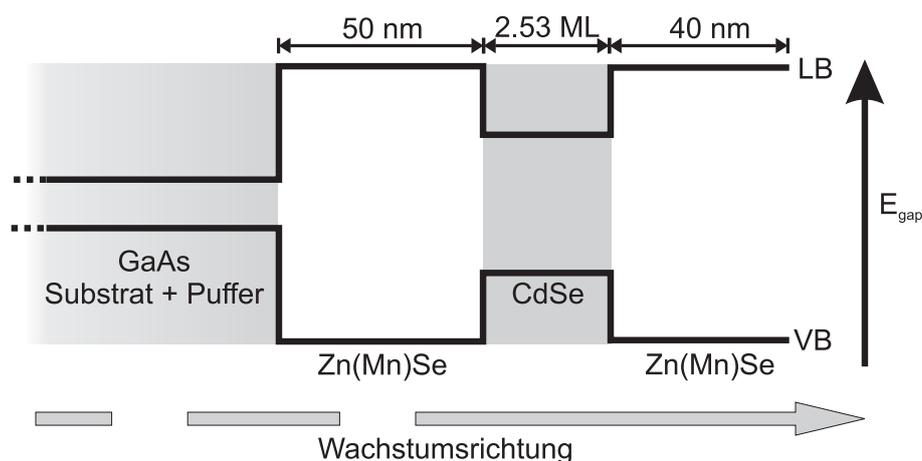
## CdSe/Zn<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se Quantenpunkte:

**Probennummer:** CB3215, CB3216 und CB3217

**Hergestellt von:** S. Mahapatra, A. Frey und K. Brunner

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

**Herstellungsart:** Molekularstrahlepitaxie



Die Mn<sup>2+</sup> Ionen Konzentration in der Zn(Mn)Se Barriere variiert wie folgt:

Probe	Mn <sup>2+</sup> Gehalt
CB3216	1.5 %
CB3215	3.2 %
CB3217	5.3 %

Die strukturierten Proben tragen die Bezeichnung **CB3215-TS2**, **CB3216-TS2** und **CB3217-TS2** (Einzel-Mesen-Layout P1) beziehungsweise **CB3215-TS1**, **CB3216-TS1** und **CB3217-TS1** (Multi-Mesen-Layout P2).

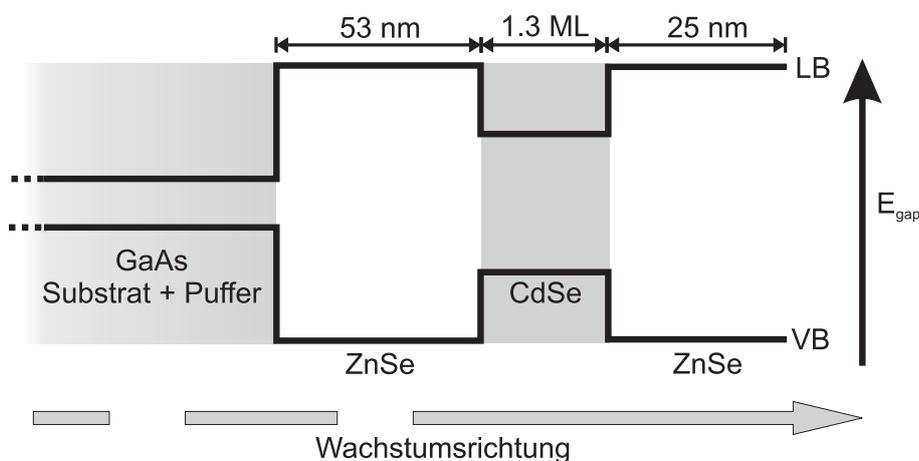
## CdSe/ZnSe Quantenpunkte:

**Probennummer:** S0863

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

**Ort:** Universität Bremen,  
Institut für Festkörperphysik

**Herstellungsart:** Molekularstrahlepitaxie

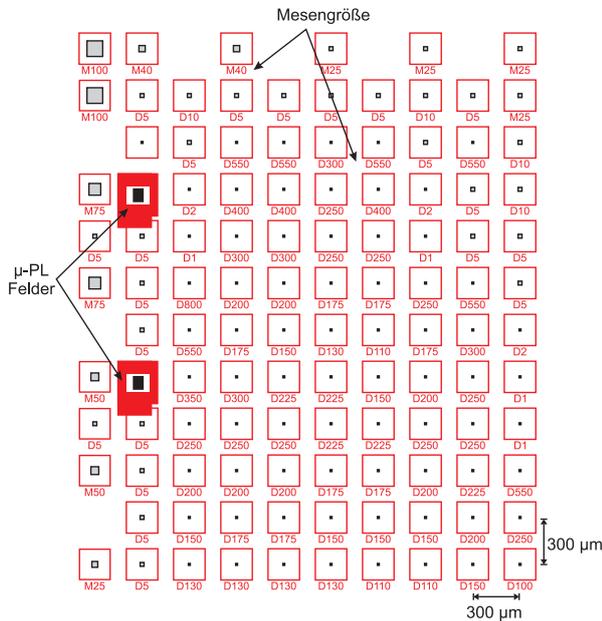


Die Probe mit Multi-Mesen-Layout (P2) trägt die Bezeichnung **S0863-1**.

## Nanostrukturierung - Probenlayout:

- Gleichmäßiges Aufschleudern einer Positivlackschicht (PMMA) auf die Probenoberfläche.
- Größe und Anordnung der Mesen lassen sich durch Belichtung mittels Elektronenstrahlolithographie festlegen.
- Entfernen des belichteten PMMA's und Aufdampfen einer 20 nm dicken Titanmaske. Chemische Auflösung des nicht belichteten Lacks  $\Rightarrow$  Grundlage für nachfolgenden Ätzprozess.
- Nasschemisches Ätzverfahren mit „ $H_2O + HBr + K_2Cr_2O_7$ “-Lösung. Abschließend „Lift-Off“ der Titanmaske.

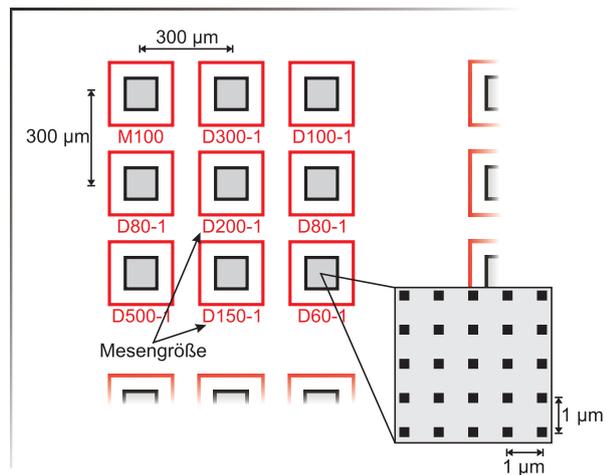
## Probenlayout - P1:



Mesenlayout zur Untersuchung einzelner Quantenpunkte. Die Mesengröße ist als Zahl unterhalb der entsprechenden Mesa in  $\mu\text{m}$  beziehungsweise nm angegeben. Der gegenseitige Mesenabstand beträgt  $300 \mu\text{m}$ .

## Probenlayout - P2:

Ausschnitt einer Multi-Mesen-Struktur zur Untersuchung von kooperativen Effekten zwischen den Quantenpunkten. Die Struktur besteht aus jeweils  $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$  großen Bereichen, die eine Anordnung von Mesen im Abstand von  $1 \mu\text{m}$  enthalten. Die Größe der Mesen und ihr gegenseitiger Abstand ist durch die Zahlen unterhalb des entsprechenden Feldes angegeben. Neben dem Mesenabstand von  $1 \mu\text{m}$  existieren Bereiche mit  $2 \mu\text{m}$ ,  $5 \mu\text{m}$  und  $10 \mu\text{m}$  Abstand zwischen den Mesen. Ein einzelnes  $100 \mu\text{m}$  Feld enthält damit  $101 \times 101$  ( $1 \mu\text{m}$ ),  $51 \times 51$  ( $2 \mu\text{m}$ ),  $21 \times 21$  ( $5 \mu\text{m}$ ) beziehungsweise  $11 \times 11$  ( $10 \mu\text{m}$ ) einzelne Mesen.



