

Photolumineszenz-Spektroskopie an niederdimensionalen Halbleiterstrukturen auf III-V-Basis



Dissertation

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

vorgelegt von

Steffen Münch
aus Würzburg

Würzburg 2012

Eingereicht am:
bei der Fakultät für Physik und Astronomie

1. Gutachter: Prof. Dr. S. Reitzenstein
2. Gutachter: Prof. Dr. J. Geurts
der Dissertation

1. Prüfer: Prof. Dr. S. Reitzenstein
2. Prüfer: Prof. Dr. J. Geurts
3. Prüfer: Prof. Dr. W. Kinzel
im Promotionskolloquium

Tag des Promotionskolloquiums: 15.11.2012

Doktorurkunde ausgehändigt am:

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	1
Summary	7
1 Einleitung	13
I Halbleiter-Nanodrähte	19
2 Grundlagen der Photolumineszenz-Spektroskopie an Halbleiter-Nanodrähten	21
2.1 Optische Anregung	22
2.2 Thermalisierung und Komplexbildung	22
2.3 Strahlende Rekombination	23
2.4 Nichtstrahlende Rekombination	26
3 Probenherstellung und Messtechnik	29
3.1 Motivation	29
3.2 Herstellung der InP-Nanodrähte	30
3.2.1 MOVPE-Wachstum	31
3.2.2 ALD-Beschichtung	31
3.3 Mikro-Photolumineszenz-Experimente	34
3.3.1 Zeitintegrierte Mikro-PL-Spektroskopie	34
3.3.2 Zeitaufgelöste Mikro-PL-Spektroskopie	36
3.3.3 Messmethode	37
4 Zeitaufgelöste Untersuchungen an Oberflächen von InP-Nanodrähten	41
4.1 Oberflächenbeschichtete undotierte InP-Nanodrähte	41
4.1.1 HfO ₂ -Beschichtung intrinsischer InP-Nanodrähte	42
4.1.2 HfO ₂ -Beschichtung von InP-Nanodrähten mit GaP-Hülle	47
4.1.3 HfO ₂ -Beschichtung von InP-Nanodrähten nach <i>in situ</i> H ₂ S- Ausheilung	49
4.1.4 Zusammenfassung	50

4.2	Oberflächenbeschichtete p-dotierte InP-Nanodrähte	52
4.2.1	Mikroskopische Vorgänge im Nanodraht nach optischer Anre- gung	53
4.2.2	HfO ₂ -Beschichtung p-dotierter InP-Nanodrähte	57
4.2.3	Einfluss der Dotierkonzentration	59
5	PL-Untersuchungen an GaN-Nanodrähten	61
5.1	Motivation und Herstellung	61
5.2	Makro-PL Untersuchungen	62
5.2.1	Variation des Substrates und der Wachstumstemperatur	63
5.2.2	Temperaturabhängige PL-Messungen	66
II	Quantenoptik in Mikroresonatoren	71
6	Theoretische Grundlagen	73
6.1	Halbleiter-Quantenpunkte	73
6.2	Mikroresonatoren	79
6.3	Licht-Materie Wechselwirkung in Mikroresonatoren	81
6.3.1	Regime der schwachen Kopplung	82
6.3.2	Regime der starken Kopplung	83
7	Probenaufbau und Messtechnik	87
7.1	Mikroresonatoren auf GaAs/AlAs-Basis	87
7.1.1	Resonatorstruktur	87
7.1.2	InGaAs-Quantenpunkte	89
7.1.3	Prozessierung der Mikropillars	90
7.2	Experimentelle Techniken	92
7.2.1	Zeitintegrierte Mikro-PL-Spektroskopie im Magnetfeld	92
7.2.2	Zeitaufgelöste Mikro-PL-Spektroskopie im Magnetfeld	94
7.2.3	Resonanzverstimmung zwischen Exziton und Resonatormode	95
8	Grundlegende Charakterisierung der verwendeten Quantenpunkte	99
8.1	Diamagnetischer Koeffizient von InGaAs-Quantenpunkten	99
8.2	Zeeman-Aufspaltung von InGaAs-Quantenpunkten	102
8.3	Quanten-Charakter der Emission	103
9	Magneto-Optische Untersuchungen zur starken Kopplung	109
9.1	Resonanzverstimmung über Temperaturvariation	109
9.2	Resonanzverstimmung über diamagnetische Verschiebung	111

9.3	Abhängigkeit der Kopplungsstärke vom Magnetfeld	112
9.3.1	Verringerung der Aufspaltung im Magnetfeld	113
9.3.2	Einfluss des Magnetfeldes auf die Oszillatorstärke	114
9.3.3	Nachweis über zeitaufgelöste Messungen	116
10	Kopplung zweier Photonenzustände über Exzitonen-Spins	121
10.1	Starke Kopplung ohne Magnetfeld	121
10.2	Starke Kopplung im Magnetfeld	123
10.3	Rechnergestützte Simulationen	129
10.3.1	Charakter der Wechselwirkung	130
10.3.2	Stärke der Photon-Photon-Kopplung	133
10.4	Ausblick	137
	Literaturverzeichnis	139
	Publikationen	151
	Danksagung	155
	Lebenslauf	157
	Versicherung an Eides statt	159

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit optischen Untersuchungen an niederdimensionalen III/V-Halbleiterstrukturen. Dabei werden zunächst im ersten Teil selbst-organisiert gewachsene Nanodrähte aus InP und GaN bezüglich ihrer Oberflächen- und Kristallqualität charakterisiert. Dies ist besonders im Hinblick auf zukünftige opto- und nanoelektronische Bauteile von Interesse. Der zweite, grundlagenorientierte Teil der Arbeit ist im Bereich der Quantenoptik angesiedelt und widmet sich magneto-optischen Studien zur Licht-Materie Wechselwirkung in Quantenpunkt-Mikroresonator-Systemen im Regime der starken Kopplung.

Oberflächen-Untersuchungen an Halbleiter-Nanodrähten

Bei diesem Teilaspekt der vorliegenden Arbeit stehen Untersuchungen von Halbleiter-Nanodrähten mittels zeitintegrierter und zeitaufgelöster Photolumineszenz (PL)-Spektroskopie im Vordergrund. Diese eindimensionalen Nanostrukturen bieten eine vielversprechende Perspektive für die weitere Miniaturisierung in der Mikroelektronik. Da konventionelle Strukturierungsverfahren wie die optische Lithographie zunehmend an physikalische und technologische Grenzen stoßen, sind selbstorganisierte Wachstumsprozesse hierbei von besonderem Interesse. Bei Nanodrähten besteht darüber hinaus konkret noch die Möglichkeit, über ein gezieltes axiales und radiales Wachstum von Heterostrukturen bereits bei der Herstellung komplexere Funktionalitäten einzubauen.

Auf Grund ihres großen Oberfläche-zu-Volumen Verhältnisses sind die elektronischen und optischen Eigenschaften der Nanodrähte extrem oberflächensensitiv, was vor allem im Hinblick auf zukünftige Anwendungen im Bereich der Mikro- oder Optoelektronik sowie der Sensorik von essentieller Bedeutung ist. Zur näheren Untersuchung der Oberflächeneigenschaften von Nanodrähten eignet sich die optische Spektroskopie besonders, da sie als nicht-invasive Messmethode ohne aufwändige Probenpräparation schnell nützliche Informationen liefert, die zum Beispiel in der Optimierung des Herstellungsprozesses eingesetzt werden können.

Im Hinblick auf zukünftige Anwendungen von Nanodrähten in der Mikroelektronik, etwa als Transistoren, ist häufig eine Beschichtung ihrer Oberfläche mit einem Dielektrikum unausweichlich. Dadurch werden prinzipiell neue Zustände an der

Draht-Oberfläche generiert, die häufig innerhalb der Bandlücke liegen und somit als tiefe Störstellen zu einer erhöhten nichtstrahlenden Rekombination führen. Aus diesem Grund wird intensiv nach effizienten Beschichtungsmethoden gesucht, die die Oberflächeneigenschaften des Nanodrahtes möglichst wenig negativ beeinflussen.

HfO₂-Beschichtung von InP-Nanodrähten

Vor diesem Hintergrund wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit zunächst undotierte InP-Nanodrähte untersucht, die mit Hilfe von Gold-Nanopartikeln als Katalysator in einer Metall-Organischen Gasphasen-Epitaxie-Anlage (MOVPE) auf InP-Substrat nach dem Vapour-Liquid-Solid (VLS)-Verfahren selbstorganisiert gewachsen wurden. Durch geeignete Wahl der Wachstumsparameter wie Materialfluss und Substrattemperatur kann hierbei die Struktur und die chemische Zusammensetzung der Nanodrähte maßgeschneidert eingestellt werden. Für potentielle Anwendungen im Bereich der Nanoelektronik können die Nanodrähte im Anschluss mittels Atomlagenabscheidung (ALD) mit einer dünnen HfO₂-Schicht als Gate-Oxid überzogen werden. In diesem Zusammenhang wurde im Rahmen dieser Arbeit erstmals der Einfluss des ALD-Verfahrens auf die optischen Oberflächeneigenschaften der beschichteten Nanodrähte evaluiert. Hierbei ergab sich unter optimierten Bedingungen bei einer Prozesstemperatur von 250 °C eine Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit von $3,5 \times 10^4$ cm/s. Eine Vorbehandlung mit gepufferter Flusssäure-Lösung (BHF) führte zu einer Verringerung auf $2,5 \times 10^4$ cm/s.

Als weitere Verbesserung erwies sich ein direktes Überwachsen des InP-Nanodrahtes mit einer dünnen GaP-Schicht, wodurch eine Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit von $9,5 \times 10^3$ cm/s erreicht werden konnte. Als noch vielversprechender stellte sich ein *in situ* Ausheilschritt bei 420 °C unter H₂S-Atmosphäre direkt nach dem Wachstum heraus. Obwohl der Vergleich mit der GaP-Umhüllung nicht direkt gezogen werden kann, da keine Proben bei gleicher ALD-Prozesstemperatur zur Verfügung standen, ist die H₂S-Ausheilung vermutlich dem Prozess des einfachen Überwachsens noch leicht überlegen.

Des Weiteren wurden auch p-dotierte InP-Nanodrähte bezüglich ihrer Oberflächeneigenschaften untersucht. Bei den zeitaufgelösten PL-Messungen zeigen diese eine signifikante, ladungsträgerinduzierte Blau-Verschiebung der Emissionsenergie um 90 meV. Zur quantitativen Beschreibung dieser Beobachtung wurde der Effekt der Bandverbiegung herangezogen und ein Modell zur Ladungsträgerdynamik nach gepulster optischer Anregung quantitativ diskutiert. Über dieses Modell kann die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit aus dem zeitlichen Verlauf des PL-Signals extrahiert werden.

Der Einfluss der HfO_2 -Beschichtung stellte sich hierbei als qualitativ vergleichbar zu undotierten Nanodrähten heraus. Allerdings ist die gemessene Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit im Vergleich zu den jeweils unbehandelten Referenzproben beispielsweise um einen Faktor 5 größer. Beim direkten Vergleich von Nanodrähten mit unterschiedlicher Dotierkonzentration zeigte sich ein starker Einfluss der Akzeptor-Konzentration auf die optische Qualität der Proben. Dies ist zum einen auf die Einbringung nicht-strahlender Rekombinationszentren in Form von tiefen Störstellen zurückzuführen. Weiterhin führt die mit steigender Dotierung wachsende Bandverbiegung zu einer räumlichen Trennung der Elektronen- und Lochwellenfunktionen und unterdrückt somit die effektive Rekombination.

Optimierung des Kristallwachstums bei GaN-Nanodrähten

In PL-Experimenten wurden weiterhin mittels Molekularstrahlepitaxie (MBE) gewachsene GaN-Nanodrähte untersucht, die insbesondere für Hochtemperaturanwendungen sehr attraktiv sind. Dabei wurde beim Wachstum mit Hinblick auf eine Optimierung der Kristallqualität das Wachstumssubstrat (Si[001], Si[111] und Al_2O_3 [0001]) und die Temperatur (710 °C, 730 °C und 800 °C) variiert. Außerdem ist bei GaN ein selbstinduziertes Wachstum von Nanodrähten auch ohne den Einsatz eines metallischen Katalysators wie z.B. Ni möglich, was somit einen direkten Vergleich der beiden Wachstumsmodi erlaubt.

Eine Aussage über die Kristallqualität konnte über die Zuordnung und die relative Ausprägung verschiedener Defektemissionen im Spektrum getroffen werden. Auf Saphir (Al_2O_3)-Substrat wurden die besten Resultate bei einer Wachstumstemperatur von 800 °C erzielt, was sich durch eine vergleichsweise geringe Defektemission auszeichnet. Bei Silizium zeigte sich eine klare Überlegenheit des Katalysator-freien Wachstumsprozesses bezüglich der erreichten Kristallqualität. Darüber hinaus gibt es keinen signifikanten Einfluss der Kristallorientierung beim Si-Substrat auf die optische Qualität der Nanodrähte.

Obwohl im Emissionsbereich von GaN keine zeitaufgelösten PL-Messungen möglich waren, konnte mit Hilfe einer Variation der Proben temperatur und der Anwendung eines geeigneten Diffusionsmodells bei zeitintegrierten PL-Messungen ebenfalls die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit zu 3×10^4 cm/s bestimmt werden.

Quantenoptik an Halbleiter-Mikrokavitäten

Der zweite Teil dieser Arbeit widmet sich der Licht-Materie-Wechselwirkung in Quantenpunkt-Mikroresonator-Systemen. Dabei ist das Regime der starken Kopplung zwischen Emitter und Resonator, auch im Hinblick auf mögliche zukünftige

Anwendungen in der Quanteninformationsverarbeitung, von besonderem Interesse. Diese Mikroresonator-Türmchen, die auf planaren AlAs/GaAs-Mikroresonatoren mit InGaAs Quantenpunkten in der aktiven Schicht basieren, wurden mittels zeitintegrierter und zeitaufgelöster Mikro-PL-Spektroskopie in einem äußeren magnetischen Feld in Faraday-Konfiguration untersucht. Dabei können die Quantenpunkt-Exzitonen über eine Temperatur-Verstimmung in Resonanz mit der Kavitätsmode gebracht werden.

Grundlegende Untersuchungen von Quantenpunkten im Magnetfeld

Zunächst wurden $\text{In}_x\text{Ga}_{(1-x)}\text{As}$ -Quantenpunkte mit unterschiedlichem In-Gehalt ($x=30\%$, 45% und 60%) magneto-optisch untersucht. Da der In-Anteil über die Gitterkonstante einen direkten Einfluss auf die Verspannung beim Wachstum hat, bilden sich Quantenpunkte verschiedener Formen und Größen aus. Bei einem In-Gehalt von 60% sind diese relativ klein und rund, bei nur 30% In sind die entstehenden Quantenpunkte größer und eher länglich ausgeprägt.

Aufgrund der größeren Abmessungen weisen diese Quantenpunkte mit 30% In-Anteil auch hohe Oszillatorstärken auf, was sie besonders für Experimente zur starken Kopplung auszeichnet. Unter dem Einfluss des Magnetfeldes zeigte sich ein direkter Zusammenhang zwischen der lateralen Ausdehnung der Quantenpunkte und ihrer diamagnetischen Verschiebung. Für einen In-Gehalt von 60% ergab sich eine diamagnetische Verschiebung von $8 \mu\text{eV}/\text{T}^2$, für 30% In hingegen wurden $26 \mu\text{eV}/\text{T}^2$ gemessen. Dies ist auf die unterschiedliche Ausdehnung der Elektron-Loch-Wellenfunktion im Quantenpunkt zurückzuführen, deren effektiver Durchmesser zu 7 nm bzw. 15 nm berechnet werden kann. Daraus folgt, dass sich besonders in den großen $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Quantenpunkten das Exziton nicht über die gesamte Fläche des Quantenpunktes erstreckt, sondern vielmehr einer quantisierten Schwerpunktsbewegung folgt.

Als Nachweis des Quantencharakters der untersuchten Emitter wurden Spektren unter Variation der optischen Anregungsleistung aufgenommen. Dabei können spektrale Charakteristika wie Bi-Exzitonen und die Emission der p-Schale nachgewiesen werden. Darüber hinaus wurde die Photonenstatistik mit einem Hanbury-Brown und Twiss-Messaufbau gemessen. Der Wert der Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung ergab sich dabei zu $g^{(2)}(\tau = 0) = 0,12$ als eindeutiger Nachweis der Einzelphotonen-Emission.

Starke Kopplung im magnetischen Feld

Nach diesen Voruntersuchungen wurde das Quantenpunkt-Mikroresonator-System im Regime der starken Kopplung erstmals mittels magneto-optischer PL-Spektroskopie studiert.

Neben der Möglichkeit, das Resonanzverhalten über das externe Magnetfeld zu kontrollieren, zeigte sich eine Korrelation zwischen der Kopplungsstärke und dem magnetischen Feld, was auf eine Verringerung der Oszillatorstärke im Magnetfeld zurückgeführt werden konnte. Diese steht wiederum im Zusammenhang mit einer Einschnürung der Wellenfunktion des Exzitons durch das angelegte Feld, sobald die magnetische Länge oberhalb von 3 T kleiner als die Ausdehnung der ungestörten Wellenfunktion ist (15 nm). Dieser direkte Einfluss des Magnetfeldes auf die Oszillatorstärke erlaubt eine *in situ* Variation der Kopplungsstärke. Diese Kontrolle der Oszillatorstärke über das externe Magnetfeld konnte durch zeitaufgelöste PL-Messungen an einzelnen Quantenpunkten bestätigt werden, da ein indirekter Zusammenhang zwischen der spontanen strahlenden Lebensdauer und der Oszillatorstärke besteht.

Photon-Photon-Wechselwirkung bei der starken Kopplung im Magnetfeld

Nach der Demonstration der starken Kopplung zwischen entarteten Exziton- und Resonatormoden im Magnetfeld, wurden im weiteren Verlauf Spin-bezogene Kopplungseffekte im Regime der starken Kopplung untersucht. Der verwendete Quantenpunkt wies eine deutliche Zeeman-Aufspaltung auf und die Entartung der Kavitätsmode war durch eine leichte Elliptizität des Resonator-Türmchens ebenfalls aufgehoben.

Dadurch ergaben sich im Magnetfeld unter Variation der Temperatur zwei Bereiche der Wechselwirkung zwischen den einzelnen Komponenten von Resonator- und Exzitonmode. Die aufgenommenen Messdaten wurden mit einem Modell vier gekoppelter Oszillatoren angepasst, woraus sich bei 3 T eine Vakuum-Rabi-Aufspaltung des einzelnen Kopplungsvorgangs von $86 \mu\text{eV}$ ergibt. Die Betrachtung der Linienbreiten lässt auf einen eher photonischen Charakter der gekoppelten Moden bei 3 T schließen.

Ein weiterer wichtiger Aspekt ist hier der Einfluss des magnetischen Feldes auf den Polarisationszustand der Moden. Dadurch kann es im magnetischen Feld auch zu einer Wechselwirkung zwischen ansonsten unabhängigen Moden kommen. Von besonderem Interesse ist dabei eine beobachtete indirekte Wechselwirkung zwischen den beiden photonischen Moden im Moment der Resonanz, die durch die exzitonische Mode vermittelt wird. Diese sogenannte Spin-vermittelte Photon-Photon-Kopplung

stellt ein Bindeglied zwischen eigentlich unabhängigen photonischen Moden über den Spinzustand eines Exzitons dar.

Summary

This thesis deals with optical investigations on low-dimensional III/V-semiconductor structures. In the first part self-organized nanowires made of InP and GaN are characterized for their surface and crystal quality, which is of special interest with respect to future opto- and nanoelectronic devices. The second part is dedicated to the more basic research topic of Quantum Optics. It presents magneto-optical studies on the light-matter interaction in quantum dot microresonator systems within the regime of strong coupling.

Surface investigations on semiconductor nanowires

This aspect of the present work focuses on investigations of semiconductor nanowires by means of time-integrated and time-resolved photoluminescence (PL) spectroscopy. These one-dimensional nanostructures provide a promising perspective for the further miniaturization of microelectronics. Since conventional structuring techniques increasingly face physical and technological boundaries, self-organized growth processes are of special interest in this context. Moreover, nanowires offer the possibility to implement complex functionalities already during their fabrication by means of controlled growth of axial and radial heterostructures.

Due to their high surface-to-volume ratio the electronic and optical properties of nanowires are extremely sensitive to the surface conditions, which is of essential relevance for future applications in the range of micro- and optoelectronics as well as sensor technology. For a detailed investigation of the surface properties of nanowires optical spectroscopy is especially suitable, because as a non-invasive measurement method it quickly provides useful information without the necessity of an elaborate sample preparation. This information can, for instance, be adopted for the optimization of the fabrication process.

With respect to future applications of nanowires in microelectronics, e.g. as transistors, often a surface coating with a dielectric is required. Thus, new states are created on the wire surface that are located within the bandgap and, consequently, as deep impurities lead to increased non-radiative recombination. As a result, there is an intensive search for efficient coating techniques that influence the surface properties of nanowires as little negative as possible.

HfO₂-Coating of InP nanowires

Considering this background, in the present work undoped InP nanowires were investigated that have been grown in a self-organized manner by means of gold nanoparticles as catalysts in a Metal-Organic Vapour-Phase-Epitaxy (MOVPE) system on InP substrate according to the Vapour-Liquid-Solid (VLS) technique. Here, the structure and chemical composition of the nanowires can be tailored by suitable choice of the growth parameters like material flux and substrate temperature. Subsequently, with respect to potential applications in the range of nanoelectronics the nanowires can be coated with a thin HfO₂-layer acting as a gate oxide by means of Atomic Layer Deposition (ALD). In this context, the influence of the ALD treatment on the optical surface properties of the coated nanowires have been evaluated within the present work for the first time. As a result, a surface recombination velocity of 3.5×10^4 cm/s was obtained under optimized conditions at a process temperature of 250 °C. A pre-treatment with buffered hydrofluoric acid (BHF) led to a reduction to 2.5×10^4 cm/s.

A direct over-growth of the InP nanowire with a thin GaP layer turned out as a further improvement, where a surface recombination velocity of 9.5×10^3 cm/s could be obtained. Even more promising was an *in situ* annealing step at 420 °C under H₂S-atmosphere right after growth. Although a direct comparison with the GaP coating was not possible, because no samples at identical ALD process temperature have been available, the H₂S-annealing is presumably slightly superior to the process of overgrowth.

Furthermore, also p-doped InP nanowires have been investigated with respect to their surface properties. In time-resolved PL-measurements these nanowires show a significant, carrier-induced blue-shift of the emission energy by 90 meV. For a quantitative description of this observation the effect of band-bending was employed and a model of the carrier dynamics after pulsed optical excitation is discussed quantitatively. By the help of this model the surface recombination velocity can be extracted out of the temporal behaviour of the PL-signal.

Here, the influence of the HfO₂-coating turned out to be qualitatively comparable to the undoped nanowires. However, the measured surface recombination velocity is, for instance, a factor 5 bigger compared to the respective untreated reference samples. The direct comparison of nanowires with different doping concentrations showed a strong influence of the acceptor concentration on the optical quality of the samples. On the one hand this is based on the generation of non-radiative recombination centers by deep impurities. Moreover, the increasing band-bending at higher doping levels leads to a spatial separation of the electron and hole wave functions and, consequently, suppresses an efficient recombination.

Optimization of the crystal growth of GaN nanowires

Furthermore, GaN nanowires grown by Molecular-Beam-Epitaxy (MBE) that are especially attractive for high temperature applications have been investigated in PL-experiments. In the growth process the substrate (Si[001], Si[111] and Al₂O₃[0001]) and the temperature (710 °C, 730 °C and 800 °C) have been varied with respect to an optimization of the crystal quality. Besides, GaN allows for a self-induced growth even without a metallic catalyst like, e.g., Ni, which enables a direct comparison of the two growth modes.

A conclusion on the crystal quality could be drawn by the assignment and the relative intensities of different defect emission features in the spectrum. On sapphire (Al₂O₃) substrate the best results have been obtained at a growth temperature of 800 °C, which relates to a relatively low defect emission. On silicon a clear predominance of the catalyst-free growth process was found with respect to the achieved crystal quality. Moreover, there is no significant influence of the crystal orientation of the Si substrate on the optical quality of the nanowires.

Although no time-resolved PL-measurements were possible within the spectral range of GaN, a surface recombination velocity of 3×10^4 cm/s could be determined by means of a variation of the sample temperature and by employing a suitable diffusion model at time-integrated PL-measurements.

Quantum Optics in semiconductor microcavities

The second part of this thesis addresses the light-matter interaction in quantum dot-microresonator systems. Here, the regime of strong coupling between emitter and resonator is of special interest, also with respect to potential future applications in the field of quantum information processing. These microresonator-pillars based on planar AlAs/GaAs microresonators with InGaAs quantum dots in the active layer have been investigated by means of time-integrated and time-resolved micro-PL-spectroscopy in an external magnetic field in Faraday configuration. Therefore, the quantum dot excitons can be tuned to resonance with the cavity mode by temperature variation.

Basic investigations of quantum dots in magnetic fields

In the first place, In_xGa_(1-x)As quantum dots with different In-content ($x = 30\%$, 45% and 60%) have been investigated magneto-optically. Due to the direct influence of the In-content on the lattice constant and, consequently, on the strain during growth, quantum dots of different shapes and sizes are created. At an In-content of

60% they are rather small and circular, whereas with only 30% In the developing quantum dots are bigger and more elongated.

Due to their bigger dimensions these quantum dots with 30% In-content exhibit higher oscillator strengths which makes them especially suitable for experiments on strong coupling. The influence of the magnetic field showed a direct relation between the lateral extension of the quantum dots and their diamagnetic shift. An In-content of 60% resulted in a diamagnetic shift of $8 \mu\text{eV}/\text{T}^2$, whereas for 30% In $26 \mu\text{eV}/\text{T}^2$ have been measured. This is attributed to the different extension of the electron-hole-wavefunction within the quantum dot, whose effective diameter can be calculated to 7 nm and 15 nm, respectively. As a consequence, especially in big $\text{In}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ quantum dots, the exciton does not extend over the whole area of the quantum dot, but rather experiences a center-of-mass quantization.

As a proof of the quantum nature of the emitters spectra have been recorded under variation of the optical excitation power. In doing so, spectral characteristics like bi-excitons and the p-shell emission can be observed. Moreover, the photon statistics have been measured in a Hanbury-Brown and Twiss setup. The value of the second order auto-correlation function was determined to $g^{(2)}(\tau = 0) = 0.12$ which is an unambiguous evidence of single-photon emission.

Strong coupling in magnetic fields

After these basic investigations the quantum dot-microresonator system has been studied in the regime of strong coupling by means of magneto-optical PL-spectroscopy for the first time.

Besides the possibility of tuning the system in resonance by the external magnetic field, a correlation between the coupling strength and the magnetic field was discovered which could be ascribed to a reduction of the oscillator strength in the magnetic field. This in turn is based on a squeeze of the exciton's wavefunction by the applied field above 3 T as soon as the magnetic length becomes smaller than the extension of the undisturbed wavefunction (15 nm). This direct influence of the magnetic field on the oscillator strength allows for an *in situ* control of the coupling strength. This control of the oscillator strength by the external magnetic field could be confirmed by time-resolved PL-measurements on single quantum dots, due to the inverse relation between the spontaneous radiative lifetime and the oscillator strength.

Photon-photon interaction under strong coupling in magnetic fields

After the demonstration of strong coupling between degenerate exciton and resonator modes in magnetic fields, spin-related coupling effects within the regime of

strong coupling have been investigated. The quantum dot under study exhibited a significant Zeeman-splitting and the degeneracy of the cavity mode was also lifted by a slight ellipticity of the micropillar.

Thus, two regions of interaction between the individual components of the resonator and exciton mode developed in the magnetic field under variation of the temperature. The recorded data were fitted with a model of four coupled oscillators, which revealed a Vacuum-Rabi-splitting of each individual coupling event of $86 \mu\text{eV}$ at 3 T. The measured linewidths suggest a rather photonic character of the coupled modes at 3 T.

A further important aspect in this context is the influence of the magnetic field on the polarization state of the modes. As a result, in the magnetic field there is a possible interaction between otherwise independent modes. Here, an observed indirect interaction between both photonic modes at the moment of resonance is of special interest, because it is mediated by the excitonic mode. This so-called spin-mediated photon-photon coupling represents a link between technically independent photonic modes via the spin state of an exciton.

1 Einleitung

Die Computerindustrie und insbesondere die Chip-Hersteller treiben heute einen enormen Aufwand, um die Leistungssteigerungen zu erreichen, die der Markt in regelmäßigen Zyklen fordert. Dieser Fortschritt wird bisher nahezu ausschließlich durch eine kontinuierliche Vergrößerung der Integrationsdichten auf einem Chip erreicht - eine Entwicklung die unter Anwendung konventioneller Technologien mehr und mehr an ihre Grenzen stößt. Aus diesem Dilemma bieten sich prinzipiell zwei Auswege an. Zum einen werden grundlegend neue Strukturierungstechnologien erschlossen, um noch kleinere Bauteile herstellen zu können. Zum zweiten verfolgt man fundamental abweichende Konzepte der Informationsverarbeitung, die jenseits der binären Logik eine um Größenordnungen erhöhte Rechenleistung ermöglichen könnten.

Die Realisierung der gewünschten Bauteile erfolgt in der aktuellen Chip-Fertigung über das sogenannte *top-down*-Verfahren, wobei aus ausgedehnten Halbleiterschichten mittels Lithographie- und Ätzverfahren sehr kleine Leiterstrukturen definiert werden. Mit sinkenden Abmessungen ist damit zum einen ein immer größerer Aufwand verbunden. Zum zweiten stößt dieses Prinzip zwangsläufig an Grenzen, wo sich die physikalischen Vorgänge nicht mehr klassisch, sondern nur noch quantenmechanisch beschreiben lassen und damit die Funktionalität in der ursprünglichen Form nicht mehr gewährleistet ist.

Aus diesem Grund wird seit längerem insbesondere in der Nanotechnologie ein gegensätzlicher Ansatz verfolgt, der allgemein als *bottom-up*-Prinzip bekannt ist. In diesem Fall macht man sich das selbst-organisierte Wachstum bei Halbleiterkristallen hin zu geordneten Strukturen zunutze und fügt diese Einzelteile in Kombination mit *top-down* Verfahren danach zu komplexeren Logikschaltungen zusammen. Ein prominentes Beispiel sind Halbleiter-Nanodrähte. Diese sind nicht nur als leistungsfähige nanoskalige Transistoren attraktiv, sondern sie bieten auch die Möglichkeit, komplexere Funktionalitäten durch ein maßgeschneidertes Wachstum zu erzielen. So können durch das VLS-Wachstum¹ [Wag64] von Heterostrukturen beispielsweise Potentialtöpfe in axialer Richtung eingebaut werden, um Transistoreigenschaften

¹ Akronym für *Vapour-Liquid-Solid*

wie die Steilheit zu optimieren [Ion11] oder Quantenbauelemente wie beispielsweise Einzelphotonenquellen zu realisieren [Hei10b].

Aufgrund der geringen Abmessungen quasi-eindimensionaler Nanodrähte und des damit einhergehenden großen Oberfläche-zu-Volumen-Verhältnisses treten hinsichtlich möglicher Anwendungen neue Herausforderungen aber auch vielfältige Chancen auf. In diesem Zusammenhang müssen insbesondere nichtstrahlende Oberflächenzustände berücksichtigt werden, die sich negativ auf elektrische und optische Anwendungen auswirken können. Vor diesem Hintergrund kommt dem Einfluss von Beschichtungen auf die optischen und elektronischen Eigenschaften der Nanodrähte eine besondere Bedeutung zu. Zur Realisierung eines Transistors beispielsweise ist das Gateoxid als isolierende Schicht zwischen Gate und Kanal unerlässlich. Um möglichst kleine Schichtdicken und damit geringe Abmessungen der Transistoren zu erzielen, werden Dielektrika mit möglichst großer Dielektrizitätskonstante wie Al_2O_3 oder HfO_2 eingesetzt. Eine derartige Oberflächenbehandlung erzeugt aber wieder unausweichlich zusätzliche Zustände an der Grenzschicht.

Um nun den Einfluss der jeweiligen Beschichtung auf die Kristallqualität und damit die elektrischen Eigenschaften der späteren Bauteile zu verstehen bzw. den Einfluss möglichst gering zu halten, werden im Rahmen dieser Arbeit optische Untersuchungen durchgeführt. Dazu werden die beschichteten Nanodrähte mit einem Laser optisch angeregt und das Spektrum des emittierten Lichts sowohl zeitintegriert als auch zeitaufgelöst analysiert. Mit dieser Methode der Mikro-Photolumineszenz (PL), die eine nicht-invasive Untersuchungsmethode darstellt, sind ohne eine aufwändige Präparation der Proben die gewünschten Informationen schnell verfügbar. Eine besonders interessante Größe ist dabei die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit. Sie ist ein Maß für die (unerwünschte) nichtstrahlende Oberflächen-Rekombination und sollte deshalb minimiert werden. Auf diese Weise können Nanodrähte nach einer systematischen Variation der Wachstumsparameter direkt vermessen und somit der Herstellungsprozess der Nanodrähte optimiert werden.

Davon unabhängig werden noch weitere Ansätze zur Realisierung schnellerer Logikbausteine und vor allem größerer Informationsdichten pro Volumeneinheit verfolgt. Einen höchst interessanten und vielversprechenden Weg stellt in diesem Zusammenhang die Quanteninformationstechnologie dar, bei der massiv das Konzept von parallelen Rechenoperationen ausgenutzt wird. Basis dazu ist der Übergang von konventionellen Bits mit zwei möglichen Zuständen hin zu sogenannten Qubits, die sämtliche Superpositionen ihrer Basiszustände einnehmen können. Darüber hinaus können sich zwei räumlich getrennte Qubits auch in einem verschränkten Zustand befinden, was z.B. im Bereich der Quantenkryptographie zur Anwendung kommt [Jen00].

Um nun einen Informationsaustausch zwischen mehreren der lokalisierten Qubits zu ermöglichen, werden mobile Informationsträger benötigt. Diese sogenannten Flying Qubits können z.B. durch Photonen realisiert sein [Cir97]. Im Rahmen der Kavitäts-Quantenelektrodynamik (cQED¹) werden die lokalen Qubits hingegen beispielsweise durch Spinzustände eines Exzitons in einem Quantenpunkt repräsentiert [Ima99]. Das Auslesen des lokalen Zustands und die Übertragung der Information mit Hilfe eines Photons erfordert eine kohärente Kopplung zwischen diesen beiden Informationsträgern.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird deshalb erstmals die starke, d. h. kohärente, Kopplung zwischen einem Quantenpunkt-Exziton und dem optischen Feld in einem Mikrosäulen-Resonator unter dem Einfluss eines äußeren magnetischen Feldes untersucht. Die starke Kopplung führt dabei auf einen verschränkten Zustand zwischen dem 2-Niveau-System im Quantenpunkt und einem Photon im Resonator. Dabei eignen sich besonders InGaAs-Quantenpunkte auf Grund ihrer großen Oszillatorstärken für Experimente zur starken Licht-Materie-Wechselwirkung. Durch das Anlegen eines äußeren Magnetfeldes ist es möglich, diese Oszillatorstärke zu manipulieren und somit die Ausprägung der starken Kopplung zu kontrollieren. Dies stellt einen wichtigen Steuerungsmechanismus etwa im Hinblick auf die Realisierung von Logik-Gattern dar.

Darüber hinaus kann die Kopplung zweier unabhängiger Photonenzustände durch den Einfluss des Magnetfeldes gezeigt werden. Die beiden orthogonalen Resonatormoden weisen eine gegenseitige Wechselwirkung auf, vermittelt durch den Spinzustand des Quantenpunkt-Exzitons. Insofern kann dieses Experiment als grundlegender Nachweis der Kopplung zwischen einer lokalen und einer mobilen Repräsentation eines Qubits verstanden werden.

Im Einzelnen gliedert sich die vorliegende Arbeit in die folgenden Punkte:

Das erste Kapitel gibt eine Einführung in die Grundlagen der PL-Spektroskopie. Ausgehend von der optischen Anregung, über die Thermalisierung der freien Ladungsträger wird schließlich auf deren strahlende und nicht-strahlende Rekombination eingegangen, wobei auch der besondere Einfluss der Oberfläche des Festkörpers berücksichtigt wird.

Im zweiten Kapitel wird die Herstellung der untersuchten InP-Nanodrähte vorgestellt, die mittels Metall-Organischer Gasphasenepitaxie (MOVPE²) gewachsen und

1 Akronym für *cavity Quantum-Electro-Dynamics*

2 Akronym für *Metal-Organic Vapour-Phase-Epitaxy*

mittels Atomlagenabscheidung (ALD¹) beschichtet werden. Im Anschluss werden die Messaufbauten der zeitintegrierten und zeitaufgelösten Spektroskopie eingeführt und die Mess- und Auswertemethode erläutert.

Das dritte Kapitel beschäftigt sich mit den zeitaufgelösten PL-Messungen an Oberflächen-beschichteten InP-Nanodrähten. Dabei werden undotierte und p-dotierte InP-Nanodrähte über Atomlagenabscheidung mit einer HfO₂-Schicht überzogen und anschließend optisch untersucht. Als quantitatives Maß für die erzielte Oberflächenqualität dient hierbei die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit. Im Zusammenhang mit den p-dotierten InP-Nanodrähten wird der Effekt der Bandverbiegung eingeführt und ein Modell zur Ladungsträgerdynamik nach gepulster optischer Anregung in diesen Strukturen diskutiert. Darüber hinaus wird abschließend noch konkret auf den Einfluss der Dotierkonzentration eingegangen.

Das vierte Kapitel beschreibt Makro-PL-Experimente an Molekularstrahl-epitaktisch (MBE²) gewachsenen GaN-Nanodrähten, wobei der Schwerpunkt auf der Optimierung der Kristallqualität bezüglich Wachstumssubstrat und -temperatur liegt. Mit Hilfe einer Variation der Proben temperatur und der Anwendung eines geeigneten Diffusionsmodells kann bei zeitintegrierten PL-Messungen ebenfalls die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit bestimmt werden.

Der zweite Teil dieser Arbeit beschäftigt sich mit der Licht-Materie-Wechselwirkung in Quantenpunkt-Mikroresonator-Systemen. Die InGaAs-Quantenpunkte befinden sich dabei in einer GaAs-Kavität, die von Bragg-Reflektoren aus AlAs/GaAs begrenzt ist. Diese Mikroresonator-Türmchen werden optisch angeregt und mittels zeitintegrierter und zeitaufgelöster Mikro-PL-Spektroskopie untersucht.

Im fünften Kapitel werden die Auswirkungen einer räumlichen Einschränkung auf die Zustandsdichte in Festkörpern dargestellt. Bei den hier eingesetzten Strukturen bezieht sich diese Einschränkung sowohl auf die Ladungsträger in den Quantenpunkten als auch auf das optische Feld im Resonator. Darüber hinaus wird die Oszillatorstärke von Exzitonen eingeführt und die Feinstruktur der Exzitonen-Zustände erläutert. Schließlich wird die Licht-Materie-Wechselwirkung diskutiert und auf die Regime der schwachen und starken Kopplung eingegangen.

Im sechsten Kapitel wird die genaue Struktur der Mikroresonatoren und der Quantenpunkte veranschaulicht und deren Herstellungsprozess erläutert. Die eingesetzten

1 Akronym für *Atomic Layer Deposition*

2 Akronym für *Molecular Beam Epitaxy*

Proben werden dabei mittels Molekularstrahl-Epitaxie gewachsen und nach einer Strukturierung durch Elektronenstrahl-Lithographie trockenchemisch geätzt. Anschließend werden die Messaufbauten zur zeitintegrierten und zeitaufgelösten Mikro-PL-Spektroskopie unter dem Einfluss eines Magnetfeldes vorgestellt. Darüber hinaus wird noch kurz auf die verschiedenen Methoden der Resonanzverstimmung zwischen Exziton- und Resonatormode eingegangen.

Das siebte Kapitel umfasst grundlegende Untersuchungen von Quantenpunkten im Magnetfeld. Zunächst wird der Zusammenhang zwischen den Abmessungen des Quantenpunktes und den gemessenen magnetischen Eigenschaften, wie der diamagnetischen Verschiebung und der Zeeman-Aufspaltung, hergestellt. Als Nachweis des Quantencharakters der untersuchten Emitter wird außerdem die Photonenstatistik mit einem Hanbury-Brown und Twiss-Messaufbau aufgenommen [HB56].

Im achten Kapitel wird über eine Variation der Temperatur das Exziton in Resonanz mit der Resonatormode gebracht, wobei sich das System im Bereich der starken Kopplung befindet. In einer Messserie wird dabei das anliegende Magnetfeld variiert, um eine systematische Abhängigkeit der Kopplungsstärke vom magnetischen Feld nachzuweisen. Diese steht wiederum im Zusammenhang mit einer Beeinflussung der Oszillatorstärke durch das Magnetfeld, was in zeitaufgelösten PL-Messungen belegt wird.

Das neunte Kapitel beschäftigt sich mit der Wechselwirkung von Exziton- und Resonatormode im Falle aufgespaltener Moden. Daraus ergeben sich bei der starken Kopplung zwei getrennte Bereiche der Wechselwirkung zwischen den einzelnen Komponenten von Resonator- und Exzitonmode. Die aufgenommenen Messdaten können mit einem Modell vier gekoppelter Oszillatoren angepasst werden. Aufbauend auf dieses Experiment werden auch Computersimulationen durchgeführt. Dabei wird die jeweilige Ausprägung des exzitonischen bzw. photonischen Charakters der Moden in Abhängigkeit des Magnetfeldes untersucht.

Teil I

Halbleiter-Nanodrähte

2 Grundlagen der Photolumineszenz-Spektroskopie an Halbleiter-Nanodrähten

Bei der Suche nach neuen Technologien, die der nötigen fortschreitenden Miniaturisierung im Bereich der Mikroelektronik gerecht werden können, bieten Halbleiter-Nanodrähte eine vielversprechende Perspektive. Durch den selbstorganisierten Wachstumsprozess werden zum einen feinere Strukturgrößen erreicht als das durch Ätzverfahren möglich ist. Zum zweiten können auch direkt beim Kristallwachstum schon gewisse Funktionalitäten bereitgestellt werden, ohne dass noch weitere Prozessschritte nötig wären. Beispielsweise sind hier radiale Heterostrukturen, sogenannte *core-shell nanowires*¹, zu nennen, bei denen bereits beim Wachstum der Leitungskanal im Zentrum von einer dielektrischen Schicht und einer Gate-Elektrode umgeben wird, so dass nur noch die entsprechende Kontaktierung erfolgen muss, um einen Transistor zu realisieren.

Dieser stark komprimierte Herstellungsprozess stellt allerdings besondere Anforderungen an das Wachstum und die erreichte Kristallqualität, um qualitativ hochwertige elektrische Bauteile zu erhalten. Aufgrund des großen Oberfläche-zu-Volumen-Verhältnisses bei diesen niederdimensionalen Strukturen hat die Oberfläche einen vergleichsweise großen Einfluss auf die Qualität der späteren Bauteile. Deshalb ist eine genaue Kontrolle der Wachstumsparameter und eine gute Kenntnis des Herstellungsprozesses unabdingbar. Im Hinblick auf die Optimierung dieser Prozesse, stellt die Photolumineszenz-Spektroskopie als nicht-invasive Untersuchungstechnik ein schnelles und leicht handhabbares Werkzeug dar, um ein detailliertes Verständnis über die Qualität der untersuchten Proben zu gewinnen.

Bei der PL²-Spektroskopie werden die zu untersuchenden Proben optisch angeregt, woraufhin die erzeugten Ladungsträger thermalisieren bzw. Komplexe bilden und schließlich strahlend oder nichtstrahlend rekombinieren. Bei der Behandlung dieser Prozesse sollen im Folgenden fortwährend die besonderen Dimensionen von Nanostrukturen und die daraus resultierenden Konsequenzen berücksichtigt werden.

1 engl. für Kern-Schale Nanodrähte

2 Akronym für Photolumineszenz

2.1 Optische Anregung

Bei der PL-Spektroskopie von Halbleiterstrukturen werden Elektronen durch Photonen geeigneter Energie aus dem Valenzband ins Leitungsband angeregt, sofern die Energie der Photonen mindestens so groß wie die Bandlücke des Halbleiters ist. In der Regel erfolgt die optische Anregung hierbei über einen Laser. Die Zahl der erzeugten Ladungsträger hängt von der Anregungsdichte ab, d.h. der Zahl der einfallenden Photonen pro Zeit- und Flächeneinheit, und materialspezifischen Faktoren, wie z.B. dem Absorptionskoeffizienten für die jeweilige Wellenlänge. Grundsätzlich muss zwischen Dauerstrichanregung (cw¹) und gepulster Anregung unterschieden werden. Bei cw-Anregung herrscht ein Gleichgewichtszustand zwischen Generation und Rekombination der Ladungsträger, wohingegen bei gepulster Anregung nur während der im Vergleich zur Lebensdauer der erzeugten Ladungsträger sehr kurzen Pulsdauer ein Überschuss an Ladungsträgern im Halbleiter erzeugt wird, dessen Übergang in den Gleichgewichtszustand dann verfolgt wird.

2.2 Thermalisierung und Komplexbildung

Abhängig von der Energie der Photonen werden die Ladungsträger nicht exakt an der Bandkante erzeugt, sondern besitzen überschüssige kinetische Energie. Ist die absorbierte Energie $\hbar\omega_L$ größer als die Bandlücke E_g , so ergibt sich die Aufteilung der überschüssigen Energie an Elektron bzw. Loch durch [Noz01]:

$$\Delta E_e = (\hbar\omega_L - E_g) \cdot [1 + m_e^*/m_h^*]^{-1} \quad (2.1)$$

$$\Delta E_h = (\hbar\omega_L - E_g) - \Delta E_e. \quad (2.2)$$

Hier bezeichnen m_e^* und m_h^* die effektiven Massen von Elektronen bzw. Löchern und $\Delta E_{e(h)}$ den Abstand der Energie des Elektrons (Lochs) beim Zeitpunkt der Anregung vom Leitungsband (Valenzband). Die effektiven Massen werden dabei eingeführt, um der Wechselwirkung der Elektronen mit dem periodischen Potential der Gitterionen Rechnung zu tragen.

Direkt nach der Anregung ist die Verteilung der Ladungsträger quasi monoenergetisch und kann deshalb nicht über eine Boltzmann-Verteilung beschrieben werden. Um ins thermische Gleichgewicht zu gelangen, findet zunächst eine Streuung von Elektronen an Elektronen und von Löchern an Löchern auf einer Zeitskala kleiner als 100 fs statt [Pel92]. In dieser Situation kann die Verteilung der Elektronen (Löcher) durch eine Temperatur $T_e(T_h)$ mit Hilfe einer Boltzmann-Verteilung be-

¹ Akronym für *continuous wave*

schrieben werden. Sind diese Temperaturen höher als die des Gitters, so spricht man von heißen Ladungsträgern.

Nach der Anregung thermalisieren die Ladungsträger auf einer Zeitskala von wenigen Pikosekunden durch Wechselwirkung mit dem Kristallgitter. Dabei wird durch die Generation von Phononen dem Gitter die überschüssige kinetische Energie der Ladungsträger zugeführt und es kommt zur Aufheizung des Halbleiters. Nach dieser Thermalisierung befinden sich die Ladungsträger im Bereich der Bandkante um $k_{e,h} = 0$ im Potentialminimum und werden mit einer Boltzmann-Verteilung der Temperatur T_G charakterisiert. Im weiteren Verlauf folgt die Bildung von Komplexen wie (Bi-)Exzitonen oder gebundenen Exzitonen, die dann strahlend oder nichtstrahlend rekombinieren, was im nächsten Abschnitt noch näher erläutert wird.

2.3 Strahlende Rekombination

Die verschiedenen Varianten der strahlenden Rekombination von Elektronen und Löchern in Halbleitern sind schematisch in Abb. 2.1 dargestellt und werden im Folgenden im Hinblick auf die Energie- und Impulserhaltung erklärt.

Band-Band-Übergang

Rekombiniert ein Elektron aus dem Leitungsband (E_C) mit einem Loch aus dem Valenzband (E_V), so stellt das einen Band-zu-Band-Übergang dar. Unter der Annahme einer parabolischen Dispersionsrelation besitzen Elektron und Loch zusätzlich abhängig von ihrem Wellenvektor $\mathbf{k}_{e,h}$ und ihrer effektiven Masse $m_{e,h}$ die kinetische Energie $E_{kin}^{e,h} = \frac{\hbar^2 \mathbf{k}_{e,h}^2}{2m_{e,h}^*}$. Demnach wird bei einem Band-zu-Band-Übergang ein Photon mit der Energie der Bandlücke $E_g = E_C - E_V$ plus der kinetischen Energie der Ladungsträger frei:

$$\hbar\omega_{BB} = E_g + E_{kin}^e + E_{kin}^h. \quad (2.3)$$

Die Band-zu-Band-Rekombination tritt zunehmend bei höheren Temperaturen auf, wenn gebundene Zustände thermisch ionisiert sind. Da jeweils zwei Ladungsträger zum Band-Band-Übergang beitragen, ist die Rekombinationsrate proportional zum Produkt der Dichten der Elektronen n und der Löcher p [Chi88]. Im thermischen Gleichgewicht kompensieren sich die Rekombinationsrate und die Generationsrate genau, so dass sich die Nettorekombinationsrate R_{BB} folgendermaßen ausdrücken lässt [Sze07]:

$$R_{BB} = B (np - n_i^2). \quad (2.4)$$

Hier ist B der bimolekulare Rekombinationskoeffizient und n_i die intrinsische Ladungsträgerdichte im thermischen Gleichgewicht.

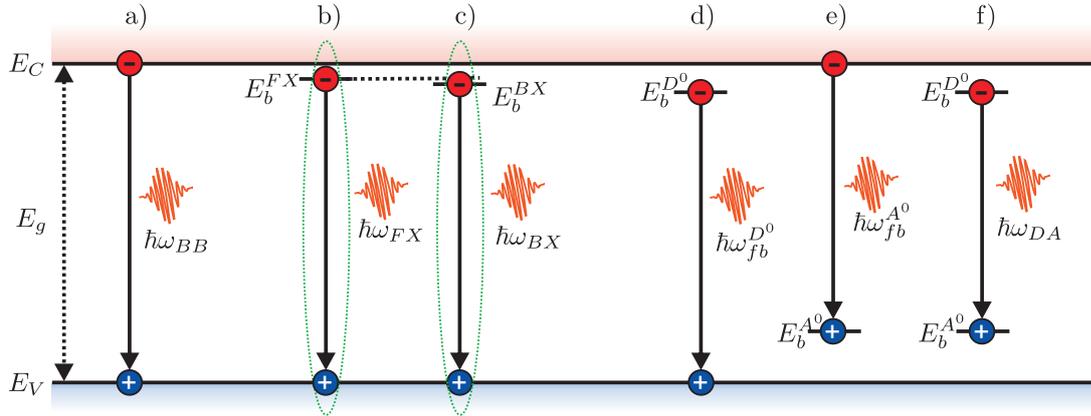


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung verschiedener strahlender Rekombinationsmechanismen in Halbleitern. Von links nach rechts: a) Band-zu-Band, b) freies Exziton, c) gebundenes Exziton, d) Donator-Band, e) Band-Akzeptor, f) Donator-Akzeptor.

Freie Exzitonen

Aufgrund der Coulomb-Wechselwirkung kann sich ein Elektron aus dem Leitungsband an ein Loch aus dem Valenzband binden. Dieses Quasiteilchen bezeichnet man als Exziton. Erstreckt sich der Bindungsabstand über mehrere Elementarzellen des Kristallgitters, was einer schwachen Bindung entspricht, so spricht man vom Wannier-Exziton. Da die effektive Masse des Lochs die des Elektrons deutlich übertrifft, verhält sich das Exziton ähnlich dem Wasserstoffatom. Seine Bindungsenergie berechnet sich analog zum Wasserstoffmodell, wobei noch zusätzlich der Einfluss des umgebenden Halbleitermaterials durch die Dielektrizitätskonstante $\epsilon = \epsilon_0 \epsilon_r$ eingeht. Mit der reduzierten Masse $\mu_{FX} = (m_e^* \cdot m_h^*) / (m_e^* + m_h^*)$ und der Gesamtmasse $m_{FX} = (m_e^* + m_h^*)$ ist die Energie eines freien Exzitons [Kli06]:

$$E_{FX} = -\frac{\mu_{FX}}{m_0} \frac{1}{\epsilon_r^2} \cdot R_y \frac{1}{n^2} + \frac{\hbar^2 \mathbf{K}^2}{2m_{FX}} = -E_{b,n}^{FX} + E_{kin}^{FX}. \quad (2.5)$$

Hier ist m_0 die Ruhemasse des Elektrons, R_y die Rydbergenergie und $\mathbf{K} = \mathbf{k}_e + \mathbf{k}_h$ der Wellenvektor des Exzitons. Der erste Term beschreibt die quantisierten Energieniveaus mit dem Grundzustand $n = 1$ analog zum Wasserstoffatom, während der zweite Term der kinetischen Energie des Exzitons entspricht. Somit wird bei der Rekombination eines freien Exzitons folgende Energie frei:

$$\hbar\omega_{FX} = E_g - E_{b,n}^{FX} + E_{kin}^{FX}. \quad (2.6)$$

Aufgrund des kinetischen Energieterms und der daraus resultierenden Verteilung sind FX-Übergänge wie auch Band-Band-Übergänge spektral verbreitert.

Gebundene Exzitonen

Neben freien Exzitonen existieren auch Exzitonen, die an Unregelmäßigkeiten in der periodischen Gitterstruktur oder geladenen Störstellen lokalisiert sind, sogenannte gebundene Exzitonen (BX). Aufgrund der Lokalisierung besitzen gebundene Exzitonen im Gegensatz zu freien Exzitonen nur eine Relativbewegung der Ladungsträger und keine Schwerpunktsbewegung, d.h. keine kinetische Energie. Mit der Bindungsenergie E_b^{BX} des Exzitons an eine Störstelle ergibt sich für den BX-Übergang:

$$\hbar\omega_{BX} = E_g - E_{b,n}^{FX} - E_b^{BX}. \quad (2.7)$$

Der BX-Übergang ist gegenüber dem FX-Übergang zu niedrigeren Energien verschoben und besitzt aufgrund der Lokalisation eine deutlich geringere Linienbreite [Kli06]. Als weitere Folge der Lokalisation ergibt sich eine hohe strahlende Rekombinationsrate durch einen großen Überlapp der Elektron- und Loch-Wellenfunktionen, weshalb die BX-Emission häufig das PL-Spektrum bei tiefen Temperaturen dominiert.

Band-Störstellen-Übergang

Bei dotierten Halbleitern sind Übergänge vom Band auf Niveaus der Dotieratome möglich. Der Übergang eines Elektrons aus dem Leitungsband in ein Akzeptorniveau bzw. eines Lochs aus dem Valenzband in ein Donatorniveau ist gegenüber der Bandlücke um die Bindungsenergie des neutralen Akzeptors bzw. Donators $E_b^{A^0(D^0)}$ verringert [Kli06]:

$$\hbar\omega_{fb}^{A^0(D^0)} = E_g - E_b^{A^0(D^0)} + E_{kin}^{e(h)}. \quad (2.8)$$

Die Intensität dieser Übergänge nimmt mit steigender Anzahl an Dotieratomen zu und ist somit ein Maß für die Stärke der Dotierung.

Donator-Akzeptor-Übergang

Rekombiniert ein Donator-gebundenes Elektron mit einem Akzeptor-gebundenen Loch, so wird ein Photon mit folgender Energie emittiert [Wil, Yu01, Kli06]:

$$\hbar\omega_{DA} = E_g - E_b^{D^0} - E_b^{A^0} + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_r\epsilon_0 r_{DA}}. \quad (2.9)$$

Der letzte Term entspricht hierbei der Coulomb-Anziehung zwischen den ionisierten Dotieratomen, die vom räumlichen Abstand r_{DA} zwischen Donator und Akzeptor abhängt. Da bei höherer Anregungsdichte mehr Dotieratome ionisiert sind, ist hierbei im Mittel der räumliche Abstand r_{DA} von ionisierten Donatoren und Akzeptoren kleiner. Dies resultiert in der charakteristischen Verschiebung der DA-Emission zu höheren Energien bei stärkerer Anregung [Yu01].

2.4 Nichtstrahlende Rekombination

Bei der nichtstrahlenden Rekombination wird die Energie der Ladungsträger nicht über die Emission von Photonen abgebaut, sondern in Form von Phononen als Schwingungsenergie an das Kristallgitter abgeben und somit in Wärme umgewandelt. Im Folgenden wird die nichtstrahlende Rekombination über tiefe Störstellen, Auger-Rekombination und die nichtstrahlende Oberflächenrekombination dargestellt (siehe Abb. 2.2).

Nichtstrahlende Rekombination über tiefe Störstellen

Ursache für nichtstrahlende Rekombination im Volumen eines Halbleiters sind Defektstellen wie unabsichtlich eingebaute Fremdatome, native Fehlstellen, Zwischengitterplätze, d.h. im Allgemeinen alle Störungen der Periodizität des Gitters. Dadurch entstehen neue Energiezustände, die häufig innerhalb der Bandlücke liegen und als effektive nichtstrahlende Rekombinationszentren wirken. Beim Übergang eines Elektrons vom Leitungsband über den Energiezustand E_T ins Valenzband wird die freiwerdende Energie in Form von Phononen emittiert (Abb. 2.2a). Die Übergangsrate wurde von Shockley, Read und Hall (SRH) berechnet [Sho52] und kann unter der Annahme gleicher Lebensdauern für Elektronen und Löcher $\tau_n = \tau_p = 1/(N_T v_{th} \sigma)$ folgendermaßen abgeschätzt werden [Kha05, Zeg07]:

$$R_T = \frac{np - n_i^2}{p + n + 2n_i \cosh\left(\frac{E_i - E_T}{k_B T}\right)} N_T v_{th} \sigma. \quad (2.10)$$

Hier bezeichnet $E_i = 1/2(E_C - E_V)$ die Mitte der Bandlücke und E_T den diskreten Energiezustand der tiefen Störstelle. Die cosh-Funktion hat ihr Minimum für $E_i = E_T$, d.h. für Störstellen in der Mitte der Bandlücke. Diese tiefen Störstellen besitzen somit die höchste nichtstrahlende Rekombinationsrate und wirken sich besonders negativ auf die Lumineszenzausbeute aus. Weiterhin ist die Shockley-Read-Hall-Übergangsrate proportional zur Dichte der Störstellen N_T , zur thermischen Geschwindigkeit der Ladungsträger v_{th} und zum Absorptionsquerschnitt σ . Dieser hängt von der Beschaffenheit des Kristalldefekts ab und ist ein Maß für die Wahrscheinlichkeit des Einfangens freier Ladungsträger durch die Störstelle.

Auger-Rekombination

Ein weiterer nichtstrahlender Rekombinationskanal ist die in Abb. 2.2b dargestellte Auger-Rekombination, bei der die freiwerdende Energie zunächst zur Anregung eines Elektrons auf eine hohe Energie im Leitungsband oder zur Anregung eines Loches auf eine hohe Energie im Valenzband genutzt wird. Weil hierbei drei Ladungsträger

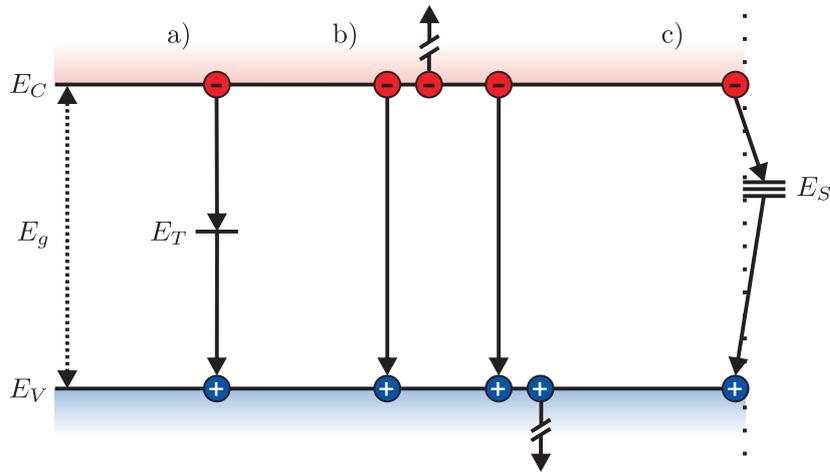


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung nichtstrahlender Rekombinationsprozesse. a) Nichtstrahlende Rekombination über eine tiefe Störstelle der Energie E_T . b) Auger-Rekombination. c) Nichtstrahlende Rekombination an der Oberfläche (gekennzeichnete Linie) mit Energiezuständen E_S .

am Streuprozess beteiligt sind, hängt die Rekombinationsrate in der dritten Potenz von der Ladungsträgerkonzentration ab [Zeg07]:

$$R_{Auger} = C_n \cdot n (np - n_i^2) + C_p \cdot p (np - n_i^2). \quad (2.11)$$

Der erste Term beschreibt die Anregung eines Elektrons, der zweite entsprechend die Anregung eines Lochs. Hierbei sind $C_{n,p}$ die Auger-Koeffizienten für Elektron und Loch. Die entstandenen hochangeregten Ladungsträger geben danach durch mehrfache Phononenemission ihre kinetische Energie an das Kristallgitter ab.

Nichtstrahlende Rekombination an Oberflächen

Für die Modellierung von Bandstrukturen in Volumenhalbleitern geht man gewöhnlich von periodischen Randbedingungen aus, so dass das Material quasi unendlich ausgedehnt erscheint. Die Oberfläche stellt eine Störung der Periodizität des Gitters dar, wobei durch ungesättigte Oberflächenbindungen Tamm- oder Shockleyzustände innerhalb der Bandlücke entstehen können [Man71] (siehe Abb. 2.2c). Darüber hinaus sind chemische Verunreinigungen wie die Adsorption von Molekülen oder Oxidation mögliche Quellen für nichtstrahlende Rekombinationszustände an der Oberfläche.

Analog zur SRH-Rekombination über tiefe Störstellen ergibt sich die Übergangsrate über Oberflächen-Zustände zu [Kha05, Zeg07]:

$$R_S = \frac{np - n_i^2}{p + n + 2n_i \cosh\left(\frac{E_i - E_S}{k_B T}\right)} N_S v_{th} \sigma_S. \quad (2.12)$$

Übereinstimmend mit der SRH-Rekombination nach Gl. 2.10 wird die Übergangsrate von der energetischen Lage E_S , der Dichte N_S und dem Wirkungsquerschnitt σ_S der Oberflächen-Zustände bestimmt.

Bei Nanostrukturen ist die nichtstrahlende Oberflächen-Rekombination aus zwei Gründen von hoher Relevanz. Einerseits ergibt sich aus dem hohen Oberfläche-zu-Volumen-Verhältnis bei Nanostrukturen ein deutlich größerer Einfluss der Oberfläche. Weiterhin können Ladungsträger in Strukturen mit Abmessungen, die vergleichbar der Diffusionslänge sind, leichter die Oberfläche erreichen und nichtstrahlend rekombinieren statt zur Lumineszenz beizutragen. Die Einflüsse der Oberfläche auf die Photolumineszenz bei InP- und GaN-Nanodrähten werden in den Kapiteln 4 und 5 noch näher diskutiert.

3 Probenherstellung und Messtechnik

In diesem Kapitel wird zunächst eine kurze Motivation für die Forschung an Halbleiter-Nanodrähten gegeben, bevor der konkrete Herstellungsprozess der hier untersuchten InP-Nanodrähte erläutert wird. Dieser umfasst neben dem selbstorganisierten Wachstum die anschließende Beschichtung der Proben mit dem Dielektrikum HfO_2 . Im Anschluss daran wird die nicht-invasive Untersuchungsmethode der PL-Spektroskopie vorgestellt. Damit können ohne eine aufwändige elektrische Kontaktierung Informationen über die Kristallqualität und den Einfluss der Oberfläche auf die Ladungsträgerdynamik gesammelt werden.

3.1 Motivation

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten optischen Experimente sind eingebettet in das von der Europäischen Union geförderte Forschungsvorhaben NODE¹. Hierbei wurde nach Bauteilen und Konzepten für zukünftige Elektronik-Anwendungen auf Basis von Nanodrähten gesucht [The06]. In diesem Zusammenhang wird das Konzept verfolgt, durch selbstorganisiertes Wachstum kleinere Strukturen zu erlangen als das mit den bisherigen Belichtungs- und Ätzverfahren möglich ist. Außerdem kann durch diese Technik eine vertikale Architektur der elektronischen Bauteile realisiert werden, die wiederum höhere Integrationsdichten ermöglicht. Dieser Ansatz führte auch durchaus schon zu funktionsfähigen Bauelementen, wie etwa die Realisierung nanoskaliger Transistoren auf Basis von InAs/InP-Heterostrukturen [Jia07, Nil08] zeigt.

Eine Herausforderung bei der Miniaturisierung von Transistoren ist jedoch deren Kapazität $C \propto \epsilon_r \cdot A/d$, die proportional zur Verkleinerung der Fläche A und somit der Skalierung absinkt. Um dennoch ausreichende Kapazitäten zu erlangen, muss gleichzeitig die Dicke d des Gateoxids reduziert werden, woraus aber eine Zunahme der Leckströme resultieren würde. Diese führen zu erhöhter Leistungsaufnahme und stärkerer Erwärmung und damit im schlimmsten Fall zum Ausfall des Transistors. Um diesem Effekt bei gleichzeitiger Realisierung hoher Kapazität entgegen zu wirken, werden Dielektrika mit hohen Dielektrizitätskonstanten ϵ_r bei gegebener Dicke

¹ Akronym für *Nanowire-based One-Dimensional Electronics*

d als Gateoxid eingesetzt. Als sogenannte *high-k*-Dielektrika sind vor allem Al_2O_3 mit $\epsilon_r \approx 8-10$ und HfO_2 mit $\epsilon_r \gtrsim 20$ [Zha08] gebräuchlich, wodurch trotz der geringen realen Dicke d des Gateoxids dennoch große effektive Gateoxid-Dicken erreicht werden können.

Als unerwünschter Nebeneffekt dieser Beschichtung ergibt sich allerdings besonders bei den hier untersuchten eindimensionalen, nanoskaligen Strukturen mit ihrem naturgemäß großen Oberflächen-zu-Volumen-Verhältnis eine signifikante Verschlechterung der Oberflächen-Eigenschaften des Nanodrahtes, was auch in den folgenden Experimenten quantitativ deutlich wird. Durch ungesättigte Bindungen bzw. Bindungen zwischen Halbleiter- und Beschichtungsatomen entstehen beispielsweise Störstellen in großer Zahl, die die vorzeitige Rekombination der freien Ladungsträger an der Oberfläche begünstigen und somit massiven Einfluss auf die elektrischen Eigenschaften der Struktur wie etwa die Schwellenspannung oder den Übertragungsleitwert¹ eines Transistors haben [Wan11]. Da aber die Behandlung mit dem Dielektrikum aus oben genannten Gründen unausweichlich ist, muss eine Optimierung des Beschichtungsprozesses erfolgen, um den negativen Einfluss zu minimieren.

Als Untersuchungsmethode zur Charakterisierung der Oberfläche eignet sich hier besonders die zeitaufgelöste PL-Spektroskopie, weil dabei im Gegensatz zu Transport-Messungen keine aufwändige Kontaktierung der Proben nötig ist. Darüber hinaus bietet diese Methode eine schnelle Rückkopplung im Experiment und macht damit die erwünschten Informationen über die untersuchten Proben zügig und direkt zugänglich. Aus diesen optischen Experimenten lässt sich die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit (SRV²) ableiten, die als Maß für die Qualität der Oberfläche des Nanodrahtes dient.

Es soll hier nochmals betont werden, dass die Oberflächen-Beschichtung in diesem Fall nicht erfolgt, um die optischen Eigenschaften zu verbessern, wie durch chemische [Vug05] oder epitaktische [Jia07] Oberflächen-Passivierung, sondern zur Beschichtung des Nanodrahts mit einem *high-k*-Dielektrikum, was einen unausweichlichen Prozessschritt für den späteren Einsatz der Nanodrähte in der Nanoelektronik darstellt.

3.2 Herstellung der InP-Nanodrähte

Die untersuchten InP-Nanodrähte wurden mit Hilfe der Metall-organischen Gasphasenepitaxie (MOVPE) selbstorganisiert gewachsen und anschließend über die Methode der Atomlagenabscheidung (ALD) beschichtet.

¹ engl. *transconductance*

² Akronym für *Surface Recombination Velocity*

3.2.1 MOVPE-Wachstum

Vor dem eigentlichen Wachstum der Nanodrähte wurden Gold-Partikel mit einem mittleren Durchmesser von 50 nm mittels einer Aerosol-Sprühtechnik [Mag99] auf das (111)B InP-Substrat aufgebracht. Die zufällig verteilten Gold-Partikel weisen dabei eine homogene Flächendichte von $3 \times 10^8 \text{ cm}^{-2}$ auf. Durch diese metallischen Katalysatorpunkte kann später anstelle eines Schichtwachstums das eindimensionale Wachstum nach dem *Vapour-Liquid-Solid* Prinzip¹ [Wag64] eingeleitet werden. Nach dieser Vorbehandlung wurde das Substrat in die MOVPE-Anlage, in der ein Restdruck von 100 mbar herrscht, eingebracht. Als Vorläufer-Moleküle beim Wachstum dienen Trimethylindium (TMI) und Phosphin (PH_3) als Gruppe-III bzw. Gruppe-V-Quelle und als Trägergas wird Wasserstoff (H_2) genutzt. Bei einem Gesamtfluss von 13 l/min mit Stoffmengenanteilen von $\chi_{\text{TMI}} = 2,5 \times 10^{-5}$ und $\chi_{\text{PH}_3} = 6,9 \times 10^{-3}$ ergibt sich ein gleichmäßiges Wachstum von Nanodrähten mit konstantem Durchmesser über die gesamte Länge. Dabei wurde als Ätzmittel Salzsäure (HCl) mit einem Stoffmengenanteil von $1,5 \times 10^{-6}$ hinzugefügt, um das gleichzeitige radiale Wachstum zu unterbinden [Bor10]. Für eine gezielte p-Dotierung der Nanodrähte wurde zusätzlich noch Dimethylzink (DMZn) mit einem Stoffmengenanteil von $\chi_{\text{DMZn}} = 2,2 \times 10^{-5}$ eingesetzt.

Vor dem Wachstum der Nanodrähte wurde das Substrat zur Desorption von Oberflächenoxiden für 10 min unter PH_3/H_2 -Atmosphäre auf 550°C geheizt. Danach wurde die Temperatur des Reaktors auf 420°C abgesenkt und schließlich das eindimensionale Wachstum durch Zugabe von TMI zur PH_3/H_2 -Gas Mischung eingeleitet. Nach einer Wachstumszeit von 20 min wurden die Proben langsam auf Raumtemperatur abgekühlt. Ein Teil der so erzeugten Proben, wie auch in der REM²-Aufnahme aus Abb. 3.1 gezeigt, wurden in diesem Zustand belassen und dienten später als Referenzproben. Der andere Teil wurde anschließend in einem ALD-Prozess mit einem Dielektrikum beschichtet, was im nächsten Abschnitt erläutert wird.

3.2.2 ALD-Beschichtung

Die ALD-Technik ist in ihren Grundzügen vergleichbar mit der Abscheidung von Schichten mittels MOVPE mit dem Unterschied, dass sich der Gesamtprozess hier in vier separate, wiederkehrende Schritte untergliedern lässt [Alb08], die auch in Abb. 3.2 aufgeführt sind. Dadurch kann eine noch höhere Präzision der Schichtdi-

1 Dieser Prozess gliedert sich in drei Stufen: Bildung einer Metall-Halbleiter-Legierung aus dem Katalysator durch Zufuhr des Halbleiters aus der Gasphase, Übersättigung der Legierung durch weitere Zufuhr des Halbleiters aus der Gasphase und Wachstum des Nanodrahtes aus der übersättigten Lösung

2 Akronym für Raster-Elektronen-Mikroskopie

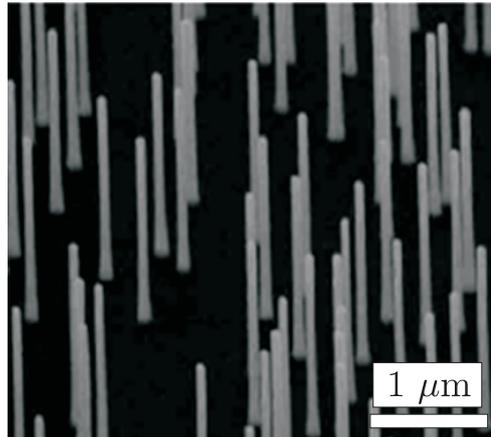


Abbildung 3.1: REM-Aufnahme von undotierten InP-Nanodrähten mit einer Länge von ungefähr $1,5 \mu\text{m}$ und einem Durchmesser von 50 nm .

cke und eine größere Schichtqualität erreicht werden. Aus diesem Grund wird die ALD-Technologie vor allem bei Prozessen eingesetzt, wo höchste Schichtqualitäten gefordert sind, wie etwa beim Aufbringen des Gateoxids in Metall-Oxid-Halbleiter-Feldeffekttransistoren (MOSFETs¹) oder bei der Herstellung von Elektrolumineszenz-Anzeigen.

Im ersten Schritt wird die zu beschichtende Oberfläche der gasförmigen reaktiven Vorstufe ausgesetzt. Hierbei wird bis zu eine Monolage auf der Oberfläche chemisorbiert. Danach werden überschüssige Moleküle der Vorstufe durch Abpumpen des Reaktionsvolumens entfernt, um ungewollte chemische Reaktionen zu vermeiden. Dieser Schritt ist der wesentliche Unterschied zur MOVPE. Im Idealfall erhält man dadurch eine Monolage der ersten Vorstufe. Im nächsten Schritt wird die zweite molekulare Vorstufe in den Reaktionsraum gebracht, wo sie an der Oberfläche mit der ersten Vorstufe zum gewünschten Produkt reagiert. Im vierten Schritt werden wieder überschüssige Reaktionsreste durch Pumpen entfernt. Damit ist ein Abscheidezyklus abgeschlossen. Der abgeschiedene Film wächst je nach Substratbeschaffenheit und Wachstumsparametern um $0,2$ bis $1,5 \text{ \AA}$ pro Zyklus. Diese Vorgehensweise wird so oft wiederholt, bis die gewünschte Beschichtungsdicke erreicht ist.

Um einige der Proben vor dem ALD-Prozess zu passivieren, wurden die Nanodrähte in gepufferter Flußsäure-Lösung (5-10%) (BHF²) geätzt und anschließend mit Isopropanol (IPA³) abgespült, unmittelbar bevor sie in die Beschichtungskammer eingebracht wurden. Dort wurden die Proben zunächst unter einem Fluss von

1 Akronym für *metal-oxide-semiconductor field-effect transistor*

2 Akronym für *Buffered HF*

3 Akronym für *Isopropyl alcohol*

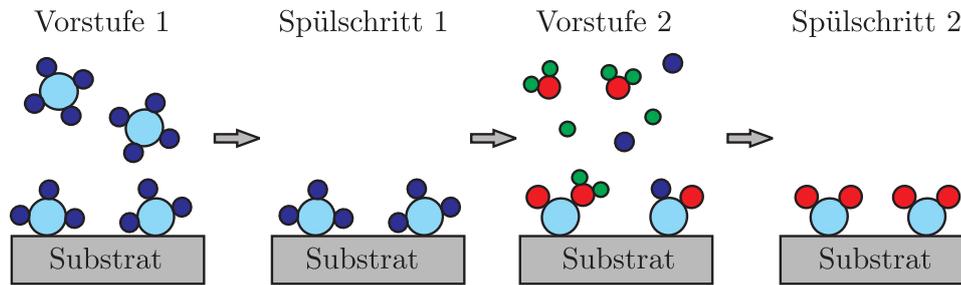


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung der Atomlagenabscheidung (ALD). Die zwei Vorstufen sind als hellblau/blaue bzw. rot/grüne Kugeln symbolisiert.

Tabelle 3.1: Übersicht über die Details beim Wachstum und die Prozess-Parameter bei der ALD-Beschichtung der InP-Nanodrähte

Probe	Wachstumsdetails	ALD-Temp.	ALD-Dicke	Vorbehandlung
1	InP	-	-	-
2	InP	250 °C	5 nm	-
3	InP	250 °C	15 nm	-
4	InP	100 °C	7 nm	-
5	InP	250 °C	5 nm	BHF 1 min + IPA
6	InP + GaP-Hülle GaP-Dicke: 0,4 nm	6A: 250 °C 6B: 100 °C	5 nm 7 nm	BHF 1 min + IPA
7	InP + GaP-Hülle GaP-Dicke: 1,1 nm	-	-	BHF 1 min + IPA
8	InP + GaP-Hülle GaP-Dicke: 5 nm	-	-	BHF 1 min + IPA
9	InP	250 °C	5 nm	<i>in situ</i> H ₂ S Ausheilung bei 420 °C
10	InP	250 °C	5 nm	<i>in situ</i> H ₂ S Ausheilung bei 150 °C
11	InP, p-dotiert	-	-	-
12	InP, p-dotiert	250 °C	5 nm	-
13	InP, p-dotiert	250 °C	15 nm	-
14	InP, p-dotiert	100 °C	7 nm	-

Stickstoff (N_2) bis zur gewünschten Prozesstemperatur aufgeheizt. Während der Beschichtung diente N_2 als Trägergas und als Vorstufe standen als Hf-Quelle mit einer Pulsdauer von 100 ms Tetrakis(dimethylamido)hafnium ($Hf(NMe_2)_4$) und H_2O als Sauerstoff-Quelle bei einer Pulsdauer von 15 ms zur Verfügung. Die Abpumpzeiten zwischen den Pulsen hing von der jeweiligen Prozesstemperatur ab: bei $250\text{ }^\circ\text{C}$ beispielsweise wurde nur 5 s gepumpt, bei $100\text{ }^\circ\text{C}$ hingegen 80 s.

Angesichts der großen Anzahl der untersuchten Proben werden diese entsprechend Tabelle 3.1 durchnummeriert, um den weiteren Text übersichtlicher und leichter lesbar zu halten.

3.3 Mikro-Photolumineszenz-Experimente

Zur Charakterisierung der Halbleiter-Nanodrähte wurde die Methode der Mikro-Photolumineszenz(PL)-Spektroskopie eingesetzt. Dabei können zum einen durch zeitintegrierte Messungen nähere Informationen über die Emissionsenergie und damit über mögliche Quanteneffekte durch Ladungsträger-Einschluss¹, gezielte bzw. indirekte Dotierung des Materials oder auch über etwaige Verspannungen des Kristallgitters beim Wachstum gesammelt werden. Zum zweiten erlaubt es die zeitaufgelöste Spektroskopie, Aussagen über den zeitlichen Verlauf der optischen Anregung und Rekombination der Ladungsträger im System zu treffen. Damit sind Rückschlüsse auf die Dichte von Störstellen und damit allgemein auf die Kristallqualität im Volumen und an der Oberfläche möglich.

3.3.1 Zeitintegrierte Mikro-PL-Spektroskopie

Der für zeitintegrierte Experimente verwendete PL-Messplatz ist in Abb. 3.3 schematisch dargestellt. Zur optischen Anregung der Proben wurde ein Titan-Saphir-Laser (Ti:Sa-Laser) verwendet, der im Dauerstrichmodus und im gepulsten Modus mit variabler Wellenlänge zwischen 700 nm und 800 nm betrieben werden kann. Dieser wiederum wird von einem frequenzverdoppelten Nd:YAG²-Laser bei einer Wellenlänge von 532 nm gepumpt. Zur Regulierung der Anregungsleistung auf der Probe können nach dem Laser verschiedene Neutraldichtefilter in den Strahlengang eingebracht werden. Daran schließt sich die Strahlaufweitung an, wo der Strahl durch eine erste Sammellinse der Brennweite f_1 fokussiert und anschließend von einer zweiten Linse der Brennweite f_2 wieder kollimiert wird. Der Abstand der beiden Linsen beträgt genau $f_1 + f_2$, so dass die Brennpunkte zusammenfallen. Ein einfallender

¹ engl. *quantum confinement*

² Festkörperlaser mit einem Neodym-dotierten Yttrium-Aluminium-Granat-Kristall als aktives Medium

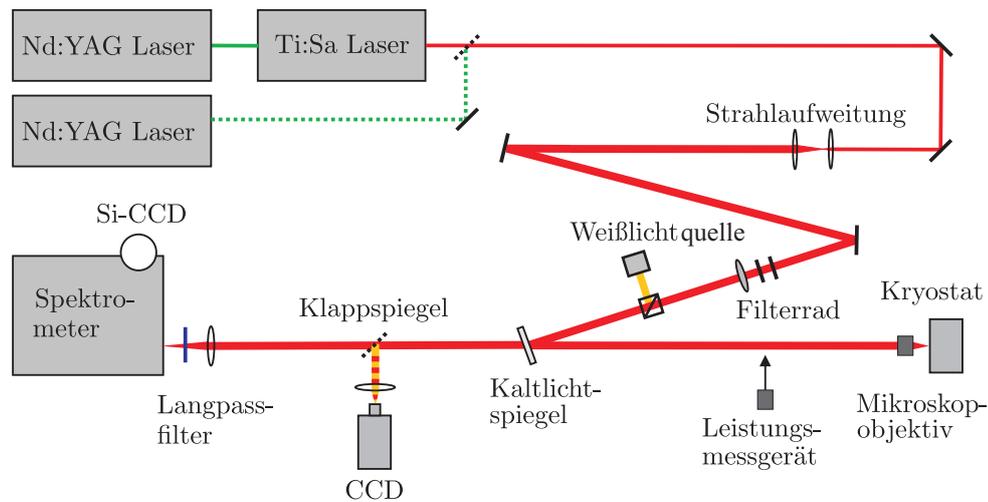


Abbildung 3.3: Schematischer Aufbau des Mikro-PL-Messplatzes für zeitintegrierte Experimente.

Strahl mit dem Radius w_1 besitzt nach der Strahlaufweitung den Radius $w_2 = \frac{f_2}{f_1} \cdot w_1$. Durch diese Aufweitung verringert sich zum einen die Strahldivergenz über den langen optischen Weg, vor allem aber ergibt sich eine bessere Fokussierbarkeit durch das Mikroskopobjektiv [Hec02, Dem07].

Nach der Strahlaufweitung kann der Strahl durch weitere diskrete Neutralfilter abgeschwächt werden und zur Feinregulierung steht ein stufenlos drehbares Filterrad zur Verfügung. Im weiteren Verlauf wird der Anregungsstrahl mit Hilfe eines dichroitischen Spiegels (Kaltlichtspiegel) auf die optische Hauptachse in Richtung des Kryostaten gelenkt. An dieser Stelle kann ein Leistungsmessgerät in den Strahlengang eingeschoben werden, um die Anregungsleistung zu erfassen. Zur Fokussierung des Laserstrahls auf der Probe dient ein Mikroskop-Objektiv. Dieses Objektiv weist eine 20-fache Vergrößerung und eine Numerische Apertur von 0,4 auf. Der damit auf der Probenoberfläche erzielte minimale Brennfleckradius beträgt $w_F = \frac{4\lambda_L f_{Obj}}{\pi w_2}$, wobei λ_L die Emissionswellenlänge des Lasers und f_{Obj} die Brennweite des Mikroskopobjektivs sind. Die reziproke Abhängigkeit zwischen w_F und w_2 ist der Hauptgrund für den Einsatz einer Strahlaufweitung. Um diesen Effekt optimal auszunutzen, sind die Linsen derart auf das Objektiv abgestimmt, dass der Durchmesser des Laserstrahls vor dem Mikroskopobjektiv mit der Eingangsapertur des Mikroskopobjektivs übereinstimmt. Der Durchmesser des Laserpunktes auf der Probenoberfläche wurde für diesen Messplatz zu ungefähr $3 \mu\text{m}$ abgeschätzt.

Die zu untersuchende Probe befindet sich auf dem Kältefinger eines Helium-Durchflusskryostaten, der Messungen zwischen nominell 4,2 K und Raumtemperatur erlaubt. Die gewünschte Proben­temperatur wird durch einen Proportional-Integral-Differential-Regelkreis (PID-Regelung) eingestellt, der die aktuelle Temperatur über

ein Thermoelement in der Rückseite des Kältefingers misst und dementsprechend den Strom durch die Heizwendeln und den Heliumfluss steuert. Die Probenkammer wird über eine Turbomolekularpumpe abgepumpt, wodurch während der Messung ein Hochvakuum bei einem Restdruck im Bereich von 10^{-6} hPa erzielt wird.

Das von der Probe emittierte Licht wird über das gleiche Mikroskopobjektiv eingesammelt und läuft als kollinearer Strahl zum Spektrometer. Dort wird das zu analysierende PL-Signal über eine plan-konvex-Linse auf den Eintrittspalt des Spektrometers fokussiert. Die Breite des Eintrittspalts (typischerweise 50 - 100 μm) kann variiert werden, um eine möglichst hohe Auflösung bei guter Signalstärke zu erreichen und Streulicht abzuschirmen. Ein Langpassfilter (RG 780) vor dem Spektrometer dient zur Unterdrückung des reflektierten Laserlichts bei gleichzeitiger geringer Abschwächung des längerwelligen PL-Signals.

Der einfallende Strahl wird über ein dispersives Gitter spektral zerlegt und auf einen Stickstoff-gekühlten Si-CCD-Chip gelenkt. Unter Einsatz eines Gitters mit 1200 Strichen/mm und bei der fokalen Länge des Spektrometers von 55 cm ergibt sich so eine Auflösung von ungefähr 100 μeV . Im Strahlengang befindet sich ein weiterer Strahlteiler, der das Licht einer Weißlichtquelle dem Laserstrahl überlagert. Mit Hilfe eines Klappspiegels und einer Linse kann über eine CCD¹-Kamera ein Abbild der Probenoberfläche aufgenommen werden. Dies dient zur Orientierung auf der Probe und zur gezielten Justage auf bestimmte Nanodrähte.

3.3.2 Zeitaufgelöste Mikro-PL-Spektroskopie

Für die zeitaufgelöste Spektroskopie wurde der oben beschriebene Messplatz nur geringfügig verändert bzw. erweitert (siehe Abb. 3.4). Zur optischen Anregung wird der Titan-Saphir-Laser (Ti:Sa-Laser) im gepulsten Modus betrieben. Über das Prinzip der aktiven Modenkopplung können mit Hilfe eines akusto-optischen Modulators im Resonator (ultra-kurze) Laserpulse von 150 fs Dauer erzeugt werden. Die Wiederholrate liegt bei 82 MHz, was einem zeitlichen Abstand von etwa 12 ns zwischen aufeinanderfolgenden Laserpulsen entspricht. Die Anregungswellenlänge wurde für das Experiment im Bereich von 750 nm gewählt.

Zur zeitaufgelösten Detektion wird ein Mikro-Kanal-Detektor (MCP²) verwendet, der am seitlichen Ausgang des Spektrometers angebracht ist. Über einen vertikalen Spalt an diesem Ausgang findet eine scharfe spektrale Selektion der detektierten Emission statt, so dass im untersuchten Wellenlängenbereich ein spektraler Ausschnitt von ungefähr 4 nm aufgenommen wird. Durch das Prinzip der Sekundärelektronen-Vervielfachung wird aus einem auftreffenden Photon eine große Anzahl von

1 Akronym für *Charge-Coupled Device*

2 Akronym für *Micro-Channel Plate*

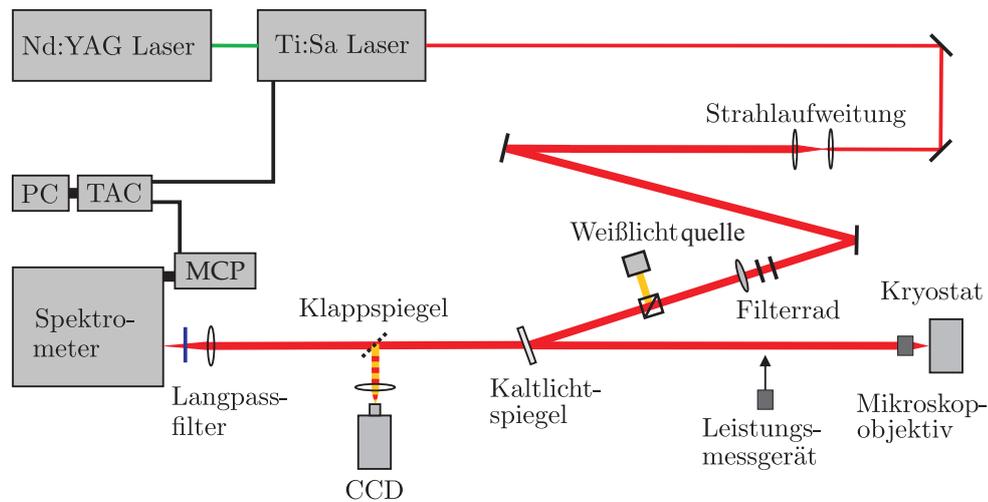


Abbildung 3.4: Schematischer Aufbau des PL-Messplatzes für zeitaufgelöste Experimente.