# Literaturverzeichnis

- [Age02] V. F. Agekyan, *Intracenter Transitions of Iron-Group ions in II-VI Semiconductor Matrices*, Physics of the Solid State **44**:2013, 2002.
- [Aki06] I. A. Akimov, J. T. Andrews und F. Henneberger, *Stimulated Emission from the Biexciton in a Single Self-Assembled II-VI Quantum Dot*, Physical Review Letters **96**:067401, 2006.
- [Ari07] R. Arians, T. KÜmmel, G. Bacher, A. Gust, C. Kruse und D. Hommel, *Room temperature emission from CdSe/ZnSSe/MgS single quantum dots*, Applied Physics Letters **90**:101114, 2007.
- [Ash01] N. Ashcroft and N.D. Mermin, *Festkörperphysik*, Oldenbourg, München, 2001.
- [Ast06] G. V. Astakhov, T. Kiessling, A. V. Platonov, T. Slobodskyy, S. Mahapatra, W. Ossau, G. Schmidt, K. Brunner und L. W. Molenkamp, *Circular-to-Linear and Linear-to-Circular Conversion of Optical Polarization by Semiconductor Quantum Dots*, Physical Review Letters **96**:027402, 2006.
- [Aws02] D. Awschalom, D. Loss and N. Samarth (Eds.), *Semiconductor Spintronics and Quantum Computation*, Nanoscience and Technology, Springer, Berlin / Heidelberg, 2002.
- [Aws07] D. D. Awschalom und M. E. Flatté, *Challenges for semiconductor spintronics*, Nature Physics **3**:153, 2007.
- [Bab08] A. Babiński, J. Borysiuk, S. Kret, M. Czyż, A. Golnik, S. Raymond und Z. R. Wasilewski, *Natural quantum dots in the InAs/GaAs wetting layer*, Applied Physics Letters **92**:171104, 2008.
- [Bac99a] 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*, Physical Review Letters **83**:4417, 1999.
- [Bac99b] G. Bacher, T. KÜmmel, D. Eisert, A. Forchel, B. König, W. Ossau, C. R. Becker und G. Landwehr, *Buried single CdTe/CdMnTe quantum dots realized by focused ion beam lithography*, Applied Physics Letters **75**:956, 1999.

- [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*, Applied Physics Letters **79**:524, 2001.
- [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*, Physical Review Letters **89**:127201, 2002.
- [Bai88] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich und J. Chazelas, *Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices*, Physical Review Letters **61**:2472, 1988.
- [Bai04] M. H. Baier, S. Watanabe, E. Pelucchi und E. Kapon, *High uniformity of site-controlled pyramidal quantum dots grown on prepatterned substrates*, Applied Physics Letters **84**:1943, 2004.
- [Bar05] M. D. Barnes, P. S. Krstic, P. Kumar, A. Mehta und J. C. Wells, *Far-field modulation of fluorescence decay rates in pairs of oriented semiconducting polymer nanostructures*, Physical Review B **71**:241303(R), 2005.
- [Bas06] S. Baskoutas und A. F. Terzis, *Size-dependent band gap of colloidal quantum dots*, Journal of Applied Physics **99**:013708, 2006.
- [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**:451, 2001.
- [Böc08] C. Böckler, S. Reitzenstein, C. Kistner, R. Debusmann, A. Löffler, T. Kida, S. Höfling, A. Forchel, L. Grenouillet, J. Claudon und J. M. Gérard, *Electrically driven high-Q quantum dot-micropillar cavities*, Applied Physics Letters **99**:091107, 2008.
- [Ber99] D. Bertram, M. C. Hanna und A. J. Nozik, *Two color blinking of single strain-induced GaAs quantum dots*, Applied Physics Letters **74**:2666, 1999.
- [Ber08] J. Berezovsky, M. H. Mikkelsen, N. G. Stoltz, L. A. Coldren und D. D. Awschalom, *Picosecond Coherent Optical Manipulation of a Single Electron Spin in a Quantum Dot*, Science **320**:349, 2008.
- [Bes01] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal und H. Mariette, *Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission*, Physical Review B **63**:155307, 2001.
- [Bes04] L. Besombes, Y. Léger, L. Maingault, D. Ferrand, H. Mariette und J. Cibert, *Probing the Spin State of a Single Magnetic Ion in an Individual Quantum Dot*, Physical Review Letters **93**:207403, 2004.

- [Bha94] R. N. Bhargava, D. Gallagher, X. Hong und A. Nurmikko, *Optical Properties of Manganese-Doped Nanocrystals of ZnS*, Physical Review Letters **72**:416, 1994.
- [Bha96] R. N. Bhargava, *Doped nanocrystalline materials - Physics and applications*, Journal of Luminescence **70**:85, 1996.
- [Bin89] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach und W. Zinn, *Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange*, Physical Review B **39**:4828, 1989.
- [Bol98] A. A. Bol und A. Meijerik, *Long-lived  $Mn^{2+}$  emission in nanocrystalline ZnS: $Mn^{2+}$* , Physical Review B **58**:R15997, 1998.
- [Bor01] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang und D. Bimberg, *Ultralong Dephasing Time in InGaAs Quantum Dots*, Physical Review Letters **87**:157401, 2001.
- [Bru94] K. Brunner, G. Abstreiter, G. Böhm, G. Tänkle und G. Weimann, *Sharp-Line Photoluminescence and Two-Photon Absorption of Zero-Dimensional Biexcitons in a GaAs/AlGaAs Structure*, Physical Review Letters **73**:1138, 1994.
- [Bus76] W. Busse, H.-E. Gumlich, B. Meissner und D. Theis, *Time Resolved Spectroscopy of ZnS:Mn by Dye Laser Technique*, Journal of Luminescence **12/13**:693, 1976.
- [Car08] J. M. Caruge, J. E. Halpert, V. Wood, V. Bulović und M. G. Bawendi, *Colloidal quantum-dot light-emitting diodes with metal-oxide charge transport layers*, Nature Photonics **2**:247, 2008.
- [Cha03] K. Chang, J. B. Xia und F. M. Peeters, *Magnetic field tuning of the effective  $g$  factor in a diluted magnetic semiconductor quantum dot*, Applied Physics Letters **82**:2661, 2003.
- [Che04] W. M. Chen, I. A. Buyanova, K. Kayanuma, Z. H. Chen, A. Murayama, Y. Oka, A. A. Toropov, S. V. Sorokin, S. V. Ivanov und P. S. Kop'ev, *Efficient spin depolarization in ZnCdSe spin detector: an important factor limiting optical spin injection efficiency in ZnMnSe/ZnCdSe spin light-emitting structures*, Applied Physics Letters **85**:5260, 2004.
- [Che05] W. Chen, V. F. Aguekian, N. Vassiliev, A. Y. Serov und N. G. Filosofov, *New observations on the luminescence decay lifetime of  $Mn^{2+}$  in ZnS: $Mn^{2+}$  nanoparticles*, Journal of Chemical Physics **123**:124707, 2005.
- [Cib86] J. Cibert, P. M. Petroff, G. J. Dolan, S. J. Pearton, A. C. Gossard und J. H. English, *Optically detected carrier confinement to one and zero dimension in GaAs quantum well wires and boxes*, Applied Physics Letters **49**:1275, 1986.
- [Dan94] M. Danek, K. F. Jensen, C. B. Murray und M. G. Bawendi, *Electrospray organometallic chemical vapor deposition - A novel technique for preparation of II-VI quantum dot composites*, Applied Physics Letters **65**:2795, 1994.