Elektronen in der Größenordnung von 10^5 generiert. Diese Spannungspulse können, nach einer weiteren elektrischen Verstärkung, am Rechner mit Hilfe einer Photonen-Korrelationskarte (TAC¹) verarbeitet werden. Das gesamte System hat eine zeitliche Auflösung im Bereich von 100 ps.

3.3.3 Messmethode

Vor den eigentlichen PL-Messungen wurden die Nanodrähte auf kleine Silizium-Stücke aufgebracht. Dies ist nötig, da die InP-Nanodrähte auf InP-Substrate aufgewachsen werden und somit bei einer direkten optischen Untersuchung der Großteil des PL-Signals vom Substrat herrühren würde. Aus diesem Grund bietet sich Silizium als Probenträger an, da bei diesem indirekten Halbleiter der Lumineszenz-Hintergrund vernachlässigt werden kann und somit ausschließlich die Nanodrähte im Experiment charakterisiert werden können.

Das Ablösen der Drähte selbst geschieht durch Auflegen der Siliziumstückchen auf das Wachstumssubstrat und anschließendes leichtes Reiben. Durch Adhäsionskräfte bleiben hierbei genügend Nanodrähte auf dem Silizium haften. Das Silizium-Substrat wurde vorher mittels optischer Belichtung mit einem durchnummerierten Gitter aus Gold vorstrukturiert, um sich während der PL-Messungen auf der Probe orientieren und gezielt bestimmte Stellen untersuchen zu können. So können einzelne, aber auch größere Ansammlungen von Nanodrähten für die Messung ausgewählt werden.

¹ Akronym für *Time-Amplitude-Converter*

Zur Charakterisierung der InP-Nanodrähte wurde der Laser leicht defokussiert, so dass sich auf der Probenoberfläche eine Anregungsfläche von ungefähr $5\ \mu\text{m}$ Durchmesser ergibt. Bei der in der Regel verwendeten nominellen Anregungsleistung von $3\ \text{mW}$ ergibt sich so eine Leistungsdichte von $15\ \text{kW}/\text{cm}^2$. Durch diesen leicht vergrößerten Laserpunkt konnten kleine Ansammlungen von ungefähr 30 bis 50 Nanodrähten untersucht werden. Ziel dieser Vorgehensweise war es, bei der Charakterisierung statistisch zu mitteln und so den möglichen Störeinfluss von Fluktuationen im Herstellungs- und Beschichtungsprozess zu minimieren.

Da zum einen die Emission der InP-Nanodrähte spektral sehr breit ist und sich zum zweiten das Emissionsmaximum innerhalb der $12\ \text{ns}$ zwischen zwei Laserpulsen in Abhängigkeit des momentanen Anregungszustands spektral stark verschiebt, ist es nötig, das PL-Signal nicht nur zeit-, sondern auch spektralaufgelöst aufzunehmen. Eine zeitaufgelöste Aufnahme bei nur einer Wellenlänge, etwa im Maximum der PL-Emission, würde ein verfälschtes Bild der tatsächlichen Vorgänge abgeben. Nur eine Integration des zeitaufgelösten PL-Signals über den ganzen Spektralbereich spiegelt den zeitlichen Verlauf der Ladungsträgerdichte n korrekt wider und ermöglicht so eine Interpretation mit dem in Kapitel 4.2.1 diskutierten Modell. Nachdem der spektrale Ausschnitt bei zeitaufgelösten Messungen wie oben beschrieben ungefähr $2\Delta\lambda = 4\ \text{nm}$ um die zentrale Wellenlänge λ_0 beträgt, wird im Experiment somit der gesamte Spektralbereich der Emission mit einer Schrittweite von $5\ \text{nm}$ abgerastert und dabei jeweils die Zerfallskurve aufgenommen. Die Wahl der Schrittweite ist hierbei ein Kompromiss zwischen einer möglichst guten Auflösung und einer Minimierung der Messzeit, während der konstante Bedingungen herrschen müssen. Diese Einzelkurven, wie in Abb. 3.5 oben links gezeigt, können dann nach der Messung zusammengefügt und in einer zweidimensionalen Falschfarben-Darstellung betrachtet werden (vgl. Abb. 3.5 oben rechts). Diese gibt Aufschluss über den zeitlichen und spektralen Verlauf der PL-Emission des Nanodrahtes im relevanten Spektralbereich.

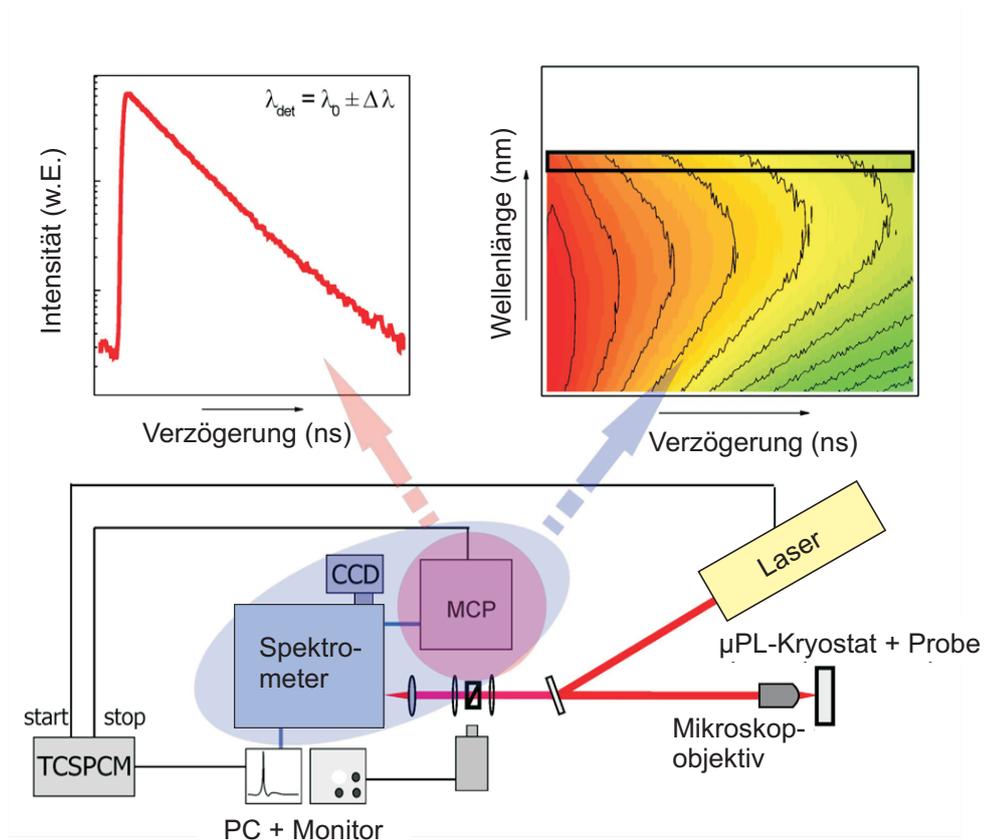


Abbildung 3.5: Schematische Darstellung des PL-Messplatzes und der Vorgehensweise bei zeitaufgelösten Experimenten. Mit dem MCP werden bei der jeweiligen Wellenlänge λ_0 Zerfallskurven aufgenommen (oben links). Durch schrittweises Verfahren des Spektrometers kann so das zeitaufgelöste Signal über den gesamten Spektralbereich der Emission aufgenommen werden (oben rechts).

4 Zeitaufgelöste Untersuchungen an Oberflächen von InP-Nanodrähten

Dieses Kapitel widmet sich der optischen Untersuchung von Oberflächen an InP-Nanodrähten. Mit Hilfe der zeitaufgelösten Mikro-PL-Spektroskopie wurde hierbei vor allem der Einfluss des *high-k*-Dielektrikums auf die Oberflächen-Qualität der Nanodrähte charakterisiert und in der Folge auch systematisch minimiert. Wie in Kapitel 3 bereits dargestellt, ging es dabei nicht um eine gezielte Oberflächen-Passivierung, sondern vielmehr um die Verringerung der schädlichen Auswirkungen eines unausweichlichen Prozessschrittes bei der Herstellung nanoelektronischer Bauteile.

4.1 Oberflächenbeschichtete undotierte InP-Nanodrähte

Die Oberfläche eines Kristalls stellt immer eine Besonderheit dar, weil hier die Periodizität des Gitters ein abruptes Ende findet und somit die Symmetrie gebrochen ist. Daraus resultiert ein Mangel an Bindungspartnern für die Oberflächen-Atome und es ergeben sich freie Bindungen bzw. Oberflächen-Rekonstruktionen. Durch ungesättigte Bindungen entstehen sogenannte intrinsische Oberflächen-Zustände [Man71]. Darüber hinaus ergeben sich auch Gitterfehler an der Oberfläche oder Fremdatome werden adsorbiert, z.B. bei der Oxidation an Luft. Dies führt zu extrinsischen Oberflächen-Zuständen, die energetisch innerhalb der Bandlücke liegen und somit nicht-strahlende Rekombination begünstigen. Ab einer kritischen Oberflächen-Dichte von ungefähr 10^{11} cm^{-2} können diese Zustände außerdem noch das Fermi-Niveau festsetzen (FLP¹) [Yab89]. Im Folgenden werden nun die verschiedenen Beschichtungsmethoden und ihr jeweiliger Einfluss auf die Oberflächen-Qualität der Nanodrähte charakterisiert. Dabei werden zunächst nominell undotierte (intrinsische) InP-Nanodrähte untersucht.

¹ Akronym für *Fermi-Level Pinning*

4.1.1 HfO₂-Beschichtung intrinsischer InP-Nanodrähte

In Abb. 4.1 sind die spektral- und zeitaufgelösten Zerfallskurven von nominell undotierten InP-Nanodrähten mit einem Durchmesser von 50 nm und verschiedenen HfO₂-Beschichtungen gezeigt. In der Falschfarben-Darstellung steht rot für hohe und blau für niedrige Intensität des PL-Signals, wobei die Farbabstufung logarithmisch skaliert ist. Außerdem sind die PL-Daten jeweils auf die maximale Intensität (zum Zeitpunkt $t = 0$ bei Eintreffen des Laserpulses) normiert, um einen direkten Vergleich zu ermöglichen.

In Teilbild a) ist das gemessene Signal der unbehandelten Referenzprobe 1 zu sehen. Direkt nach dem Laserpuls, also beim Zustand hoher Anregung bzw. großer Dichte der freien Ladungsträger, befindet sich das Maximum der Emission bei ungefähr 1,47 eV. Mit längerer Verzögerungszeit, d.h. abnehmender Dichte der optisch erzeugten Ladungsträger, schiebt die Hauptemission zu längeren Wellenlängen bis zu einer Energie von ungefähr 1,44 eV kurz vor dem nächsten Anregungspuls nach 12 ns. Das bedeutet, dass die PL-Emission energetisch signifikant über der Bandlücke von InP in der Zinkblende-Struktur (ZB) bei 1,42 eV liegt. Dies wurde bereits bei InP-Nanodrähten in reiner Wurtzit-Struktur (WZ) [Cra08] und auch bei Nanodrähten mit sich abwechselnden ZB und WZ Abschnitten [Bao08] beobachtet. Mit großer Wahrscheinlichkeit weisen die hier untersuchten Nanodrähte ebenfalls diese Struktur auf, da sich in TEM¹-Untersuchungen an unter identischen Bedingungen gewachsenen Proben eine Mischung von WZ- und ZB-Abschnitten in den Nanodrähten gezeigt hat. Nach Pemasiri *et al.* [Pem09] liegt in diesen sogenannten Homostrukturen² eine Anordnung der Bänder zweiter Art vor, wie in Abb. 4.2 skizziert ist. Dabei sind die Bänder derart angeordnet, dass kein gleichzeitiger Einschluss für Elektronen und Löcher vorliegt.

Daraus ergibt sich ein breiter Energiebereich für mögliche Übergänge, der sich von 1,38 eV für den indirekten Übergang zwischen ZB- und WZ-Bereichen bis hoch zum Kontinuum bei 1,545 eV erstreckt. Bei einer großen Zahl freier Ladungsträger ist durch Band-Auffüllungseffekte (engl. *band-filling*) dieser gesamte Bereich bevölkert und die PL-Emission ist dadurch stark verbreitert. Dies ist auch in Abb. 4.1f) zu erkennen, die auszugsweise PL-Spektren bei verschiedenen Verzögerungszeiten zeigt. Mit sinkendem Anregungszustand relaxieren die Ladungsträger mehr und mehr, bis bei sehr geringer Ladungsträgerdichte nur noch der indirekte Übergang bei 1,38 eV zur Emission beiträgt.

1 Akronym für Transmissions-Elektronen-Mikroskopie

2 Im Gegensatz zu Heterostrukturen handelt es sich nur um ein Material, nämlich InP, das jedoch in zwei Kristallstrukturen vorliegt, ZB und WZ.

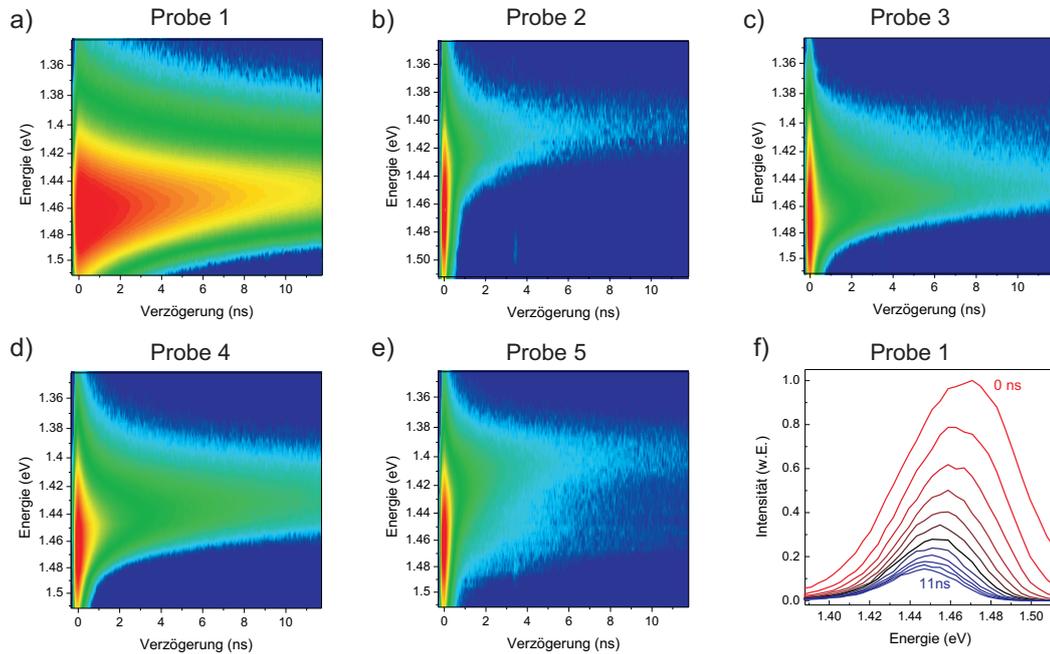


Abbildung 4.1: Zeitlicher Verlauf der PL-Emission von undotierten InP-Nanodrähten des Durchmessers 50 nm. a)-e) Falschfarben-Diagramme der PL-Intensität in Abhängigkeit von Verzögerungszeit nach dem Laserpuls und Energie für folgende Proben: 1 (unbehandelte Referenzprobe), 2 (5 nm HfO₂ bei 250 °C), 3 (15 nm HfO₂ bei 250 °C), 4 (7 nm HfO₂ bei 100 °C) und 5 (Vorbereitung mit gepufferter HF-Lösung und 5 nm HfO₂ bei 250 °C). f) PL-Spektren von Probe 1 für verschiedene Verzögerungszeiten.

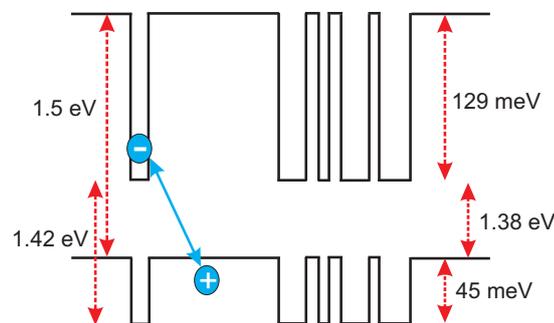


Abbildung 4.2: Schematisches Banddiagramm bei einer Anordnung der Bänder zweier Art im InP-Nanodraht.

Wie anhand Abb. 4.1 zu erkennen ist, ergeben sich im Vergleich zur unbehandelten Referenzprobe 1 für die HfO₂-beschichteten Nanodrähte deutlich unterschiedliche Verläufe des zeitaufgelösten PL-Signals. Das Abklingen verläuft signifikant schneller und die energetische Verschiebung hängt stark von der jeweiligen Oberflächen-Behandlung ab. Dies deutet darauf hin, dass die Ladungsträgerdynamik nachhaltig von Oberflächen-Effekten, die in Verbindung mit dem *high-k*-Dielektrikum stehen, beeinflusst wird. Das zügige Abklingen der PL-Emission rührt von der schnellen Oberflächen-Rekombination her, die wiederum aus der erhöhten Dichte an Störstellen an der Grenzfläche zwischen Nanodraht und HfO₂ resultiert.

Die energetische Verschiebung des PL-Signals verhält sich im Einklang mit den Beobachtungen in Pemasiri *et al.* [Pem09] und der darin diskutierten Bänderanordnung zweiter Art. Für die Referenzprobe 1 hält die Emission sehr lange an und weist ihr Maximum nach 12 ns bei ungefähr 1,45 eV auf. Dies ist deutlich oberhalb der Bandlücke von ZB-InP bei 1,42 eV, was auf einen immer noch hohen Anregungszustand lange nach dem Anregungspuls hindeutet. Bei den Proben 3 und 4, deren PL-Emission wesentlich schneller abklingt, befindet sich das Maximum ebenfalls im Bereich von 1,45 eV. Allerdings wird, besonders bei Probe 3, bei sehr langer Verzögerung der Untergrund um 1,41 eV sichtbar, nachdem die Intensität bei 1,45 eV schon stark abgeklungen ist. Bei Probe 5 ist, bedingt durch die hohe Oberflächen-Rekombinationsrate, einige Zeit nach dem Puls die Hauptemission bei 1,45 eV nur noch schwach zu erkennen. Hier dominiert dann vermutlich der indirekte Übergang zwischen ZB- und WZ-Abschnitten bei ungefähr 1,40 eV. Bei Probe 2, die das schnellste Abklingverhalten aufweist, ist nach langer Verzögerung ausschließlich Emission bei 1,40 eV zu sehen, was einem sehr geringen Anregungszustand aufgrund der großen Oberflächen-Rekombination entspricht.

Um nun aus den zeitaufgelösten PL-Messungen quantitative Informationen über die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit und damit über die Oberflächen-Qualität gewinnen zu können, wird zunächst das gemessene PL-Signal über den gesamten Energiebereich integriert. In Abb. 4.3a) sind die so gewonnenen Zerfallskurven für die Proben 1 bis 5 dargestellt.

Die Dynamik der Ladungsträger im Nanodraht wird durch das folgende Modell beschrieben. Damit kann die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit S als Charakterisierungskriterium für die Oberflächen-Qualität aus den PL-Daten extrahiert werden. Dieses Modell wurde ursprünglich von Yablonovitch [Yab87] entwickelt und anschließend erstmals von Ogawa [Oga92] auf eindimensionale Nanostrukturen angewendet. Danach ergibt sich der zeitliche Verlauf der Dichte der optisch erzeugten freien Ladungsträger n aus einem strahlenden und einem nicht-strahlenden Term, der wiederum von der Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit S abhängt:

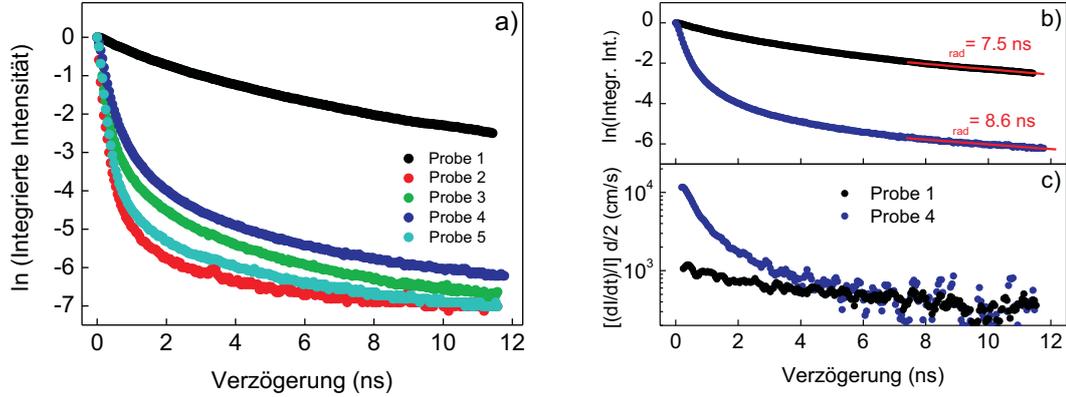


Abbildung 4.3: a) Abklingverhalten des PL-Signals für die Proben 1 bis 5. Die über den gesamten Energiebereich integrierte Intensität ist über die Zeitverzögerung aufgetragen. b) Abklingverhalten des PL-Signals für die Proben 1 und 4. Lineare Anpassung des logarithmischen Verlaufs zur Ermittlung der strahlenden Lebensdauer. c) Auftragung von $[(dI/dt)/I] \cdot d/2$, um bei kleinen Verzögerungszeiten die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit zu erhalten.

$$\frac{dn}{dt} = - \left(\frac{1}{\tau_{rad}} + \frac{2S}{d} \right) n. \quad (4.1)$$

Hier ist τ_{rad} die Lebensdauer der strahlenden Übergänge, die vom räumlichen Überlapp von Elektron- und Lochwellenfunktion abhängt und somit von der strahlenden Lebensdauer im InP-Volumenmaterial zu unterscheiden ist. d bezeichnet den Durchmesser des Nanodrahts. Bei den gemessenen Abklingkurven ist der erste Abfall bei sehr kurzen Verzögerungszeiten zurückzuführen auf nichtstrahlende Rekombination [Trä08], charakterisiert durch den Term $\frac{2S}{d}$ aus Gleichung (4.1). Für größere zeitliche Verzögerung hingegen wird der Zerfall durch strahlende Prozesse dominiert, so dass eine lineare Anpassung in diesem Bereich bei logarithmischer Darstellung die strahlende Lebensdauer τ_{rad} ergibt, wie in Abb. 4.3b) für die Proben 1 und 4 exemplarisch demonstriert.

Die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit lässt sich aus diesen Kurven nun mit Hilfe der folgenden Überlegung gewinnen. Bei sehr kurzen Verzögerungszeiten, bei denen die Emission von nichtstrahlenden Prozessen dominiert wird, kann der strahlende Term $1/\tau_{rad}$ in Gleichung (4.1) vernachlässigt werden. Folglich lässt sich die Gleichung nach S auflösen und die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit ergibt sich aus den Abklingkurven über $[(dI/dt)/I] \cdot d/2$. Eine Auftragung dieser Identität über die Verzögerung, wie in Abb. 4.3c) dargestellt, liefert bei kleinen Verzögerungszeiten (und noch vernachlässigbarer stahlender Rekombination) die in Tabelle 4.1 aufgeführten Werte für die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit. Die Zahlen belegen zum einen den negativen Einfluss der Beschichtung mit HfO_2

und zeigen zum zweiten einen signifikanten Einfluss der ALD-Prozessparameter auf die Oberflächen-Qualität der Nanodrähte auf.

Tabelle 4.1: Oberflächen-Rekombinations-Geschwindigkeit und strahlende Lebensdauer der Proben 1 bis 5.

Probe	S (cm/s)	τ_{rad} (ns)
1	$(1,1 \pm 0,2) \times 10^3$	$7,5 \pm 0,1$
2	$(3,5 \pm 0,4) \times 10^4$	$19,0 \pm 2,4$
3	$(2,1 \pm 0,3) \times 10^4$	$8,8 \pm 0,3$
4	$(1,1 \pm 0,2) \times 10^4$	$8,6 \pm 0,2$
5	$(2,5 \pm 0,3) \times 10^4$	$11,1 \pm 0,5$

Die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit der unbehandelten Referenzprobe 1 beträgt $S = 1,1 \times 10^3$ cm/s, was einen relativ geringen Wert und damit eine gute Oberflächen-Qualität im Vergleich zu Literaturwerten von InP-Schichtstrukturen zwischen 3000 cm/s und 5000 cm/s [Nol90, Bot91] darstellt. Darüber hinaus fällt auf, dass die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit der HfO₂-beschichteten Nanodrähte um eine Größenordnung über derer der unbehandelten Referenzprobe 1 liegt. Dies manifestiert den negativen Einfluss der ALD-Beschichtung auf die Oberflächen-Qualität, der qualitativ bereits aus Abb. 4.1 ersichtlich war. Für die Proben 2, 3 und 5, die allesamt bei einer ALD-Temperatur von 250 °C prozessiert wurden, ergeben sich Werte der Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit zwischen $2,1 \times 10^4$ und $3,5 \times 10^4$ cm/s. Ein direkter Vergleich der Proben 2 und 5 zeigt den positiven Effekt einer Vorbehandlung der Nanodrähte vor dem ALD-Prozessschritt. Die Proben sind beide unter gleichen Bedingungen gewachsen und bei 250 °C beschichtet worden, jedoch wurde nur Probe 5 einer Vorbehandlung unterzogen. Ein einminütiges Ätzen in gepufferter Flußsäure (BHF) und anschließendes Abspülen mit Isopropanol (IPA) führt hier zu einem Wert der Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit von $2,5 \times 10^4$ cm/s im Gegensatz zu $3,5 \times 10^4$ cm/s ohne diese Vorbehandlung. Einen weniger schädlichen Einfluss auf die Oberflächen-Qualität hat eine Prozesstemperatur von 100 °C, was sich in $S = 1,1 \times 10^4$ cm/s für die Probe 4 äußert. Dies stellt gleichzeitig den besten Wert dar, der im Rahmen dieser Arbeit für intrinsische InP-Nanodrähte mit HfO₂-Beschichtung gemessen wurde.

Einen weiteren interessanten Aspekt bieten die gemessenen Werte der strahlenden Lebensdauern τ_{rad} . Diese sind mit der jeweiligen Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit korreliert: je größer S desto größer ist auch τ_{rad} . Dieser Effekt ist auf eine Trennung der Ladungsträger aufgrund der unterschiedlichen Beweglichkeiten

für Elektronen und Löcher zurückzuführen, ausgelöst durch die starke Diffusion an die Oberfläche. Damit verbunden ist ein statistischer Rückgang des Überlapps der Wellenfunktionen und somit auch der Wahrscheinlichkeit für strahlende Rekombination. Dies ist besonders bei den Proben 2 und 5 mit der schlechtesten Oberflächen-Qualität und strahlenden Lebensdauern von bis zu 19,0 ns stark ausgeprägt.

4.1.2 HfO₂-Beschichtung von InP-Nanodrähten mit GaP-Hülle

Um dem negativen Einfluss der ALD-Beschichtung entgegen zu wirken, wurde in der Folge bereits während des Wachstums versucht, die Oberflächen-Effekte zu minimieren. Dazu wurde im ersten Schritt eine zusätzliche dünne Halbleiterschicht aus GaP auf den Kern des InP-Nanodrahtes aufgewachsen, um so den direkten Kontakt des *high-k*-Dielektrikums mit der InP-Oberfläche und damit die Ausbildung einer großen Zahl an Oberflächen-Zuständen zu vermeiden.

Auf undotierte InP-Nanodrähte mit einem nominellen Durchmesser von 50 nm wurden im radialen Wachstumsmodus GaP-Schichten von unterschiedlicher Dicke aufgewachsen, wobei die Schichtdicke über die jeweilige Wachstumszeit kontrolliert wird. So ergaben sich bei Wachstumszeiten von 15, 40 und 300 s GaP-Schichtdicken von 0,3, 0,7 bzw. 5 nm. Auf eine ALD-Beschichtung mit HfO₂ wurde hier zunächst verzichtet. In Abb. 4.4 sind die Zerfallskurven der betreffenden Proben 6, 7 und 8 wiedergegeben. Die Abklingzeiten und die relativen PL-Intensitäten dieser Proben deuten auf einen negativen Einfluss einer dickeren GaP-Umhüllung auf die Oberflächen-Qualität der Nanodrähte hin. Im Detail ist die Signalstärke bei der Messung von Probe 8 ungefähr vier Größenordnungen geringer als bei Probe 6 und die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit steigt an von $3,3 \times 10^3$ cm/s bis auf $2,1 \times 10^4$ cm/s. Diese Verschlechterung der Oberflächen-Qualität durch die zusätzliche GaP-Schicht ist zurückzuführen auf die Gitterfehlpassung zwischen dem InP-Kern ($a_{InP} = 5,8687 \text{ \AA}$) und der GaP-Hülle ($a_{GaP} = 5,4505 \text{ \AA}$). Diese fällt mit zunehmender GaP-Dicke immer mehr ins Gewicht und führt zu einer erhöhten Dichte an verspannungsinduzierten Defekten.

Aufbauend auf diesen Zwischenergebnissen wurde im Folgenden nur für Proben mit der dünnsten GaP-Hülle eine ALD-Beschichtung studiert. Dazu wurde auf Nanodrähte, die identisch mit Probe 6 sind, eine 5 nm dicke HfO₂-Schicht bei 250 °C bzw. eine 7 nm dicke Schicht bei 100 °C aufgebracht. Diese Proben sind als 6A und 6B in 3.1 aufgeführt. Die energie- und zeitaufgelösten PL-Messungen nach der oben beschriebenen Vorgehensweise ergaben die in Abb. 4.5 dargestellten Abklingkurven, die wiederum spektral über den gesamten Emissionsbereich integriert sind.

Auch bei dieser Gegenüberstellung steigt S von $3,3 \times 10^3$ cm/s für die Referenzprobe 6 auf $9,5 \times 10^3$ cm/s (6B) und sogar $4,7 \times 10^4$ cm/s (6A) aufgrund der ALD-Beschichtung an. Im Einklang mit den vorherigen Ergebnissen aus Tabelle 4.1 ist

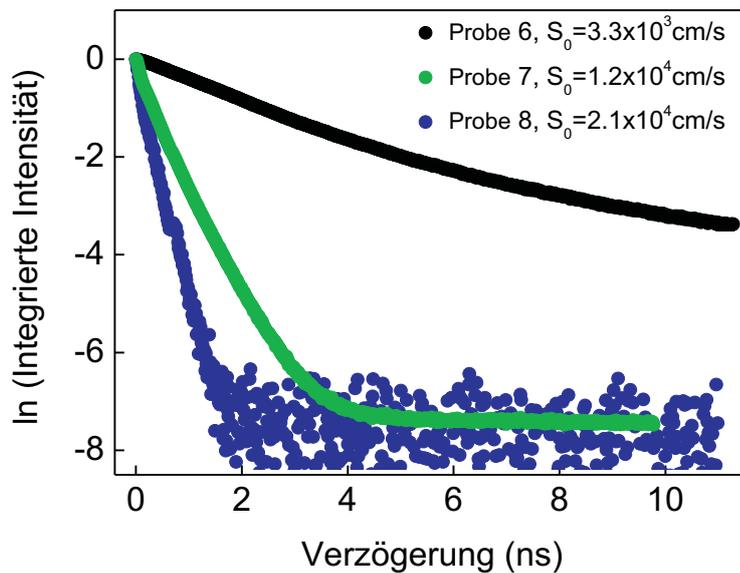


Abbildung 4.4: Abklingverhalten des PL-Signals für die Proben 6, 7 und 8 mit einer Dicke der GaP-Schicht von 0,3, 0,7 bzw. 5 nm. Die über den gesamten Energiebereich integrierte Intensität ist über die Zeitverzögerung aufgetragen.

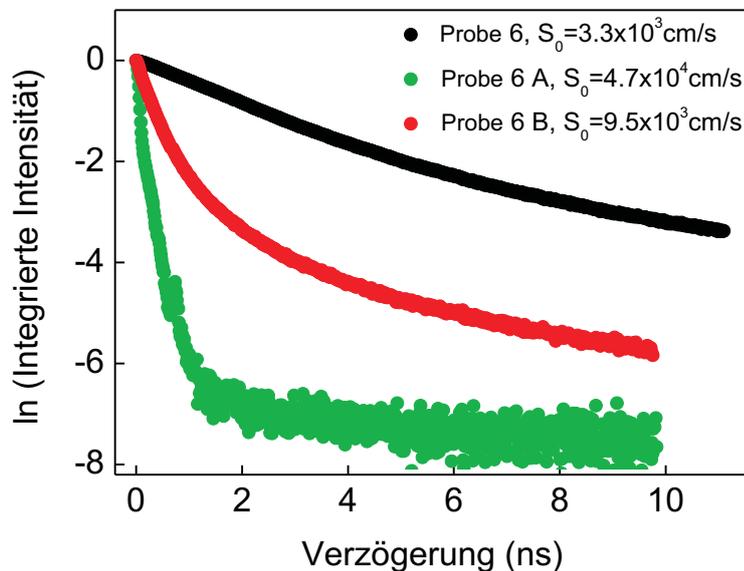


Abbildung 4.5: Abklingverhalten des PL-Signals für die Proben 6, 6A und 6B mit einer 0,3 nm dicken GaP-Schicht und einer 5 nm (6A) bzw. 7 nm (6B) dicken HfO₂-Schicht. Die über den gesamten Energiebereich integrierte Intensität ist über die Zeitverzögerung aufgetragen.

auch hier der negative Einfluss bei einer Prozesstemperatur von 100 °C (6B) deutlich geringer als bei 250 °C (6A). Darüber hinaus zeigt ein Vergleich mit Probe 4 den positiven Effekt der GaP-Umhüllung. Bei identischen ALD-Parametern (100 °C, 7 nm) wurde bei Probe 4 ohne die GaP-Hülle eine Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit von $1,1 \times 10^4$ cm/s gemessen, wohingegen sich dieser Wert bei Probe 6B um knapp 20% verringert hat. Dies deutet auf einen günstigen Einfluss der GaP-Umhüllung hin, die hier als schützende Zwischenschicht (ICL¹) [Has89] zwischen der InP-Oberfläche des Nanodrahts und der ALD-Beschichtung wirkt. Dabei wächst die sehr dünne GaP-Schicht gitterangepasst auf das InP auf, so dass sich am InP keine Oberflächen-Rekonstruktionen entwickeln und trotzdem keine Verspannungen ausbilden können. Insgesamt stellt sich das Aufbringen einer zusätzlichen Halbleiterschicht vor der ALD-Beschichtung als vielversprechende Methode dar. Zur weiteren Verbesserung der Oberflächen-Qualität bei der Anwendung von *high-k*-Dielektrika könnten zukünftige Arbeiten auf gitterangepasste Schichten abzielen, die auf Basis von ternären Verbindungen zu realisieren sind.

4.1.3 HfO₂-Beschichtung von InP-Nanodrähten nach *in situ*

H₂S-Ausheilung

In einem weiteren Schritt wurde die Passivierung mittels H₂S vor dem ALD-Beschichtungsprozess untersucht. Wie schon oben diskutiert, wurde eine Verringerung der Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit für HfO₂-beschichtete InP-Nanodrähte beobachtet, nachdem die Proben vor dem ALD-Prozess mit gepufferter Flusssäure (BHF) von der Oxidschicht befreit und anschließend mit Isopropanol (IPA) gespült worden waren. In diesem Fall sank S von $3,5 \times 10^4$ cm/s bei Probe 2 auf $2,5 \times 10^4$ cm/s für die vorbehandelte Probe 5 ab. Nach einer Untersuchung von Mattila *et al.* [Mat07] wird jedoch ein deutlich größerer Effekt von einer *in situ* HF-Behandlung direkt nach dem Wachstum erwartet. Im vorliegenden Fall ist der geringere Zugewinn wohl auf eine erneute Oxidation der Oberfläche vor dem ALD-Prozessschritt zurückzuführen. Aus diesem Grund wurde im Folgenden eine Passivierung mit Schwefel direkt nach dem Wachstum angewendet. Bei InP-Schichtstrukturen zeigte sich eine Resistenz gegen diese Oberflächen-Oxidation nach einem *in situ* Ausheilungsschritt unter Schwefelwasserstoff-Atmosphäre (H₂S) direkt nach dem Wachstum [Lu09].

Dazu wurden erneut InP-Nanodrähte mit einem Durchmesser von 50 nm gewachsen und anschließend in der Wachstumskammer unter einer H₂S-Atmosphäre bei 420 °C (Probe 9) bzw. 150 °C (Probe 10) ausgeheilt. Danach fand eine ALD-Be-

¹ Akronym für *Interface Control Layer*

schichtung mit 5 nm HfO₂ bei 250 °C statt. Die an diesen Proben gemessenen Abklingkurven, wiederum integriert über den gesamten Spektralbereich der Emission, sind in Abb. 4.6 dargestellt.

Im Vergleich zur unbehandelten Referenzprobe 1 wird auch hier bei den HfO₂-beschichteten Proben ein schnelleres Abklingen der Emission beobachtet, was auf eine erhöhte Dichte an nicht-strahlenden Oberflächen-Zuständen hindeutet. Allerdings zeigt sich außerdem, dass die *in situ* passivierten Nanodrähte (Proben 9 und 10) eine wesentlich bessere optische Qualität aufweisen als die mit BHF vorbehandelte Probe 5. Der Anteil nicht-strahlender Rekombination wird somit offenbar durch den Ausheilungsschritt mit H₂S erfolgreich verringert. Tatsächlich ergeben sich für die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit Werte von $1,7 \times 10^4$ cm/s für eine Ausheilungstemperatur von 420 °C (Probe 9) und $3,9 \times 10^4$ cm/s für eine Ausheilung bei 150 °C (Probe 10).

4.1.4 Zusammenfassung

In Tabelle 4.2 sind nochmals die ermittelten Werte von S der meist versprechenden Proben als Maß für die Qualität der Oberfläche von InP-Nanodrähten nach der ALD-Beschichtung mit HfO₂ aufgeführt.

Tabelle 4.2: Übersicht über die optische Qualität der in Bezug auf die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit meist versprechenden Proben nach ALD-Beschichtung der undotierten InP-Nanodrähte

Probe	Wachstum	ALD	Vorbehandlung	S (cm/s)
1	InP	-	-	$1,1 \times 10^3$
2	InP	250 °C, 5 nm	-	$3,5 \times 10^4$
4	InP	100 °C, 7 nm	-	$1,1 \times 10^4$
5	InP	250 °C, 5 nm	BHF + IPA	$2,5 \times 10^4$
6A	InP + GaP	250 °C, 5 nm	BHF + IPA	$4,7 \times 10^4$
6B	InP + GaP	100 °C, 7 nm	BHF + IPA	$9,5 \times 10^3$
9	InP	250 °C, 5 nm	<i>in situ</i> H ₂ S, 420 °C	$1,7 \times 10^4$
10	InP	250 °C, 5 nm	<i>in situ</i> H ₂ S, 150 °C	$3,9 \times 10^4$

Bei den reinen InP-Nanodrähten ohne spezielle Vorbehandlung weist der ALD-Prozess bei 100 °C die höhere Oberflächen-Qualität auf (Probe 4), im Vergleich zu

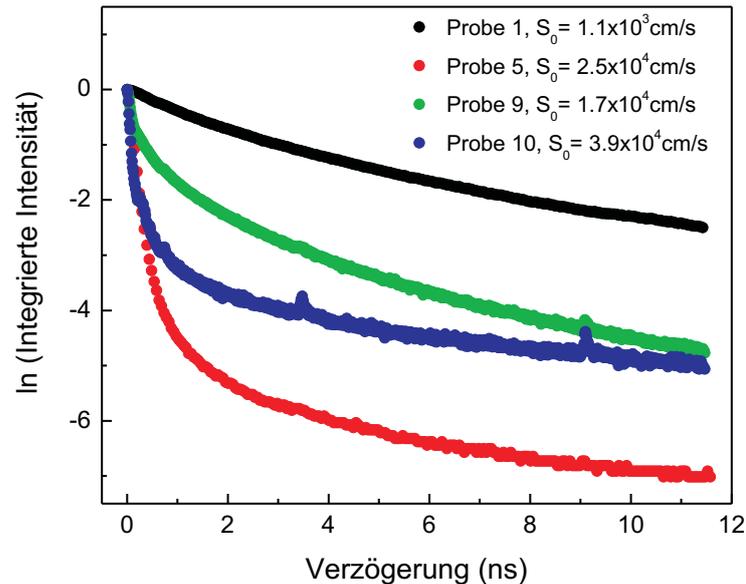


Abbildung 4.6: Abklingverhalten des PL-Signals für die Proben 1, 5, 9 und 10. Die über den gesamten Energiebereich integrierte Intensität ist über die Zeitverzögerung aufgetragen.

einer Prozesstemperatur von 250°C (Probe 2). Eine weitere Verbesserung (Probe 5) bringt ein einminütiger Ätzschritt in gepufferter Flußsäure-Lösung (BHF) und anschließendes Spülen in Isopropanol (IPA) als Vorbehandlung vor der eigentlichen ALD-Beschichtung. Die in dieser Reihe besten Ergebnisse im Bezug auf die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit liefern die InP-Drähte mit einer in der MOVPE-Kammer radial aufgewachsenen GaP-Hülle von nominell nur $0,3\text{ nm}$ Dicke, wobei auch hier eine ALD-Temperatur von 100°C eindeutig vorzuziehen ist (Probe 6B). Darüber hinaus ist auch ein *in situ* Ausheilungsschritt bei 420°C unter H_2S -Atmosphäre direkt nach dem Wachstum von großem Interesse (Probe 9). Die so erzielte Oberflächen-Qualität ist vermutlich der GaP-Umhüllung noch leicht überlegen, wobei dieser Vergleich leider nicht direkt gezogen werden kann, da keine H_2S -passivierten Nanodrähte mit einem ALD-Prozess bei 100°C zur Verfügung standen. Ein Vergleich der S -Werte von den Proben 9 und 6A stützt allerdings diese Vermutung.

Somit ist die *in situ* Ausheilung mittels H_2S neben der Umhüllung mit GaP die meist versprechende Passivierungsmethode. Allerdings besteht bei der epitaktischen Umhüllung auch noch großes Potenzial, sofern in Zukunft die Gitterfehlpassung mit Hilfe von Tertiärverbindungen verringert werden kann.

4.2 Oberflächenbeschichtete p-dotierte InP-Nanodrähte

Neben der Beschichtung von undotierten InP-Nanodrähten wurden auch p-dotierte Nanodrähte nach dem gleichen Muster behandelt. Die Nanodrähte sind dabei unter identischen Bedingungen gewachsen, natürlich mit Ausnahme der Zugabe von Dimethylzink (DMZn), um die gewünschte p-Dotierung zu erreichen. Im anschließenden ALD-Prozess wurde die Oberflächen-Behandlung dieser Proben 11 bis 14 analog den undotierten Proben 1 bis 4 durchgeführt (vgl. Tab. 3.1).

In Abb. 4.7 sind die spektral- und zeitaufgelösten Zerfallskurven der p-dotierten InP-Nanodrähten mit einem Durchmesser von 50 nm und verschiedenen HfO₂-Beschichtungen gezeigt. In der Falschfarben-Darstellung repräsentiert wieder rot eine hohe Intensität und blau eine niedrige Intensität des PL-Signals. Die Farbabstufung skaliert auch hier logarithmisch und die PL-Daten sind jeweils auf die maximale Intensität normiert, um einen direkten Vergleich zu ermöglichen.

Das PL-Signal der unbehandelten Referenzprobe 11 ist in Teilbild a) zu sehen. Direkt nach dem Laserpuls, also beim Zustand hoher Anregung bzw. großer Dichte der freien Ladungsträger, befindet sich das Maximum der Emission bei knapp 1,40 eV. Mit längerer Verzögerungszeit, d.h. sich veringender Dichte der optisch erzeugten Ladungsträger, verschiebt sich die Emission zu längeren Wellenlängen bis zu einer Energie von ungefähr 1,31 eV. Somit liegt die PL-Emission unterhalb der Bandlücke von InP in der Zinkblende-Struktur (ZB) bei 1,42 eV, was auf die Dotierung zurückzuführen ist. Wie in den Teilbildern b)-d) von Abb. 4.7 zu erkennen ist, weisen die HfO₂-beschichteten Nanodrähte im Vergleich zur unbehandelten Referenzprobe 11 wieder ein deutlich unterschiedliches Abklingverhalten auf. Augenscheinlich sind die Lebensdauern durch die Oberflächen-Beschichtung genauso wie bei den undotierten Proben stark verkürzt. Dies deutet auch für die dotierten Nanodrähte auf einen starken Einfluss des ALD-Prozesses auf die Oberflächen-Qualität, namentlich die Erzeugung von nichtstrahlenden Rekombinationszentren durch die HfO₂-Beschichtung, hin.

Insgesamt fällt auf, dass die Emission im Gegensatz zu den undotierten Proben aber nicht nur aufgrund der Dotierung bei kleineren Energien auftritt, sondern dass diese auch über den Messbereich von 12 ns viel stärker in der Energie verschiebt. Abb. 4.8 zeigt die Energieposition des Maximums der PL-Emission in Abhängigkeit der Verzögerungszeit nach dem Laserpuls. Die undotierten Nanodrähte emittieren hier anfänglich bei 1,47 eV und verschieben bis ungefähr 1,45 eV. Im Gegensatz dazu verschiebt das PL-Signal der p-dotierten Proben über einen Bereich von 90 meV, von ungefähr 1,40 eV bis 1,31 eV. Diese große Verschiebung lässt sich nicht mehr alleine durch die oben genannte Homostruktur der Nanodrähte [Pem09] mit einer Anordnung der Bänder zweiter Art erklären. Zur Interpretation dieses Sachverhalts wird im Folgenden zunächst der Begriff der Bandverbiegung eingeführt und darauf

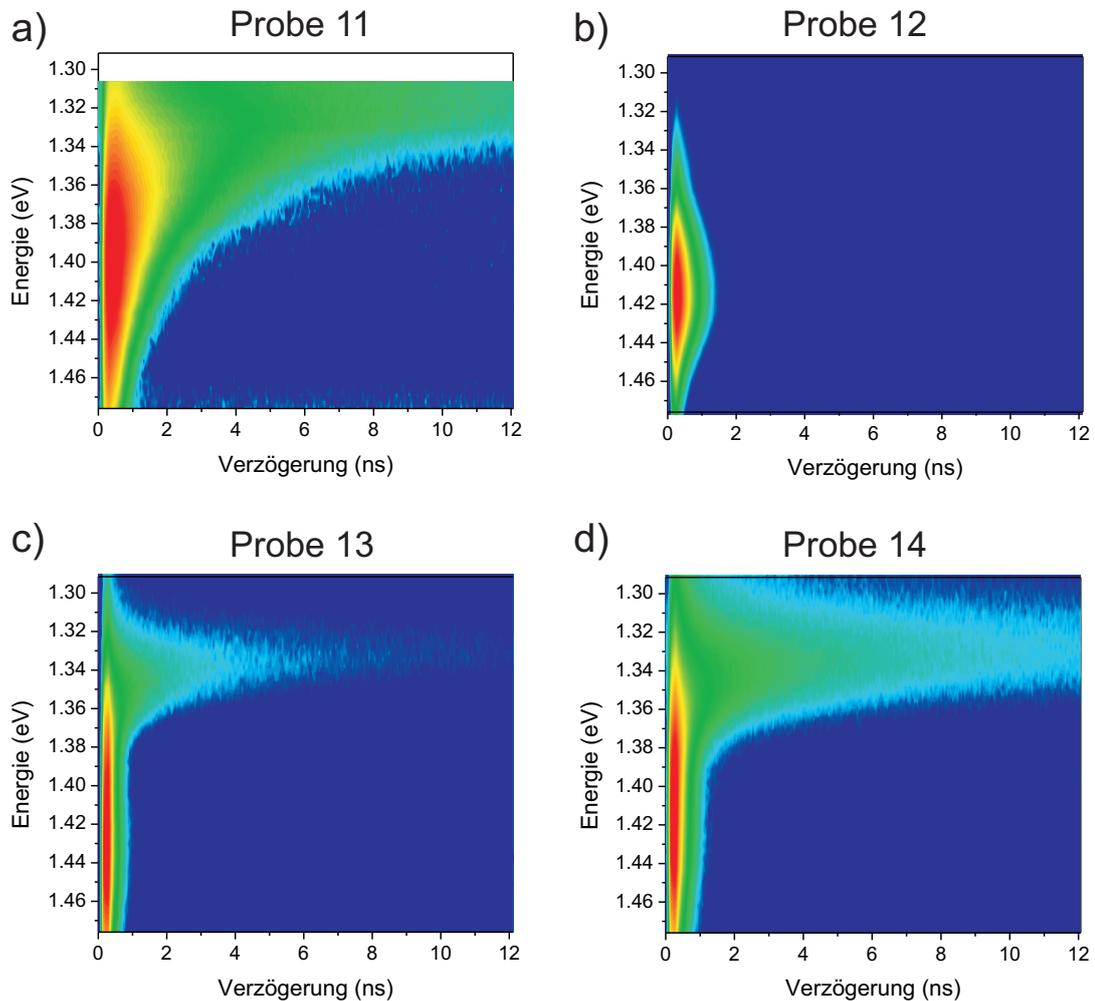


Abbildung 4.7: Zeitlicher Verlauf der PL-Emission von p-dotierten InP-Nanodrähten des Durchmessers 50 nm. a)-d) Falschfarben-Diagramme der PL-Intensität in Abhängigkeit von Verzögerungszeit nach dem Laserpuls und Energie für folgende Proben: 11 (unbehandelte Referenzprobe), 12 (5 nm HfO₂ bei 250 °C), 13 (15 nm HfO₂ bei 250 °C) und 14 (7 nm HfO₂ bei 100 °C).

aufbauend dann ein Modell vorgestellt, welches die Dynamik der Ladungsträger in Abhängigkeit des Anregungszustandes im Festkörper beschreibt. Daraus lässt sich die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit als Maß für die optische Qualität der Oberfläche des Nanodrahtes direkt ableiten.

4.2.1 Mikroskopische Vorgänge im Nanodraht nach optischer Anregung

Bereits im ersten Teil dieses Kapitels wurden sogenannte extrinsische Oberflächen-Zustände erwähnt, die energetisch inmitten der Bandlücke liegen und so nicht-strahlende Rekombination begünstigen. Darüberhinaus können diese Zustände ab ei-

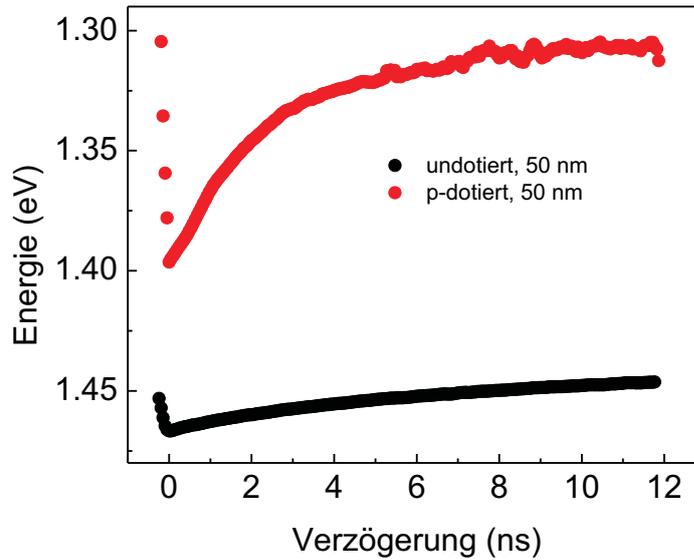


Abbildung 4.8: Zeitlicher Verlauf der Emissionsenergie von undotierten und p-dotierten InP-Nanodrähten des Durchmessers 50 nm ohne ALD-Beschichtung.

ner kritischen Oberflächen-Dichte von ungefähr 10^{11} cm^{-2} das Fermi-Niveau festsetzen [Yab89]. Wenn das Fermi-Niveau nun aber aufgrund der Oberflächen-Zustände am Rand festgesetzt ist, jedoch in der Mitte des Nanodrahtes seine Lage zwischen Leitungs- und Valenzband wie im ausgedehnten InP-Festkörper einnimmt, so ergibt sich eine Verbiegung der Bänder zum Rand hin. In n-dotierten Drähten sind die Bänder zum Rand hin nach oben [Cal05] und in p-dotierten Nanodrähten nach unten [Wee06] gebogen. Abb. 4.9 zeigt schematisch die Bandverbiegung (engl. *band-bending*) für einen p-dotierten Nanodraht in Abhängigkeit des Anregungszustandes. Teilbild a) stellt eine Momentaufnahme unmittelbar nach dem Laserpuls dar. Die sehr große Zahl der optisch erzeugten freien Ladungsträger schirmt die an den Oberflächen-Zuständen lokalisierten Ladungsträger ab. Bei ausreichender Laserleistung wird so der Fall flacher Bänder erreicht. Zu diesem Zeitpunkt ist das Gleichgewicht im Festkörper massiv gestört, so dass die Verteilung von Elektronen und Löchern über zwei separate Quasi-Fermi-niveaus $E_{F,n}$ bzw. $E_{F,p}$ beschrieben werden muss [Thu04].

Kurze Zeit nach Eintreffen des Pulses (Teilbild b)) vergrößert sich die Bandverbiegung, da Ladungsträger strahlend und nichtstrahlend rekombinieren und somit nicht mehr länger zur Abschirmung der Oberflächen-Ladungen beitragen können. Außerdem nähern sich $E_{F,n}$ und $E_{F,p}$ an, da das System in Richtung des Gleichgewichtszustands relaxiert.

In Teilbild c) ist die Situation bei geringer Ladungsträgerdichte lange nach dem Anregungspuls gezeigt. Das Fermi-niveau ist bei ungefähr 0.1 eV unterhalb der Lei-

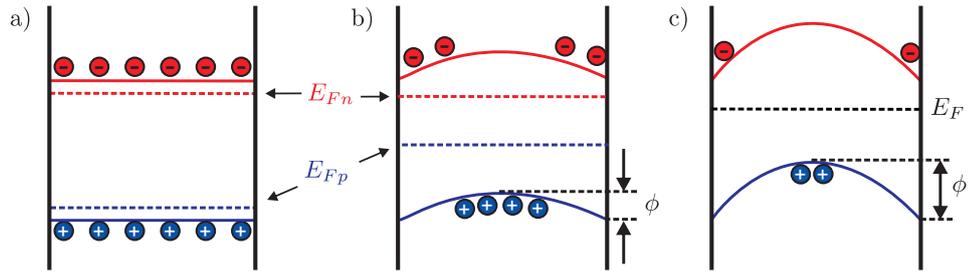


Abbildung 4.9: Bandverbiegung in einem p-dotierten Nanodraht in Abhängigkeit der Ladungsträgerdichte. a) Vom Laserpuls wird eine hohe Anzahl freier Ladungsträger erzeugt, die Verteilungen von Elektronen und Löchern werden durch Quasi-Fermi-niveaus $E_{F,n}$ bzw. $E_{F,p}$ beschrieben. Gezeigt ist der Flachbandfall für $\phi=0$. b) Kurze Zeit nach dem Laserpuls hat ein Teil der Ladungsträger rekombiniert, die Quasi-Fermi-niveaus gleichen sich an und die Bandverbiegung wird größer. c) Lange Zeit nach dem Laserpuls sind die verbliebenen Löcher und Elektronen räumlich getrennt, wodurch die Rekombinationsrate abnimmt. Es stellt sich ein Gleichgewicht ein, die Verteilung kann über eine gemeinsame Fermienergie E_F beschrieben werden.

tungsbandkante durch Oberflächen-Zustände festgesetzt [Spi79]. Dies führt besonders bei p-dotierten Nanodrähten zu einer starken Bandverbiegung, da sich die Fermienergien von p-dotiertem Draht (E_F nahe Valenzbandkante) und Oberfläche (E_F nahe Leitungsbandkante) im Gleichgewichtszustand angleichen müssen.

In dieser Situation sind die freien Ladungsträger aufgrund des sich aufbauenden elektrischen Feldes räumlich getrennt, was sich in einer geringeren strahlenden Rekombinationsrate aufgrund des kleineren räumlichen Überlapps der Wellenfunktionen äußert. Weiterhin ist die Emissionsenergie zu diesem Zeitpunkt rotverschoben, da der energetische Abstand zwischen Elektronen und Löchern im Fall der Bandverbiegung (c)) geringer ist als im Flachbandfall (a)).

Unabhängig von der Art der Dotierung stellt die Bandverbiegung eine Potentialbarriere für die jeweiligen Majoritätsladungsträger dar. Somit ist die Oberflächen-Rekombination im Zustand geringer Anregung erschwert. Quantitativ wird das wieder über die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit S beschrieben, die exponentiell von der Barrierenhöhe ϕ abhängt:

$$S = S_0 \cdot e^{-\frac{|\phi|}{k_B T}} \quad (4.2)$$

S_0 ist dabei die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit im Flachbandfall, d.h. für $\phi = 0$ bei hoher Anregung. $k_B T$ bezeichnet wie üblich die thermische Energie bei der Temperatur T .

Desweiteren ergibt sich aus der nichtlinearen Lösung der Poisson-Boltzmann-Gleichung [Yab87] folgende Abhängigkeit der Bandverbiegung ϕ von der Oberflächen-Ladungsdichte N und der Konzentration der freien Ladungsträger n :

$$\frac{2\pi N^2 e^2}{\epsilon k_B T} = n \left[e^{-\frac{|\phi|}{k_B T}} + e^{+\frac{|\phi|}{k_B T}} - 2 \right]. \quad (4.3)$$

Im Folgenden wird die linke Seite der Gleichung mit a abgekürzt. Das Auflösen dieser Gleichung nach der Bandverbiegung ϕ ergibt zwei Lösungen. Die physikalisch sinnvolle Lösung muss bei wachsender Ladungsträgerdichte eine Verringerung der Bandverbiegung zur Folge haben. Diese Lösung lautet:

$$\phi = k_B T \ln \left[\frac{a + 2n + \sqrt{a^2 + 4an}}{2n} \right]. \quad (4.4)$$

Insgesamt ergibt sich aus Gleichung (4.1), die die Dynamik der optisch erzeugten freien Ladungsträger n beschreibt, mit (4.2):

$$\frac{dn}{dt} = - \left[\frac{1}{\tau_{rad}} + \frac{2S_0 e^{-\frac{|\phi(n)|}{k_B T}}}{d} \right] n. \quad (4.5)$$

Dabei muss die Abhängigkeit der Bandverbiegung von der Ladungsträgerdichte nach Gl. (4.4) berücksichtigt werden. Aus diesem Grund ist die Gleichung nicht analytisch lösbar, weshalb das zeitliche Abklingverhalten der Ladungsträgerkonzentration bei den späteren Messungen mit Hilfe der Gleichungen (4.4) und (4.5) numerisch angepasst wird.

Die Abhängigkeit der optischen Qualität von der Oberflächen-Ladungsdichte N wird durch folgende Überlegungen deutlich: nach Gleichung (4.4) führt eine höhere Flächenladungsdichte N zu einer größeren Bandverbiegung ϕ , da in den Parameter a außer N nur Konstanten eingehen. Eine größere Bandverbiegung erschwert aber durch die behinderte Drift zur Oberfläche die Oberflächen-Rekombination und verringert somit die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit $S(\phi)$, was auch in Gleichung (4.2) zum Ausdruck kommt. Die höhere Dichte der Oberflächen-Zustände vergrößert also nach dieser Betrachtung die optischen Lebensdauern und damit die Oberflächen-Qualität, was zunächst paradox erscheint.

Tatsächlich wird jedoch durch die erhöhte Oberflächen-Ladungsdichte eine große Zahl an nicht-strahlenden Rekombinationszentren geschaffen, die besonders zu einem frühen Zeitpunkt nach dem Laserpuls, also bei hohem Anregungszustand, ein sehr starkes Abklingen der freien Ladungsträger hervorruft. Insgesamt betrachtet führt also eine große Dichte an Oberflächen-Ladungen trotzdem zu einer Verschlechterung der optischen Qualität. Aus diesem Grund wird als Maß für die Oberflächen-Qualität

der untersuchten Proben auch S_0 , die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit für den Fall flacher Bänder, herangezogen.

4.2.2 HfO₂-Beschichtung p-dotierter InP-Nanodrähte

Um aus den spektral- und zeitaufgelösten PL-Messungen mit Hilfe des eben eingeführten Modells quantitative Informationen über die Oberflächen-Qualität gewinnen zu können, wird zunächst wieder das gemessene PL-Signal über den gesamten Energiebereich integriert. Die so gewonnenen Zerfallskurven sind in Abb. 4.10 für die Proben 11 bis 14 dargestellt.

Wie schon aus Abb. 4.7 ersichtlich, klingt die PL-Emission der unbehandelten Referenzprobe 11 am langsamsten ab, die beschichteten Proben hingegen deutlich stärker. Genau wie bei den undotierten Proben hat die Oberflächen-Behandlung mit HfO₂ einen deutlich negativen Einfluss auf die optische Qualität der Nanodrähte. Neben den gemessenen Zerfallskurven ist auch exemplarisch für Probe 11 eine Anpassung nach dem oben eingeführten Modell gezeigt (türkise Kurve). Offensichtlich werden die Messdaten mit dem Modell gut reproduziert. Eine Anpassung der verbleibenden Proben führt auf die in Tabelle 4.3 aufgeführten Werte für die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit und die strahlende Lebensdauer τ_{rad} . Für die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit ist dabei die Größe S_0 für den Fall flacher Bänder angegeben.

Tabelle 4.3: Oberflächen-Rekombinations-Geschwindigkeit und strahlende Lebensdauer der Proben 11 bis 14.

Probe	S_0 (cm/s)	τ_{rad} (ns)
11	$(5,5 \pm 0,5) \times 10^3$	$9,0 \pm 0,3$
13	$(5,0 \pm 0,5) \times 10^4$	$10,0 \pm 0,3$
14	$(2,2 \pm 0,2) \times 10^4$	$10,0 \pm 0,3$

Leider können die Daten der Probe 12 nicht zum Vergleich herangezogen werden. Es wäre ein unnatürlich hoher Wert für die strahlende Lebensdauer nötig, um das Modell für größere Verzögerungszeiten einigermaßen an die Kurve anpassen zu können. Wie aus Abb. 4.7 und Abb. 4.10 hervorgeht, ist beim Experiment in diesem Bereich das PL-Signal tatsächlich schon auf das Niveau des Untergrundrauschens abgefallen, so dass eine Anpassung dieser Kurve generell nicht physikalisch sinnvoll erscheint.

Für die Proben 13 und 14 ergibt sich ein ähnliches Bild in Bezug auf den Einfluss der Oberflächen-Behandlung wie bei den undotierten Nanodrähten. Zum einen führt

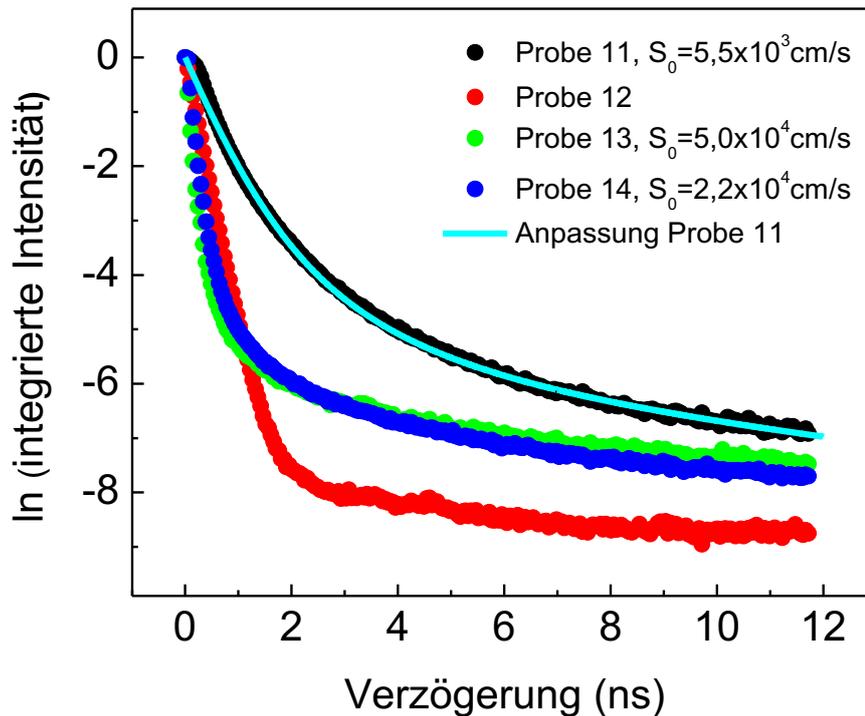


Abbildung 4.10: Abklingverhalten des PL-Signals für die Proben 11 bis 14. Die über den gesamten Energiebereich integrierte Intensität ist über die Zeitverzögerung aufgetragen. Die türkise Kurve zeigt exemplarisch die Anpassung nach dem neuen Modell für Probe 11.

die HfO_2 -Beschichtung wiederum zu einer Erhöhung der Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit um ungefähr eine Größenordnung. Zum zweiten weist die Probe mit 7 nm HfO_2 bei einer Prozesstemperatur von 100°C (Probe 14) einen nur halb so großen Wert von S_0 auf ($2,2 \times 10^4 \text{ cm/s}$) wie bei den ALD-Parametern 15 nm und 250°C ($5,0 \times 10^4 \text{ cm/s}$). Diese Beobachtung steht im Einklang mit den undotierten Proben 3 und 4 mit Werten der Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit von $2,1 \times 10^4 \text{ cm/s}$ bzw. $1,1 \times 10^4 \text{ cm/s}$.

Darüber hinaus fällt auf, dass bei vergleichbarem Einfluss der HfO_2 -Beschichtung die Werte der Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit bei den p-dotierten Nanodrähten durchweg höher liegen als bei den undotierten Proben. Dieser Sachverhalt ist ein realer physikalischer Effekt und liegt, wie im nächsten Abschnitt diskutiert, nicht etwa in der Methode der Messauswertung begründet. Eine Extraktion der Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit aus den Zerfallskurven nach der zu Beginn dieses Kapitels vorgestellten Methode, basierend auf der normierten Zeit-Ableitung der integrierten Intensität, liefert die identischen Werte wie in Tabelle 4.3. Der Einfluss der Dotierung auf die optische Qualität der Nanodrähte wird deshalb im Folgenden untersucht.

4.2.3 Einfluss der Dotierkonzentration

Bereits in einer früheren Messserie wurde die Dotierkonzentrationen beim Wachstum der Nanodrähte variiert. Dabei wurden drei verschiedene Dotierungen eingestellt. Erstens eine p-Dotierung mittels Zink, die der nominellen Störstellenkonzentration der oben genannten Proben entspricht. Zweitens eine 10-mal so hohe nominelle p-Dotierung und zum dritten eine marginale n-Dotierung durch Zugabe von Schwefel, deren nominelle Störstellenkonzentration einem relativen Faktor von 0,05 entspricht. Dies dient zum Ausgleich einer eventuell vorhandenen Hintergrunddotierung und bringt letztlich undotierte Nanodrähte hervor.

Die auf diese Weise hergestellten Proben sollten nur untereinander und nicht direkt mit den vorherigen verglichen werden, da sie aus einer anderen Serie stammen und somit gleiche Wachstumsparameter nicht gewährleistet sind. Dies wird schon alleine anhand der Energieposition des PL-Maximums offenbar, die sich stark von den vorhergehenden Nanodrähten unterscheidet. Die deutlich höhere Emissionsenergie lässt bei diesen Proben auf eine Dominanz der WZ-Struktur schließen.

In Abb. 4.11 ist das Abklingverhalten der über den relevanten Spektralbereich integrierten PL-Emission und die Verschiebung des Emissionsmaximums dargestellt. Daraus wird ersichtlich, dass die Dotierung einen signifikanten Einfluss auf die optische Qualität hat. Die faktisch undotierte Probe weist eine relativ lange Lebensdauer auf, die Emission der einfach p-dotierten Nanodrähte klingt deutlich schneller ab und die der stark dotierten Probe ist nach einer Verzögerung von weniger als 2 ns schon unterhalb des Signalniveaus des Hintergrundrauschens abgesunken.

Dies ist zum einen auf das Einbringen von nicht-strahlenden Rekombinationszentren in Form von Störstellen durch die Dotierung zurückzuführen [Ros03], steht darüber hinaus aber auch in Zusammenhang mit dem Effekt der Bandverbiegung. Je stärker die Dotierung, desto größer ist die Konzentration der abschirmenden Ladungen, die sich in Richtung der Oberfläche ansammeln. Dies führt zu einer stärkeren Verbiegung der Bänder und damit auch zu einer größeren räumlichen Trennung der Wellenfunktionen von Elektronen und Löchern. Dadurch wird eine effiziente Rekombination stark unterdrückt und somit das PL-Signal vermindert, teilweise sogar unter die Nachweisgrenze.

Diese Anschauung steht auch im Einklang mit der gemessenen Energieverschiebung aus Abb. 4.11b). Hier ist zu erkennen, dass die Emissionsenergie mit wachsender Verzögerung aufgrund der sich auswirkenden Bandverbiegung zu kleineren Energien schiebt. Dieser Effekt ist desto stärker ausgeprägt, je größer die Dotierung der Nanodrähte ist. Bei der höchsten Dotierung ist der Energieverlauf (blau) nur für kurze Verzögerungen gezeigt, da die Energieposition der PL-Emission danach aufgrund des schwachen Signals nicht mehr eindeutig zu extrahieren ist.

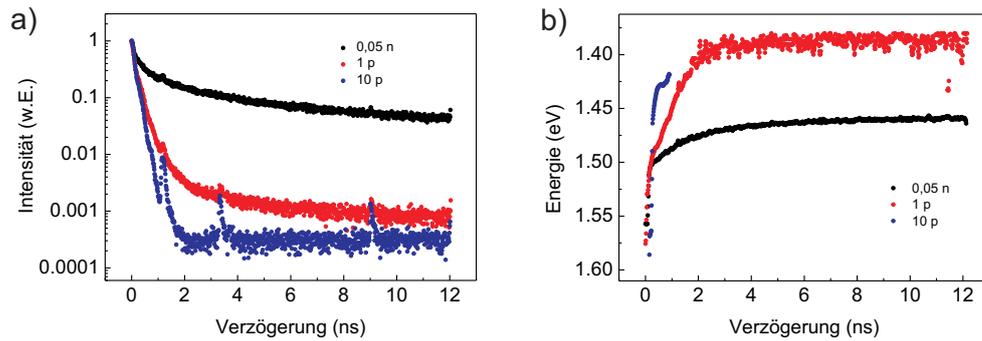


Abbildung 4.11: Zeitaufgelöste PL-Messungen für drei Proben mit verschiedener Dotierung. a) Abklingverhalten des PL-Signals. b) Verschiebung des Emissionsmaximums aufgetragen über die Verzögerung.

Insgesamt wird deutlich, dass die Dotierung einen nicht unerheblichen Einfluss auf die optische Qualität der Nanodrähte und somit letztlich auch auf die elektrischen Eigenschaften zukünftiger Bauteile hat. Dieser Sachverhalt muss deshalb bei Konzeption und Entwicklung von nanoelektronischen Anwendungen berücksichtigt werden.

5 PL-Untersuchungen an GaN-Nanodrähten

Neben den zeitaufgelösten PL-Messungen an InP-Proben wurden im Rahmen dieser Arbeit auch die optischen Eigenschaften von GaN-Nanodrähten untersucht, die mittels Molekularstrahlepitaxie (MBE) hergestellt worden sind. Diese Proben wurden sowohl mit Nickel-Katalysatoren als auch selbst-induziert auf Saphir- und Silizium-Substrat gewachsen. Unter Variation der Temperatur bei den zeitintegrierten PL-Messungen und mit Hilfe eines Diffusionsmodells konnte die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit bei diesen GaN-Nanodrähten bestimmt werden.

5.1 Motivation und Herstellung

Halbleiter-Nanodrähte haben sich in den letzten Jahren zu einem aktiven Forschungsgebiet entwickelt mit vielen potentiellen Einsatzbereichen in Sensorik, Elektronik und Optoelektronik. Dabei zeichnen sich besonders Kandidaten der Gruppe III-Nitride wegen ihrer großen Bandlücke als Bauteile der Optoelektronik im Bereich kleiner Wellenlängen oder in der Hochleistungs- und Hochtemperaturelektronik aus [Mor94].

Im Hinblick auf das selbstorganisierte Wachstum von GaN Nanodrähten existieren zwei grundlegend verschiedene Methoden: zum einen kann mit Hilfe von metallischen Katalysatoren (Ni, Fe, Au, ...) das eindimensionale Wachstum nach dem Vapor-Liquid-Solid Prinzip [Wag64] eingeleitet werden, wie bereits im vorherigen Kapitel bei InP-Nanodrähten beschrieben wurde. Obwohl hierbei die Strukturparameter wie z.B. der Durchmesser der entstehenden Drähte sehr gut kontrolliert werden können, weist diese Methode auch den gravierenden Nachteil der Verunreinigung des Materials durch Katalysatoratome auf. So bauen sich beispielsweise Goldatome als Störstellen in die Kristallstruktur mit ein [Oh08, Put08]. Der zweite Wachstumsmodus kommt ganz ohne metallische Katalysepartikel aus. Dabei wachsen die eindimensionalen Strukturen selbst-induziert durch ein Überangebot des Gruppe-V-Elements Stickstoff [Par04, Mei06, Gee07].

Bei den meisten Materialsystemen entstehen Nanodrähte nur bei einer der beiden Methoden, während im Fall von GaN sowohl selbst-induziertes als auch Katalysator-

induziertes Wachstum realisierbar ist. Dies eröffnet die Möglichkeit des direkten Vergleichs beider Wachstumsmodi, was von großem grundlegenden Interesse ist.

Im Unterschied zu den InP-Proben wurden diese Nanodrähte in einer MBE-Anlage gewachsen. Aufgrund der schnellen und präzisen Steuerung des Materialflusses bei dieser Epitaxie-Methode sind hochgenaue Schichtfolgen und höchste Kristallqualitäten realisierbar. Diese Vorteile gehen beispielsweise im Vergleich zur vorgenannten MOVPE-Technik zu Lasten des Durchsatzes, der aber bei wissenschaftlichen Anwendungen zweitrangig ist.

Für diese Untersuchungen wurden sechs verschiedene Proben gewachsen, deren Herstellungsparameter nochmals zusammenfassend in Tabelle 5.1 aufgeführt sind. Die Proben A-C wurden auf $\text{Al}_2\text{O}_3^1(0001)$, die Proben D und E auf Si(111) und Probe F auf Si(001) als Substrat gewachsen. Über eine Plasmaquelle, die bei Radiofrequenz operiert, wurde dabei reaktiver Stickstoff zur Verfügung gestellt. Bei den Proben A und B wurde zunächst *in situ* auf das Substrat eine 4 Å dicke Nickel-Schicht bei 710 °C bzw. 730 °C aufgebracht und anschließend bei der gleichen Temperatur das GaN gewachsen. Bei Probe C wurde *ex situ* eine 3 Å dicke Nickel-Schicht bei Raumtemperatur auf das Substrat aufgebracht und dann vor dem eigentlichen GaN-Wachstum bei 800 °C zuerst für 15 Minuten ein Ausheizschritt ebenfalls bei 800 °C eingeschoben.

Die Si(111)-Substrate wurden vor dem Wachstumsschritt mit einer Flusssäure-Lösung (HF) geätzt, wohingegen das Si(001)-Substrat nach der sog. RCA²-Prozedur gereinigt wurde [Geo11, Col11]. Bei allen drei Proben wurde nach dieser Oxid-Desorption eine Ausheilung in der Wachstumskammer über 15 Minuten bei einer Temperatur oberhalb 935 °C durchgeführt. Im Anschluss daran wurde die Temperatur auf 730 °C verringert und bei Probe E wurde noch eine 4 Å dicke Nickel-Schicht aufgebracht. Schließlich wurde auf alle drei Substrate GaN bei 730 °C gewachsen. Die abgeschiedene Menge an GaN entspräche dabei im Falle eines zweidimensionalen Wachstums einer Schichtdicke von 200 nm. Nähere Details zum Wachstumsprozess wurden von Geelhaar *et al.* [Gee07] beschrieben.

5.2 Makro-PL Untersuchungen

Die optischen Untersuchungen der GaN-Nanodrähte wurden an einem speziell dafür aufgebauten Messplatz durchgeführt, der in weiten Zügen dem in Kapitel 3.3 vorgestellten Aufbau entspricht, jedoch mit drei wesentlichen Unterschieden: erstens

1 allgemein als Saphir bezeichnet

2 benannt nach ihrer Entwicklung beim ehemaligen amerikanischen Elektronik-Konzern *Radio Corporation of America*

Tabelle 5.1: Probenübersicht der GaN-Nanodrähte

Probe	Substrat	Katalysator	Wachstumstemperatur
A	Al ₂ O ₃ (0001)	4 Å Ni	710 °C
B	Al ₂ O ₃ (0001)	4 Å Ni	730 °C
C	Al ₂ O ₃ (0001)	3 Å Ni	800 °C
D	Si (111)	–	730 °C
E	Si (111)	4 Å Ni	730 °C
F	Si (001)	–	730 °C

handelt es sich hierbei um keinen Mikro-PL-Messplatz, d.h. statt eines Mikroskopobjektivs wird eine Linse zum Einsammeln des von der Probe emittierten Lichts verwendet. Zweitens findet die optische Anregung von der Seite statt und außerdem ist die Optik des gesamten Messplatzes noch für den ultravioletten Spektralbereich optimiert.

Zunächst werden die Proben mit der 325 nm Linie eines HeCd-Laser im Dauerstrichmodus (cw) angeregt. Ein Interferenzfilter mit einer Halbwertsbreite von 1,5 nm ist vor dem Laser platziert, um störende Plasmalinen des gasförmigen Verstärkungsmediums zu unterdrücken. Der Laserstrahl wird mit Hilfe einer Linse der Brennweite 20 cm unter einem Winkel von ungefähr 30° in Bezug auf die Oberflächennormale auf die Probe fokussiert. Der Punkt des Lasers auf der Probe hat dabei einen Durchmesser von ungefähr 100 μm. Die Proben selbst sind senkrecht zur optischen Achse orientiert und befinden sich in einem Helium-Bad-Kryostaten, der mit Hilfe einer elektrischen Heizung und der Regelung des Helium-Abflusses Messungen zwischen nominell 4,2 K und Raumtemperatur erlaubt. Die PL-Emission wird über zwei weitere Linsen aus Quarzglas auf den Eintrittsspalt eines Spektrometers mit $f = 32$ cm fokussiert, durch ein Gitter mit 1800 Strichen/mm dispergiert und von einem für den ultravioletten Spektralbereich optimierten Si-CCD-Sensor detektiert.

Da die hier untersuchten Nanodrähte auf dem indirekten Halbleiter Silizium bzw. auf undotiertem Saphir gewachsen wurden, ist keine störende PL-Emission des Substrates zu erwarten und die Strukturen können deshalb direkt ohne eine Ablösung vom Substrat optisch untersucht werden.

5.2.1 Variation des Substrates und der Wachstumstemperatur

Zunächst wurden die mittels Ni-Katalysator auf Saphir gewachsenen Nanodrähte optisch untersucht. Abb. 5.1 zeigt die bei Tieftemperatur aufgenommenen PL-Spektren der GaN-Nanodrähte, die bei 710 °C, 730 °C und 800 °C (Proben A, B und

C) gewachsen wurden. Bei Probe A wird ein vergleichsweise schwaches PL-Signal gemessen, das von einer spektral breiten Emission um 3,3 eV dominiert wird. Diese wird bei GaN allgemein auf Donator-Akzeptor-Rekombinationen (DA) zurückgeführt [Rie96, Yoo06]. Im Spektrum sind zwei weitere, schärfere Linien sichtbar, nämlich bei 3,43 eV und bei 3,473 eV. Letztere ist für GaN aus der Literatur hinreichend bekannt und wird den an neutralen Donatoren gebundenen Exzitonen (D^0X) zugeschrieben [Cal00, Fur08].

Die andere Linie bei 3,43 eV ist möglicherweise auf den Einsatz von Ni als Katalysator zurückzuführen. Bei den später gezeigten Spektren der GaN-Nanodrähte, die ohne Ni auf Si-Substrat gewachsen sind, tritt diese Emission nicht auf. Von Yoo *et al.* [Yoo06] wurde bei Ni-katalysierten GaN-Nanodrähten ein Übergang bei 3,437 eV dem an Nickel gebundenen Exziton zugeschrieben. Andererseits ist diese Emission bei Probe E, die mit Ni auf Si gewachsen wurde, ebenfalls nicht sichtbar. Insofern ist die Linie bei 3,43 eV höchstwahrscheinlich auf Stapelfehler zurückzuführen, die vor allem durch den Einsatz des metallischen Katalysators auf Saphir-Substrat vermehrt auftreten. Der starke Einfluss der Wahl des Substrates auf die Kristallqualität von selbstinduziert bzw. Ni-induziert gewachsenen GaN-Nanodrähten soll im Rahmen dieser Arbeit nicht detailliert diskutiert werden, wurde allerdings intensiv untersucht und auch publiziert [Chè10]. Eine eindeutige Zuordnung der Linie bei 3,43 eV ist nicht möglich, allerdings bleibt festzustellen, dass Stapelfehler als strahlende Rekombinationszentren bekannt sind [Pas05, Res05], wohingegen eine direkte Identifizierung von Emissionslinien im Zusammenhang mit Ni-Kontamination bislang nicht erfolgt ist.

Die im Verhältnis zur Defekt-Emission vergleichsweise schwache Linie des Donator-gebundenen Exzitons bei Probe A offenbart eine schlechte Materialqualität, die bei der Wachstumstemperatur 710 °C erreicht wird. Wie aus Abb. 5.1 ersichtlich ist, verstärkt sich bei einer leicht erhöhten Wachstumstemperatur von 730 °C (Probe B) die gesamte PL-Intensität ungefähr um den Faktor 5, allerdings dominiert die Defekt-Emission bei 3,3 eV noch immer das Spektrum. Außerdem ist die scharfe Linie bei 3,473 eV des Donator-gebundenen Exzitons etwas stärker ausgeprägt. Der Ursprung einer zusätzlichen Linie bei einer Energie von 3,45 eV, die unter den hier untersuchten Proben nur bei Probe B erscheint, wird häufig mit dem Akzeptor-gebundenen Exziton in Zusammenhang gebracht [Res05], ist jedoch bislang noch nicht abschließend geklärt [Pfü10]. Eine noch höhere Wachstumstemperatur von 800 °C vermindert die Defekt-Emission noch weiter. In diesem Fall wird das Spektrum vom Donator-gebundenen Exziton bei 3,473 eV und von einer weiteren Linie bei 3,42 eV dominiert. Diese Emission steht im Zusammenhang mit Exzitonen, die an strukturelle Defekte bzw. Stapelfehler gebunden sind [Res05, Pas05]. Eine weitere Linie bei 3,39 eV, die nur bei Probe C auftritt, wird vermutlich durch Donator-

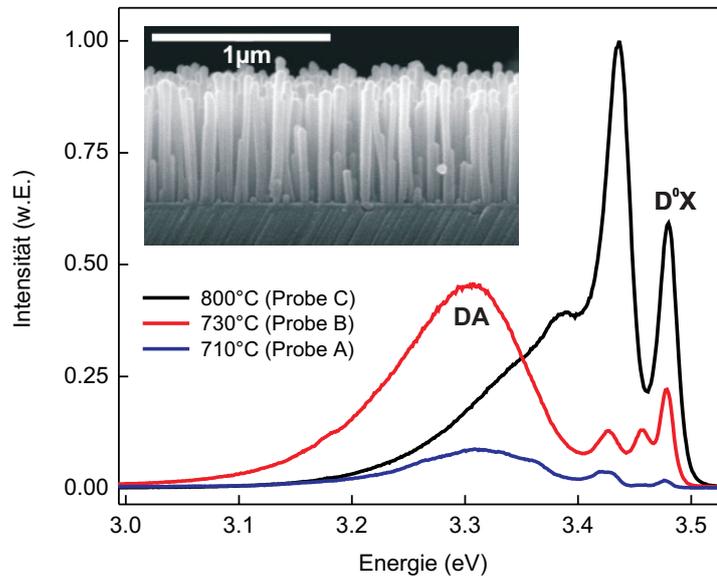


Abbildung 5.1: PL-Spektren aufgenommen bei 4K an GaN-Nanodrähten, die auf Saphir-Substrat mit Ni-Katalysator bei 710 °C, 730 °C und 800 °C (Proben A, B und C) gewachsen wurden. Kleines Bild: REM-Aufnahme von Probe C.

Akzeptor-Rekombination in Zusammenhang mit intrinsischen Defekten und Verunreinigungen des Kristalls verursacht [Rie96].

Im weiteren Verlauf wurden die GaN-Nanodrähte untersucht, die auf Si-Substrat mit verschiedenen Kristallorientierungen gewachsen sind. Abb. 5.2 zeigt Tieftemperspektren der Proben D (Si(111), ohne Katalysator), E (Si(111), mit Ni-Katalysator) und F (Si(001), ohne Katalysator). In allen Spektren sind hauptsächlich zwei Linien mit einem relativen Abstand von ungefähr 20 meV sichtbar. Die Emission bei 3,473 eV rührt wieder vom Donator-gebundenen Exziton (D^0X) her und die zweite Linie bei 3,45 eV ist charakteristisch für GaN-Nanodrähte auf Si-Substrat und wird auf einen Ga-Punktdefekt zurückgeführt [Cal00, Cal01]. Unterhalb von 3,40 eV sind keine ausgeprägten Linien mehr im Spektrum zu sehen, was auf eine höhere Kristallqualität und eine effiziente Unterdrückung von Defekten im Vergleich zum GaN-Wachstum auf Saphir hindeutet. Aus der Intensität des Donator-gebundenen Exzitons lässt sich ableiten, dass die besten GaN-Nanodrähte auf Si(111)-Substrat wachsen, was auch durch REM-Aufnahmen bestätigt werden konnte. Außerdem zeigt ein direkter Vergleich dieser beiden Proben (D und E), dass der Katalysator Ni nur geringen Einfluss auf die optischen Eigenschaften bei GaN-Nanodrähten auf Si(111)-Substrat hat.

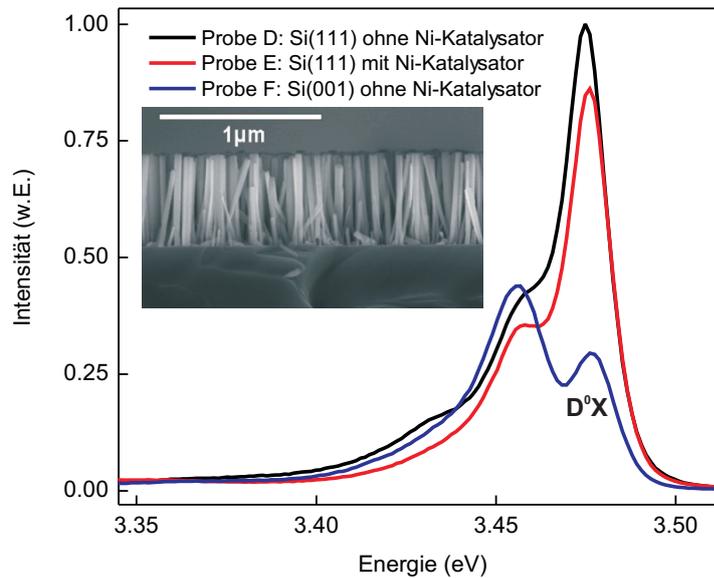


Abbildung 5.2: PL-Spektren aufgenommen bei 4 K an GaN-Nanodrähten, die auf Si-Substrat unter verschiedenen Bedingungen gewachsen wurden: Si(111), ohne Katalysator (Probe D), Si(111), mit Ni-Katalysator (Probe E) und Si(001), ohne Katalysator (Probe F). Kleines Bild: REM-Aufnahme von Probe D.