- [Dek98] E. Dekel, D. Gershoni, E. Ehrenfreund, D. Spektor, J. M. Garcia und P. M. Petroff, *Multiexciton Spectroscopy of a Single Self-Assembled Quantum Dot*, Physical Review Letters **80**:4991, 1998.
- [Dem00] W. Demtröder, *Experimentalphysik III - Atome, Moleküle und Festkörper*, Springer, Berlin / Heidelberg, 2000.
- [DeV96] R. G. DeVoe und R. G. Brewer, *Observation of Superradiant and Subradiant Spontaneous Emission of Two Trapped Ions*, Physical Review Letters **76**:2049, 1996.
- [Dic54] R. H. Dicke, *Coherence in Spontaneous Radiation Processes*, Physical Review **93**:99, 1954.
- [Din74] R. Dingle, W. Wiegmann und C. H. Henry, *Quantum States of Confined Carriers in Very Thin  $Al_xGa_{1-x}As$ - $GaAs$ - $Al_xGa_{1-x}As$  Heterostructures*, Physical Review Letters **33**:827, 1974.
- [Din90] J. Ding, N. Pelekanos, A. V. Nurmikko, H. Luo, N. Samarth und J. K. Furdyna, *Room-temperature exciton absorption in  $(Zn,Cd)Se/ZnSe$  quantum wells at blue-green wavelengths*, Applied Physics Letters **57**:2885, 1990.
- [Dor03] P. S. Dorozhkin, A. V. Chernenko, V. D. Kulakovskii, A. S. Brichkin, A. A. Maksimov, H. Schömig, 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*, Physical Review B **68**:195313, 2003.
- [Dzh97a] R. I. Dzhioev, B. P. Zakharchenya, E. L. Ivchenko, V. L. Korenev, Y. G. Kusraev, N. N. Ledentsov, V. M. Ustinov, A. E. Zhukov und A. F. Tsatsul'nikov, *Fine structure of excitonic levels in quantum dots*, JETP Lett. **65**:804, 1997.
- [Dzh97b] R. I. Dzhioev, H. M. Gibbs, E. L. Ivchenko, G. Khitrova, V. L. Korenev, M. N. Tkachuk und B. P. Zakharchenya, *Determination of interface preference by observation of linear-to-circular polarization conversion under optical orientation of excitons in type-II  $GaAs/AlAs$  superlattices*, Physical Review B **56**:13405, 1997.
- [Dzh98] R. I. Dzhioev, B. P. Zakharchenya, E. L. Ivchenko, V. L. Korenev, Y. 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*, Physics of the Solid State **40**:790, 1998.
- [Ebb05] A. Ebbens, D. N. Krizhanovskii, A. I. Tartakovskii, F. Pulizzi, T. Wright, A. V. Savelyev, M. S. Skolnick und M. Hopkinson, *Optical orientation and control of spin memory in individual  $InGaAs$  quantum dots*, Physical Review B **72**:073307, 2005.

- [Efr01] A. L. Efros, E. I. Rashba und M. Rosen, *Paramagnetic Ion-Doped Nanocrystal as a Voltage-Controlled Spin Filter*, Physical Review Letters **87**:206601, 2001.
- [Emp97] S. A. Empedocles und M. G. Bawendi, *Quantum-Confined Stark Effect in Single CdSe Nanocrystallite Quantum Dots*, Science **278**:2114, 1997.
- [Eps01] R. J. Epstein, D. T. Fuchs, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff und D. D. Awschalom, *Hanle effect measurements of spin lifetimes in InAs self-assembled quantum dots*, Applied Physics Letters **78**:733, 2001.
- [Faf94] S. Fafard, R. Leon, D. Leonard, J. L. Merz und P. M. Petroff, *Visible photoluminescence from N-dot ensembles and the linewidth of ultrasmall  $Al_yIn_{1-y}As/Al_xGa_{1-x}As$  quantum dots*, Physical Review B **50**:8086, 1994.
- [Fal03] H. Falk, J. Hübner, P. J. Klar und W. Heimbrod, *Intralayer and interlayer energy transfer from excitonic states into the Mn  $3d^5$  shell in diluted magnetic semiconductor structures*, Physical Review B **68**:165203, 2003.
- [Far95] R. F. Farrow, *Molecular beam epitaxy - application to key materials*, Noyes Publ., Park Ridge, NJ, 1995.
- [Far96] W. Farah, D. Scalbert und M. Nawrocki, *Magnetic relaxation studied by transient reflectivity in  $Cd_{1-x}Mn_xTe$* , Physical Review B **53**:R10461, 1996.
- [Fat94] J. M. Fatah, T. Piorek, P. Harrison, T. Stirner, and W. E. Hagston, *Numerical simulation of antiferromagnetic spin-pairing effects in diluted magnetic semiconductors and enhanced paramagnetism at interfaces*, Physical Review B **49**:10341, 1994.
- [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**:787, 1999.
- [Fli01] T. Flissikowski, A. Hundt, M. Lowisch, M. Rabe und F. Henneberger, *Photon Beats from a Single Semiconductor Quantum Dot*, Physical Review Letters **86**:3172, 2001.
- [Fol03] J. A. Folk, R. M. Potok, C. M. Marcus und V. Umansky, *A Gate-Controlled Bidirectional Spin Filter Using Quantum Coherence*, Science **299**:679, 2003.
- [Fu,99] H. Fu, L.-W. Wang und A. Zunger, *Excitonic exchange splitting in bulk semiconductors*, Physical Review B **59**:5568, 1999.
- [Fur88] J. K. Furdyna, *Diluted magnetic semiconductors*, Journal of Applied Physics **64**:R29, 1988.
- [Gaj79] J. A. Gaj, R. P. Planel und 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 Communications **29**:435, 1979.

- [Gaj88] J. A. Gaj, *Magneto-optical properties of large-gap diluted magnetic semiconductors - Semiconductors and Semimetals* **25**, Academic Press, London, 1988.
- [Gam96a] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer und D. Park, *Fine Structure Splitting in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots*, Physical Review Letters **76**:3005, 1996.
- [Gam96b] 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**:87, 1996.
- [Ger21] W. Gerlach und O. Stern, *Der experimentelle Nachweis des magnetischen Moments des Silberatoms*, Zeitschrift f. Physik A **8**:110, 1921.
- [Ger22] W. Gerlach und O. Stern, *Der experimentelle Nachweis der Richtungsquantelung im Magnetfeld*, Zeitschrift f. Physik A **9**:349, 1922.
- [Gin99] F. Gindele, K. Hild, W. Langbein und U. Woggon, *Phonon interaction of single excitons and biexcitons*, Physical Review B **60**:R2157, 1999.
- [Goe88] O. Goede und W. Heimbrodt, *Optical Properties of (Zn,Mn) and (Cd,Mn) Chalcogenide Mixed Crystals and Superlattices*, physica status solidi (b) **146**:11, 1988.
- [Gou01] S. V. Goupalov, R. A. Suris, P. Lavallard und D. S. Citrin, *Homogeneous broadening of the zero-optical-phonon spectral line in semiconductor quantum dots*, Nanotechnology **12**:518, 2001.
- [Gre06] A. Greilich, D. R. Yakovlev, A. Shabaev, Al. L. Efros, I. A. Yugova, R. Oulton, V. Stavarache, D. Reuter, A. Wieck und M. Bayer, *Mode Locking of Electron Spin Coherences in Singly Charged Quantum Dots*, Science **313**:341, 2006.
- [Gu,03] Y. Gu, I. L. Kuskovsky, J. Fung, R. Robinson, I. P. Herman, G. F. Neumark, X. Zhou, S. P. Guo und M. C. Tamargo, *Determination of size and composition of optically active CdZnSe/ZnBeSe quantum dots*, Applied Physics Letters **83**:3779, 2003.
- [Gum81] H.-E. Gumlich, *Electro- and Photoluminescence Properties of Mn<sup>2+</sup> IN ZnS and ZnCdS*, Journal of Luminescence **23**:73, 1981.
- [Gup99] J. A. Gupta, D. D. Awschalom, X. Peng und A. P. Alivisatos, *Spin coherence in semiconductor quantum dots*, Physical Review B **59**:R10421, 1999.
- [Hak00] H. Haken and H.C. Wolf, *Atom- und Quantenphysik*, Springer, Berlin Heidelberg, 2000.
- [Han91] W. Hanle, *Über magnetische Beeinflussung der Polarisation der Resonanzfluoreszenz (Nachdruck aus Z. Phys. 30, 93 (1924))*, Zeitschrift für Physik D - Atoms, Molecules and Clusters **18**:5, 1991.