5.2.2 Temperaturabhängige PL-Messungen

Im Folgenden werden weitere Messungen vorgestellt, die die Temperaturabhängigkeit der Emissionsenergien und Intensitäten zum Ziel haben, woraus schließlich die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit abgeleitet werden kann. In Abb. 5.3 sind exemplarisch die unter Variation der Temperatur gemessenen Energiepositionen und Intensitäten von GaN-Nanodrähten auf Si(111)-Substrat (Probe D) dargestellt.

Wie aus dem oberen Teilbild hervorgeht, zeigt die Emissionsenergie oberhalb von 30 K eine deutliche Rotverschiebung mit wachsender Temperatur, was auch in einem ausgedehnten Festkörper erwartet würde. Diese Energieverschiebung ist auf eine Verringerung der Bandlücke mit steigender Temperatur zurückzuführen und wird in guter Näherung durch die empirische Formel von Varshni [Var67] beschrieben:

$$E_g(T) = E_g(0) - \frac{\alpha \cdot T^2}{T + \beta}. \quad (5.1)$$

Hier bezeichnet $E_g(T)$ die Emissionsenergie bei der Temperatur T und $E_g(0)$ die (extrapolierte) Bandlücke bei $T = 0$, entsprechend 3,479 eV für den Übergang des freien Exzitons [Res05]. Die Parameter α und β sind bekannt als Varshni Temperaturkoeffizient und Debye-Temperatur ($\beta=667$ K für GaN [Li97]). Eine Anpassung der experimentell ermittelten Emissionsenergien ergibt $\alpha = (4,0 \pm 0,4) \times 10^{-4}$ eV/K,

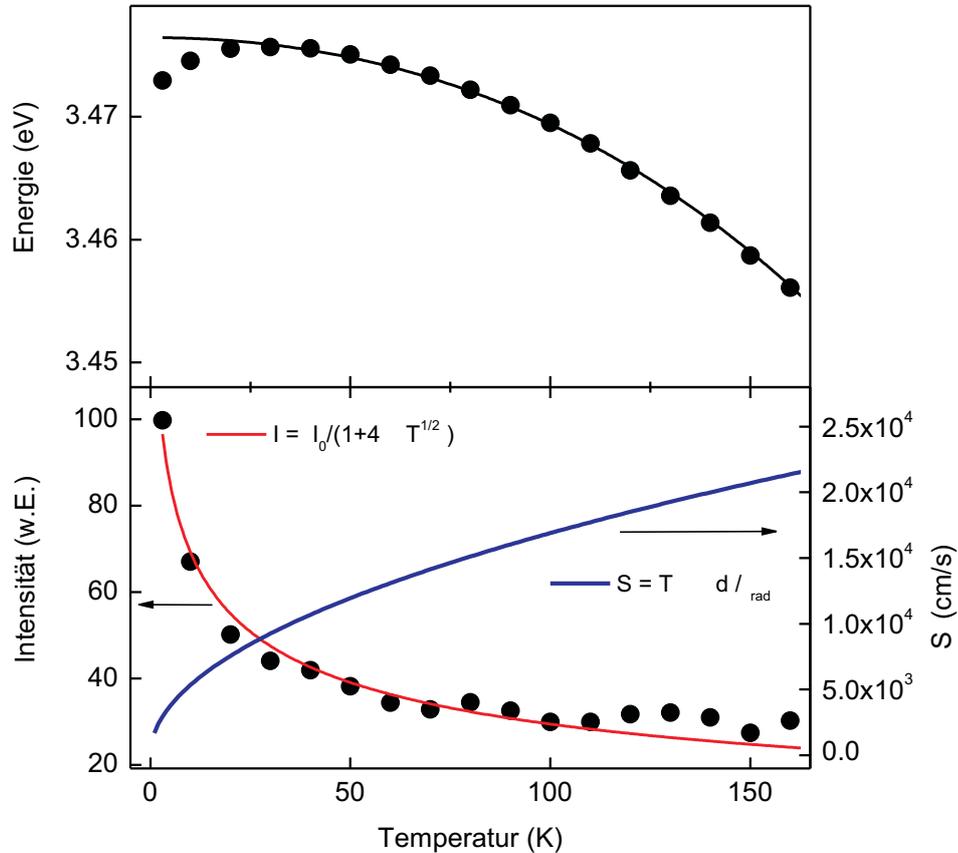


Abbildung 5.3: Temperaturabhängigkeit der Emissionsenergie mit Anpassung nach der Varshni-Formel (schwarze Linie) und der PL-Intensität von GaN-Nanodrähten gewachsen auf Si(111) ohne Ni-Katalysator (Probe D). Der Intensitätsverlauf wurde mit einem 2D-Diffusionsmodell (rot) angepasst und daraus die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit S abgeleitet (blau).

was gut mit dem Wert von $3,67 \times 10^{-4} \text{ eV/K}$ für eine GaN-Dünnschichtstruktur übereinstimmt [Pet95].

Im Gegensatz dazu, wird für Temperaturen unterhalb 30 K eine Blauverschiebung beobachtet, die aus dem Übergang vom gebundenen (3,473 eV) zum freien Exziton (3,479 eV) mit steigender Temperatur resultiert. Bezüglich der PL-Intensitäten führt dieser Übergang vom gebundenen zum freien Exziton zu einer Verringerung der integrierten Intensitäten. Dieser Einbruch der PL-Intensität mit wachsender Temperatur steht im Zusammenhang mit dem Einsetzen der Oberflächen-Rekombination. Mit ansteigender Temperatur verstärkt sich auch die Diffusion freier Exzitonen zur Oberfläche des Nanodrahtes. Dies führt wiederum zu einer vermehrten Besetzung von Oberflächen-Zuständen, die, wie bereits in Kapitel 4 diskutiert, bevorzugt über

nicht-strahlende Kanäle rekombinieren. Folglich tragen diese Exzitonen nicht mehr zum PL-Signal bei.

Dieser Vorgang kann über ein 2-dimensionales Diffusionsmodell beschrieben werden [Jac94]. Der Anteil der freien Ladungsträger, die nicht-strahlend an der Oberfläche rekombinieren, in Bezug auf die gesamte Anzahl der optisch erzeugten Ladungsträger hängt hierbei ab vom Verhältnis aus Umfang zur Fläche eines Querschnitts durch den Nanodraht. Unter Berücksichtigung dieser geometrischen Überlegungen ergibt sich die Quanteneffizienz der PL-Emission zu [Jac94]

$$\eta = 1 - \frac{4 \cdot j}{g \cdot d}. \quad (5.2)$$

Hier bezeichnet j den Diffusionsfluss zur Oberfläche, g die Erzeugungsrate der Ladungsträger und d den Durchmesser des Nanodrahtes. Um nun einen Ausdruck für den Diffusionsfluss zur Oberfläche ableiten zu können, muss die laterale Ladungsträgerverteilung bestimmt werden. Diese wiederum wird durch die 2-dimensionale inhomogene Diffusionsgleichung

$$D \cdot \Delta n - \frac{n}{\tau_{rad}} - \frac{n}{\tau_{nr}} = g \quad (5.3)$$

beschrieben. τ_{rad} und τ_{nr} stehen dabei für die strahlende bzw. nicht-strahlende Lebensdauer und D ist die Diffusionskonstante.

Die starke exzitonische und vergleichsweise schwache Defekt-Emission im Spektrum von Probe D bei niedrigen Temperaturen lässt vermuten, dass die nicht-strahlende Rekombination im inneren Bereich des Nanodrahtes stark unterdrückt ist. Aus diesem Grund wird in der weiteren Ableitung der dritte Term von Gleichung (5.3) vernachlässigt.

Der Diffusionsfluss j zur Oberfläche muss die Randbedingungen

$$D \frac{\partial n}{\partial r} \Big|_{r=d/2} = -j|_{r=d/2} = -S \cdot n|_{r=d/2}. \quad (5.4)$$

erfüllen, wobei S wieder die Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit ist.

Die Lösung von Gleichung (5.3) für das vorliegende zylindersymmetrische System führt auf eine radial verteilte Ladungsträgerkonzentration nach

$$n(r) = g\tau_{rad} + A \cdot K_0 \left(\frac{r}{L} \right). \quad (5.5)$$

Hierbei ist K_0 die modifizierte Besselfunktion nullter Ordnung und die Integrationskonstante wird durch die Randbedingungen bestimmt. Wenn nun Gleichung

(5.5) nach g aufgelöst und in (5.2) eingesetzt wird, so ergibt sich abschließend für die Quanteneffizienz

$$\eta = 1 - \frac{4S\tau_{rad}}{d} \cdot \frac{1}{1 + \frac{2S\tau_{rad}}{d} \frac{d}{2L} \frac{K_0(d/2L)}{K'_0(d/2L)}}. \quad (5.6)$$

Bei den hier untersuchten Proben mit Durchmessern der Nanodrähte im Bereich von 50-80 nm und einer deutlich größeren Diffusionslänge $L = \sqrt{D\tau_{rad}}$ von ungefähr 300 nm (bei 300 K) in GaN [Ale03] ist stets gewährleistet, dass $d/2L \leq 1$. Unter diesen Randbedingungen hängt die Quanteneffizienz nicht von der Diffusionslänge ab und kann deshalb angenähert werden als

$$\eta = \frac{1}{1 + 4S\tau_{rad}/d}. \quad (5.7)$$

In dieser Gleichung muss die experimentelle Temperaturabhängigkeit, die proportional zur Quanteneffizienz ist, wiedergegeben werden. Im Einklang mit der Literatur wird S als proportional zu $T^{1/2}$ angenommen [Mai90], während τ_{rad} nur eine schwache Temperaturabhängigkeit aufweist [Bun99]. Zur Ableitung der Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit wurden die Messdaten aus Abb. 5.3 mit

$$I(T) = \frac{I(0)}{1 + 4\beta T^{1/2}}. \quad (5.8)$$

angepasst, wobei die Intensität $I(0)$ bei $T = 0$ und β Anpassungsparameter sind und S gegeben ist durch $S = \beta d T^{1/2} / \tau_{rad}$. Eine gute Übereinstimmung mit den Messdaten wird für $I(0) = 185$ und $\beta = 0,13 \text{ K}^{-1/2}$. Damit kann S als Funktion der Temperatur berechnet werden für einen durchschnittlichen Durchmesser der Nanodrähte von 65 nm und unter der Annahme $\tau_{rad} = 0,5 \text{ ns}$ [Bun99]. Die sich daraus ergebende Temperaturabhängigkeit der Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit ist im unteren Teilbild von Abb. 5.3 dargestellt. Die temperaturabhängige Oberflächen-Rekombinationsgeschwindigkeit liegt in der Größenordnung von 10^4 cm/s und hat einen extrapolierten Wert von $(3,0 \pm 0,4) \times 10^4 \text{ cm/s}$ bei 300 K. Dies ist vergleichbar mit $S = 5 \times 10^4 \text{ cm/s}$, was für undotierte GaN-Schichtstrukturen veröffentlicht ist [Ale03]. An dieser Stelle bleibt zu bemerken, dass der so gewonnene Wert als grobe Abschätzung verstanden werden muss, da τ_{rad} nicht direkt gemessen werden kann. Dennoch zeigt die hier vorgestellte Vorgehensweise einen Weg auf, wie auch ohne die Verfügbarkeit von zeitaufgelösten PL-Daten Informationen über dynamische Vorgänge wie die Oberflächen-Rekombination gesammelt werden können.

Teil II

Quantenoptik in Mikroresonatoren

6 Theoretische Grundlagen

Systeme mit reduzierter Dimensionalität sind für verschiedenste Bereiche der physikalischen Grundlagenforschung von großem Interesse. Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Strukturen ermöglichen einen räumlichen Einschluss in zweierlei Hinsicht. Zum einen erfahren die Ladungsträger (Elektronen und Löcher) einen dreidimensionalen Einschluss in den Quantenpunkten aufgrund der Bandkanten-Diskontinuität zwischen InGaAs-Quantenpunkt und der umgebenden GaAs-Matrix. Zum zweiten stellen die verwendeten Mikropillar-Kavitäten einen dreidimensionalen photonischen Einschluss durch die Variation des Brechungsindex dar. In longitudinaler Richtung wird das durch eine periodische Schichtvariation von AlAs und GaAs, die sogenannten Bragg-Spiegel (DBR¹), erreicht. In transversaler Richtung stellt der Übergang vom Halbleitermaterial zum umgebenden Medium (Luft bzw. Vakuum) einen Brechungsindex-Sprung dar.

6.1 Halbleiter-Quantenpunkte

Der Einschluss der Ladungsträger im Quantenpunkt entspricht in einem vereinfachten Modell dem quantenmechanischen Problem des Teilchens in einem endlichen Potentialtopf. Als Resultat ergibt sich die Ausbildung diskreter Energieniveaus für Elektronen und Löcher. Deshalb werden Quantenpunkte häufig auch als künstliche Atome bezeichnet.

Die Voraussetzung für das Auftreten solcher Quantisierungseffekte ist eine Einschränkung der Bewegung der Ladungsträger auf eine genügend kleine Länge in einer oder auch mehreren Dimensionen. Diese Länge muss dabei in der Größenordnung der de Broglie-Wellenlänge λ_{dB} liegen, welche sich aus der effektiven Masse m^* und der Temperatur T ergibt:

$$\lambda_{dB} = \frac{h}{p} = \frac{h}{\sqrt{3m^*k_B T}} = \frac{1,24 \text{ nm}}{\sqrt{E_{kin}[\text{eV}]}} \quad (6.1)$$

Die effektive Masse m^* wird dabei eingeführt, um der Wechselwirkung der Elektronen mit dem periodischen Potential der Gitterionen Rechnung zu tragen. Eine

¹ Akronym für *Distributed Bragg Reflector*

weitere wichtige Größe ist die elektronische Zustandsdichte. Sie gibt die Anzahl der möglichen Zustände pro Energieintervall an und hängt entscheidend von etwaigen räumlichen Einschränkungen ab.

Elektronische Zustandsdichte

In einem ausgedehnten Festkörper mit dem Volumen V ist die Bewegung der Ladungsträger in keiner Raumrichtung eingeschränkt. Folglich können die Ladungsträger durch ebene Wellen beschrieben werden und ihre Energie ε ist mit dem Wellenvektor \mathbf{k} über die Dispersionsrelation $\varepsilon = \hbar^2 \mathbf{k}^2 / (2m^*)$ verknüpft. Hierbei kann k nur diskrete Werte annehmen, welche im k -Raum innerhalb einer Kugel mit Radius k gelegen sind. Da jeder Zustand im k -Raum das Volumen $(2\pi)^3/V$ einnimmt, lässt sich die Anzahl der Zustände $n_{3D}(E)$ mit einer Energie $\varepsilon < E$ berechnen, indem man das Kugelvolumen durch $(2\pi)^3/V$ dividiert. Daraus erhält man für die auf das Volumen normierte Anzahl der Zustände $N_{3D}(E) = n_{3D}(E)/V$:

$$N_{3D}(E) = \frac{k^3}{3\pi^2} = \frac{(2m^*E)^{3/2}}{3\pi^2\hbar^3}. \quad (6.2)$$

Damit ergibt sich für die dreidimensionale Zustandsdichte $D_{3D}(E) = \frac{dN_{3D}(E)}{dE}$:

$$D_{3D}(E) = \frac{m^* \sqrt{2m^*E}}{\pi^2 \hbar^3} \propto \sqrt{E}. \quad (6.3)$$

Die Zustandsdichte eines freien Ladungsträgersystems ist also proportional zu \sqrt{E} . Falls die Ladungsträger nun in einer Dimension eingeschränkt werden und sich folglich nur noch in einer Ebene frei bewegen können, berechnet sich die Zustandsdichte analog zum vorherigen Fall. Für das zweidimensionale System, einen sogenannten Quantenfilm, liegen die Wellenvektoren jedoch innerhalb eines Kreises im zweidimensionalen k -Raum. Aus diesem Grund ist die Anzahl der Zustände proportional zur Energie E und es ergibt sich für jedes Subband eine konstante Zustandsdichte:

$$D_{2D}(E) = \frac{m^*}{\pi \hbar^2}. \quad (6.4)$$

Wird die Bewegung der Ladungsträger in einer weiteren Raumrichtung eingeschränkt, wie beim Quantendraht, so ergibt sich für das eindimensionale Ladungsträgersystem nach analoger Rechnung:

$$D_{1D}(E) = \frac{1}{\pi \hbar} \sqrt{\frac{2m^*}{E}}. \quad (6.5)$$

In einem solchen System treten Singularitäten in der Zustandsdichte auf, sobald ein neues Subband besetzt wird. Bei einer weiteren räumlichen Einschränkung gelangt man zu dem nulldimensionalen Ladungsträgersystem, wie den in dieser Arbeit

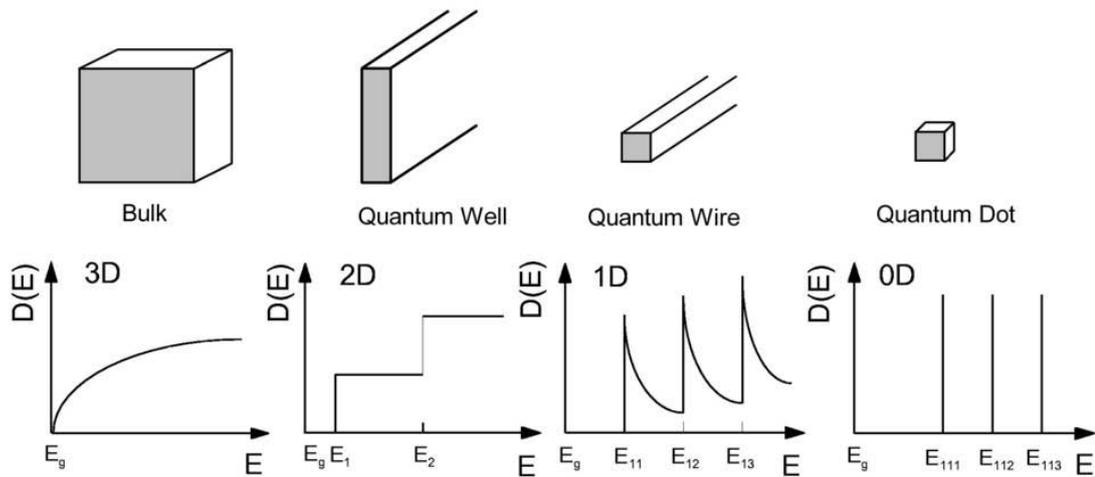


Abbildung 6.1: Zustandsdichte in Abhängigkeit der Dimensionalität des Einschusses der Ladungsträger. Von links nach rechts: Volumenmaterial, Quantenfilm, Quantendraht, Quantenpunkt.

untersuchten Quantenpunkten. Die Bewegung der Ladungsträger ist hierbei in jeder Raumrichtung quantisiert und im Gegensatz zu den bisher behandelten mehrdimensionalen Systemen zeigen Quantenpunkte deshalb kein kontinuierliches, sondern ein diskretes Energiespektrum mit den Energieeigenwerten E_i . Die Zustandsdichte wird demzufolge mit δ -Funktionen beschrieben:

$$D_{0D}(E) = \sum_i \delta(E - E_i). \quad (6.6)$$

Zusammenfassend ist in Abb. 6.1 noch einmal die Zustandsdichte in Abhängigkeit der Energie für die verschiedenen Systeme dargestellt.

Emissionsspektren von Quantenpunkten

Die absolute Lage der Energieniveaus wird neben der Größe der Bandlücke von weiteren Faktoren beeinflusst. Zusätzlich zur Quantisierung durch die geometrische Einschränkung der Ladungsträger in den verwendeten Nanostrukturen treten noch Niveaushiftungen durch Verspannung und durch Coulombwechselwirkung auf. Aufgrund der δ -förmigen Zustandsdichte eines Quantenpunktes erwartet man ein Spektrum mit einzelnen scharfen Linien für jeden erlaubten Übergang. In der Realität rührt jede Spektrallinie allerdings von einer gedämpften Dipolschwingung her, die quantenmechanisch als gedämpfter harmonischer Oszillator beschrieben wird. Im Spektrum werden deshalb Linien in Form von Lorentzkurven sichtbar mit endlicher Halbwertsbreite. Man unterscheidet dabei die homogene Linienbreite und verschiedene Einflüsse, die zu einer inhomogenen Verbreiterung führen. Die homogene

Linienbreite ergibt sich aus der Heisenberg'schen Energie-Zeit-Unschärfe mit der strahlenden Lebensdauer τ zu:

$$\gamma_x \approx \frac{\hbar}{\tau}. \quad (6.7)$$

Damit erhält man für eine typische Lebensdauer von $\tau = 300$ ps eine Linienbreite von lediglich $\gamma_x \approx 2,2 \mu\text{eV}$ (vgl. auch [Bay02]). In diesem Zusammenhang sind als weitere Mechanismen der Linienverbreiterung die Wechselwirkung des Exzitons mit anderen Ladungsträgern und der Einfluss geladener Quantenpunkte zu nennen.

Darüber hinaus besitzt in einem Ensemble jeder einzelne Quantenpunkt leicht unterschiedliche Eigenschaften, wie Größe, Form und Verspannung. Dadurch ergeben sich verschiedene Emissionsenergien, die in Übereinstimmung mit der statistischen Streuung dieser Eigenschaften näherungsweise Gauß-verteilt sind. In Abb. 6.2 ist das Spektrum einer bis zur aktiven Schicht abgeätzten planaren Resonatorprobe mit $\text{In}_{0,30}\text{Ga}_{0,70}\text{As}$ -Quantenpunkten dargestellt. Zu erkennen ist zum einen die Gauß-förmige Emission des Quantenpunkt-Ensembles. Außerdem ist in rot die angenommene Lage der Resonatormode für eine nicht-geätzte Probe angedeutet. Beim Wachstum der Strukturen wird die relative Lage der Resonatormode zum Ensemble so eingestellt, dass nur wenige Quantenpunkte spektral in der Nähe liegen und so im Experiment gezielt in Resonanz gebracht werden können.

Oszillatorstärke von Exzitonen

Der Zustand der Anregung und die anschließende Relaxation, verbunden mit der Emission von Licht manifestiert sich in einem Quantenpunkt in Form von Exzitonen. Dieses Konzept, Elektron-Loch-Paare als Quasiteilchen aufzufassen, wurde bereits im ersten Teil dieser Arbeit über Halbleiter-Nanodrähte eingeführt. Trotz der Analogie mit dem Wasserstoffatom besitzt ein Wannier-Exziton aufgrund der kleinen effektiven Masse des Elektrons und des umgebenden dielektrisch wirkenden Halbleitermaterials einen deutlich größeren Bohrradius und eine viel kleinere Bindungsenergie als ein Wasserstoffatom (≈ 3 Größenordnungen geringer). Durch die große Ausdehnung der Exziton-Wellenfunktion über viele Gitterperioden im Kristall addiert sich die Dipolstärke vieler Atome zur Oszillatorstärke des Exzitons auf. Die Oszillatorstärke als dimensionslose Größe ist definiert als das Verhältnis aus der strahlenden Rekombinationsrate des Emitters im homogenen Medium und der Emissionsrate eines klassischen harmonischen Oszillators. Nach Andreani *et al.* [And99] lässt sich die Oszillatorstärke f in Abhängigkeit der Materialparameter explizit angeben als

$$f = \frac{2m\omega_0 d^2}{e^2 \hbar}. \quad (6.8)$$

Hier bezeichnet d das Dipolmoment des Exzitons, das direkt mit der Ausdehnung des Elektron-Loch-Paares zusammenhängt. Im Gegensatz zu atomaren Übergängen, bei denen die Oszillatorstärke nur diskrete Werte annehmen kann, abhängig vom je-

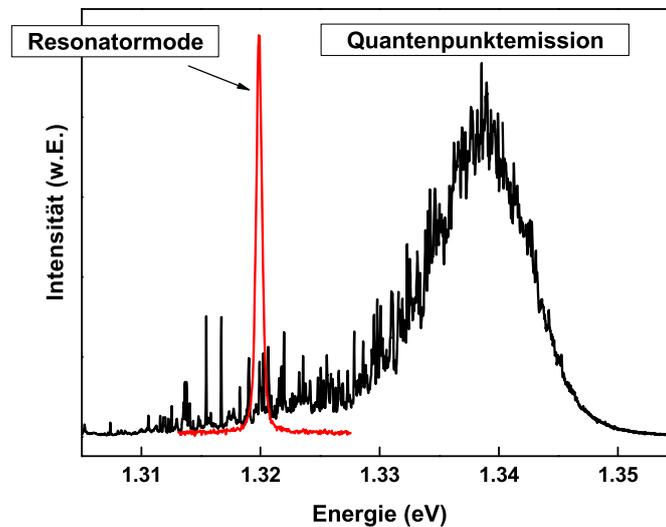


Abbildung 6.2: PL-Spektrum einer bis zur aktiven Schicht abgeätzten Probe mit $\text{In}_{0,30}\text{Ga}_{0,70}\text{As}$ -Quantenpunkten (schwarz). Resonatormode einer planaren, unstrukturierten Probe (rot).

weiligen Atom und seinem elektrostatischen Potential, steigt die Oszillatorstärke hier bei einer größeren Flächenausdehnung der Wellenfunktionen kontinuierlich an [Joh08]. Besonders entscheidend für hohe Oszillatorstärken ist ein möglichst großer räumlicher Überlapp der Wellenfunktionen von Elektron und Loch. Entgegen der Intuition weisen größere Quantenpunkte einen besseren Ladungsträgereinschluss¹ und damit ein größeres Überlapp-Integral auf als kleinere Quantenpunkte. Im Einzelnen ist das auf den unterschiedlich starken Einfluss des Einschlusspotentials auf Elektron- und (Schwer-)Lochwellenfunktion zurückzuführen, was wiederum aus den verschiedenen effektiven Massen resultiert [Joh08]. Damit besitzen lateral ausgedehnte Quantenpunkte höhere Oszillatorstärken und eignen sich somit besonders für die im Folgenden präsentierten Experimente zur starken Kopplung. Darüber hinaus wird in [Sto11] mathematisch gezeigt, dass für eine große Oszillatorstärke sich nicht unbedingt Elektron und Loch am gleichen Ort befinden müssen, sondern vielmehr der Überlapp der Einhüllenden der Wellenfunktionen groß sein muss. Anschaulich ausgedrückt beschreibt das Exziton somit eine quantisierte Schwerpunktsbewegung im lateral ausgedehnten Quantenpunkt [Sto10].

¹ engl. *carrier confinement*

Exzitonische Feinstruktur

Da die Rekombination des Exzitons der Erhaltung von Energie und Drehimpuls unterworfen ist, gibt die Polarisation der emittierten Photonen direkt den Spinzustand des Exzitons wieder. Dieser Spinzustand ergibt sich aus der Bandstruktur des Halbleiters, die wiederum von den Atomorbitalen s , p_x , p_y und p_z herrührt. Daraus entstehen ein Leitungsband und drei Valenzbänder. Für verschwindende Wechselwirkung wären die drei Lochbänder bei $k = 0$ entartet, allerdings wird durch die Spin-Bahn-Kopplung ein Valenzband energetisch um etwa 1meV abgespalten (engl. *Split-off-Band*). Die beiden verbleibenden Valenzbänder erfahren verschiedene Wechselwirkungen mit dem Kristallgitter. Dies äußert sich in einer effektiven Masse, die von der zweiten Ableitung, also der Krümmung der Dispersionsrelation im k -Raum abhängt:

$$m_{eff} \propto \left(\frac{\partial E(k)^2}{\partial^2 k} \right)^{-1}. \quad (6.9)$$

Aufgrund dieser Relation werden die beiden unterschiedlich gekrümmten Bänder als Schwerloch- bzw. Leichtlochband bezeichnet. Abb. 6.3 zeigt eine vereinfachte Bandstruktur eines direkten Halbleiters, wobei noch die z -Komponente des Drehimpulses $\mathbf{j} = \mathbf{l} + \mathbf{s}$ angegeben ist. Ein Elektron im s-artigen Leitungsband (Bahndrehimpulsquantenzahl $l = 0$) besitzt den Spin $\mathbf{s}_e = \frac{1}{2}$, wobei die Projektion in z -Richtung die Werte $s_{e,z} = \pm \frac{1}{2}$ annimmt. Demgegenüber entsteht das Valenzband aus den p-Orbitalen mit $l = 1$, woraus sich der Gesamtdrehimpuls $j_h = \frac{3}{2}$ ergibt; die z -Komponente ist also $j_{h,z} = \pm \frac{1}{2}, \pm \frac{3}{2}$. Dabei bilden Lochzustände mit $j_{h,z} = \pm \frac{1}{2}$ das Leichtlochband¹, während Löcher mit $j_{h,z} = \pm \frac{3}{2}$ das Valenzband mit schwächerer Krümmung besetzen und folglich schwere Löcher² genannt werden.

Aus der Kombination eines schweren Loches mit einem Elektron ergibt sich für das entstehende Exziton also $j_z = \pm 1, \pm 2$. Da bei der Rekombination Drehimpuls- und Energieerhaltung erfüllt sein müssen und Photonen den Drehimpuls \hbar haben, können nur Exzitonen mit $j_z = \pm 1$ strahlend rekombinieren. Sie werden daher als helle Exzitonen bezeichnet. Im Gegensatz dazu sind Exzitonen mit $j_z = \pm 2$ optisch nicht aktiv und heißen deshalb dunkle Exzitonen.

In rotationssymmetrischen Quantenpunkten sind die hellen Exzitonen mit $j_z = \pm 1$ entartet. Durch eine äußere Wechselwirkung, wie z.B. ein Magnetfeld in z -Richtung, wird diese Spinentartung aufgehoben. Dieser sogenannte Zeeman-Effekt äußert sich im Spektrum dann in einer Aufspaltung ΔE_z der Rekombinationslinie eines hellen Exzitons in ein Dublett mit

$$\Delta E_z = g_L \mu_B B. \quad (6.10)$$

1 *lh* von engl. *light-hole*

2 *hh* von engl. *heavy-hole*

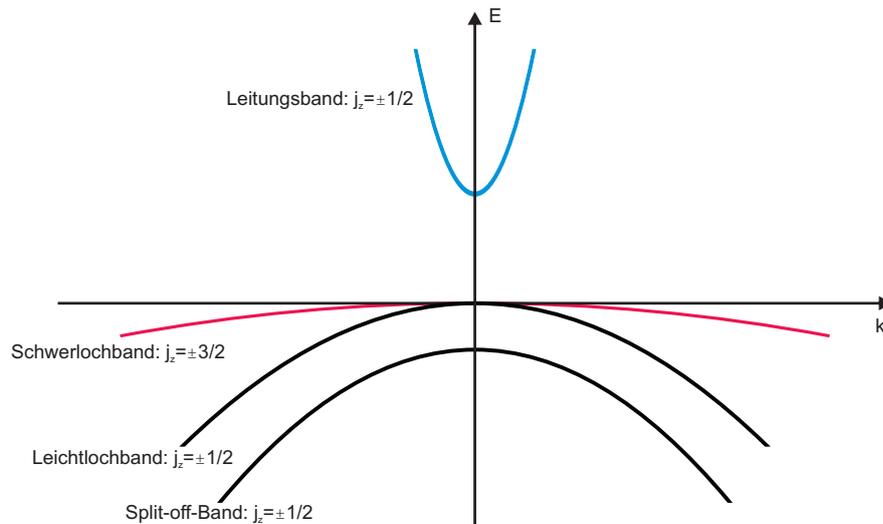


Abbildung 6.3: Vereinfachte Bandstruktur eines direkten Halbleiters. Neben der Bezeichnung des jeweiligen Bandes ist zusätzlich noch die z -Komponente des Drehimpulses $\mathbf{j} = \mathbf{l} + \mathbf{s}$ angegeben. Die strahlende Rekombination des Exzitons findet ausschließlich über die farblich markierten Bänder statt.

Dabei ist μ_B das Bohrsche Magneton und g_L der Landésche g -Faktor des Exzitons. Entsprechend den Auswahlregeln für optische Übergänge aus der Atomphysik führt die Rekombination aus den Zuständen $j_z = \pm 1$ zu links- bzw. rechts-zirkular polarisiertem Licht, das gemeinhin mit σ_- bzw. σ_+ bezeichnet wird. Abb. 6.4 zeigt zusammenfassend die Aufhebung der energetischen Entartung in symmetrischen Quantenpunkten durch den Zeeman-Effekt sowie die zugehörigen Polarisationsverhältnisse bei der Rekombination.

6.2 Mikroresonatoren

Neben dem dreidimensionalen Einschluss der Ladungsträger in den Quantenpunkten stellen die in dieser Arbeit verwendeten Strukturen auch einen starken Einschluss für das elektromagnetische Feld dar. Aus den resultierenden Quantisierungseffekten ergeben sich wichtige Konsequenzen für die erlaubten photonischen Zustände und damit für das emittierte Licht.

Photonische Zustandsdichte

Im Volumenmaterial ohne jeglichen photonischen Einschluss können elektromagnetische Wellen frei propagieren und die Zustandsdichte hängt quadratisch von der Energie ab [Yam00]. In Abb. 6.5 ist die photonische Zustandsdichte in Abhängigkeit der Dimensionalität des optischen Einschlusses dargestellt.

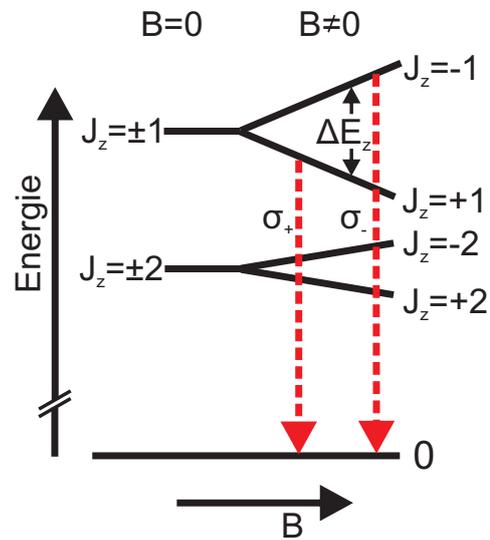


Abbildung 6.4: Feinstruktur der exzitonenischen Energieniveaus in rotationssymmetrischen Quantenpunkten unter Auslassung der leichten Löcher. Im Magnetfeld spalten die Niveaus der hellen Exzitonen (σ_- - und σ_+ - Übergänge) auf.

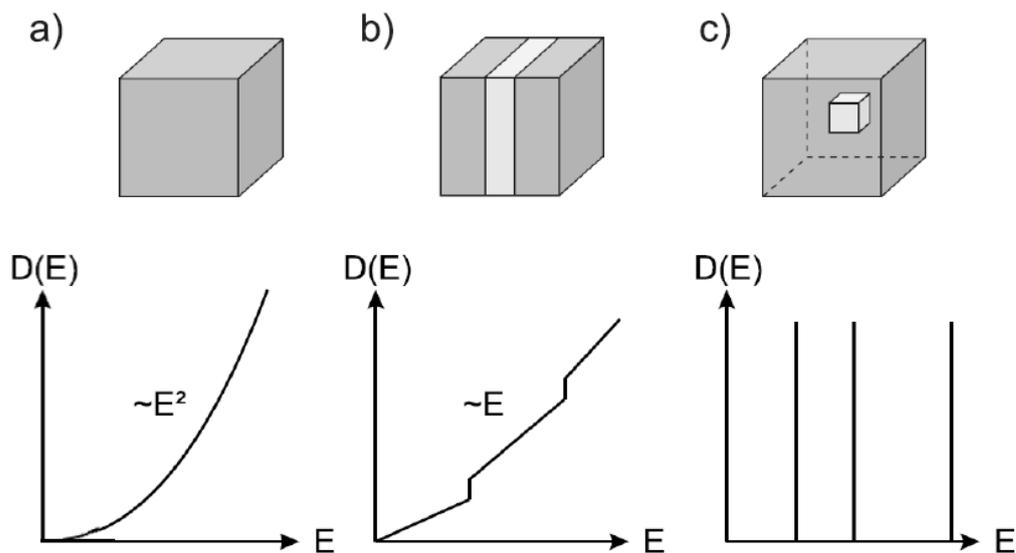


Abbildung 6.5: Photonische Zustandsdichte in Abhängigkeit der Dimensionalität des photonischen Einschlusses.

Ein planarer Fabry-Perot Mikroresonator besitzt einen eindimensionalen optischen Einschluss. In diesem Fall ergibt sich ein linearer Zusammenhang zwischen Zustandsdichte und Energie, da das Feld senkrecht zu den Spiegeln quantisiert ist und Moden ausbildet, lateral sich jedoch ein Kontinuum ausbilden kann. Für den dreidimensionalen optischen Einschluss ergibt sich eine δ -förmige Zustandsdichte der Moden.

Die im Folgenden untersuchten Mikropillar-Resonatoren stellen eine Abweichung von dieser idealisierten Situation dar, weil durch die geringere Reflektivität von ungefähr 30% [Löf08] am Halbleiter-Vakuum-Übergang der laterale Einschluss schwächer als der in axialer Richtung ist. Es werden aber dennoch räumlich lokalisierte Moden entlang des Mikropillars beobachtet. Bei zirkularen Strukturen bilden sich darüber hinaus unter Umständen noch sogenannte *Whispering Gallery Modes* (WGM) in lateraler Orientierung aus [Jaf10, Alb10], die aber in dieser Arbeit keine Rolle spielen sollen. Auf den genauen Aufbau der verwendeten Mikropillars wird später noch detailliert eingegangen.

6.3 Licht-Materie Wechselwirkung in Mikroresonatoren

In der Quantenoptik stellt ein Quantenemitter in einem dreidimensionalen Resonator das ultimative System dar [And99], anhand dessen grundlegende Effekte der Licht-Materie-Wechselwirkung untersucht werden können. Dies sind z.B. Verstärkung/Unterdrückung der spontanen Emission im Bereich der schwachen Kopplung, die Rabi-Aufspaltung bei der starken Kopplung, oder auch Quanteneffekte wie Einzelphotonenemission oder die Verschränkung von Photonen. Auf die physikalischen Grundlagen der Quantenelektrodynamik in Resonatoren (cQED) soll im Folgenden eingegangen werden.

Bei schwacher Anregung stellen Quantenpunkte ein nahezu ideales 2-Niveau-System dar. Je nach Größe der Kopplungsstärke zwischen diesem Quantenemitter und dem elektromagnetischen Feld im Mikroresonator, die von den Verlustmechanismen im System abhängt, unterscheidet man zwei Regime der Kopplung: die schwache und die starke Kopplung. Betrachtet wird zunächst ein Quantenpunkt, der den Grundzustand $|g\rangle$ und den angeregten Zustand $|e\rangle$ einnehmen kann, und das Feld im Resonator, welches mit keinem $|0\rangle$ bzw. mit einem Photon $|1\rangle$ besetzt sein kann. Das System ist in Abb. 6.6 skizziert. Der Resonator ist durch die optische Güte $Q = E_C/\gamma_c$ charakterisiert, wobei E_C die Resonanzenergie und γ_c die Linienbreite des Resonators sind. Wenn sich nun der Quantenpunkt anfangs im angeregten Zustand befindet, so wird er nach der Zeit $\tau_X = \hbar/\gamma_x$ durch die spontane Emission eines Photons in den Grundzustand relaxieren. Hier bezeichnet γ_x die homogene Linienbreite des Exzitons. Für genügend hohe Resonatorgüten ($Q \rightarrow \infty$) hält sich

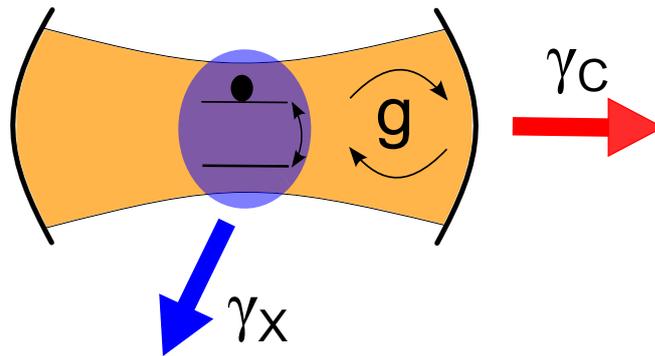


Abbildung 6.6: Prinzip der cQED: Ein 2-Niveau-Emitter in einer Kavität der Güte Q . Kopplungsfaktor g , Linienbreite der Kavität γ_c und des Emitters γ_x .

das emittierte Photon so lange im Resonator auf, dass es wieder vom Quantenpunkt reabsorbiert wird und so fort. In diesem Fall wird die spontane Emission zum reversiblen Prozess und es kommt zu einer quantenmechanischen Verschränkung zwischen den beiden Basiszuständen $|e,0\rangle$ und $|g,1\rangle$. Dieser kohärente Energieaustausch zwischen dem Emitter und dem Vakuumfeld der Resonatormode wird als Vakuum-Rabi-Oszillation bezeichnet und ist ein charakteristischer Hinweis auf das Regime der starken Kopplung. In der Realität weisen Resonatoren aber einen endlichen Gütefaktor auf, sodass die Vakuum-Rabi-Oszillation gedämpft verläuft. Für Mikroresonatoren mit geringeren Q -Faktoren wird die Verlustrate so groß, dass das Photon die Kavität verlässt, bevor es vom Quantenpunkt reabsorbiert werden kann. In diesem Fall kommt es nicht zu einem reversiblen Prozess des Energieaustauschs und das System befindet sich im Bereich der schwachen Kopplung. Im Folgenden sollen diese beiden Regime und besonders die starke Kopplung näher erläutert werden.

6.3.1 Regime der schwachen Kopplung

Bei Resonatoren von geringer Güte ist die spontane Emission durch die starke Dämpfung ein irreversibler Prozess, so dass sich keine Vakuum-Rabi-Oszillation ausbilden kann. Dennoch hat der Resonator einen großen Einfluss auf die spektrale Modenverteilung und damit auf das Emissionsverhalten des Quantenpunktes. Nach Fermis Goldener Regel

$$1/\tau = \frac{4\pi}{\hbar} \rho(\omega_0) |\langle \mathbf{d} \cdot \mathbf{f}(r_0) \rangle|^2 \quad (6.11)$$

ist die Übergangsrate der spontanen Emission $\Gamma = 1/\tau$ direkt proportional zur Modendichte $\rho(\omega_0)$ bei der Übergangsfrequenz ω_0 [Gér98]. Dabei ist $|\langle \mathbf{d} \cdot \mathbf{f}(r_0) \rangle|$ das Dipolmatrixelement des betreffenden Übergangs. Daraus folgt, dass die spontane Emission für einen Emitter, dessen Übergangsfrequenz im freien Spektralbereich

des Resonators liegt, stark unterdrückt werden kann. Die Lebensdauer des angeregten Zustands ist dann deutlich größer als im Vakuum bzw. im ausgedehnten Festkörper. Im Umkehrschluss bedeutet das, falls die Emission in Resonanz mit einer optischen Mode der Kavität liegt, wird die spontane Emission deutlich überhört und die Lebensdauer gegenüber dem Vakuum bzw. dem dreidimensionalen Festkörper ist verkürzt. Dieses Verhalten wird nach [Pur46] als Purcell-Effekt bezeichnet. Das Verhältnis der Lebensdauern des Emitters im Resonator τ_{cav} und im Vakuum τ_{vac} ist ein Maß für die Unterdrückung bzw. Verstärkung der Übergangsrate und wird als Purcell-Faktor F_P bezeichnet. Dieser ergibt sich in unendlich ausgedehnten Festkörpern mit dem Brechungsindex n zu [Sol01, Gay01]:

$$F_P = \frac{3}{4\pi^2} \left(\frac{\lambda}{n}\right)^3 \frac{Q}{V_m} \quad (6.12)$$

Dabei ist V_m das effektive Modenvolumen in der Kavität. Im Hinblick auf Anwendungen wird dieser Effekt etwa zur Realisierung effizienter Einzelphotonenquellen ausgenutzt [Hei10a]. Ein weiteres Beispiel ist ein sogenannter schwellenloser Laser, bei dem möglichst die gesamte spontane Emission in eine Lasermode gekoppelt wird [Rei06a, Rei09a]. Da die schwache Kopplung aber für die späteren Experimente keine explizite Rolle spielt, soll hier auf den Purcell-Effekt nicht weiter eingegangen werden.

6.3.2 Regime der starken Kopplung

Für Resonatoren mit genügend hohem Q-Faktor ist die Dämpfung vernachlässigbar und das System lässt sich mit Hilfe des Jaynes-Cummings-Modells für zwei gekoppelte quantenmechanische Oszillatoren beschreiben. Der Quantenemitter mit dem Grundzustand $|g\rangle$ und dem angeregten Zustand $|e\rangle$ ist resonant an die Kavitätsmode mit den Zuständen $|n\rangle$ (mit $n = 0, 1, \dots$) gekoppelt. Für den zugehörigen Hamiltonoperator ergibt sich [And99]:

$$\hat{H} = \hbar\omega_0\hat{\sigma}_3 + \hbar\omega_0 \left(\hat{a}^\dagger\hat{a} + \frac{1}{2}\right) + ig \left(\hat{\sigma}_-\hat{a}^\dagger - \hat{\sigma}_+\hat{a}\right). \quad (6.13)$$

Hier sind $\hat{\sigma}_+$, $\hat{\sigma}_-$ und $\hat{\sigma}_3$ Pseudospinoperatoren des Emitters mit der Übergangsfrequenz ω_0 und \hat{a}^\dagger sowie \hat{a} die Erzeugungs- bzw. Vernichtungsoperatoren eines Photons in der Resonatormode ω_0 . Als Spektrum dieses Hamiltonoperators ergibt sich der Grundzustand $|g,0\rangle$ und höhere Dubletts $|e,n\rangle, |g,n+1\rangle$ ($n = 0, 1, \dots$), die als gekoppelte Zustände um $\Delta E = 2g\sqrt{n+1}$ aufgespalten sind. Aufgrund dieser Struktur wird das Energiespektrum als Jaynes-Cummings-Leiter bezeichnet. Die Kopplungskonstante der Wechselwirkung zwischen Quantenpunkt und Kavität ist gegeben

durch $g = |\langle \mathbf{d} \cdot \mathbf{f}(\mathbf{r}_0) \rangle|$, aus dem Dipolmoment \mathbf{d} des Emitters und dem elektrischen Feld $\mathbf{f}(\mathbf{r}_0)$ am Ort des Emitters \mathbf{r}_0 . Mittels der Definition der Oszillatorstärke aus (6.8) ergibt sich für die Kopplungskonstante (für $f(\mathbf{r}_0) = f_{max}$):

$$g = \left(\frac{\hbar^2 \pi e^2}{4\pi \epsilon m_0} \frac{f}{V_m} \right)^{\frac{1}{2}}. \quad (6.14)$$

Dabei ist V_m wieder das effektive Modenvolumen im Resonator, m_0 die Masse des freien Elektrons und ϵ die materialspezifische Dielektrizitätskonstante.

Im real untersuchten Quantenpunkt-Mikropillar-System herrscht aber eine endliche Dämpfung vor, wodurch das Jaynes-Cummings-Modell, das keine dissipativen Verluste beinhaltet, die Situation nicht mehr ausreichend wiedergibt. Im Fall geringer Dämpfung gelingt eine angemessene Beschreibung über eine Mastergleichung für die Dichtematrix des oben verwendeten Hamiltonoperators. Aus dieser Mastergleichung ergeben sich die Eigenenergien des Systems in Resonanz [And99, Rei04]:

$$E_{\pm} = E_0 - i \frac{\gamma_c + \gamma_x}{4} \pm \sqrt{g^2 - \left(\frac{\gamma_c - \gamma_x}{4} \right)^2}. \quad (6.15)$$

Hier ist E_0 die Energie des ungekoppelten Systems, sowie γ_c und γ_x wieder die Linienbreite des Resonators bzw. die homogene Linienbreite des Exzitons. Wie aus Gleichung (6.15) ersichtlich, hängt es vom Vorzeichen des Ausdrucks unter der Wurzel ab, ob eine Vakuum-Rabi-Aufspaltung auftritt, sich das System also im Regime der starken Kopplung befindet. Bei negativem Vorzeichen wird der Wurzelterm imaginär, der Realteil der Eigenenergien E_{\pm} ist somit entartet und im Experiment wird nur eine Emissionslinie beobachtet. Das Kriterium für die starke Kopplung ist also

$$g > \frac{|\gamma_c - \gamma_x|}{4} \approx \frac{\gamma_c}{4}, \quad (6.16)$$

Die Näherung ist im hier vorliegenden System in der Regel gerechtfertigt, da die homogene Linienbreite eines Quantenpunkt-Exzitons typischerweise um eine Größenordnung kleiner ist als die Halbwertsbreite der Resonatormode [Bay02]. Wenn das obige Kriterium erfüllt ist, sind die Eigenenergien aufgrund der starken Emitter-Photon-Kopplung in Resonanz um

$$\Delta E_{Rabi} = 2 \sqrt{g^2 - \left(\frac{\gamma_c - \gamma_x}{4} \right)^2} \quad (6.17)$$

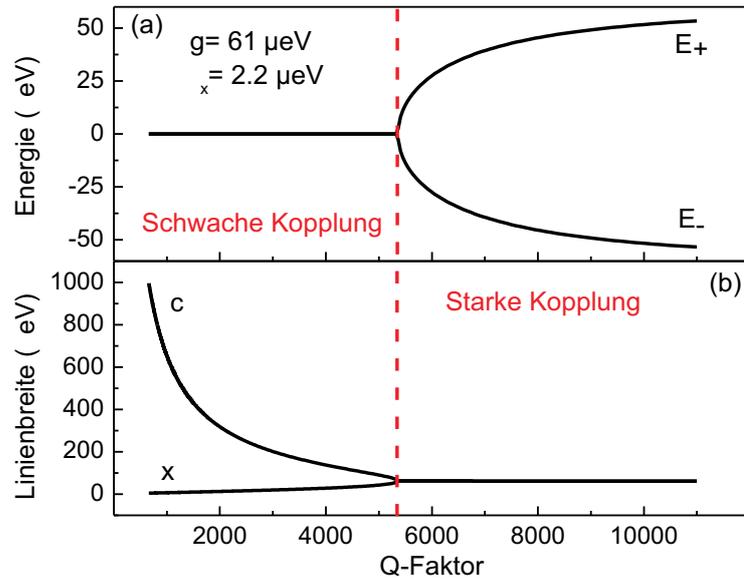


Abbildung 6.7: Übergang von schwacher zu starker Kopplung in Abhängigkeit des Q-Faktors. Entsprechend den Ergebnissen aus dieser Arbeit wurde für die Berechnung $\gamma_x = 2,2 \mu eV$ [Bay02] und $g = 61 \mu eV$ herangezogen. a) Relative energetische Lage der Exziton- und der Resonatormode. b) Linienbreiten der beiden Moden.

aufgespalten. Dies wird allgemein als Vakuum-Rabi-Aufspaltung (VRS¹) bezeichnet. Aus der Bedingung (6.16) folgt mit Gleichung (6.14), dass für das Erreichen des Regimes der starken Kopplung der Ausdruck $Q\sqrt{f/V_m}$ maximiert werden muss. Aus technologischer Sicht gilt es deshalb, das Verhältnis Q/d_C zu optimieren, da das Modenvolumen näherungsweise mit dem Quadrat des Mikropillar-Durchmessers d_C skaliert. Darüberhinaus sollte die Oszillatorstärke der Quantenpunkte möglichst groß sein.

Im Folgenden wird nun explizit der Einfluss des Q-Faktors für das Vorliegen von schwacher bzw. starker Kopplung untersucht, wobei $\sqrt{f/V_m}$ konstant gehalten wird. Da der Q-Faktor indirekt proportional zur Linienbreite der Kavitätsmode ist, können mit Hilfe des Realteils von Gleichung (6.15) die Energieeigenwerte des Systems in Abhängigkeit des Q-Faktors dargestellt werden (siehe Abb. 6.7a). Entsprechend den Ergebnissen aus den nachfolgenden Kapiteln wurde hier für die Kopplungsstärke $g = 61 \mu eV$ und für die homogene Linienbreite des Exzitons $\gamma_x = 2,2 \mu eV$ angenommen.

Im Bereich der schwachen Kopplung für $Q < 5300$ ist der Radikand in Gleichung (6.15) negativ, der Wurzelausdruck somit imaginär, und es wird noch keine Aufspaltung in zwei Emissionsenergien beobachtet. Mit steigendem Q-Faktor bzw. sich verringernder Linienbreite der Resonatormode γ_c wird der Radikand jedoch posi-

¹ Akronym für *Vacuum-Rabi-Splitting*

tiv und es kommt zu einer Aufspaltung in die Energieeigenwerte E_+ und E_- . Die Differenz entspricht dabei der Vakuum-Rabi-Aufspaltung ΔE_{Rabi} .

Über den Imaginärteil von Gleichung (6.15) können die Linienbreiten von Kavitäts- und Exzitonenmode in Abhängigkeit des Q-Faktors berechnet werden. Diese sind in Abb. 6.7b dargestellt. Im Bereich der schwachen Kopplung ist die Linienbreite der Kavität noch deutlich größer als die homogene Linienbreite des Exzitons. Mit steigender Resonatorgüte gleichen sich die beiden Linienbreiten immer mehr einander an, bis sie im Bereich der starken Kopplung (ab ungefähr $Q > 5300$) identisch sind. In dieser Situation sind die Zustände ununterscheidbar und es findet ein reversibler Energieaustausch zwischen der exzitonischen und der photonischen Mode statt.

7 Probenaufbau und Messtechnik

In diesem Kapitel soll näher auf die technologischen Grundlagen der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente eingegangen werden. Zunächst werden Aufbau und Herstellungsprozess der untersuchten Resonatoren skizziert. Anschließend sollen die angewandten Messmethoden der zeitintegrierten und zeitaufgelösten Magneto-Photolumineszenz-Spektroskopie erläutert werden.

7.1 Mikroresonatoren auf GaAs/AlAs-Basis

Um den dreidimensionalen optischen Einschluss des emittierten Lichts zu realisieren werden geätzte Mikropillarstrukturen mit nominell kreisrundem Querschnitt verwendet, die mit Hilfe von zwei dielektrischen Interferenz-Spiegeln die Photonen möglichst lange im Resonator lokalisieren. Zwischen diesen Spiegeln befindet sich die eigentliche Kavität mit der aktiven Schicht, die InGaAs-Quantenpunkte als Quantenemitter enthält (siehe auch REM-Aufnahme in Abb. 7.1).

7.1.1 Resonatorstruktur

Zunächst soll auf die beiden dielektrischen Spiegel eingegangen werden. Jeder dieser Interferenzspiegel setzt sich aus alternierenden Schichten von AlAs und GaAs zusammen, die jeweils die Dicke $\frac{\lambda_C}{4n_i}$ besitzen. Dabei sind λ_C die Resonanzwellenlänge des Resonators und n_i die Brechungsindizes von AlAs bzw. GaAs (wobei $n_{AlAs} \neq n_{GaAs}$). Durch die derart gewählte Dicke und den Phasensprung um π am optisch dichteren Medium ergibt sich konstruktive Interferenz in Reflexionsrichtung. Dabei wird an den einzelnen Spiegelpaaren zwar jeweils nur ein geringer Teil des einfallenden Lichtstrahls reflektiert, aus der großen Zahl m der Schichtpaare resultiert aber dennoch eine Reflektivität nahe 1 für den gesamten Spiegel [Li03]:

$$\sqrt{R} = \frac{n_0 - \left(\frac{n_{AlAs}}{n_{GaAs}}\right)^{2m}}{n_0 + \left(\frac{n_{AlAs}}{n_{GaAs}}\right)^{2m}}, \quad (7.1)$$

wobei für den unteren Spiegel $n_0 = n_{GaAs}$ und für den oberen Spiegel $n_0 = 1$ gilt - entsprechend den Übergängen von Resonator zu GaAs-Substrat und Resonator zu Vakuum.

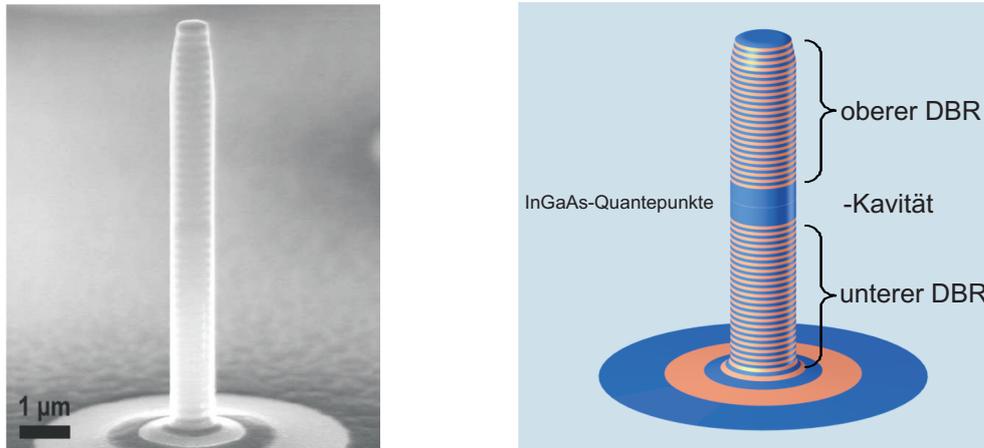


Abbildung 7.1: links: REM-Aufnahme eines prozessierten Mikropillars. rechts: 3D-Modell. Zwischen den beiden DBR-Spiegeln ist die Kavität mit den Quantenpunkten zu erkennen.

Aus diesem Umstand ergibt sich auch der Begriff der verteilten Reflexion im Bezug auf die sogenannten DBRs¹. Der untere, direkt an das Substrat anschließende Bragg-Spiegel besteht aus 27, der obere nur aus 23 Spiegelpaaren. Daher weist der obere Spiegel eine leicht kleinere Reflektivität auf, so dass das emittierte Licht nach oben aus dem Resonator ausgekoppelt wird. In der Kavität selbst ist die Modendichte im Spektralbereich des Stoppbandes stark reduziert. Nur exakt bei der Resonanzwellenlänge des Resonators kann Licht ein- bzw. ausgekoppelt werden.

In der Mitte zwischen den beiden Bragg-Spiegeln befindet sich die eigentliche Kavität aus GaAs der Dicke H_C , die wiederum im Zentrum die aktive Schicht mit den Quantenpunkten enthält. Da das Feld über die Länge L_{ein} in die beiden Bragg-Spiegel oben und unten eindringt, ergibt sich die effektive Höhe der Kavität zu $H_{eff} = H_C + 2L_{ein}$. Damit das Maximum des Feldes im Bereich der aktiven Schicht liegt und somit eine optimale Kopplung zwischen Licht und den Quantenpunkten gegeben ist, muss die Bedingung für stehende Wellen, $H_{eff} = k \frac{\lambda_C}{2}$ mit $k = 1, 2, \dots$, erfüllt sein. Die Grundmode erhält man dann für $k = 2$.

Um einen vollständigen dreidimensionalen Einschluss zu erreichen, werden aus der planaren Schichtstruktur kreisrunde Türmchen mit Durchmessern zwischen 0,8 und $4 \mu\text{m}$ geätzt. In transversaler Richtung tritt somit Totalreflexion durch den Sprung im Brechungsindex vom Halbleitermaterial zu Luft bzw. Vakuum auf. Dies gewährleistet neben den Bragg-Spiegeln in z-Richtung einen vollständigen Einschluss.

¹ Akronym für *Distributed Bragg Reflector*

7.1.2 InGaAs-Quantenpunkte

Halbleiter-Quantenpunkte sind kristalline, kohärente Cluster von einigen hundert oder tausend Atomen, die in eine Halbleitermatrix eines anderen Materials mit einer größeren Bandlücke eingebettet sind. Aus diesem Grund bilden sie Potentialtöpfe für freie Ladungsträger und Exzitonen werden darin lokalisiert. Quantenpunkte entstehen beim epitaktischen Wachstum durch verspannungsinduzierte Selbstordnungsprozesse, die von den unterschiedlichen Gitterkonstanten der beiden Materialien herrühren. Die in dieser Arbeit untersuchten $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Quantenpunkte sind selbstorganisiert im Stranski-Krastanow-Modus¹ gewachsen.

Beim Aufwachsen einzelner Monolagen $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ auf das Substrat GaAs entsteht hierbei zunächst eine Benetzungsschicht², bei der das aufgewachsene Material die laterale Gitterkonstante des Substrats annimmt ($a_{\text{GaAs}} = 5.653 \text{ \AA}$)³, was als pseudomorphes Wachstum bezeichnet wird. Ab einer gewissen kritischen Schichtdicke⁴ von nur wenigen Monolagen (ML) ist es energetisch günstiger, wenn die aufgebaute Verspannung durch Bildung kleiner Inseln relaxiert. Der Übergang vom zweidimensionalen Wachstum der Benetzungsschicht zum dreidimensionalen Wachstum der Quantenpunkte wird größtenteils durch die Oberflächen-Energie und den Grad der Verspannung bestimmt.

Größe, Form und Flächendichte der Quantenpunkte lassen sich beim Wachstum über die äußeren Parameter wie Substrattemperatur und relative Flussraten der verschiedenen Elemente innerhalb gewisser Grenzen steuern. Eine Schlüsselrolle kommt dabei dem Indiumgehalt x zu, da über ihn die Gitterfehlpassung eingestellt wird [Löf08]. Im Rahmen dieser Arbeit wurden $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Quantenpunkte mit 30%, 45% und 60% In-Anteil untersucht. Für einen Indiumgehalt von 60% tritt eine relativ große Verspannung auf, mit einer kritischen Schichtdicke von ungefähr 3 ML bzw. einer Höhe der Benetzungsschicht von etwa 1 nm [Sek06]. Daraus entstehen linsenförmige Quantenpunkte mit einer nahezu kreisrunden Grundfläche und einem Durchmesser von ungefähr 20 nm. Die Flächendichte dieser Quantenpunkte beträgt bei der vorliegenden Probe $1 - 2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ [Löf08].

Im Gegensatz dazu ist die Gitterfehlpassung bei einem In-Anteil von 30% nur noch ungefähr 2%. Daraus ergibt sich eine geringere Verspannung und eine Höhe der Benetzungsschicht von wenigen nm, was in einer länglichen, stark elliptischen Form resultiert. Die Länge dieser Quantenpunkte liegt dabei typischerweise zwischen 50 und 100 nm, die Breite beträgt etwa 30 nm bei einer Flächendichte von ungefähr $5 - 6 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$. Die Orientierung der länglichen Strukturen richtet sich nach der

1 weitere mögliche Wachstumsmodi: Volmer-Weber und Frank-van-der-Merve

2 engl. *wetting layer*

3 zum Vergleich: reines InAs weist eine Gitterkonstante von $a_{\text{InAs}} = 6.058 \text{ \AA}$ auf

4 Die jeweilige kritische Schichtdicke hängt vom In-Anteil x ab

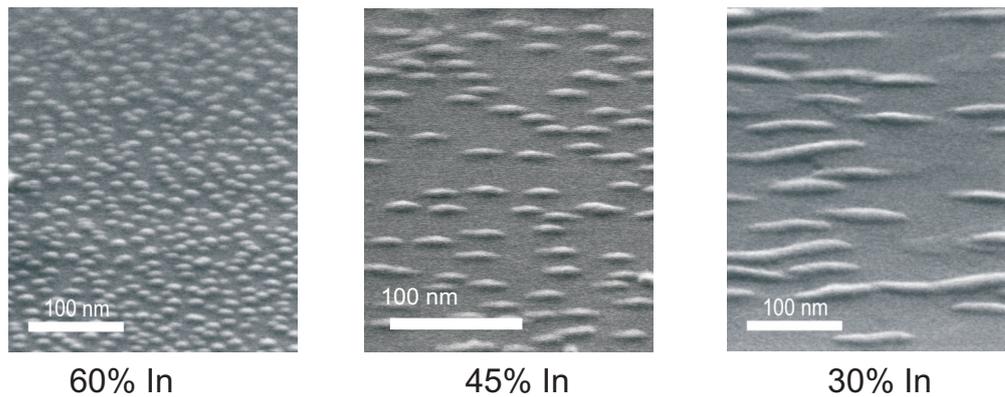


Abbildung 7.2: REM-Aufnahme unüberwachener InGaAs Quantenpunkte mit In-Gehalten von 60%, 45% und 30%. Die Proben sind um 70° verkippt, um den Höhenkontrast zu verbessern.

Oberflächen-Rekonstruktion des GaAs-Substrats. Da die Oberfläche des Festkörpers immer einen Bruch der Symmetrie darstellt und den Oberflächen-Atomen ihre nächsten Nachbarn fehlen, ordnen sich diese zur Minimierung der Gesamtenergie neu an. Durch diese Oberflächen-Rekonstruktion können sich ausgezeichnete Richtungen auf der Oberfläche ergeben, entlang derer sich die Quantenpunkte bevorzugt anordnen.

Als dritte Spezies wurden noch Quantenpunkte mit einem In-Gehalt von 45% untersucht. Deren Eigenschaften sind zwischen den eben diskutierten Extremen angesiedelt. Sie weisen eine eher runde Form auf und ihre Flächendichte beträgt $1 - 2 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. In Abb. 7.2 sind zur Übersicht noch einmal REM-Aufnahmen aller drei Quantenpunkt-Arten dargestellt. Dabei gilt zu beachten, dass diese Abbildungen nur einen groben Hinweis auf die tatsächliche Gestalt der untersuchten Quantenpunkte geben können. Für die Aufnahmen wurde nämlich das Wachstum nach der Quantenpunkt-Schicht beendet, wohingegen sich in realen Strukturen die Form der Quantenpunkte durch Diffusionsprozesse beim Überwachsen noch ändern kann.

7.1.3 Prozessierung der Mikropillars

Die Herstellung der AlAs/GaAs-Mikroresonatoren ist nahe an der Grenze des heutzutage technisch Machbaren angesiedelt und umfasst einige sehr anspruchsvolle Methoden der Nanostrukturierung, die in [Löf08] näher erläutert werden.

Wachstum der planaren Resonatorstruktur

Die Lagen der planaren Mikroresonatoren werden mittels MBE Schicht für Schicht mit atomarer Genauigkeit auf einen 3-Zoll Wafer aus GaAs gewachsen. Hier soll exemplarisch für alle verwendeten Strukturen die genaue Schichtfolge der Probe C807 mit 30-prozentigen InGaAs-Quantenpunkten dargestellt werden. Auf das $500 \mu\text{m}$ di-

cke Substrat folgt zunächst eine 400 nm dicke Pufferschicht aus GaAs, die ein glattes Wachstum begünstigen soll. Anschließend werden die 27 Spiegelpaare des unteren Bragg-Spiegels gewachsen. Dabei besitzen die AlAs-Lagen eine Dicke von 76 nm, die GaAs-Lagen sind 66 nm stark. Daran schließt sich die Kavität aus GaAs an. Nach 130 nm GaAs wird $\text{In}_{0,30}\text{Ga}_{0,70}\text{As}$ mit einer nominellen Dicke von 4,5 nm aufgewachsen, aus dem sich die Quantenpunkte nach dem oben erläuterten Prinzip der Selbstorganisation bilden. Nach der Quantenpunktschicht folgt nochmals 130 nm GaAs. Nun wird noch der obere Spiegel mit 23 AlAs/GaAs-Paaren analog zum unteren Bragg-Spiegel aufgebracht. Damit ist das Wachstum des planaren Mikroresonators abgeschlossen.

Laterale Strukturierung

Zuerst wird die planare Resonatorstruktur mit dem Positivlack Polymethylmethacrylat (PMMA) mit einer Schichtdicke von $1\ \mu\text{m}$ belackt. Anschließend wird der photoempfindliche Lack mittels Elektronenstrahlolithographie belichtet. Dadurch werden nominell kreisrunde Strukturen mit Durchmessern zwischen $0,9$ und $4,0\ \mu\text{m}$ definiert. Nach der Belichtung folgt die Entwicklung. Dies geschieht bei Raumtemperatur in Methylisobutylketon (MIBK) und Isopropanol im Verhältnis 1:3 und dauert 40 s. Diese Mischung löst und entfernt die belichteten Stellen des Lackes, an denen später die Mikropillars zurück bleiben sollen. Nach der Entwicklung wird der restliche Lack für 30 s mit Hilfe einer Isopropanol-Lösung fixiert. Anschließend wird in einem Elektronenstrahlverdampfer als Ätzmaske eine Nickel-Schicht von 120 - 150 nm Dicke, je nach gewünschter Ätztiefe, auf die Probenoberfläche aufgebracht.

Im folgenden Prozessschritt werden die unbelichteten Lackbereiche mitsamt der darauf befindlichen Nickel-Schicht abgehoben (engl. *lift-off*). Dies findet in einem Methylpyrrolidon-Ultraschallbad bei $80\ ^\circ\text{C}$ statt und dauert 2 bis 3 Minuten. Der letzte und wichtigste Schritt ist der eigentliche Ätzprozess. Die Übertragung der vordefinierten Strukturen in das Halbleitermaterial geschieht über einen trockenchemischen Ätzprozess in einer ECR-RIE¹-Anlage. Das Verhältnis von Ar- zu Cl-Fluss beträgt hier 9:1, bei einer Gesamtleistung von 320 W und einer Ätzrate von $0,27\ \mu\text{m}/\text{min}$. Dabei wird gerade so tief geätzt, dass vom unteren Bragg-Spiegel noch ein Teil erhalten bleibt. Separate Untersuchungen diesbezüglich haben ein Optimum des Q-Faktors ergeben, wenn ungefähr $1/3$ des unteren Bragg-Spiegels verbleibt [Rei07, Rei09b]. Abb. 7.3 gibt einen Überblick über die gesamten Prozessierungsschritte der Proben von der epitaktischen Schichtstruktur bis zu den fertigen Mikropillars.

¹ Akronym für *Electron Cyclotron Resonance Reactive Ion Etching*

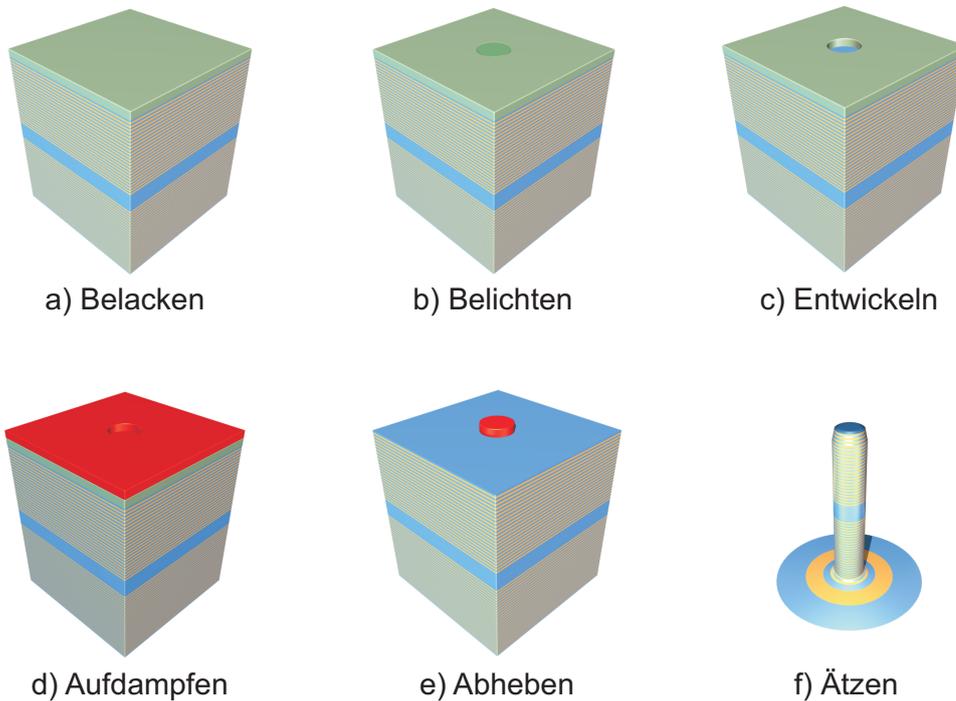


Abbildung 7.3: Überblick über die einzelnen Schritte des Strukturierungsprozesses.

7.2 Experimentelle Techniken

Zur Charakterisierung der Quantenpunkt-Mikroresonator-Systeme wurde die Methode der Mikro-Photolumineszenz(PL)-Spektroskopie unter Einfluss eines magnetischen Feldes eingesetzt. Dabei können zum einen durch zeitintegrierte Messungen nähere Informationen über die Eigenenergien im System und deren Beeinflussung durch äußere Parameter gesammelt werden. Weiterhin erlaubt die zeitaufgelöste Spektroskopie, Aussagen über den zeitlichen Verlauf der optischen Anregung und Relaxation der Emitter im System zu treffen.

7.2.1 Zeitintegrierte Mikro-PL-Spektroskopie im Magnetfeld

Ein schematischer Überblick des Magneto-PL-Messplatzes ist in Abb. 7.4 dargestellt. Zur optischen Anregung der Proben wird ein frequenzverdoppelter Nd:YAG¹-Laser bei einer Wellenlänge von 532 nm benutzt. Dieser Festkörperlaser emittiert im Dauerstrichbetrieb (cw) mit einer maximalen Leistung von 50 mW. Zur genauen Regulierung der Anregungsleistung auf der Probe können nach dem Laser verschiedene

¹ Festkörperlaser mit einem Neodym-dotierten Yttrium-Aluminium-Granat-Kristall als aktives Medium



Abbildung 7.4: Vereinfachte schematische Darstellung des Magneto-PL-Messplatzes. Nicht im Bild: Abschwächungsfilter zur Regulierung der Anregungsleistung nach dem Laser und Weißlichtquelle/CCD-Kamera zur Orientierung und Justage auf der Probe.

Abschwächungsfilter in den Strahlengang eingebracht werden. Zur Feinregulierung steht ein drehbarer, stufenloser Graufilter zur Verfügung.

Im weiteren Verlauf wird der Anregungsstrahl mit Hilfe eines dichroitischen Spiegels (Kaltlichtspiegel) auf die optische Hauptachse in Richtung des Kryostaten gelenkt. An dieser Stelle kann ein Leistungsmessgerät in den Strahlengang eingeschoben werden, um die genaue Anregungsleistung abzulesen. Zur Fokussierung des Laserstrahls auf der Probe dient ein Mikroskop-Objektiv. Dieses Objektiv mit einem besonders langen Arbeitsabstand von 20 mm weist eine 20-fache Vergrößerung und eine Numerische Apertur von 0,4 auf. Der Durchmesser des Laserpunktes auf der Probenoberfläche wurde zu ungefähr $3\ \mu\text{m}$ abgeschätzt. Das Mikroskopobjektiv ist auf einem 3D-Justagetisch mit Mikrometerschrauben montiert, mit dessen Hilfe die gewünschte Position auf der Probenoberfläche angefahren werden kann. Der Kryostat selbst ist aufgrund seiner großen Masse starr mit dem Tisch verbunden.

Die zu untersuchende Probe befindet sich in einem magneto-optischen Kryostaten. Dieser Durchflusskryostat erlaubt mit Hilfe von Heizwendeln und einer Regulierung des Heliumflusses Messungen zwischen ungefähr 7 K und Raumtemperatur. Der Probenraum ist umgeben von einer heliumgekühlten, supraleitenden Spule, die Magnetfelder bis zu 5 T erzeugt. Das Magnetfeld ist dabei parallel zur optischen Achse und den Mikropillars bzw. senkrecht zur Probenoberfläche orientiert. Diese Geometrie wird allgemein als Faraday-Konfiguration bezeichnet. Durch eine Aufteilung des Heliumflusses und zwei Nadelventile kann die Probentemperatur erhöht werden, während gleichzeitig der supraleitende Zustand in der Spule und damit das Magnetfeld aufrechterhalten wird. Die Probenkammer wird über eine Turbomolekularpumpe abgepumpt und befindet sich während der Messung im Hochvakuum bei einem Restdruck im Bereich von 10^{-6} hPa.

Das von der Probe emittierte Licht wird über das gleiche Mikroskopobjektiv eingesammelt und als kollinear Strahl zum Spektrometer geleitet. Auf diesem Weg befindet sich noch ein einschiebbarer Spiegel, über den mittels einer Weißlichtquelle und einer CCD-Kamera ein Abbild der Probenoberfläche aufgenommen werden kann. Dies dient zur Orientierung auf der Probe und zur genauen Justage auf den zu untersuchenden Mikropillar. Im weiteren Strahlengang können noch optional Linearpolarisatoren bzw. $\lambda/4$ -Plättchen zur Analyse der Polarisationsseigenschaften des emittierten Lichts eingebaut werden. Am Ende der optischen Achse lenkt ein weiterer Spiegel das Licht zum Spektrometer.

Das zu analysierende PL-Signal wird über eine plan-konvex-Linse auf den Eintrittspalt des Spektrometers fokussiert, wobei eine Brennweite von 20 cm gewählt wurde, um das Gitter großflächig auszuleuchten und somit die bestmögliche spektrale Auflösung zu erzielen. Das Spektrometer besitzt eine Brennweite von 75 cm und ein Öffnungsverhältnis von 1/9,7. Der Eingangspalt des Spektrometers ist in der Regel auf 50 μm eingestellt, um Streulicht abzuschirmen und die Abbildung zu optimieren. Der einfallende Strahl wird über ein dispersives Gitter spektral zerlegt und auf einen Stickstoff-gekühlten Si-CCD-Chip mit 1340 x 100 Bildpunkten gelenkt. Das Signal wird je nach Intensität typischerweise über einen Zeitraum von einigen Sekunden integriert. Es stehen drei Gitter (300 Striche/mm, 1200 Striche/mm und 1500 Striche/mm) zur Verfügung. Mit dem hoch-dispersiven Gitter kann im relevanten Wellenlängenbereich insgesamt eine spektrale Auflösung von 17 μeV erreicht werden.

7.2.2 Zeitaufgelöste Mikro-PL-Spektroskopie im Magnetfeld

Zum Zwecke der zeitaufgelösten Spektroskopie wurde der oben beschriebene Messplatz geringfügig verändert bzw. erweitert. Zur optischen Anregung wird in diesem Fall ein gepulster, modengekoppelter Titan-Saphir-Laser(Ti:Sa) im ps-Modus verwendet, der von einem Argon-Ionen-Laser im Multi-Linien-Modus¹ gepumpt wird. Der Spiegelsatz des Ti:Sa ist dabei so gewählt, dass Emissionswellenlängen stufenlos zwischen 840 und 1000 nm eingestellt werden können. Die tatsächliche Anregungswellenlänge wurde im Experiment zu 900 nm gewählt, um in die Benetzungsschicht der InGaAs-Quantenpunkte anzuregen und den Einfluss der Relaxationsprozesse somit möglichst gering zu halten. Die Pulsdauer von weniger als 100 fs liegt deutlich unter der Zeitskala der untersuchten Prozesse, so dass die Pulse in ausreichender Näherung noch als δ -förmig angenommen werden können. Die Wiederholrate des Ti:Sa liegt bei 82 MHz, was einem zeitlichen Abstand von etwa 12 ns zwischen aufeinanderfolgenden Laserpulsen entspricht.

¹ Der Laser schwingt auf sämtlichen möglichen Wellenlängen im Bereich von 454,5 bis 514,5 nm

Zur zeitaufgelösten Detektion wird ein Mikro-Kanal-Detektor (MCP) verwendet, der am seitlichen Ausgang des Spektrometers angebracht ist. Über einen vertikalen Spalt an diesem Ausgang findet eine scharfe spektrale Selektion des detektierten Signals statt, so dass der zeitliche Verlauf der Emission eines einzelnen Quantenpunktes aufgenommen werden kann. Durch das Prinzip der Sekundärelektronen-Vervielfachung werden aus einem auftreffenden Photon eine große Anzahl von Elektronen in der Größenordnung von 10^5 generiert. Diese Spannungspulse können, nach einer weiteren elektrischen Verstärkung, am Rechner mit Hilfe einer Photonen-Korrelationskarte verarbeitet werden. Das gesamte System hat eine zeitliche Auflösung im Bereich von 100 ps.

7.2.3 Resonanzverstimmung zwischen Exziton und Resonatormode

Für eine detaillierte Untersuchung der Eigenschaften der Licht-Materie-Kopplung ist es nötig, das System aus Quantenpunkt und Mikroresonator gezielt in Resonanz zu bringen. Um die energetische Lage des Exzitons resonant auf die Grundmode der Kavität abzustimmen, stehen die folgenden drei Mechanismen im Experiment zur Verfügung.

Verstimmung über die Temperatur

Mit der Methode der Temperaturverstimmung wurde erstmals die starke Kopplung in Quantenpunkt-Mikropillar-Systemen erfolgreich nachgewiesen [Rei04]. Dabei werden die unterschiedlichen Temperatur-Koeffizienten von Quantenpunkt und Resonatormode ausgenutzt. Die Emissionsenergie des Exzitons hängt bezüglich einer Temperaturänderung nur von der Bandlücke des Halbleitermaterials ab. Die Temperaturabhängigkeit der Bandlücke wird wiederum durch die empirische Formel von Varshni beschrieben [Var67]:

$$E_g(T) = E_g(0) - \frac{\alpha \cdot T^2}{T + \beta}. \quad (7.2)$$

Mit steigender Temperatur wird die Emissionsenergie des Quantenpunktes folglich kleiner, die Linie im Spektrum verschiebt also in Richtung der roten Wellenlängen. Die spektrale Lage des Resonators hingegen wird durch die Temperaturabhängigkeit des Brechungsindex bestimmt. Der Brechungsindex wird mit zunehmender Temperatur größer, so dass die Resonanzwellenlänge der Kavität ebenfalls ansteigt. Diese Rotverschiebung der Resonatormode ist aber wesentlich schwächer ausgeprägt als die Rotverschiebung des Exzitons. Typischerweise verschiebt die Resonatormode bei einer Temperatur um 20 K mit $-3 \mu\text{eV}/\text{K}$, die Exzitonmode hingegen mit $-45 \mu\text{eV}/\text{K}$. Nach diesem Prinzip können Quantenpunkt und Kavität in Resonanz gebracht werden, sofern sich das Exziton bei der tiefsten Temperatur auf der hochenergetischen

Seite der Resonatormode befindet. Die Verstimmung der Moden findet dabei auf einer Zeitskala in der Größenordnung von Sekunden statt.

Stark-Effekt in quantisierten Systemen

Eine weitere Möglichkeit zur Resonanzverstimmung ergibt sich durch das Anlegen eines vertikalen elektrischen Feldes [Kis08]. Durch den sogenannten *Quantum Confined Stark Effect* (QCSE) verschieben sich die Energieniveaus im Quantenpunkt und damit die spektrale Lage der Emissionslinien analog zum konventionellen Stark Effekt bei Atomen. Durch die Verbiegung der Bänder mit wachsendem elektrischen Feld verringert sich der energetische Abstand zwischen Elektron und Loch, das Exziton schiebt also rot. Dieser Verstimmungsmechanismus ist deutlich schneller als die Temperaturverstimmung und findet auf Zeitskalen im Bereich μs statt. Dieser Mechanismus zur Resonanzverstimmung wird hier nur um der Vollständigkeit willen angeführt und soll nicht näher vertieft werden, da er in den folgenden Experimenten keine Rolle spielt.

Verstimmung über das Magnetfeld und Zeeman-Effekt

Befindet sich ein Exziton in einem äußeren magnetischen Feld, das entlang der Wachstumsrichtung der Nanostruktur - also orthogonal auf die Ebene der aktiven Schicht mit den Quantenpunkten angelegt ist, so treten prinzipiell zwei getrennte Effekte auf. Zum einen wird die Spinartung aufgehoben, so dass die beiden Spin-komponenten energetisch aufspalten. Dies wird als Zeeman-Effekt bezeichnet (vgl. Kapitel 6.1). Zum zweiten ergibt sich eine Verschiebung der aufgespaltenen Zustände zu höherer Energie, die sogenannte diamagnetische Verschiebung. Diese kann zur spektralen Verstimmung eines Quantenpunkt-Exzitons relativ zur Resonatormode benutzt werden, da die Kavitätsmode selbst nicht vom Magnetfeld beeinflusst wird.

Der Einfluss eines Magnetfeldes auf das spektrale Verhalten eines Quantenemitters wird an Hand seines Hamiltonoperators deutlich. Der Gesamthamiltonoperator, der ein Quantenpunktexziton im Magnetfeld beschreibt, setzt sich aus den einzelnen Hamiltonoperatoren für das Loch und das Elektron und einer Elektron-Loch-Wechselwirkung V_{eh} zusammen:

$$H = \sum_{i=e,h} \frac{1}{2m_i} (p_i - q\vec{A}_i)^2 + V_i + \frac{g_i\mu_B}{\hbar} \vec{S}_i \cdot \vec{B} + V_{eh}. \quad (7.3)$$

In der Coulomb-Eichung $\text{div } \vec{A} = 0$, für das Magnetfeld in z-Richtung $\vec{B}(r) = e_z B$ und über die Relationen für das Vektorpotential $\vec{A} = \frac{1}{2}(\vec{B} \times \vec{r})$ und den Drehimpuls

$\vec{L} = \vec{p} \times \vec{r}$ kann der Hamiltonoperator für schwache Magnetfelder in drei Komponenten aufgeteilt werden [Sch02]:

$$H = \sum_{i=e,h} \underbrace{\frac{p_i^2}{2m_i} + V_i + V_{eh}}_{H_0} + \underbrace{\frac{\mu_B}{\hbar}(g_i S_{i,z} - L_{i,z})B_z}_{H_{para}} + \underbrace{\frac{e^2}{8m_i}(x_i^2 + y_i^2)B_z^2}_{H_{dia}}. \quad (7.4)$$

Dabei stellt H_0 den ungestörten, H_{para} den paramagnetischen und H_{dia} den diamagnetischen Anteil des Hamiltonoperators dar. Durch Lösung der stationären Schrödinger Gleichung $H\Psi = E\Psi$ ergeben sich nun zusätzlich zur ungestörten Emissionsenergie zwei vom Magnetfeld abhängige Terme:

$$E(B) = E_0 \pm \frac{1}{2}g\mu_B B + \kappa B^2. \quad (7.5)$$

Zum einen ist durch den Zeeman-Effekt im Exziton eine Aufspaltung in 2 Linien zu beobachten [Bay99]:

$$\Delta E = \pm \frac{1}{2}g\mu_B B. \quad (7.6)$$

Zum zweiten wird der diamagnetische Term H_{dia} hier zur spektralen Verstimmung genutzt. Diese diamagnetische Verschiebung hängt quadratisch von der magnetischen Flussdichte B ab, so dass immer eine Energieänderung zu blauen Wellenlängen mit wachsendem Magnetfeld resultiert [Wal98]:

$$\Delta E_{dia} = \frac{e^2}{8} \left(\frac{\langle \rho_e^2 \rangle}{m_e} + \frac{\langle \rho_h^2 \rangle}{m_h} \right) B^2 = \kappa B^2, \quad (7.7)$$

wobei $m_{e,h}$ hier die effektiven Massen von Elektron und Schwerloch bezeichnen. Wie aus der Gleichung ersichtlich, hängt der diamagnetische Koeffizient κ von der effektiven Ausdehnung der Wellenfunktion von Elektron und Loch $\sqrt{\langle \rho_{e,h}^2 \rangle}$ in lateraler Orientierung zum Magnetfeld ab. Dieser Umstand wird im Folgenden angewandt, um verschiedene InGaAs-Quantenpunkte hinsichtlich ihrer Größen und Oszillatorstärken zu charakterisieren. Im Hinblick auf die Zeitskala der Verstimmung ist die diamagnetische Verschiebung vergleichbar mit der Temperaturverstimmung. Der limitierende Faktor ist dabei die Veränderung des äußeren Magnetfeldes, die je nach Schrittweite einige Sekunden in Anspruch nimmt.

8 Grundlegende Charakterisierung der verwendeten Quantenpunkte

Das folgende Kapitel beschäftigt sich mit Mikro-Photolumineszenz-Messungen an verschiedenen Arten von InGaAs-Quantenpunkten. Dabei wird je nach In-Anteil ein charakteristisches Verhalten im Magnetfeld beobachtet, das im Zusammenhang mit der lateralen Ausdehnung der jeweiligen Quantenpunkte steht.