- [Har00] P. Harrison, *Quantum Wells, Wires and Dots - Theoretical and Computational Physics*, Wiley, Chichester, 2000.
- [Hef86] Y. Hefetz, W. C. Goltsos, A. V. Nurmikko, L. A. Kolodziejski und R. L. Gunshor, *Exciton formation and energy exchange with d-electron states in ZnSe/(Zn,Mn)Se multiple quantum wells*, Applied Physics Letters **48**:372, 1986.
- [Her96] M. A. Herman und H. Sitter, *Molecular beam epitaxy - fundamentals and current status*, Springer, Berlin, 1996.
- [Hes94] H. F. Hess, E. Betzig, T. D. Harris, L. N. Pfeiffer und K. W. West, *Near-Field Spectroscopy of the Quantum Constituents of a Luminescent System*, Science **264**:1740, 1994.
- [Hun05a] A. Hundt, J. Puls, A. V. Akimov und F. Henneberger, *Spin-lattice relaxation in diluted magnetic (Cd,Mn)Se quantum dots*, physica status solidi (c) **2**:867, 2005.
- [Hun05b] A. Hundt, J. Puls, A. V. Akimov, Y. H. Fan und F. Henneberger, *Photocarrier-induced spin heating and spin-lattice relaxation in diluted magnetic Stranski-Krastanov quantum dots*, Physical Review B **72**:033304, 2005.
- [Ito97] H. Ito, T. Takano, T. Kuroda, F. Minami und H. Akinaga, *Two-dimensional confinement effect on Mn<sup>2+</sup> intraionic transition*, Journal of Luminescence **72-74**:342, 1997.
- [Ivc91] E. L. Ivchenko, V. P. Kochereshko, A. Yu. Naumov, I. N. Uraltsev und P. Lavallard, *Magnetic-Field-Effects on Photoluminescence Polarization in Type II GaAs/AlAs Superlattices*, Superlattices and Microstructures **10**:497, 1991.
- [Ivc97a] E. L. Ivchenko, *Fine structure of excitonic levels in semiconductor nanostructures*, physica status solidi (a) **164**:487, 1997.
- [Ivc97b] E. L. Ivchenko und G. E. Pikus, *Superlattices and Other Heterostructures - Symmetry and Optical Phenomena*, Springer, Berlin, 1997.
- [Jac98] L. Jacak, P. Hawrylak und A. Wójs, *Quantum Dots*, Springer, Berlin Heidelberg, 1998.
- [Jod74] R. Jodoin und L. Mandel, *Superradiance in an inhomogeneously broadened atomic system*, Physical Review A **9**:873, 1974.
- [Kak06] S. Kako, C. Santori, K. Hoshino, S. Götzinger, Y. Yamamoto und Y. Arakawa, *A gallium nitride single-photon source operating at 200 K*, Nature Materials **5**:887, 2006.
- [Kay88] Y. Kayanuma, *Quantum-size effects of interacting electrons and holes in semiconductor microcrystals with spherical shape*, Physical Review B **38**:9797, 1988.

- [Kel01] D. Keller, D. R. Yakovlev, B. König, W. Ossau, Th. Gruber, A. Waag, L. W. Molenkamp und A.V. Scherbakov, *Heating of the magnetic ion system in (Zn,Mn)Se/(Zn,Be)Se semimagnetic quantum wells by means of photoexcitation*, Physical Review B **65**:035313, 2001.
- [Kim00] C. S. Kim, M. Kim, S. Lee, J. Kossut, J. K. Furdyna und M. Dobrowolska, *CdSe quantum dots in a  $Zn_{1-x}Mn_x$ Se matrix: new effects due to presence of Mn*, Journal of Crystal Growth **214/215**:395, 2000.
- [Kla06] A. Klaedtke und O. Hess, *Ultrafast nonlinear dynamics of whispering-gallery mode micro-cavity lasers*, Optics Express **14**:2744, 2006.
- [Klo01] F. Klopff, J. P. Reithmaier und A. Forchel, *Low threshold high efficiency MBE grown GaInAs/(Al)GaAs quantum dot lasers emitting at 980 nm*, Journal of Crystal Growth **227**:1151, 2001.
- [Kön00] B. König, I. A. Merkulov, D. R. Yakovlev, W. Ossau, S. M. Ryabchenko, M. Kutrowski, T. Wojtowicz, G. Karczewski und J. Kossut, *Energy transfer from photocarriers into the magnetic ion system mediated by a two-dimensional electron gas in (Cd,Mn)Te/(Cd,Mg)Te quantum wells*, Physical Review B **61**:16870, 2000.
- [Kne06a] M. K. Kneip, D. R. Yakovlev, M. Bayer, A. A. Maksimov, I. I. Tartakovskii, D. Keller, W. Ossau, L. W. Molenkamp und A. Waag, *Direct energy transfer from photocarriers to Mn-ion system in II-VI diluted-magnetic-semiconductor quantum wells*, Physical Review B **73**:035306, 2006.
- [Kne06b] M. K. Kneip, D. R. Yakovlev, M. Bayer, A. A. Maksimov, I. I. Tartakovskii, D. Keller, W. Ossau, L. W. Molenkamp und A. Waag, *Spin-lattice relaxation of Mn ions in ZnMnSe/ZnBeSe quantum wells measured under pulsed photoexcitation*, Physical Review B **73**:045305, 2006.
- [Kop05] F. H. L. Koppens, J. A. Folk, J. M. Elzerman, R. Hanson, L. H. Willems van Beveren, I. T. Vink, H. P. Tranitz, W. Wegscheider, L. P. Kouwenhoven, L. M. K. Vandersypen, *Control and Detection of Singlet-Triplet Mixing in a Random Nuclear Field*, Science **309**:1346, 2005.
- [Kou03] A. V. Koudinov, Y. G. Kusrayev und I. G. Aksyanov, *Light-induced heating effects in semimagnetic quantum wells*, Physical Review B **68**:085315, 2003.
- [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*, Physical Review Letters **94**:057402, 2005.
- [Kro04] 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**:81, 2004.