8.1 Diamagnetischer Koeffizient von InGaAs-Quantenpunkten

Die hier demonstrierten Messungen wurden an den üblichen, auch im weiteren Verlauf dieser Arbeit benutzten Mikroresonatoren durchgeführt, wenngleich die Lichtemission der Kavität selbst hier noch nicht direkt von Interesse ist. In Abb. 8.1 sind Spektren aus einer Messreihe dargestellt, bei der das magnetische Feld von 0 bis 5 T variiert wurde. Die Emissionslinie der Kavität (C) wird nicht vom Magnetfeld beeinflusst und behält ihre energetische Lage bei, die Emission der Exzitonen (X_1 bis X_4) hingegen schiebt zu höheren Energien durch den diamagnetischen Einfluss des ansteigenden Feldes. Besonders bei den Linien X_1 und X_3 ist darüber hinaus noch eine Aufhebung der Spinentartung durch das Feld zu erkennen und die Einzellinien spalten mit wachsendem Feld aufgrund des Zeeman-Effekts auf.

Die hier untersuchte Probe enthält InGaAs-Quantenpunkte mit 30% In-Anteil. Eine Anpassung der Emissionslinien mit Lorentzkurven führt auf eine energetische Verschiebung von $650 \mu\text{eV}$ zwischen 0 und 5 T bzw. auf einen für diese Quantenpunkte charakteristischen diamagnetischen Koeffizienten von $\kappa = 26 \mu\text{eV}/\text{T}^2$ (vgl. Gleichung 7.7). Diese Gleichung kann hier angewandt werden, da die Zyklotronenergie $\hbar\omega_c$ bei den anliegenden Magnetfeldern wesentlich kleiner als die Bindungsenergie der Exzitonen ist [Wal98, Sug02]. An den beiden Vergleichsproben mit $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Quantenpunkten mit $x = 0,45$ und $0,60$ wurden analoge Messungen durchgeführt. Für diese Fälle wurden energetische Verschiebungen von ungefähr $500 \mu\text{eV}$ und $200 \mu\text{eV}$ beobachtet. Dies entspricht wiederum einem diamagnetischen Koeffizienten κ von 20 bzw. $8 \mu\text{eV}/\text{T}^2$. Diese Ergebnisse sind in Abb. 8.2 zusammenfassend dargestellt.

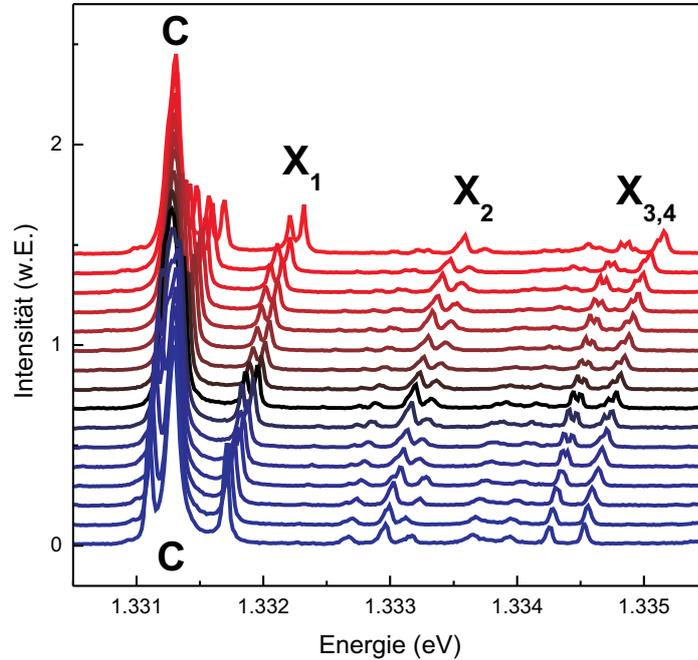


Abbildung 8.1: Wasserfall-Darstellung einer Messreihe an einem Mikroresonator mit InGaAs-Quantenpunkten mit 30% In-Anteil, bei der das Magnetfeld von 0 auf 5 T erhöht wurde. Die Kavität C weist keine energetische Verschiebung auf. Die Exzitonen schieben durch den diamagnetischen Einfluss blau, X_1 und X_3 erfahren zusätzlich noch eine Zeeman-Aufspaltung.

Der systematische Zusammenhang zwischen dem In-Gehalt der Quantenpunkte und dem gemessenen diamagnetischen Effekt wird auf die unterschiedliche laterale Ausdehnung der untersuchten Quantenpunkte zurückgeführt. Nach Gleichung (7.7) hängt die diamagnetische Verschiebung ΔE_{dia} direkt von der Ausdehnung der Wellenfunktionen $\sqrt{\langle \rho_{e,h}^2 \rangle}$ von Elektron und Loch ab, welche wiederum mit der Größe der Quantenpunkte verknüpft ist. Wie schon in Kapitel 7.1.2 erläutert ist, weisen InGaAs-Quantenpunkte mit 30% In-Gehalt die größte laterale Ausdehnung auf, was mit der vergleichsweise großen Verschiebung von $26 \mu\text{eV}/\text{T}^2$ einhergeht. Um diesen Zusammenhang noch näher zu quantifizieren, wurde mit Hilfe von Gleichung (7.7) jeweils die erwartete Ausdehnung der Wellenfunktionen aus der gemessenen diamagnetischen Verschiebung errechnet. Die erhaltenen Zahlenwerte sind in Tabelle 8.1 aufgeführt.

In diesem Zusammenhang fällt auf, dass sich der aus Kapitel 7.1.2 bekannte signifikante Größenunterschied zwischen Quantenpunkten mit 30 bzw. 45% In-Gehalt

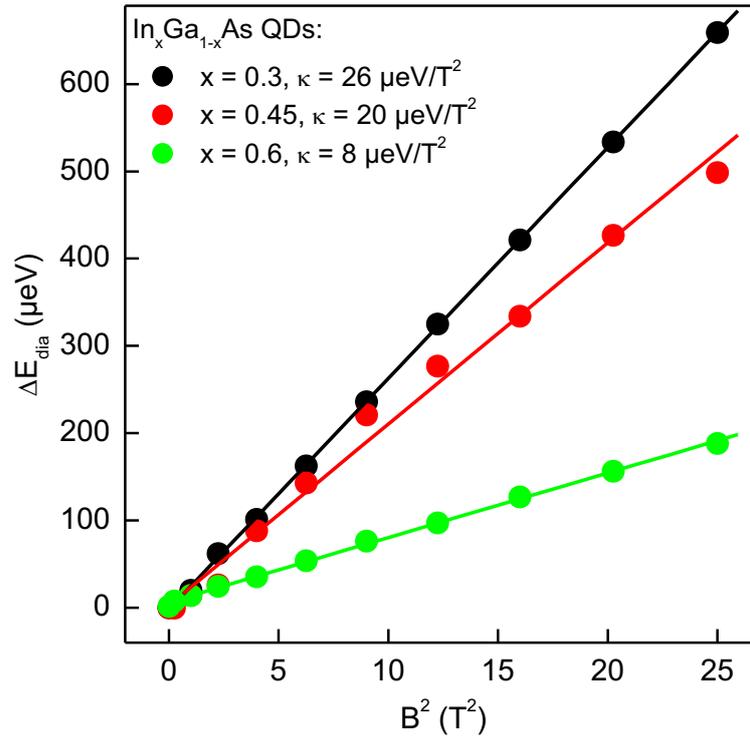


Abbildung 8.2: Diamagnetische Verschiebung von InGaAs-Quantenpunkten mit In-Gehalten von 30, 45 und 60%. Es ergeben sich diamagnetische Koeffizienten von 26, 20 bzw. $8 \mu\text{eV}/\text{T}^2$.

Tabelle 8.1: Diamagnetischer Koeffizient und Ausdehnung der Wellenfunktion

In-Anteil	κ	$2\sqrt{\langle \rho_{e,h}^2 \rangle}$	Literaturwerte
30%	$26 \mu\text{eV}/\text{T}^2$	15 nm	$20\text{-}32 \mu\text{eV}/\text{T}^2$ [Men06]
45%	$20 \mu\text{eV}/\text{T}^2$	12 nm	-
60%	$8 \mu\text{eV}/\text{T}^2$	7 nm	$8 \mu\text{eV}/\text{T}^2$ [Ort05]

nicht direkt in einer größeren Abweichung der gemessenen diamagnetischen Verschiebung niederschlägt. Insbesondere ist die errechnete Ausdehnung des Exzitons von 15 nm in einem Quantenpunkt mit 30% In-Anteil deutlich kleiner als die aus REM-Aufnahmen abgeschätzte laterale Ausdehnung dieser stark elongierten Quantenpunkte. Daraus folgt, dass sich das Exziton offenbar nicht über die gesamte Fläche des Quantenpunktes erstreckt, sondern vielmehr, wie in [And99] beschrieben, eine Art quantisierte Schwerpunktsbewegung im Potential des großen Quantenpunktes beschreibt. Die hier errechnete Ausdehnung der exzitonischen Wellenfunktion wird

im Folgenden relevant bei der Vermessung der Oszillatorstärke unter dem Einfluss des Magnetfeldes.

8.2 Zeeman-Aufspaltung von InGaAs-Quantenpunkten

Ein weiterer wichtiger Aspekt bei der spektroskopischen Untersuchung von InGaAs-Quantenpunkten im Magnetfeld ist der Zeeman-Effekt. Wie in Kapitel 6.1 dargestellt, wird durch das Feld die Entartung in der exzitonischen Feinstruktur aufgehoben, so dass die hellen Exzitonen mit $j_z = \pm 1$ in zwei Linien mit gegensätzlicher zirkularer Polarisation σ_+ und σ_- aufspalten. Die energetische Aufspaltung hängt dabei nach Gleichung (6.10) vom jeweiligen exzitonischen g_L -Faktor ab. Es hat sich gezeigt, dass zwischen dem diamagnetischen Koeffizienten und dem g_L -Faktor ein indirekter Zusammenhang besteht. So ergibt sich für die 3 untersuchten Quantenpunkt-Typen ein größerer g_L -Faktor je kleiner die diamagnetische Verschiebung ist. Diese Abhängigkeit ist in Abb. 8.3 dargestellt, wobei die blaue Linie nur zur Orientierung dient und keine physikalische Bedeutung hat.

Soweit bekannt, existiert bislang kein Modell, das diesen Sachverhalt auch quantitativ untermauern kann. Nakaoka *et al.* [Nak04] haben ein ähnliches Verhalten an Quantenpunkten mit höherer In-Konzentration beobachtet. Dort wurden reine InAs- und $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ -Quantenpunkte untersucht, die bei Tieftemperatur im Bereich von 1,0 und 1,2 eV emittieren. Außerdem wiesen diese Punkte strenge Rotationssymmetrie auf, was durch die nicht messbare Feinstrukturaufspaltung untermauert wird [Seg05]. Dabei zeigte sich ebenfalls eine signifikante Abhängigkeit des exzitonischen g_L -Faktors vom In-Anteil. Auf Basis eines 8-Band $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ -Modells durchgeführte Rechnungen [Nak04] ergeben eine deutliche Abhängigkeit des g_L -Faktors von den Abmessungen des Quantenpunktes (bei konstanter Materialzusammensetzung).

Auch Kotlyar *et al.* [Kot01] haben 3 Jahre vorher bereits ein vergleichbares Verhalten an aus InGaAs-Quantenfilmen geätzten Quantendrähten und -punkten dokumentiert. Sie berechnen darüber hinaus die exzitonischen g_L -Faktoren über ein 6-Band $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ -Modell und führen so die starke Abhängigkeit des g_L -Faktors von Strukturgröße und Materialbeschaffenheit auf eine Vermischung der Bänder im Magnetfeld zurück. Diese resultiert wiederum aus einer Kopplung zwischen den Leicht- und Schwerloch-Valenzbändern und einer Kopplung dieser an das Leitungsband.

In diesem Zusammenhang muss erwähnt werden, dass es im Rahmen der hier durchgeführten Experimente auch Exzitonen gibt, die eine deutlich kleinere bzw. im Rahmen der Messgenauigkeit ($17 \mu\text{eV}$ im relevanten Spektralbereich) keinerlei Aufspaltung zeigen. Um dies nachvollziehen zu können, muss man sich vor Augen führen, dass der exzitonische g_L -Faktor die Summe der g_L -Faktoren von Elektron und Schwerloch ist: $g_{ex} = g_e + g_{hh}$ [Boc97]. Bei einer Aufspaltung von 0 kompen-

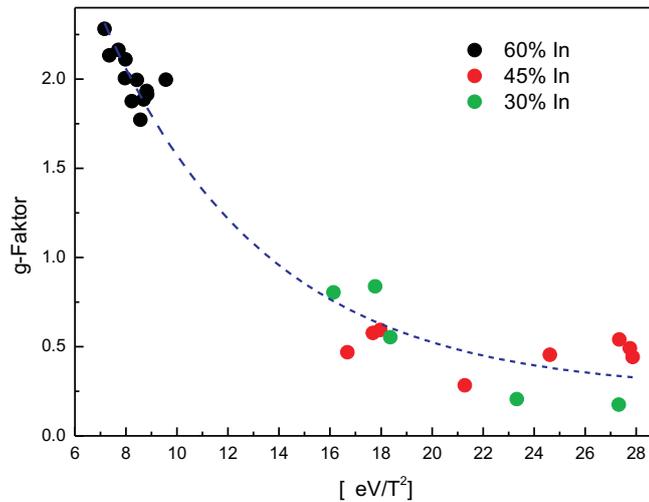


Abbildung 8.3: Zusammenhang zwischen dem exzitonen g_L -Faktor und der diamagnetischen Verschiebung. Die blaue Linie dient nur zur Orientierung und hat keine physikalische Bedeutung.

sieren sich diese beiden Anteile also genau. Der Grund dafür oder eine eventuelle systematische Abhängigkeit von Quantenpunkt-Eigenschaften wie Größe oder Materialzusammensetzung konnte im Rahmen dieser Arbeit nicht abschließend geklärt werden. Exzitonenlinien mit kleinerer oder keinerlei Aufspaltung im Magnetfeld treten unabhängig von der energetischen Lage im Spektrum auf.

Darüber hinaus wird in Abb. 8.3 auch eine vergleichsweise große Streuung der diamagnetischen Verschiebung für einen nominell gleichen In-Gehalt sichtbar. Dies zeigt, dass die Wellenfunktionen des Exzitons durch Potentialminima verursacht durch die lokale Zusammensetzung des Quantenpunktes nicht notwendigerweise zu ihrer maximalen Ausdehnung gelangen.

8.3 Quanten-Charakter der Emission

Um den Quantenpunkt-Charakter der untersuchten Emission nachzuweisen, können prinzipiell zwei Experimente herangezogen werden. Das sind zum einen Messserien mit variabler Anregung, bei der charakteristische Emissionslinien zum Vorschein kommen. Zum zweiten kann die Eigenschaft des Quantenemitters durch Autokorrelationsmessungen untermauert werden.

Abb. 8.4a) zeigt eine Wasserfall-Darstellung von Spektren, die an einem großen $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Quantenpunkt in einem Mikropillar von $1,5\ \mu\text{m}$ Durchmesser bei 8 K unter Variation der Anregungsleistung zwischen $0,7\ \text{W}/\text{cm}^2$ und $160\ \text{W}/\text{cm}^2$ aufgenommen wurden. Diese Messung spiegelt die spektralen Charakteristika eines Quan-

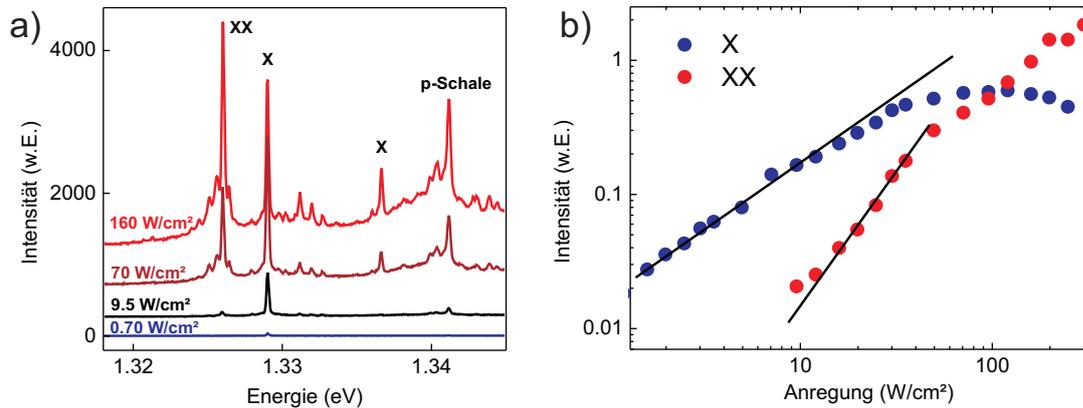


Abbildung 8.4: Messreihe an einem $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Quantenpunkt, bei der die Anregungsleistung zwischen $0,7 \text{ W/cm}^2$ und 160 W/cm^2 variiert wurde. a) Wasserfall-Darstellung der Spektren. b) Doppelt-logarithmische Auftragung der PL-Intensität über der Anregungsleistung.

tenpunktes wider. Im mittleren Bereich des Spektrums sind zwei Linien mit X bezeichnet, die von der Rekombination von Exzitonen herrühren. Entsprechend der Besetzung des Quantenpunktes wird das zweite Exziton erst bei höherer Anregung sichtbar. Bei einer Energie von ungefähr $1,34 \text{ eV}$ zeigen sich Übergänge aus der p-Schale des Quantenpunkts, also Emissionen aus angeregten Zuständen. Demnach werden diese Spektrallinien auch erst unter höherer Anregung beobachtet.

Auf der niederenergetischen Seite der Exzitonemission findet sich eine weitere Linie, die auf das Bi-Exziton zurückzuführen und deshalb mit XX bezeichnet ist. Dies entspricht einem gebundenen Zustand, bestehend aus zwei Exzitonen. Aus diesem Grund wird diese Linie erst bei einem höheren Anregungszustand sichtbar, wenn eine ausreichende Dichte an Exzitonen zur Verfügung steht. Da an diesem Zustand zwei Quasiteilchen beteiligt sind, weist die Emission eine quadratische Abhängigkeit von der Anregungsleistung auf. Entsprechend zeigt Abb. 8.4b) in doppelt-logarithmischer Darstellung die lineare bzw. quadratische Abhängigkeit der Emission für Exziton und Bi-Exziton von der Anregung.

Korrelation zweiter Ordnung

Ein weiterer Nachweis des Quantenpunkt-Charakters der untersuchten Emission gelingt über die Photonenstatistik, die Rückschlüsse auf den Emissionsprozess der detektierten Photonen zulässt. Dazu wird die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ herangezogen, die in einem anschaulichen Bild die Wahrscheinlichkeit dafür wiedergibt, dass zur Zeit $t + \tau$ ein Photon von einer Lichtquelle emittiert wird, nachdem bereits zur Zeit t ein Photon ausgesandt wurde. Sie ist definiert als:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2}, \quad (8.1)$$

wobei in klassischer Betrachtung $\langle \square \rangle$ eine zeitliche Mittelung darstellt [Bec01].

Experimentell kann diese Korrelationsfunktion mit Hilfe einer sogenannten Hanbury-Brown-Twiss-Anordnung [HB56] bestimmt werden, die schematisch in Abb. 8.5 dargestellt ist. Dabei trifft das zu analysierende Licht zunächst auf einen 50/50-Strahlteiler und wird in zwei äquivalente Anteile zerlegt. Die Photonen dieser beiden Teilstrahlen treffen auf zwei separate Si Lawinen-Photodetektoren (APD¹), die auf sehr geringe Intensitäten zum Nachweis einzelner Photonen optimiert sind. Anschaulich gesprochen werden die Signale dieser beiden Detektoren nun als Start bzw. Stopp-Impuls auf eine Uhr gekoppelt, die somit die zeitliche Differenz zweier auf den Strahlteiler auftreffender Photonen detektiert. Durch die Aufzeichnung einer sehr großen Zahl solcher Einzelmessungen kann die statistische Verteilung der Zeitdifferenzen zwischen zwei aufeinanderfolgenden Photonen gewonnen werden, was ein Maß für die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung darstellt.

Für klassisches Licht wird hierbei ein lokales Maximum bei $\tau = 0$ beobachtet, da die Photonen bevorzugt in Gruppen auftreten, was als *Bunching*² bezeichnet wird. Für ein chaotisches Lichtfeld, wie es von thermischen Lichtquellen emittiert wird, ergibt sich $g^{(2)}(0) = 2$. Für den Grenzfall von $g^{(2)}(0) = 1$ dagegen folgen die Photonen der Poisson-Verteilung, was einem kohärenten Zustand wie in einem Laser entspricht. Diese beiden Fälle folgen aus einer rein klassischen Betrachtung.

Für eine quantenmechanische Betrachtung müssen die Intensität in den entsprechenden Feldoperator überführt und außerdem statt der zeitlichen Mittelung die Erwartungswerte für die Feldzustände herangezogen werden. In der Folge ergibt sich ein weiterer, nicht-klassischer Feldzustand mit $g^{(2)}(0) < 1$. Dieser Fall wird als *Anti-Bunching* bezeichnet, da hierbei die Photonen sowohl zeitlich als auch räumlich tendenziell einen gewissen Abstand voneinander einhalten. Für den Extremfall $g^{(2)}(0) = 0$ ergibt sich ein Feldzustand, der nur ein einzelnes Photon enthält, was beispielsweise bei Einzelphotonenquellen für die Quantenkryptographie angestrebt wird [Ben93].

Die auf diese Weise an einem In_{0,3}Ga_{0,7}As-Quantenpunkt gemessene Photonenstatistik ist in Abb. 8.6 dargestellt. Am Punkt $\tau = 0$ ergibt sich ein Wert der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung von $g^{(2)}(0) = 0,12 \pm 0,08$, was eindeutig dem Bereich des *Anti-Bunching* zuzuordnen ist. Somit rührt die beobachtete Emission unzweifelhaft von einem Quantenemitter her.

¹ Akronym für *Avalanche-Photo-Diode*

² engl. für bündeln

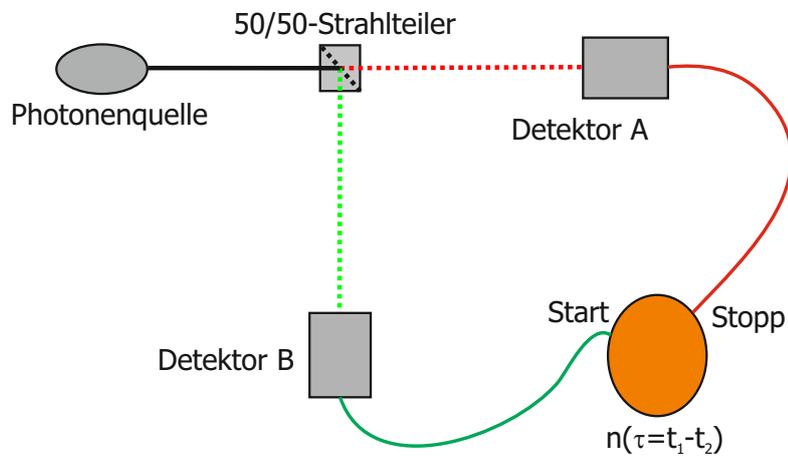


Abbildung 8.5: Schematische Darstellung einer Messanordnung nach Hanbury-Brown und Twiss [HB56] zur Ermittlung der Photonenzustatistik einer beliebigen Lichtquelle.

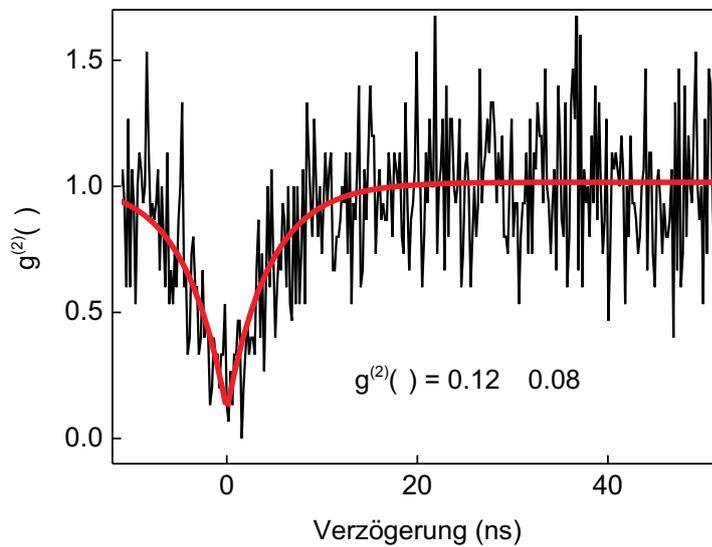


Abbildung 8.6: Photonenzkorrelation zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ aufgenommen an einem $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Quantenpunkt.

Die Abweichung vom idealen Wert 0 erklärt sich durch ein unkorreliertes Hintergrundrauschen, das dem Einzelemitter-Signal überlagert ist. Dieser Anteil ist zum einen auf das Dunkelrauschen der Einzelphotonendetektoren und zum zweiten auf nichtresonante Beiträge anderer Exzitonen zurückzuführen. Die gemessene Korrelationsfunktion $g_B^{(2)}(0)$ ergibt sich aus dem idealen $g^{(2)}(0)$ über

$$g_B^{(2)}(0) = 1 - \rho^2(1 - g^{(2)}(0)), \quad (8.2)$$

wobei $\rho = \frac{S}{S+B}$ dem Verhältnis aus dem reinen Signal S und dem, durch den Hintergrund B , verrauschten Signal $S+B$ entspricht [Bec01]. Aus dem gemessenen Wert $g_B^{(2)}(0) = 0,12$ lässt sich ein Verhältnis von $\rho = 0,94$ bzw. ein Rauschbeitrag der Hintergrundemission von 6% errechnen.

9 Magneto-Optische Untersuchungen zur starken Kopplung

In diesem Kapitel werden spektroskopische Messungen präsentiert, bei denen zum ersten Mal die starke Kopplung in einem Quantenpunkt-Mikroresonator-System unter dem Einfluss eines Magnetfeldes realisiert werden konnte. Dabei wurde zum einen die spektrale Verstimmung, anstelle einer Temperaturvariation oder dem Anlegen eines elektrischen Feldes, über ein Magnetfeld erreicht. Zum zweiten zeigte sich aber auch ein direkter Einfluss des angelegten Feldes auf die intrinsischen Eigenschaften des Quantenpunkt-Exzitons. Auf diese Weise konnte die Oszillatorstärke und damit die Stärke der Kopplung im Quantenpunkt-Mikroresonator-System mit Hilfe des Magnetfeldes von außen eingestellt werden.

9.1 Resonanzverstimmung über Temperaturvariation

Im Jahre 2004 konnte in einem bahnbrechenden Experiment zum ersten Mal die starke Kopplung von einem Exziton und der Resonatormode eines Mikropillars nachgewiesen werden [Rei04]. In diesem Fall wurde mittels einer temperaturabhängigen Messung eine Vakuum-Rabi-Aufspaltung von $140 \mu\text{eV}$ beobachtet. Bei den Emittern handelte es sich um InGaAs-Quantenpunkte mit 30% In-Anteil, da diese durch ihre hohen Oszillatorstärken für Experimente im Regime der starken Kopplung prädestiniert sind. Um diese Untersuchungen unter dem Einfluss eines Magnetfeldes weiter zu führen, musste zunächst ein für die starke Kopplung geeigneter Mikropillar identifiziert werden. Dazu wurden Spektren unter Variation der Temperatur aufgenommen, um das anti-kreuzende Verhalten von Kavitätsmode und Exzitonlinie aufzufinden.

Abb. 9.1 zeigt solch eine Temperaturserie an einem Mikropillar mit $1,6 \mu\text{m}$ Durchmesser und $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Quantenpunkten in der aktiven Schicht. Die Probe wurde dabei mit einer verhältnismäßig geringen Leistung von 500 nW (Leistungsdichte 30 W/cm^2) angeregt und die Temperatur von 11 bis 28 K erhöht. Die Linienbreite der Kavitätsmode betrug $120 \mu\text{eV}$, was einem Q-Faktor von $11\,000$ entspricht. Bei der tiefsten Temperatur befindet sich das Exziton (X) energetisch $220 \mu\text{eV}$ oberhalb der Resonatormode (C). Mit steigender Temperatur nähert es sich an die Kavität an,

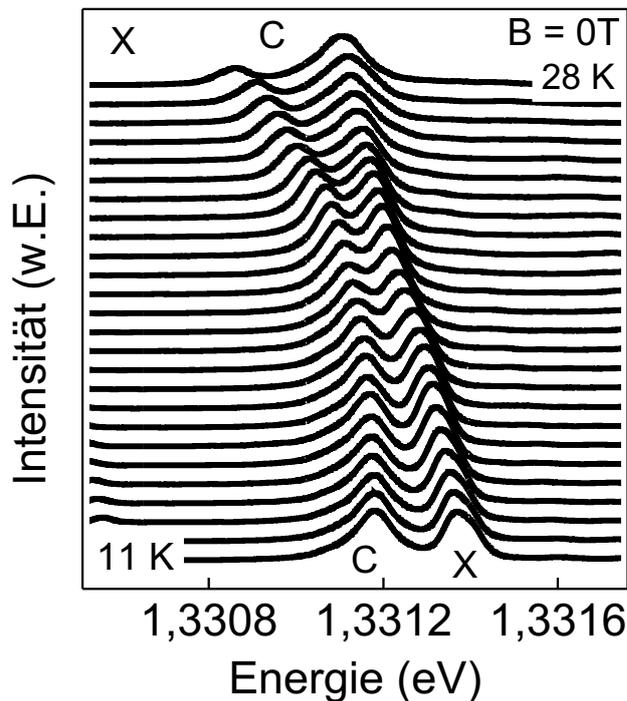


Abbildung 9.1: Resonanzverstimmung über Variation der Temperatur zwischen einem $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Quantenpunkt und einem $1,6 \mu\text{m}$ Mikropillar. Temperaturabhängige Spektren von 11 bis 28 K mit Kavitätsmode (C) und Exziton (X).

bis bei 21 K die Resonanz erreicht wird. Bei 28 K liegt die Exzitonlinie $250 \mu\text{eV}$ unterhalb der Kavitätsmode. Im Bereich der Resonanz ist deutlich das anti-kreuzende Verhalten der beiden Linien zu erkennen, was als klares Indiz für die kohärente Licht-Materie-Wechselwirkung gilt.

Eine Anpassung der Linien mit Lorentzkurven führt auf die in Abb. 9.2a) dargestellte Energiedispersion. Die gestrichelte rote Linie gibt dabei den gedachten Verlauf der Linien ohne Wechselwirkung an. Im Bereich der Resonanz sind die beiden Linien ununterscheidbar und tauschen ihre Eigenschaften aus. Dies äußert sich in identischen Linienbreiten, wie in Abb. 9.2b) gezeigt, aber auch in gleichen Intensitäten der beiden Linien (hier nicht aufgeführt). Dieser Austausch sämtlicher Eigenschaften im Bereich der Resonanz ist ein wichtiges Indiz für das tatsächliche Vorliegen eines verschränkten Zustandes als Kennzeichen der starken Kopplung. Die nähere Auswertung ergibt im Bereich der Resonanz eine Vakuum-Rabi-Aufspaltung von $105 \mu\text{eV}$ (bei 0 T). Daraus lässt sich über Gleichung (6.17) eine Kopplungskonstante g von $61 \mu\text{eV}$ errechnen.

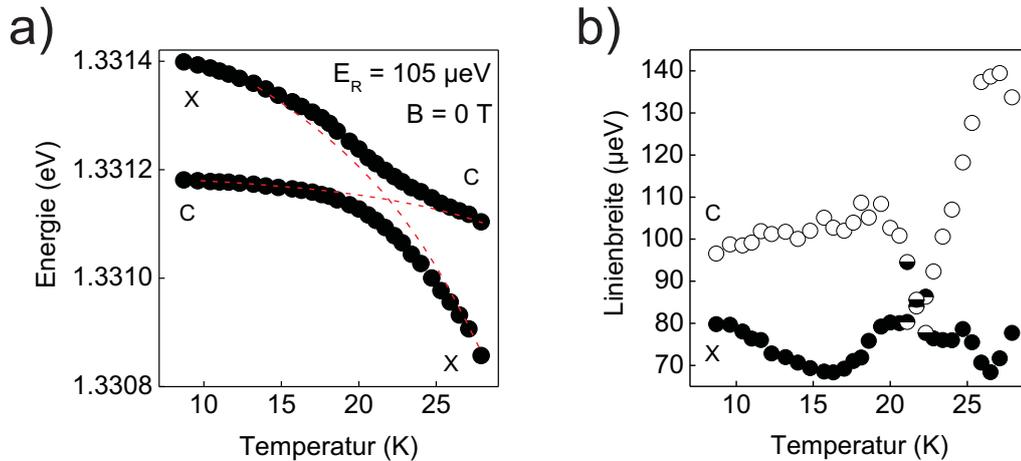


Abbildung 9.2: Resonanzverstimmung über Variation der Temperatur zwischen einem $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Quantenpunkt und einem $1,6 \mu\text{m}$ Mikropillar. a) Energiedispersion der Temperaturserie nach Anpassung der Linien mit Lorentzprofilen. b) Zugehörige Linienbreiten.

9.2 Resonanzverstimmung über diamagnetische Verschiebung

Da sich das Exziton bei 28 K energetisch unterhalb der Kavitätsmode befindet, kann es mit Hilfe des Magnetfeldes bei konstanter Temperatur in umgekehrter Richtung erneut durch die Resonanz gestimmt werden. An dieser Stelle muss angemerkt werden, dass für diese Messungen gezielt ein Exziton mit vernachlässigbarer Zeeman-Aufspaltung ausgewählt wurde. Das geschah, um größtmögliche Klarheit und Übersichtlichkeit bei der Darstellung und bei der Auswertung der Daten zu gewährleisten. Wenn nun bei einer konstanten Temperatur von 28 K das magnetische Feld von 0 T erhöht wird, erfährt das Exziton eine Blauverschiebung und tritt bei 2,75 T erneut in Resonanz mit der Kavitätsmode, dargestellt in Abb. 9.3.

Wieder wird ein deutliches Anti-Kreuzen der beiden Linien beobachtet, was auch in diesem Fall auf die starke Kopplung hindeutet. Eine Anpassung der Linien mit Lorentzprofilen ergibt die in Abb. 9.4 dargestellten Verläufe. Während die Resonatormode vom Magnetfeld nicht beeinflusst wird und ihre spektrale Position beibehält, weist das Exziton eine Blauverschiebung von $720 \mu\text{eV}$ zwischen 0 und 5 T auf. Dies entspricht einem diamagnetischen Koeffizienten κ von $29 \mu\text{eV}/\text{T}^2$, in guter Übereinstimmung mit den Resultaten aus Kapitel 8 (vgl. Abb. 8.2). Die Analyse der Linienbreiten zeigt wieder eine Ununterscheidbarkeit der beiden Linien im Bereich der Resonanz auf und lässt somit auf die starke Kopplung schließen. Aus Abb. 9.4a) ergibt sich in der Resonanz bei 2,75 T eine Vakuum-Rabi-Aufspaltung von $95 \mu\text{eV}$, was nach Gleichung (6.17) einer Kopplungskonstante g von $56 \mu\text{eV}$ entspricht. Dieser Wert ist etwas kleiner als die bei 0 T gemessene Vakuum-Rabi-Aufspaltung und

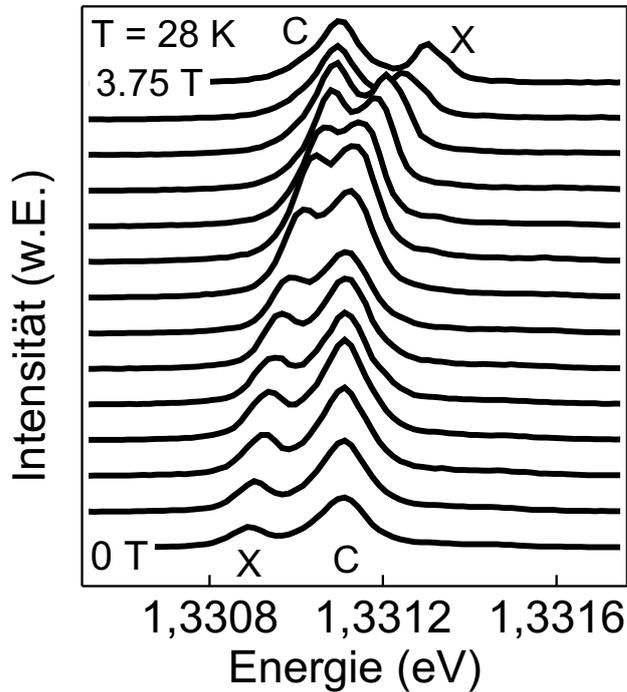


Abbildung 9.3: Resonanzverstimmung mit Hilfe des magnetischen Feldes zwischen einem $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Quantenpunkt und einem $1,6\ \mu\text{m}$ Mikropillar. Magnetfeldabhängige Spektren von 0 bis 3,75 T mit Kavitätsmode (C) und Exziton (X).

deutet daher auf eine Abhängigkeit der Vakuum-Rabi-Aufspaltung vom angelegten Magnetfeld hin. Aus diesem Grund wurde die Vakuum-Rabi-Aufspaltung im Folgenden gezielt unter Variation des Magnetfeldes untersucht.

9.3 Abhängigkeit der Kopplungsstärke vom Magnetfeld

Um den Zusammenhang zwischen der Vakuum-Rabi-Aufspaltung und dem angelegten Magnetfeld näher zu ergründen, wurden Temperaturserien bei verschiedenen magnetischen Flussdichten aufgenommen. Von diesen Messungen sind in Abb. 9.5a) auszugsweise nur die jeweiligen normierten Spektren in Resonanz gezeigt. Dabei fällt auf, dass die Resonanz mit wachsendem Feld bei immer höheren Temperaturen auftritt. Bei 0 T liegt die Resonanz bei 19 K vor und bei 5 T ist diese bis auf 36 K gewandert. Dies ist der unweigerlich auftretenden diamagnetischen Verschiebung geschuldet. Um im Experiment die Resonanz bei steigendem Magnetfeld aufrecht zu erhalten, muss dies durch eine entsprechende Rotverschiebung mittels Anpassung der Temperatur während der Messung kompensiert werden. Darüber hinaus fällt in Abb. 9.5a) auf, dass sich die Vakuum-Rabi-Aufspaltung fortwährend mit zunehmen-

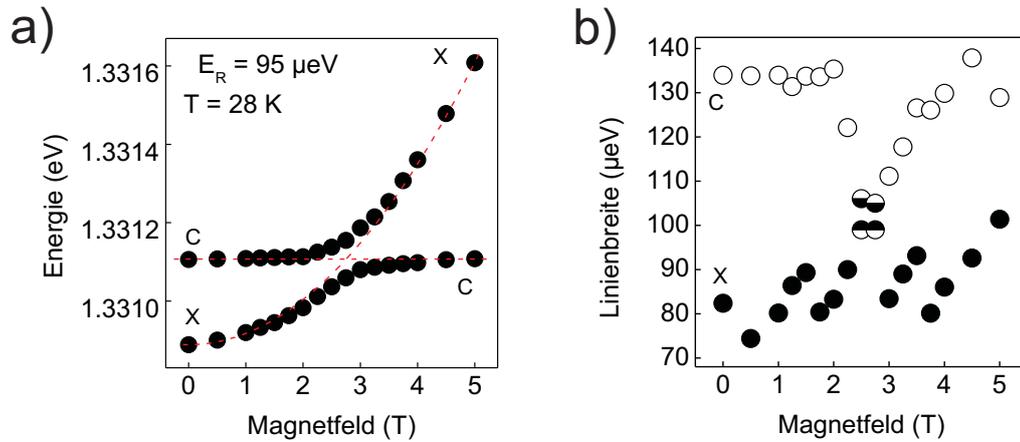


Abbildung 9.4: Resonanzverstimmung mit Hilfe des magnetischen Feldes zwischen einem $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Quantenpunkt und einem $1,6 \mu\text{m}$ Mikropillar. a) Energiedispersion der Magnetfeldserie nach Anpassung der Linien mit Lorentzprofilen. b) Zugehörige Halbwertsbreiten der Spektrallinien.

dem Magnetfeld verringert bis bei ungefähr 3,5 T nur noch eine einzelne breite Linie zu erkennen ist. Dieser Effekt wird im Folgenden näher analysiert.

9.3.1 Verringerung der Aufspaltung im Magnetfeld

Nach einer Lorentz-anpassung der Spektren aus Abb. 9.5a) können die ermittelten Aufspaltungen wie in Abb. 9.5b) über das angelegte Magnetfeld aufgetragen werden. Anhand der schwarzen Punkte ist zu erkennen, dass die Vakuum-Rabi-Aufspaltung für kleine Magnetfelder zunächst nur leicht abnimmt. Sie sinkt von den anfänglichen $105 \mu\text{eV}$ bei 0 T auf ungefähr $100 \mu\text{eV}$ bei 3 T ab. Oberhalb dieser Feldstärke nimmt der Abfall signifikant zu und für 5 T beträgt die Vakuum-Rabi-Aufspaltung nur noch $66 \mu\text{eV}$. Da nun die Kopplungskonstante über Gleichung (6.17) direkt von der Vakuum-Rabi-Aufspaltung abhängt, verhält sie sich im Magnetfeld analog. Daraus folgt, dass sich die Stärke der Kopplung zwischen Exziton und Resonatormode *in situ* durch den äußeren Parameter der magnetischen Flussdichte steuern lässt.

Mit Hilfe von Gleichung (6.17) ergibt sich quantitativ der in Abb. 9.5b) in rot dargestellte Verlauf der Kopplungskonstanten. Dabei fällt g wie vorher zunächst schwach von 60 auf $58 \mu\text{eV}$ zwischen 0 und 3 T ab, um dann stärker einzubrechen bis auf $44 \mu\text{eV}$ bei 5 T. Die Grenzbedingung der starken Kopplung ergibt sich nach Gleichung (6.17) bei einer Linienbreite der Resonatormode von $\gamma_c = 120 \mu\text{eV}$ zu $g_{th} = \gamma_c/4 = 30 \mu\text{eV}$. Obwohl sich das System nach diesem Kriterium zu jeder Zeit noch klar im Bereich der starken Kopplung befindet, nähert es sich doch für das maximale Magnetfeld deutlich dieser Grenze an. In diesem Zusammenhang sollte

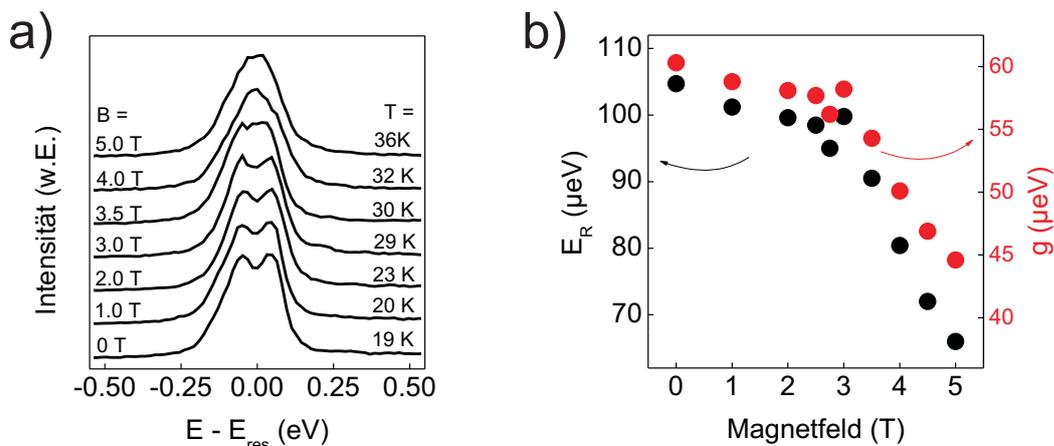


Abbildung 9.5: Resonanzverhalten unter Variation des Magnetfeldes. a) Normierte Spektren für den Augenblick der Resonanz von 0 bis 5 T. b) Zugehörige Vakuum-Rabi-Aufspaltung (schwarz) und errechnete Kopplungskonstante (rot) in Abhängigkeit des Magnetfeldes.

anmerkend erwähnt werden, dass sich auch die homogene Linienbreite des Exzitons γ_x durch stärkere Dephasierungsprozesse im Zusammenhang mit dem Anstieg der Resonanztemperatur erhöht [Bay02], was sich im Prinzip wiederum nach (6.17) auf die Vakuum-Rabi-Aufspaltung auswirkt. Im hier untersuchten Temperaturbereich ist γ_x aber in jedem Falle deutlich kleiner als die Linienbreite der Resonanzmode $\gamma_c = 120 \mu\text{eV}$, so dass sich nach Gleichung (6.17) nur ein geringer Einfluss auf die Vakuum-Rabi-Aufspaltung ergibt.