- [Kü98] T. Kümmell, R. Weigand, G. Bacher, A. Forchel, K. Leonardi, D. Hommel und H. Selke, *Single zero-dimensional excitons in CdSe/ZnSe nanostructures*, Applied Physics Letters **73**:3105, 1998.
- [Kul96] V. D. Kulakovskii, M. G. Tyazhlov, A. I. Filin, D. R. Yakovlev, A. Waag und G. Landwehr, *Hierarchy of relaxation times in the system of Mn-ion spins in photoexcited semimagnetic quantum wells*, Physical Review B **54**:R8333, 1996.
- [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*, Physical Review Letters **82**:1780, 1999.
- [Kur00] S. Kuroda, Y. Terai, K. Takita, T. Takamasu, G. Kido, N. Hasegawa, T. Kuroda und F. Minami, *Self-organized quantum dots of diluted magnetic semiconductors Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Te*, Journal of Crystal Growth **214/215**:140, 2000.
- [Kus05] Y. G. Kusrayev, A. V. Koudinov, B. P. Zakharchenya, S. Lee, J. K. Furdyna und M. Dobrowolska, *Optical orientation and alignment of excitons in self-assembled CdSe/ZnSe quantum dots: The role of excited states*, Physical Review B **72**:155301, 2005.
- [Lad07] A. D. Lad, C. Rajesh, M. Khan, N. Ali, I. K. Gopalakrishnan, S. K. Kulshreshtha und S. Mahamuni, *Magnetic behavior of manganese-doped ZnSe quantum dots*, Journal of Applied Physics **101**:103906, 2007.
- [Lah97] U. E. H. Laheld und G. T. Einevoll, *Excitons in CdSe quantum dots*, Physical Review B **55**:5184, 1997.
- [Lan98] L. Landin, M. S. Miller, M.-E. Pistol, C. E. Pryor und L. Samuelson, *Optical Studies of Individual InAs Quantum Dots in GaAs: Few-Particle Effects*, Science **280**:262, 1998.
- [Lar85] B. E. Larson, K. C. Hass, H. Ehrenteich und A. E. Carlsson, *Exchange Mechanisms in Diluted Magnetic Semiconductors*, Solid State Communications **56**:347, 1985.
- [Le 03] E. C. Le Ru, J. Fack und R. Murray, *Temperature and excitation density dependence of the photoluminescence from annealed InAs/GaAs quantum dots*, Physical Review B **67**:245318, 2003.
- [Lee90] Y. R. Lee, R. G. Alonso, E.-K. Suh, A. K. Ramdas, L.-X. Li und J. K. Furdyna, *Optical characterization of Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Te epilayers grown by liquid-phase epitaxy*, Journal of Applied Physics **68**:1023, 1990.
- [Lee05a] S. Lee, H. S. Lee, J. Y. Lee, M. Dobrowolska und J. K. Furdyna, *Experimental evidence for antiferromagnetic spin-spin interaction between carriers localized in coupled quantum dots*, Applied Physics Letters **86**:033114, 2005.

- [Lee05b] S. Lee, J. K. Furdyna und M. Dobrowolska, *Coupled II-VI semiconductor quantum dots: manipulation of spin polarization by inter-dot exchange interaction*, *physica status solidi (c)* **2**:1085, 2005.
- [Lee05c] S. Lee, M. Dobrowolska und J. K. Furdyna, *Effect of spin-dependent  $Mn^{2+}$  internal transitions in  $CdSe/Zn_{1-x}Mn_xSe$  magnetic semiconductor quantum dot systems*, *Physical Review B* **72**:075320, 2005.
- [Lee06] S. Lee, M. Dobrowolska und J. K. Furdyna, *Spin relaxation of excitons in non-magnetic quantum dots: Effect of spin coupling to magnetic semiconductor quantum dots*, *Journal of Applied Physics* **99**:08F702, 2006.
- [Leg00] M. Legge, G. Bacher, A. Forchel, M. Klude, M. Fehrer und D. Hommel, *Low threshold II-VI laser diodes with transversal and longitudinal single-mode emission*, *Journal of Crystal Growth* **214**:1045, 2000.
- [Lég05] Y. Léger, L. Besombes, L. Maingault, D. Ferrand und H. Mariette, *Hole spin anisotropy in single Mn-doped quantum dots*, *Physical Review B* **72**:241309(R), 2005.
- [Leo93] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C. M. Reaves, S. P. Denbaars und P. M. Petroff, *Direct formation of quantum-sized dots from uniform coherent islands of InGaAs on GaAs surfaces*, *Applied Physics Letters* **63**:3203, 1993.
- [Liu61] S. H. Liu, *Exchange Interaction between Conduction Electrons and Magnetic Shell Electrons in Rare-Earth Metals*, *Physical Review* **121**:451, 1961.
- [Los98] D. Loss und D. P. DiVincenzo, *Quantum computation with quantum dots*, *Physical Review A* **57**:120, 1998.
- [Lya05] Y. B. Lyanda-Geller, G. Bacher, T. L. Reinecke, M. K. Welsch, A. Forchel, C. R. Becker und L. Molenkamp, *Strongly Tunable Coupling Between Quantum Dots*, *AIP Conf. Proc.* **772**:1427, 2005.
- [Mac03] S. Mackowski, 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*, *Applied Physics Letters* **83**:5524, 2003.
- [Mac04] S. Mackowski, 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*, *Applied Physics Letters* **84**:3337, 2004.
- [Mad96] O. Madelung, *Semiconductors - basic data*, Springer, Berlin Heidelberg, 1996.
- [Mah06] S. Mahapatra, T. Kiessling, E. Margapoti, G. V. Astakhov, W. Ossau, L. Worschech, A. Forchel und K. Brunner, *Formation mechanism and properties of CdSe quantum dots on ZnSe by low temperature epitaxy and in situ annealing*, *Applied Physics Letters* **89**:043102, 2006.

- [Mah07a] S. Mahapatra, K. Brunner und C. Bougerol, *Self-assembly of CdSe/ZnSe(001) quantum dot structures mediated by a tellurium cap layer*, Applied Physics Letters **91**:153110, 2007.
- [Mah07b] S. Mahapatra, T. Kiessling, E. Margapoti, G. V. Astakhov, J. Renner, U. Bass, C. Bougerol, T. Schmidt, A. Bendounan, F. Schmitt, C. Schumacher, L. Worschech, W. Ossau, J. Geurts, L. W. Molenkamp, F. Reinert, A. Forchel und K. Brunner, *CdSe/ZnSe heteroepitaxy: Aspects of growth and self organization of nanostructures*, phys. stat. sol. (c) **4**:3129, 2007.
- [Mei84] F. Meier and B.P. Zakharchenya, *Modern Problems in Condensed Matter Sciences - Optical Orientation*, North-Holland, Amsterdam, 1984.
- [Mel01] D. V. Melnikov und W. Beall Fowler, *Electron-phonon interaction in a spherical quantum dot with finite potential barriers: The Fröhlich Hamiltonian*, Physical Review B **64**:245320, 2001.
- [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-Confin ed Structures*, Physical Review Letters **83**:1431, 1999.
- [Mer08] C. A. Merchant und N. Marković, *Electrically Tunable Spin Polarization in a Carbon Nanotube Spin Diode*, Physical Review Letters **100**:156601, 2008.
- [Mes91] A. Messiah, *Quantenmechanik I*, de Gruyter, Berlin, New York, 1991.
- [Mic00] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu, A. Imamoglu, *A Quantum Dot Single-Photon Turnstile Device*, Science **290**:2282, 2000.
- [Mor95] H. Morkoç und S. N. Mohammad, *High-Luminosity Blue and Blue-Green Gallium Nitride Light-Emitting Diodes*, Science **267**:51, 1995.
- [Nak93] S. Nakamura, M. Senoh und T. Mukai, *P-GaN/N-InGaN/N-GaN Double-Heterostructure Blue-Light Emitting Diodes*, Jpn. J. Appl. Phys. **32**:L8, 1993.
- [Nak96] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku und Y. Sugimoto, *InGaN-Based Multi-Quantum-Well-Structure Laser Diodes*, Jpn. J. Appl. Phys. **35**:L74, 1996.
- [Nak02] Y. Nakamura, O. G. Schmidt, N. Y. Jin-Phillipp, S. Kiravittaya, C. Müller, K. Eberl, H. Gräbeldinger und H. Schweizer, *Vertical alignment of laterally ordered InAs and InGaAs quantum dot arrays on patterned (001) GaAs substrates*, Journal of Crystal Growth **242**:339, 2002.
- [Naw95] M. Nawrocki, Yu. G. Rubo, J. P. Lascaray und D. Coquillat, *Suppression of the Auger recombination due to spin polarization of excess carriers and Mn<sup>2+</sup> ions*

- in the semimagnetic semiconductor  $Cd_{0.95}Mn_{0.05}S$* , Physical Review B **52**:R2241, 1995.
- [Nir95] N. Nirmal, D. J. Norris, M. Kuno, M. G. Bawendi, Al. L. Efros und M. Rosen, *Observation of the 'Dark Exciton' in CdSe Quantum Dots*, Physical Review Letters **75**:3728, 1995.
- [Nol03a] W. Nolting, *Grundkurs theoretische Physik. Bd. 5/1: Quantenmechanik - Grundlagen*, Springer, Berlin, 2003.
- [Nol03b] W. Nolting, *Grundkurs theoretische Physik. Bd. 5/1: Quantenmechanik - Methoden und Anwendungen*, Springer, Berlin, 2003.
- [Nur92] A. V. Nurmikko und R. L. Gunshor, *Optical properties and device prospects of ZnSe-based quantum structures*, Journal of Luminescence **52**:89, 1992.
- [Obe04] M. Obert, J. Renner, A. Forchel, G. Bacher, R. André und D. Le Si Dang, *Nonlinear emission in II-VI pillar microcavities: Strong versus weak coupling*, Applied Physics Letters **84**:1435, 2004.
- [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, *Advances in Solid State Physics - Spintronics: Spin Electronics and Optoelectronics in Semiconductors*, **41**:173-186, Springer, Berlin / Heidelberg, 2001.
- [Oka99] Y. Oka, J. Shen, K. Takabayashi, N. Takahashi, H. Mitsu, I. Souma, R. Pittini, *Dynamics of excitonic magnetic polarons in nanostructure diluted magnetic semiconductors*, Journal of Luminescence **83/84**:83, 1999.
- [Oml91] P. Omling und B. K. Meyer, *Spin-dependent interdefect charge transfer in the GaP:(Mn,S) system*, Physical Review B **44**:5518, 1991.
- [Oss93] W. J. Ossau und B. Kuhn-Heinrich, *Dimensional dependence of antiferromagnetism in diluted magnetic semiconductor heterostructures*, Physica B **184**:422, 1993.
- [Pai01] M. Paillard, X. Marie, P. Renucci, T. Amand, A. Jbeli und J. M. Gérard, *Spin Relaxation Quenching in Semiconductor Quantum Dots*, Physical Review Letters **86**:1634, 2001.
- [Pal04] P. Palinginis, H. Wang, S. V. Goupalov, D. S. Citrin, M. Dobrowolska und J. K. Furdyna, *Exciton dephasing in self-assembled CdSe quantum dots*, Physical Review B **70**:073302, 2004.
- [Par69] R. R. Parsons, *Band-to-Band Optical Pumping in Solids and Polarized Photoluminescence*, Physical Review Letters **23**:1152, 1969.
- [Par05] G. Parascandolo und V. Savona, *Long-range radiative interaction between semiconductor quantum dots*, Physical Review B **71**:045335, 2005.

- [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*, Journal of Applied Physics **92**:6546, 2002.
- [Pav85] D. Pavolini, A. Crubellier, P. Pillet, L. Cabaret und S. Liberman, *Experimental Evidence for Subradiance*, Physical Review Letters **54**:1917, 1985.
- [Pei99] F. C. Peiris, S. Lee, U. Bindley und J. K. Furdyna, *Wavelength dependence of the indices of refraction of molecular beam epitaxy-grown ZnMgSe and ZnCdSe thin films measured by two complementary techniques*, Journal of Applied Physics **86**:918, 1999.
- [Per00] N. Peranio, A. Rosenauer, D. Gerthsen, S. V. Sorokin, I. V. Sedova und S. V. Ivanov, *Structural and chemical analysis of CdSe/ZnSe nanostructures by transmission electron microscopy*, Physical Review B **61**:16015, 2000.
- [Pet82] P. M. Petroff, A. C. Gossard, R. A. Logan und W. Wiegmann, *Toward quantum well wires: Fabrication and optical properties*, Applied Physics Letters **41**:635, 1982.
- [Pet05] J. R. Petta, A. C. Johnson, J. M. Taylor, E. A. Laird, A. Yacoby, M. D. Lukin, C. M. Marcus, M. P. Hanson und A. C. Gossard, *Coherent Manipulation of Coupled Electron Spins in Semiconductor Quantum Dots*, Science **309**:2180, 2005.
- [Pfa05] S. Pfalz, R. Winkler, T. Nowitzki, D. Reuter, A. D. Wieck, D. Hägele und M. Oestreich, *Optical orientation of electron spins in GaAs quantum wells*, Physical Review B **71**:165305, 2005.
- [Por07] A. Portavoce, R. Hull, M. C. Reuter und F. M. Ross, *Nanometer-scale control of single quantum dot nucleation through focused ion-beam implantation*, Physical Review B **76**:235301, 2007.
- [Pre01] G. Prectl, W. Heiss, S. Mackowski und E. Janik, *Semimagnetic self-organized Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Te quantum dots generated by postgrowth thermal annealing*, Applied Physics Letters **78**:2140, 2001.
- [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*, Physical Review B **60**:R16303, 1999.
- [Quy03] M. Quayang und D. D. Awschalom, *Coherent Spin Transfer Between Molecularly Bridged Quantum Dots*, Science **301**:1074, 2003.
- [Ree86] M. A. Reed, R. T. Bate, K. Bradshaw, W. M. Duncan, W. R. Frensley, J. W. Lee und H. D. Shih, *Spatial quantization in GaAs-AlGaAs multiple quantum dots*, Journal of Vacuum Science and Technology B **4**:358, 1986.

- [Rei04] J. P. Reithmaier, G. Şek, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke und A. Forchel, *Strong coupling in a single quantum dot-semiconductor microcavity system*, Nature **432**:197, 2004.
- [Rei06] S. Reitzenstein, A. Bazhenov, A. Gorbunov, C. Hofmann, S. Münch, A. Löffler, M. Kamp, J. P. Reithmaier, V. D. Kulakovskii und A. Forchel, *Lasing in high-Q quantum-dot micropillar cavities*, Applied Physics Letters **89**:051107, 2006.
- [Rei07] S. Reitzenstein, C. Hofmann, A. Gorbunov, M. Strauß, S. H. Kwon, C. Schneider, A. Löffler, S. Höfling, M. Kamp und A. Forchel, *AlAs/GaAs micropillar cavities with quality factors exceeding 150.000*, Applied Physics Letters **90**:251109, 2007.
- [Rei08] S. Reitzenstein, C. Böckler, A. Bazhenov, A. Gorbunov, A. Löffler, M. Kamp, V. D. Kulakovskii und A. Forchel, *Single quantum dot controlled lasing effects in high-Q micropillar cavities*, Optics Express **16**:4848, 2008.
- [Ren06a] J. Renner, L. Worschech, A. Forchel, S. Mahapatra und K. Brunner, *CdSe quantum dot microdisk laser*, Applied Physics Letters **89**:231104, 2006.
- [Ren06b] J. Renner, L. Worschech, A. Forchel, S. Mahapatra und K. Brunner, *Whispering gallery modes in high quality ZnSe/ZnMgSSe microdisks with CdSe quantum dots studied at room temperature*, Applied Physics Letters **89**:091105, 2006.
- [Sak95] J. J. Sakurai, *Modern quantum mechanics*, Addison-Wesley, 1995.
- [Sal01] G. Salis, Y. Kato, K. Ensslin, D. C. Driscoll, A. C. Gossard und D. D. Awschalom, *Electrical control of spin coherence in semiconductor nanostructures*, Nature **414**:619, 2001.
- [San02] C. Santori, D. Fattal, J. Vučković, G. S. Solomon und Y. Yamamoto, *Indistinguishable photons from a single-photon device*, Nature **419**:594, 2002.
- [Sch97] G. Schedelbeck, W. Wegschneider, M. Bichler und G. Abstreiter, *Coupled Quantum Dots Fabricated by Cleaved Edge Overgrowth: From Artificial Atoms to Molecules*, Science **278**:1792, 1997.
- [Sch03a] 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*, Physical Review B **67**:153302, 2003.
- [Sch03b] 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 SPIE **4992**:1, 2003.
- [Sch05] M. Scheibner, *Dissertation: Über die Dynamik lokal wechselwirkender Spinträger*, Physikalisches Institut - Universität Würzburg, 2005.

- [Sch06a] M. Scheibner, T. A. Kennedy, L. Worschech, A. Forchel, G. Bacher, T. Slobodskyy, G. Schmidt und L. W. Molenkamp, *Coherent dynamics of locally interacting spins in self-assembled Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se/ZnSe quantum dots*, Physical Review B **73**:081308(R), 2006.
- [Sch06b] 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*, Journal of Applied Physics **100**:123109, 2006.
- [Sch07a] M. Scheibner, T. Schmidt, L. Worschech, A. Forchel, G. Bacher, T. Passow und D. Hommel, *Superradiance of quantum dots*, Nature Physics **3**:106, 2007.
- [Sch07b] M. Scheibner, T. Schmidt, L. Worschech, A. Forchel, G. Bacher, T. Passow und D. Hommel, *Supplementary Information: Superradiance of quantum dots*, Nature Physics **3**:106, 2007.
- [Sch07c] T. W. Schlereth, C. Schneider, W. Kaiser, S. Höfling und A. Forchel, *Low threshold, high gain AlGaInAs quantum dot laser*, Applied Physics Letters **90**:221113, 2007.
- [Sch07d] T. Schmidt, L. Worschech, M. Scheibner, T. Slobodskyy, G. Schmidt, L. W. Molenkamp, T. Passow, D. Hommel und A. Forchel, *Light controlled spin properties and radiative coupling of CdSe based quantum dots*, physica status solidi (c) **4**:3334, 2007.
- [Sch08] C. Schneider, M. Strauß, T. Sünner, A. Huggenberger, D. Wiener, S. Reitzenstein, M. Kamp, S. Höfling und A. Forchel, *Lithographic alignment to site-controlled quantum dots for device integration*, Applied Physics Letters **92**:183101, 2008.
- [Seb02] K. Sebald, P. Michler, T. Passow, D. Hommel, G. Bacher, A. Forchel, *Single-photon emission of CdSe quantum dots at temperatures up to 200 K*, Applied Physics Letters **81**:2920, 2002.
- [Seu99] J. Seufert, *Diplomarbeit: II-IV-Halbleiter-Einzelquantenpunkte - optische Spektroskopie an künstlichen Atomen*, Physikalisches Institut, Lehrstuhl für Technische Physik, Julius-Maximilians-Universität Würzburg, September 1999.
- [Seu01a] J. Seufert, G. Bacher, M. Scheibner, A. Forchel, S. Lee, M. Dobrowolska und J. K. Furdyna, *Dynamical Spin Response in Semimagnetic Quantum Dots*, Physical Review Letters **88**:027402, 2001.
- [Seu01b] 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*, Applied Physics Letters **79**:1033, 2001.

- [Sha74] J. Shah, R. F. Leheny und W. F. Brinkman, *I<sub>1</sub> line shape as a temperature probe: The thermal relaxation of highly excited CdS*, Physical Review B **10**:659, 1974.
- [Sha00] T. V. Shahbazyan, M. E. Raikh und Z. V. Vardeny, *Mesoscopic cooperative emission from a disordered system*, Physical Review B **61**:13266, 2000.
- [Skr73] N. Skribanowitz, I. P. Herman, J. C. MacGillivray und M. S. Feld, *Observation of Dicke Superradiance in Optically Pumped HF Gas*, Physical Review Letters **30**:309, 1973.
- [Soo96] K. Sooklal, B. S. Cullum, S. M. Angel und C. J. Murphy, *Photophysical properties of ZnS nanoclusters with spatially localized Mn<sup>2+</sup>*, Journal of Physical Chemistry **100**:4551, 1996.
- [Ste21] O. Stern, *Ein Weg zur experimentellen Prüfung der Richtungsquantelung im Magnetfeld*, Zeitschrift f. Physik A **7**:249, 1921.
- [Sti06] 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 **311**:636, 2006.
- [Str07] S. Strauf, N. G. Stolz, M. T. Rakher, L. A. Coldren, P. M. Petroff und D. Bouwmeester, *High-frequency single-photon source with polarization control*, Nature Photonics **1**:704, 2007.
- [Twa84] A. Twardowski, M. von Ortenberg, M. Demianiuk und R. Pauthenet, *Magnetization and Exchange Constants in Zn<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Se*, Solid State Communications **51**:849, 1984.
- [Val06] S. O. Valenzuela und M. Tinkham, *Direct electronic measurement of the spin Hall effect*, Nature **442**:176, 2006.
- [Vin72] A. T. Vink und G. G. P. van Gorkom, *Characteristic infrared luminescence in GaP due to Mn*, Journal of Luminescence **5**:379, 1972.
- [Wei00] R. Weigand, *Dissertation: Exzitonen und Biexzitonen in CdSe Einzel-Quantenpunkten: Feinstruktur und Dynamik*, Physikalisches Institut - Universität Würzburg, 2000.
- [Wim06] M. Wimmer, S. V. Nair und J. Shumway, *Biexciton recombination rates in self-assembled quantum dots*, Physical Review B **73**:165305, 2006.
- [Wog03] U. Woggon, *Optical Properties of Semiconductor Quantum Dots*, Springer-Verlag, 2003.
- [Wol01] S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnár, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova und D. M. Treger, *Spintronics: A Spin-Based Electronics Vision for the Future*, Science **294**:1488, 2001.

- [Wu,97] Y. Wu, K. Arai, N. Kuroda, T. Yao, A. Yamamoto, M. Shen und T. Goto, *Optical Properties of Manganese-Doped ZnSe/ZnS Quantum Dots Grown by Molecular Beam Epitaxy*, Jpn. Journal of Applied Physics **36**:L1648, 1997.
- [Yak04] D. R. Yakovlev, M. Kneip, A. A. Maksimov, I. I. Tartakowskii, M. Bayer, D. Keller, W. Ossau, L. W. Molenkamp, A. V. Scherbakov, A. V. Akimov und A. Waag, *Spin and energy transfer between magnetic ions and free carriers in diluted-magnetic semiconductor heterostructures*, physica status solidi (c) **1**:989, 2004.
- [Yos04] T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H. M. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O. B. Shchekin und D. G. Deppe, *Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity*, Nature **432**:200, 2004.
- [Yua02] Z. Yuan, B. E. Kardynal, R. M. Stevenson, A. J. Shields, C. J. Lobo, K. Cooper, N. S. Beattie, D. A. Ritchie, M. Pepper, *Electrically Driven Single-Photon Source*, Science **295**:102, 2002.
- [Zha06] X. H. Zhang, S. J. Chua, A. M. Yong, S. Y. Chow, H. Y. Yang, S. P. Lau und S. F. Yu, *Exciton radiative lifetime in ZnO quantum dots embedded in SiO<sub>x</sub> matrix*, Applied Physics Letters **88**:221903, 2006.
- [Zho02] H. Zhou, *Dissertation: Optical and Magnetical Resonance Properties of II-VI Quantum Dots*, Fachbereich Physik, Universität Gießen, 2002.
- [Zre94] A. Zrenner, L. V. Butov, M. Hagn, G. Abstreiter, G. Böhm und G. Weimann, *Quantum dots formed by interface fluctuations in AlAs/GaAs coupled quantum well structures*, Physical Review Letters **72**:3382, 1994.



# Danksagung

Abschließend möchte ich es nicht versäumen mich bei all denjenigen Menschen zu bedanken ohne deren Unterstützung und tatkräftige Mithilfe es mir nicht möglich gewesen wäre die vorliegende Arbeit anzufertigen. Mein Dank gilt:

- Herrn PD Dr. Lukas Worschech für die hervorragende Betreuung und sein stetes Interesse am Fortgang dieser Arbeit sowie für die zahlreichen und richtungsweisenden Diskussionen.
- Herrn Prof. Dr. Alfred Forchel für die freundliche Aufnahme am Lehrstuhl für Technische Physik und die Bereitstellung der ausgezeichneten experimentellen Anlagen.
- Herrn Prof. Dr. Karl Brunner für die Übernahme des Zweitgutachtens sowie Herrn Prof. Dr. Wolfgang Kinzel für Teilnahme als Prüfer im Promotionskolloquium.
- Herrn Johannes Renner, der mir bei physikalischen Problemen stets mit Rat und Tat zur Seite stand. Danke auch für so manch lustige Diskussion fernab der Physik.
- Frau Emanuela Margapoti für die stets gute Zusammenarbeit am Magnetkryostaten und die gute Arbeitsatmosphäre im Büro. Danke auch für so manch interessante und erheiternde Unterhaltung fernab der Physik.
- Herrn Fabian Spielberger, der mir während seiner Diplomarbeit eine wertvolle Unterstützung im Labor und bei zahlreichen physikalischen Diskussionen war. Herzlichen Dank für die tolle Zusammenarbeit.
- Allen weiteren Mitgliedern der „II-VI-Spektroskopie“: David Zingelmann, Serbulent Babacan, Fabian Hartmann, Stefan Überlacker und Philipp Franeck. Herzlichen Dank für die Unterstützung im Labor und die tolle Arbeitsatmosphäre.
- Herrn Dr. Michael Scheibner, der mir besonders zu Beginn meiner Promotion auch nach seiner Zeit in der „II-VI-Spektroskopie“ mit wertvollen Tipps zur Seite stand.
- Unseren russischen Kollegen Dr. A. Bazhenov, Dr. A. Gorbunov, Dr. S. Zaitsev, Dr. A. V. Chernenko und Dr. P. S. Dorozhkin aus Chernogolovka für die Hilfsbereitschaft bei physikalisch-technischen Problemen und Fragestellungen im Laboralltag. Besonderer Dank gilt Dr. A. V. Chernenko, Dr. S. Zaitsev und Dr. P. S. Dorozhkin für ihre Mitarbeit in der „II-VI-Spektroskopie“ sowie für die hilfreiche Diskussion und Analyse der Messergebnisse.

- Allen technischen Assistenten der Technischen Physik, allen voran Frau Monika Emmerling für die stets prompte und exzellente Strukturierung der benötigten Proben.
- Herrn Gerhard Heller für sein offenes Ohr und seinen wertvollen Rat bei technischen Problemen und Pannen aller Art.
- Herrn Gerd Manger und Herrn Roland Ebert für die jederzeit ausreichende Versorgung mit flüssigem Helium. Danke auch für die Tipps und Tricks im Umgang mit kryogenen Systemen. Besonderer Dank gilt Herrn Ebert für die zeitaufwendige Unterstützung bei der Behebung unseres „Luftproblems“ am neuen Magnetkryostaten.
- Allen Mitarbeitern der Mechanik- und Elektronikwerkstatt für die rasche Anfertigung der benötigten mechanischen und elektronischen Bauteile.
- Unserer Sekretärin Frau Angelika Berger für die Unterstützung bei allen verwaltungstechnischen Angelegenheiten. Danke auch für so manch willkommene Ablenkung von den aktuellen physikalischen Problemen während der Mittagspause.
- Den Arbeitsgruppenmitgliedern der „III-V-Spektroskopie“, allen voran Herrn Dr. Stephan Reitzenstein, Frau Carolin Böckler, Herrn Tobias Mensing, Herrn Stefan Münch und Frau Caroline Kistner. Ihnen allen ein herzliches Dankeschön für die kollegiale und freundschaftliche Arbeitsatmosphäre im gemeinsamen Spektroskopielabor.
- Den Mitgliedern der Arbeitsgruppe „Nanoelectronics“ am Lehrstuhl für Technische Physik: Frau Daniela Spanheimer, Herrn Stefan Lang, Herrn Christian Müller und Herrn David Hartmann. Danke für das freundschaftliche Arbeitsklima, so manch lustige Unterhaltungen und die aufschlussreichen Diskussionen im gemeinsamen Arbeitsgruppenseminar.
- Allen weiteren Mitarbeitern des Lehrstuhls für Technische Physik, die an dieser Stelle nicht namentlich genannt wurden, für das sehr angenehme Arbeitsklima hier am Institut und die Hilfsbereitschaft bei der Lösung von Problemen unterschiedlichster Natur.
- Meinen Kommilitonen und „Weggefährten“ Matthias Balzer, Frank Dimler, Christian Bretschneider, Dr. Matthias Kaminski und Dr. Dmitri Voronine danke ich für ihre hilfreichen Anregungen, so manch aufmunternden und lustigen Gesprächen in den späten Abend- und frühen Morgenstunden bei Pizza und Cola im Kaffeezimmer der *EP1*. Danke auch für die heiteren Stunden in Berlin, Amsterdam, Madrid und Würzburg.
- Meiner Familie und meinen Freunden für Ihre Unterstützung und die manchmal dringend benötigte Ablenkung. Ein ganz besonderer Dank gilt meinen Eltern, die mir durch ihre finanzielle und moralische Unterstützung nicht nur während meiner Zeit an der Universität immer von ganzem Herzen zur Seite standen und mir damit diesen Weg erst ermöglicht haben.

# Lebenslauf

Thomas Schmidt, geboren am 28.07.1978 in Werneck:

- Sept. 1985 - Okt. 1987: Grundschule Rieden
- Okt. 1987 - Juli 1989: Grundschule Röthlein
- Sept. 1989 - Juli 1998: Alexander-von-Humboldt Gymnasium Schweinfurt
- Juli 1998: Abitur / Allgemeine Hochschulreife
- Aug. 1998 - Aug. 1999: Zivildienst im Behindertenfahrdienst des Arbeiter-Samariter-Bundes Schweinfurt
- Nov. 1999 - Feb. 2005: Studium der Physik an der Julius-Maximilians-Universität Würzburg
- Okt. 2001: Vordiplom Physik
- März 2004 - Feb. 2005: Diplomarbeit am Lehrstuhl für Technische Physik der Universität Würzburg bei PD Dr. Lukas Worschech  
Thema: „*Polarisationsdynamik semimagnetischer Quantenpunkte*“
- Feb. 2005: Diplom in Physik
- seit März 2005: Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Lehrstuhl für Technische Physik der Universität Würzburg bei Prof. Dr. A. Forchel



# EIDESSTATTLICHE ERKLÄRUNG

gemäß § 5 Abs. 2, § 6 Abs. 3 und 5  
der Promotionsordnung der  
Fakultät für Physik und Astronomie  
der Universität Würzburg

Hiermit versichere ich an Eides statt, 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 28. Februar 2005 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 12.01.2009

Thomas Schmidt