9.3.2 Einfluss des Magnetfeldes auf die Oszillatorstärke

Als eigentliche Ursache für die Verringerung der Kopplungskonstante g im Magnetfeld wird die Oszillatorstärke f angesehen, die mit wachsendem Feld kleiner wird. Nach Gleichung (6.14) besteht ein direkter Zusammenhang zwischen g und f . Da sich in der Realität, anders als in (6.14) angenommen, der Emitter nicht zwangsweise genau im Zentrum der Kavität befindet, kann aus der Kopplungskonstante eine effektive Oszillatorstärke f_{eff} berechnet werden, die in Abb. 9.6 über das Magnetfeld aufgetragen ist. Diese effektive Oszillatorstärke ist als Abschätzung für die untere Grenze der tatsächlichen Oszillatorstärke des Exzitons anzusehen, da sich der Quantenpunkt im Allgemeinen nicht im Maximum des Feldes und damit an für die Kopplung optimaler Position befindet.

Bei 0 T ergibt sich eine effektive Oszillatorstärke von 46, vergleichbar mit dem Wert 50, der im ersten Experiment zur starken Kopplung im Jahr 2004 [Rei04] an einem nominell gleichen Quantenpunkt-Resonatorsystem erreicht wurde. Ober-

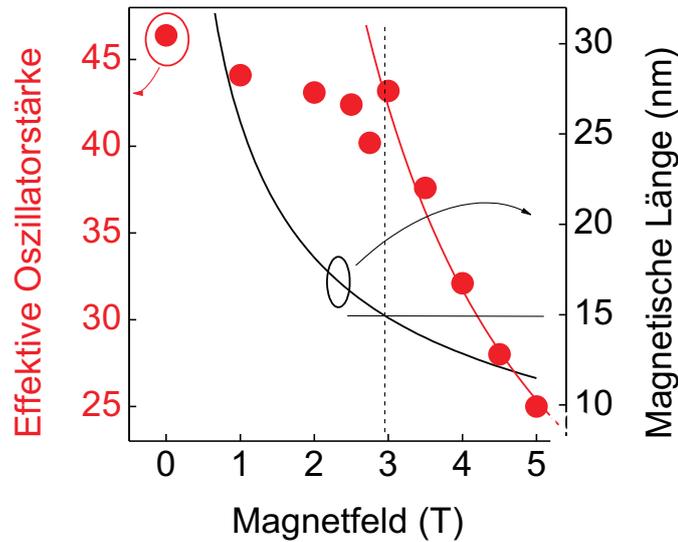


Abbildung 9.6: Effektive Oszillatorstärke (rot) und magnetische Länge (schwarz) in Abhängigkeit des Magnetfeldes.

halb einer Flussdichte von 3 T bricht die Oszillatorstärke wiederum stark ein bis auf einen Wert von ungefähr 25 bei 5 T. Um dieses Verhalten der Oszillatorstärke im Magnetfeld zu verstehen, muss man sich zunächst vor Augen führen, worin diese vergleichsweise großen Oszillatorstärken in elongierten $\text{In}_{0,30}\text{Ga}_{0,70}\text{As}$ -Quantenpunkten überhaupt begründet liegen.

Zunächst muss zwischen zwei verschiedenen Regimen des Ladungsträgereinschlusses unterschieden werden: bei schwachem Einschluss in großen Quantenpunkten ist die Aufspaltung der Energieniveaus im Quantenpunkt kleiner als die Coulomb-Wechselwirkung des Elektron-Loch-Paares. Bei starkem Ladungsträgereinschluss, wie er in kleinen InAs-Quantenpunkten vorherrscht, verhält sich dies genau umgekehrt und der Zustand des Exzitons kann beschrieben werden als Produkt aus zwei Wellenfunktionen für Elektron und Loch, die voneinander unabhängig sind [Han88]. Nach Andreani *et al.* [And99] existiert für diesen Fall eine theoretische obere Grenze der Oszillatorstärke in reinen InAs-Quantenpunkten von 18,5. Durch die Anisotropie in realen Quantenpunkten und dem damit einhergehenden kleineren Überlapp von Elektron- und Lochwellenfunktion reduziert sich die erwartete Oszillatorstärke weiter. Unter diesen Voraussetzungen wäre der Bereich der starken Kopplung nicht erreichbar.

Die Tatsache, dass in den hier untersuchten Strukturen signifikant höhere Oszillatorstärken auftreten und damit die starke Kopplung doch realisierbar wird, lässt sich auf die große laterale Ausdehnung der Quantenpunkte mit 30% In-Anteil zurückführen. In diesem Fall liegt ein schwacher Ladungsträgereinschluss vor und der Überlapp der Einhüllenden von Elektron- und Lochwellenfunktion ist groß. Dar-

über hinaus ist neben der großen lateralen Ausdehnung der Quantenpunkte auch ein homogener Aufbau in der Materialzusammensetzung nötig, so dass es nicht zur Ausbildung von lokalen Potentialminima und damit zu unerwünschter Lokalisierung der Exzitonen im Quantenpunkt kommt. Durch diesen Effekt beobachteten Stobbe *et al.* [Sto10] nur eine relativ geringe Oszillatorstärke trotz der großen lateralen Ausdehnung der untersuchten $\text{In}_{0,30}\text{Ga}_{0,70}\text{As}$ -Quantenpunkte. Die Voraussetzung einer stark ausgeprägten Isotropie im Quantenpunkt stellt also besondere Anforderungen an den Wachstumsprozess der untersuchten Strukturen. Dadurch wird die große Flächenausdehnung der Wellenfunktionen und die in Kapitel 6.1 beschriebene quantisierte Schwerpunktsbewegung des Exzitons erst ermöglicht.

Mit Hilfe dieser Überlegungen wird das Verhalten der Oszillatorstärke im Magnetfeld und insbesondere der starke Abfall oberhalb von 3 T anschaulich klar. Solange bei kleinen Feldern die magnetische Länge, definiert als $l_{mag} = \sqrt{\hbar/eB}$, noch größer als die oben berechnete Ausdehnung der Exzitonen-Wellenfunktionen $2\sqrt{\langle \rho_{e,h}^2 \rangle}$ ist, hat das angelegte Magnetfeld noch keinen nennenswerten Einfluss auf die laterale Ausdehnung des Exzitons und damit auf die Oszillatorstärke. Zur Verdeutlichung ist die magnetische Länge in Abb. 9.6 ergänzend in schwarz eingezeichnet. Oberhalb von 3 T unterschreitet l_{mag} nun die mit Hilfe der diamagnetischen Verschiebung ermittelte laterale Ausdehnung des Exzitons von 15 nm, d.h. die Wellenfunktion wird durch das Feld „gestaucht“ und im Potentialminimum im Quantenpunkt lokalisiert. In der Folge sinkt die effektive Oszillatorstärke ab.

Der gemessene Verlauf oberhalb von 3 T kann mit Hilfe folgender Überlegungen auch quantitativ nachvollzogen werden: die Oszillatorstärke des Exzitons hängt direkt von der durch die Elektron- und Lochwellenfunktionen aufgespannten Fläche ab. Diese wiederum stellt sich in Abhängigkeit des Magnetfelds oberhalb von 3 T dar als $A_{mag} = \pi l_{mag}^2/4$. Mit einer angenommenen Oszillatorstärke von 12 für $l_{mag} = 7$ nm [War97, And99] ergibt sich der in Abb. 9.6 als rote Linie eingezeichnete Verlauf, der im Rahmen dieses einfachen Modells die experimentell ermittelten Werte sehr gut reproduziert. Die angenommene Oszillatorstärke von 12 bei einer Ausdehnung von $l_{mag} = 7$ nm ist dabei in guter Übereinstimmung mit den oben gemessenen und aus der Literatur [And99] bekannten Werten für häufig eingesetzte $\text{In}_{0,60}\text{Ga}_{0,40}\text{As}$ -Quantenpunkte.

9.3.3 Nachweis über zeitaufgelöste Messungen

Um die Interpretation der durch das Magnetfeld verringerten Oszillatorstärke noch zusätzlich zu untermauern, wurden darüber hinaus zeitaufgelöste Messungen durchgeführt, aus denen nähere Informationen über die Dynamik der Ladungsträger in $\text{In}_{0,30}\text{Ga}_{0,70}\text{As}$ -Quantenpunkten und die Lebensdauern der Exzitonen τ_x in Abhängigkeit des magnetischen Feldes gewonnen werden können. Dazu wurde an einem pla-

naren Probenstück zunächst der obere Bragg-Spiegel abgeätzt, um den Einfluss des Resonators auf die gemessenen Lebensdauern zu unterbinden (vgl. Purcell-Effekt). Anschließend wurden noch mittels Elektronenstrahlolithographie und trocken-chemischem Ätzen Mesa-Strukturen auf der Probe definiert, um gezielt einzelne Quantenpunkte spektroskopisch untersuchen zu können. Die spektrale Selektion einer einzelnen Exzitonlinie bei den zeitaufgelösten Messungen wurde durch eine Verkleinerung des Ausgangsspalt am Spektrometer auf $100\ \mu\text{m}$ erreicht. Dies ergibt eine Bandbreite von ungefähr $1\ \text{meV}$ im relevanten Spektralbereich.

Die auf diese Weise gemessene Zerfallskurve eines $\text{In}_{0,30}\text{Ga}_{0,70}\text{As}$ -Quantenpunktes mit einem diamagnetischen Koeffizienten von $\kappa = 28\ \mu\text{eV}/\text{T}^2$ (und somit vergleichbarer Größe bezüglich der vorherigen Messungen) ist in Abb. 9.7 für $B = 0$ gezeigt. Die Intensität der optischen Anregung in die Benetzungsschicht betrug hier $1\ \mu\text{W}$ bzw. $60\ \text{W}/\text{cm}^2$. In logarithmischer Darstellung ist zu erkennen, dass das PL-Signal nach dem Zeitpunkt der maximalen Anregung $t = 0$ linear abfällt. Grundsätzlich setzt sich die Lebensdauer τ aus einem strahlenden τ_{rad} und einem nicht-strahlenden τ_{nr} Anteil zusammen: $\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{rad}} + \frac{1}{\tau_{nr}}$. Daraus ergibt sich im Allgemeinen ein bi-exponentieller Abfall des PL-Signals, was sich in logarithmischer Darstellung in einem linearen Verlauf mit zwei verschiedenen Steigungen äußert. Bei Quantenpunkten von hoher Qualität (mit hohen Oszillatorstärken) ist allerdings die strahlende Lebensdauer sehr viel kleiner als die nicht-strahlende ($\tau_{rad} \ll \tau_{nr}$), so dass sich insgesamt $\frac{1}{\tau} \approx \frac{1}{\tau_{rad}}$ ergibt. Eine Anpassung dieses mono-exponentiellen Zerfalls mit der Funktion $I(t) = I(0) \cdot e^{-t/\tau}$ liefert so die Lebensdauer τ . Diese wurde hier für $B = 0$ zu $(355 \pm 4)\ \text{ps}$ bestimmt. Für die Messungen unter dem Einfluss des Magnetfeldes wurde analog verfahren.

Die so gemessenen Lebensdauern sind zusammenfassend in Abhängigkeit des magnetischen Feldes in Abb. 9.8 dargestellt. Für kleine Magnetfelder bewegt sich die Lebensdauer im Bereich von $350\ \text{ps}$ und oberhalb $3\ \text{T}$ steigt sie stark bis auf ungefähr $600\ \text{ps}$ an. Da die Oszillatorstärke und die Lebensdauer indirekt proportional sind ($f \propto 1/\tau$) [And91], ergibt sich mit dem Fixpunkt $\tau = 1,3\ \text{ns}$ und $f = 10,7$ aus [And99] der in Abb. 9.8 in schwarz dargestellte Verlauf. Zum Vergleich ist in rot die aus der Vakuum-Rabi-Aufspaltung im Experiment direkt errechnete Oszillatorstärke zur Graphik hinzugefügt und zeigt eine gute Übereinstimmung. Dieser Umstand bestätigt die Interpretation, dass die Kopplungsstärke *in situ* vom Magnetfeld kontrolliert wird, indem das Feld auf die Oszillatorstärke der Exziton bei diesen großen InGaAs-Quantenpunkten mit 30% In-Anteil direkt einwirkt.

Der Nachweis, dass über ein angelegtes magnetisches Feld die Kopplungsstärke des Quantenpunkt-Mikroresonator-Systems bewusst beeinflusst werden kann, ist natürlich zunächst von grundlegendem naturwissenschaftlichen Interesse. Darüber hinaus bietet dieser Effekt aber sicherlich auch großes Potential hinsichtlich zukünft-

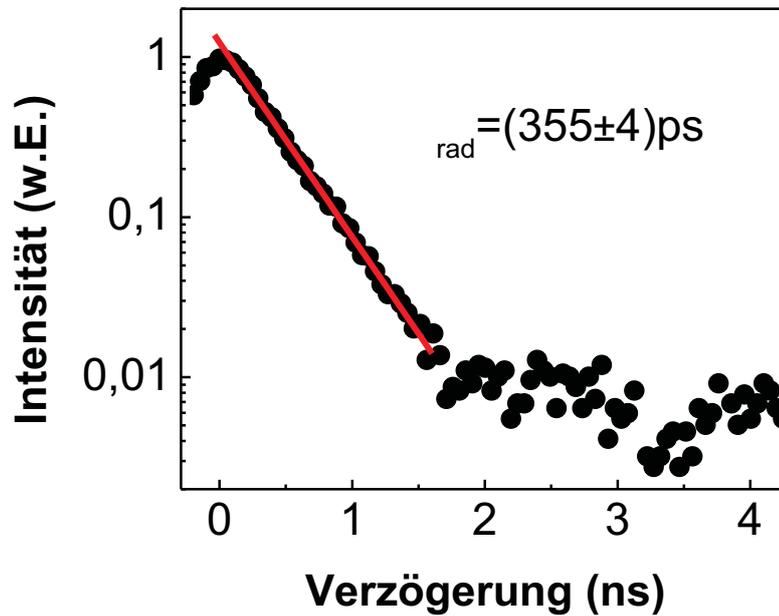


Abbildung 9.7: Zeitlicher Verlauf der PL-Emission eines Exzitons in einem $\text{In}_{0,30}\text{Ga}_{0,70}\text{As}$ -Quantenpunkt. Die exponentielle Anpassung (rot) ergibt unter Vernachlässigung nicht-strahlender Rekombinationsprozesse eine strahlende Lebensdauer von (355 ± 4) ps.

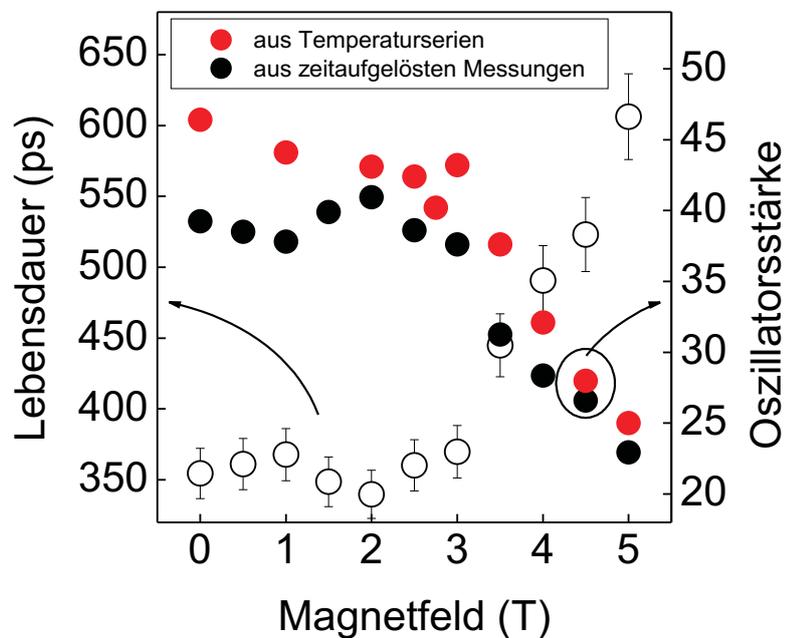


Abbildung 9.8: Lebensdauer des Exzitons (weiß) und aus der Vakuump-Rabi-Aufspaltung bestimmte (rot) bzw. aus zeitaufgelösten Messungen errechnete (schwarz) Oszillatorstärke in Abhängigkeit des Magnetfeldes.

tiger Anwendungen etwa im Bereich der Quanteninformationsverarbeitung. Dadurch könnte beispielsweise die Erzeugung eines verschränkten Zustandes eingeleitet bzw. die Verschränkung eines Zustandes wieder aufgehoben werden.

10 Kopplung zweier Photonenzustände über Exzitonen-Spins

Grundsätzlich bietet die starke Kopplung die Möglichkeit einer Verknüpfung zwischen den diskreten Zuständen eines Quantenemitters und den Polarisationszuständen eines Photons, eines sogenannten fliegenden Qubits. Zwei-Niveau-Systeme wie Exzitonen oder Spins, die kohärent an die optischen Moden eines Mikroresonators koppeln, werden so zu fundamentalen Bausteinen für die Quanteninformationsverarbeitung [Cir97, Ima97]. Wenn nun zwei Spinzustände über das Vakuumfeld eines optischen Resonators miteinander in Wechselwirkung treten können, so lässt sich daraus ein 2-Qubit-Gatter realisieren, das für logische Operationen benötigt wird [Ima99]. Darüber hinaus existieren auch Konzepte, wie zwei räumlich getrennte Spinzustände in Verbindung mit einer Kopplung über das optische Feld zur Quantenkommunikation bzw. zum sogenannten Quantencomputing genutzt werden können [Yao05, Dua04].

Im Rahmen dieser Arbeit konnte nun erstmals eine Kopplung zweier Photonenzustände mittels des Exzitonenspins gezeigt werden. Im Hinblick auf die o. g. Ziele in der Quanteninformationsverarbeitung sind derartige Experimente von großem grundlegenden Interesse.

10.1 Starke Kopplung ohne Magnetfeld

Nachdem für die bisherigen Experimente gezielt Quantenpunkte ohne messbare Zeeman-Aufspaltung ausgewählt worden waren, wurde im Folgenden die starke Kopplung zwischen den zwei aufgespaltenen Spinkomponenten eines Quantenpunkt-Exzitons und zwei linear polarisierten Moden des Mikropillar-Resonators untersucht. Der Grund für die spektrale Aufspaltung der Exzitonlinien ist der bereits diskutierte Zeeman-Effekt, wohingegen die Aufspaltung der Resonatormode in zwei linear polarisierte Komponenten in einer leichten Elliptizität des Mikroresonators begründet liegt.

Aufspaltung der Resonatormoden durch Elliptizität des Mikropillars

Bei einem idealen Mikroresonator mit einer kreisrunden Querschnittsfläche erscheint die Grundmode als eine einzige Emissionslinie. Diese Linie ist energetisch zweifach

entartet, da keine Raumrichtung ausgezeichnet und somit die links- und rechtzirkularen Polarisationsrichtungen äquivalent sind. Die Energie für einen runden Resonator mit perfekt reflektierenden Seitenflächen stellt sich dar als:

$$E_{zirk} = \sqrt{E_0^2 + \frac{\hbar^2 c^2}{\epsilon} \frac{x_{n_\phi, n_r}^2}{R^2}} \quad (10.1)$$

E_0 ist hierbei die Emissionsenergie des planaren Resonators, R der Radius des Mikropillars und x_{n_ϕ, n_r} die n_r -te Nullstelle der Besselfunktion $J_{n_\phi}(x_{n_\phi, n_r}^2 r/R)$. Wenn nun aber die Querschnittsfläche des Resonators in der Realität vom perfekten Kreis abweicht und leicht elliptisch verzerrt ist, so liegt ein Bruch der Symmetrie vor. Dies kann von minimalen Abweichungen bei der Belichtung der Strukturen in der Elektronenstrahl-Lithographie herrühren. Somit ist die energetische Entartung aufgehoben und es werden zwei orthogonale, linear polarisierte Moden beobachtet [Gay98].

Eine Entwicklung von Gleichung (10.1) bis zur ersten Ordnung in $R + \Delta R$ [Rei07] ergibt für die Grundmode mit $(n_\phi, n_r, 0) = (1, 0, 0)$:

$$E_{ellip} \approx E_{zirk} - \frac{1}{E_{zirk} R^3} \frac{\hbar^2 c^2}{\epsilon} x_{1,0}^2 \Delta R \quad (10.2)$$

Für eine typische Aufspaltung von $50 \mu\text{eV}$ bei den hier untersuchten Mikroresonatoren mit einem Durchmesser von $1,6 \mu\text{m}$ erhält man eine Abweichung ΔR von ungefähr $1,9 \text{ nm}$. Dies entspricht einer Elliptizität $\varepsilon = (\Delta R/R + 1)^{1/2} - 1$ von nur $5,9 \times 10^{-4}$. Trotz der beobachteten Aufspaltung der Grundmode verdeutlicht dieser geringe Wert die bemerkenswerte Präzision in der Herstellung der Mikroresonatoren.

Die Existenz von jeweils zwei Komponenten der Resonatormode und des Quantenpunkt-Exzitons ist Voraussetzung für die folgenden Experimente zur starken Kopplung. Zunächst wurden polarisationsaufgelöste PL-Messungen, wie in Abb. 10.1 dargestellt, durchgeführt. Dabei bestätigte sich die erwartete lineare Polarisation der beiden Komponenten der Resonatormode. Eine Anpassung mit Lorentzkurven ergibt für die Kavitätsmode eine Linienbreite von ungefähr $90 \mu\text{eV}$ für beide Komponenten. Dies entspricht jeweils einem Q-Faktor von $15\,000$. Die energetische Aufspaltung beträgt $\alpha \approx 50 \mu\text{eV}$. Die Linie des Exzitons, hier mit X bezeichnet, besteht ebenfalls aus zwei Komponenten, die in dieser Abbildung nur schlecht aufgelöst werden können. Die Anpassung mit Lorentzprofilen ergibt eine Feinstrukturaufspaltung auf-

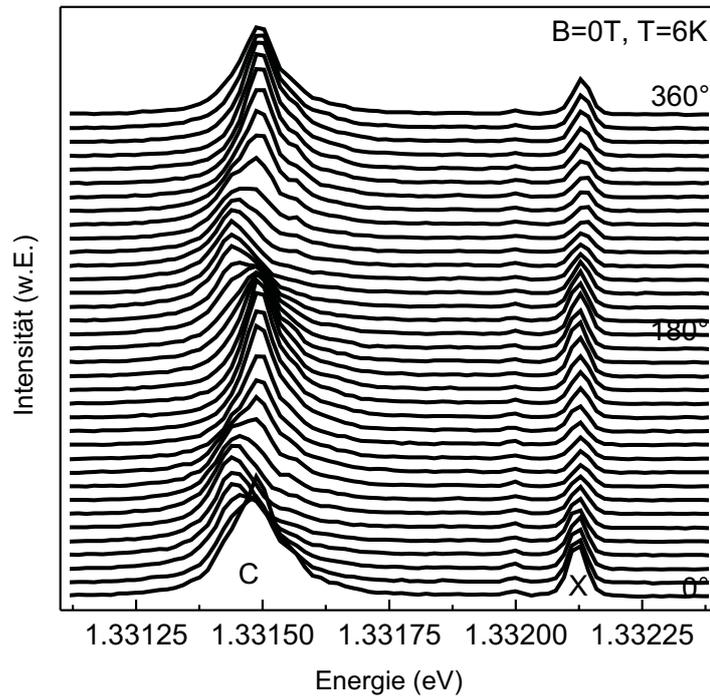


Abbildung 10.1: Polarisationsabhängige Spektren aufgenommen bei 0 T und 6 K. Die Kavitätsmode (C) verschiebt dabei um ungefähr $50 \mu\text{eV}$, die spektrale Änderung der Exzitonenmode (X) liegt in der Größenordnung eines Pixelabstandes von ca. $20 \mu\text{eV}$.

grund der Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung [Tak00, Seg05] von $\beta \approx 20 \mu\text{eV}^1$ und Linienbreiten von $36 \mu\text{eV}$.

In Abb. 10.2 wurde in Abwesenheit des Magnetfeldes das Exziton über eine Temperaturverstimung in Resonanz mit der Kavitätsmode gebracht. Bei dem ausgewählten Mikropillar liegt das Exziton bei 11 K energetisch oberhalb der Kavitätsmode, so dass die Linien mittels Temperaturverstimung in Resonanz gebracht werden können. Im Fall der Resonanz bei 15 K ist deutlich das für die starke Kopplung typische Anti-Kreuzen erkennbar. Die Anpassung der Spektren ergibt eine Vakuum-Rabi-Aufspaltung von $87 \mu\text{eV}$ im Bereich der Resonanz und für $B = 0$.

10.2 Starke Kopplung im Magnetfeld

Im Folgenden wurden Temperaturserien am selben Quantenpunkt-Mikropillar-System unter Einfluss eines Magnetfeldes durchgeführt. Hier wird gewissermaßen exem-

¹ Die Feinstrukturaufspaltung betrug ungefähr einen Pixelabstand, was bei diesem Messaufbau $17 \mu\text{eV}$ entspricht.

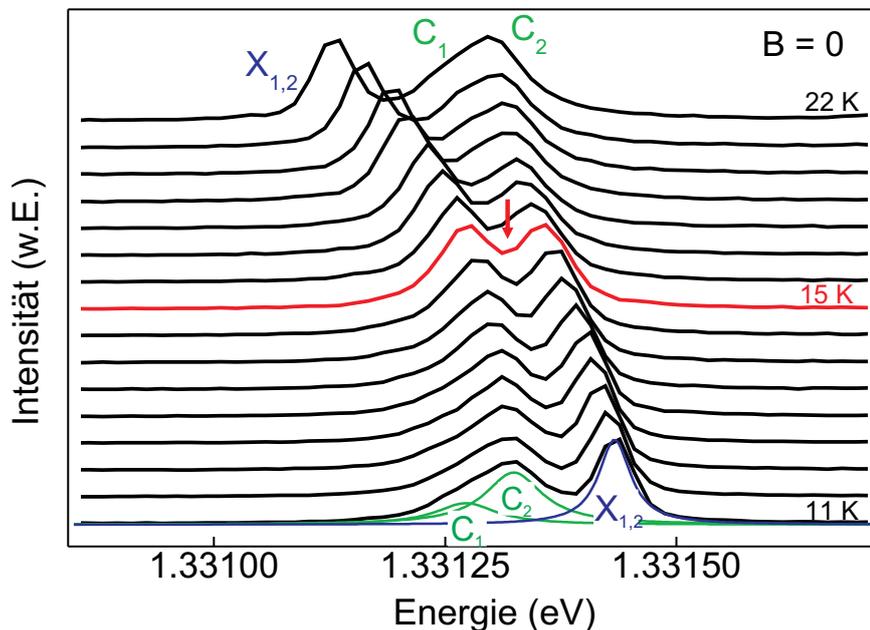


Abbildung 10.2: Resonanzverstimmung über Variation der Temperatur von 11 bis 22 K zwischen einem $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Quantenpunkt und einem $1,6 \mu\text{m}$ Mikropillar. Die Kavitätsmode ist dabei in zwei orthogonale Komponenten aufgespalten (C_1, C_2).

plarisches nur die Messung bei einer mittleren Flussdichte von 3 T gezeigt. Im nächsten Abschnitt wird dann das Verhalten des Systems unter Variation des magnetischen Feldes diskutiert.

Die gemessenen Daten sind in Abb. 10.3 wiedergegeben. Aus dem ersten Spektrum bei 20 K wird ersichtlich, dass es sich in diesem Fall um die Wechselwirkung von vier Linien handelt. Zum einen ist die Kavitätsmode aufgrund der leichten Elliptizität des Resonators um $\alpha \approx 50 \mu\text{eV}$ in zwei Komponenten aufgespalten, zum zweiten erfährt die Exzitonenlinie neben der vorhandenen Feinstrukturaufspaltung von $20 \mu\text{eV}$ auch noch eine Aufspaltung im Magnetfeld durch den Zeeman-Effekt. Diese beträgt $117 \mu\text{eV}$ bei 3 T, was einem Landé g_L -Faktor von $g_L = 0,66$ entspricht.

Darüber hinaus beeinflusst das magnetische Feld auch die Polarisations-eigenschaften der zwei spektralen Komponenten des Exzitons, was später noch ausführlicher diskutiert wird. Nebenbei sei bemerkt, dass eine Messung unter Variation des Magnetfeldes bei konstanter Temperatur einen diamagnetischen Koeffizienten für das Exziton von $\kappa = 22 \mu\text{eV}/T^2$ ergeben hat. Unter Beachtung der Ergebnisse aus Kapitel 8 lässt sich daraus auf einen länglichen InGaAs-Quantenpunkt schließen, dessen Exzitonen-Wellenfunktion deutlich geringer ausgedehnt ist als die des in Kapitel 9 untersuchten Quantenpunktes. Dieser zeigte mit $\kappa = 29 \mu\text{eV}/T^2$ ab einem Magnetfeld von etwa 3 T eine Beeinflussung seiner Oszillatorstärke durch das angelegte

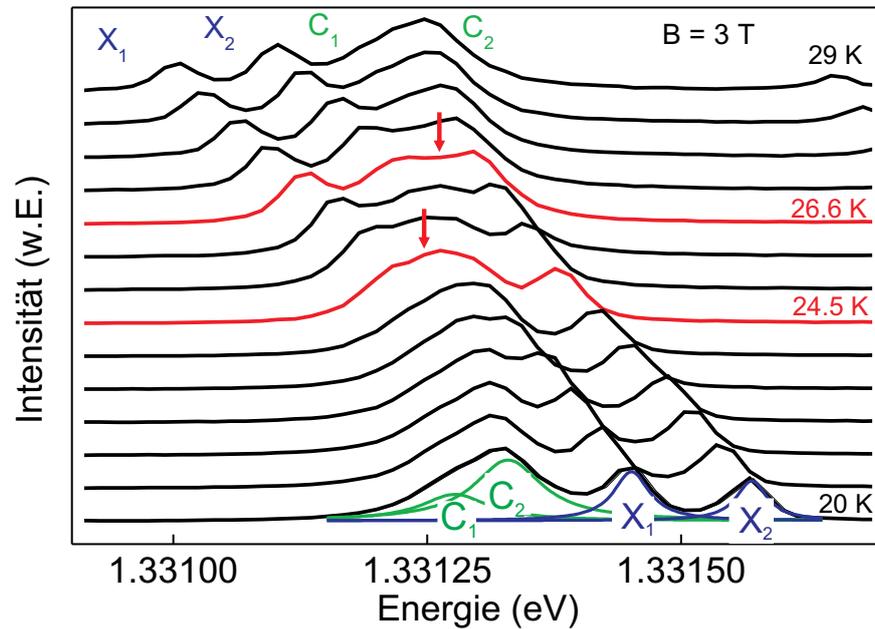


Abbildung 10.3: Resonanzverstimmung über Variation der Temperatur von 20 bis 29 K zwischen einem $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}$ -Quantenpunkt und einem $1,6 \mu\text{m}$ Mikropillar bei einem Magnetfeld von 3 T. Die Kavitätsmode ist dabei in zwei Komponenten (C_1, C_2) aufgespalten, ebenso wie die Exzitonenlinie (X_1, X_2).

Feld. Bei dem hier untersuchten Quantenpunkt mit $\kappa = 22 \mu\text{eV}/T^2$ und einer lateralen Ausdehnung der Wellenfunktion von 13 nm ist folglich gemäß Abb. 9.6 bei 3 T mit keiner nennenswerten Beeinträchtigung seiner Eigenschaften (besonders der Oszillatorstärke) zu rechnen.

Aus Abb. 10.3 ist ersichtlich, dass beide Komponenten des Exzitons durch die Resonanz mit der Kavität wandern. Es sind zwei Bereiche auszumachen, in denen offenbar eine Kopplung stattfindet. Zunächst ist eine Aufspaltung bei 24,5 K zu erkennen. Hier kommt es zu einer Wechselwirkung zwischen X_1 und der Kavitätsmode. Im weiteren Verlauf bei 26,6 K wird nochmals eine Aufspaltung beobachtet, in diesem Fall aufgrund der Kopplung von X_2 an die Resonatormode. Das Anti-Kreuzen der Linien in beiden Bereichen der Wechselwirkung ist wieder ein klares Indiz für die starke Kopplung. Durch die größere Zahl der beteiligten Komponenten ist die genaue Lage und Halbwertsbreite der Spektrallinien in dieser Darstellung nicht mehr klar erkennbar. Deshalb ermöglicht erst eine Anpassung der Spektren mit Lorentzlinien eine detaillierte Analyse.

Zunächst soll jedoch die Situation der Polarisation der einzelnen Linien im Magnetfeld diskutiert werden. Dazu ist in Abb. 10.4 das Verhalten der Energielagen und der Polarisation in Abhängigkeit des magnetischen Feldes für zwei Resonator-

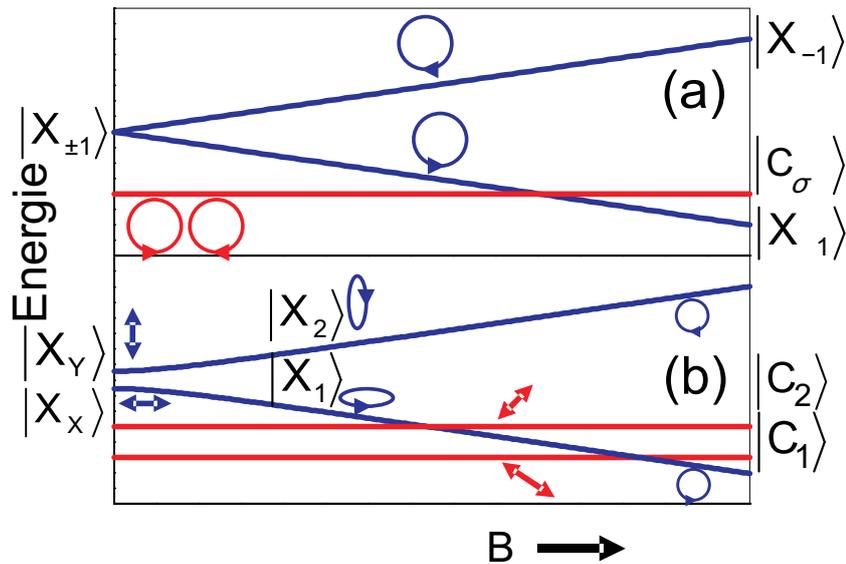


Abbildung 10.4: Schematische Darstellung von Energielage und Polarisation von zwei Resonator- und zwei Exzitonenmoden in Abhängigkeit des Magnetfeldes bei konstanter Temperatur. a) Für den idealisierten Fall eines zylindrischen Mikropillars und eines rotationssymmetrischen Quantenpunktes. In diesem Fall sind die Aufspaltung der Resonatormode $\alpha = 0$ und die Feinstrukturaufspaltung $\beta = 0$. b) Für den realen Fall des leicht elliptischen Mikroresonators und des elongierten Quantenpunktes ($\alpha, \beta \neq 0$).

und zwei Exzitonenmoden bei konstanter Temperatur dargestellt. Der obere Teil (a) repräsentiert den idealisierten Fall der perfekten Symmetrie. Sowohl der Mikropillar als auch der Quantenpunkt sind hier rotationssymmetrisch. In diesem Fall sind die Kavitätsmoden entartet und die Linien des Quantenpunktes zeigen ebenfalls keine Aufspaltung. Aufgrund der perfekten Zylindersymmetrie, in der keine transversale Raumrichtung ausgezeichnet ist, bilden sich sowohl für die Resonator-, als auch für die Exzitonenmode eine links- und eine rechtszirkular polarisierte Komponente aus. Bei Anlegen eines endlichen magnetischen Feldes bleiben diese Polarisationszustände erhalten. Es ergibt sich lediglich eine energetische Aufspaltung der beiden Spinkomponenten des Exzitons.

Im realen Experiment zeigt sich jedoch eine Aufspaltung beider Moden. Die Resonatormode ist durch die leichte Elliptizität des Mikropillars um den Parameter α aufgespalten und auch in Abwesenheit eines Magnetfeldes weisen die länglichen Quantenpunkte eine Feinstrukturaufspaltung β auf. Im Hinblick auf den Polarisationszustand ist aufgrund dieser Asymmetrien eine lineare Polarisation zu beobachten, die im Falle der Resonatormode auch unabhängig vom Magnetfeld erhalten bleibt. Die Exzitonenmoden besitzen ohne magnetisches Feld ebenfalls lineare Polarisation. Mit steigendem Magnetfeld und damit wachsender Zeeman-Aufspaltung der bei-

den Komponenten hingegen besteht die Tendenz, wieder zu zirkularer Polarisation überzugehen. Bei mittleren Feldstärken sind die Spinkomponenten somit elliptisch polarisiert. Als Maß für den Grad der zirkularen Polarisation dient das Verhältnis δ/β , wobei $\delta = g_L \mu_B B$ die reine Zeeman-Aufspaltung und g_L der Landésche g -Faktor ist. Im vorliegenden Experiment beträgt das Verhältnis $\delta/\beta = 6,25$ bei einem Magnetfeld von 3 T. Die gesamte Aufspaltung der beiden Spinkomponenten des Exzitons ergibt sich zu $\tilde{\beta} = \sqrt{\beta^2 + \delta^2}$.

Mit diesen Vorüberlegungen kann nun die Messserie zur starken Kopplung bei 3 T interpretiert werden. Dazu wird das System aus vier koppelnden Moden mit folgendem Hamilton-Operator beschrieben:

$$\hat{H}_{\text{zirk}} = \begin{pmatrix} \tilde{E}_C & \frac{\alpha}{2} & g & 0 \\ \frac{\alpha}{2} & \tilde{E}_C & 0 & g \\ g & 0 & \tilde{E}_X - \frac{\delta}{2} & \frac{\beta}{2} \\ 0 & g & \frac{\beta}{2} & \tilde{E}_X + \frac{\delta}{2} \end{pmatrix} \quad (10.3)$$

Hier wurde zur Abkürzung $\tilde{E}_C = E_C - i\Gamma_C/2$ und $\tilde{E}_X = E_X - i\Gamma_X/2$ eingeführt, wobei E_C, E_X die mittleren Emissionsenergien von Kavitäts- und Exzitonemoden bei $B = 0$ sind. Als Basis für diesen Operator wurden die zirkularen Kavitätsmoden $|C_{\sigma+}\rangle, |C_{\sigma-}\rangle$ und die zirkularen Zustände $|X_{+1}\rangle, |X_{-1}\rangle$ für das Exziton gewählt. Die Parameter α und β dienen als Maß für die Vermischung der Resonatormoden bzw. der Exzitonenzustände untereinander.

Um nun die Messdaten aus Abb. 10.3 beschreiben zu können, müssen noch die Temperaturabhängigkeiten der Emissionsenergien hinzugezogen werden. Dafür werden die Verläufe der Energien in einer Temperaturserie bei 0 T weit außerhalb des Wechselwirkungsbereichs mit diesen Gleichungen angepasst: $E_X(T) = A_X + B_X T - C_X T^2$ für die Exzitonemoden- und $E_C = A_C - C_C T^2$ für die Resonatormoden.

Nun können Real- und Imaginärteil der komplexen Eigenenergien aus (10.3) als Funktion der Temperatur T berechnet werden. Dabei verbleibt nur noch die Kopplungskonstante g als einziger freier Parameter. Die restlichen Parameter $\Gamma_C, \Gamma_X, E_C(T)$ und $E_X(T)$ ergeben sich durch Anpassung der experimentellen Daten weit außerhalb des Kopplungsbereiches. Die berechneten Energiepositionen werden jetzt verglichen mit den Werten, die sich aus der Lorentz-anpassung der Spektren aus Abb. 10.3 ergeben. Die beste Übereinstimmung liefert eine Kopplungsstärke von $g = 38 \mu\text{eV}$. In Abb. 10.5a) sind sowohl die gemessenen (Punkte) als auch die errechneten (Linien) Energiepositionen dargestellt. Die Übereinstimmung ist offensichtlich gut und besonders in den farblich unterlegten Bereichen der Wechselwirkung werden die Aufspaltungen ziemlich genau wiedergegeben.

Durch die Wechselwirkung der vier Moden ergeben sich zwei Bereiche der starken Kopplung, wie schon aus Abb. 10.3 ersichtlich. Ein Anti-Kreuzen tritt bei Resonanz

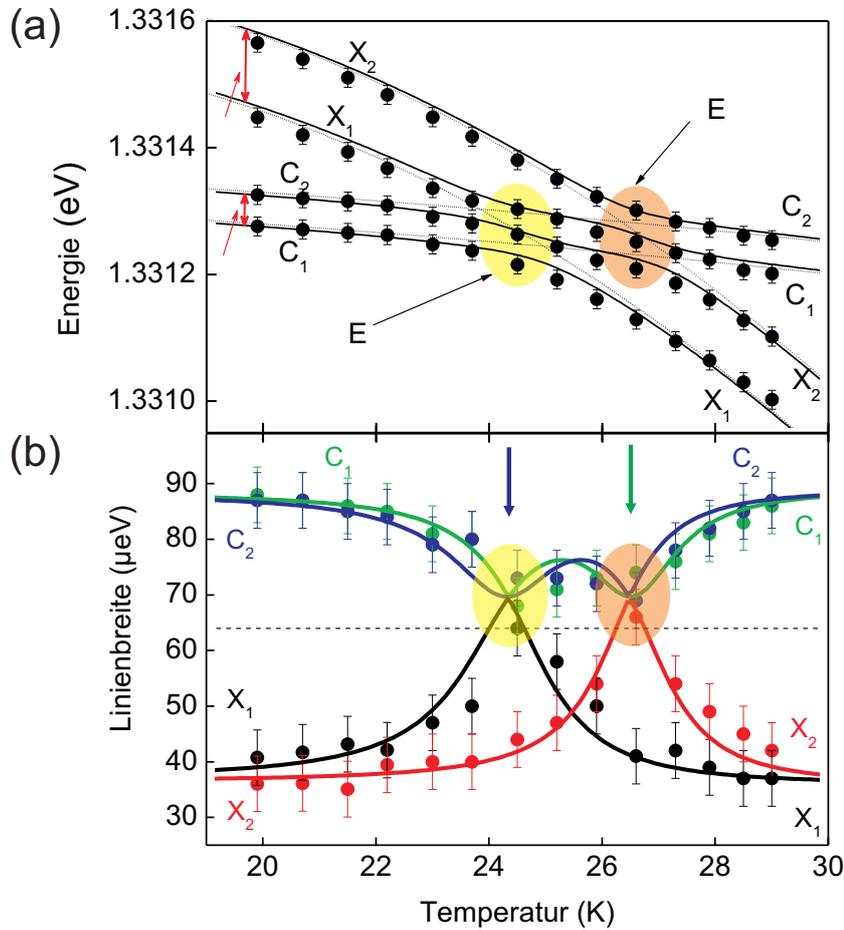


Abbildung 10.5: Vergleich der gemessenen (Punkte) und errechneten (Linien) Emissionsenergien und Linienbreiten der Temperaturserie bei 3 T. a) Realteil der Eigenenergien bzw. Energieposition der Emission. b) Imaginärteil der Eigenenergien bzw. Linienbreite.

der Moden X_1 und C_1 bei 24,5 K auf (gelb unterlegt), die Wechselwirkung zwischen X_2 und C_2 findet bei 26,6 K statt (orange unterlegt). Die Aufspaltung beträgt in beiden Fällen $\Delta E = 86 \pm 4 \mu\text{eV}$. In diesem Zusammenhang muss angemerkt werden, dass sich diese Aufspaltung ΔE zusammensetzt aus der kohärenten Kopplung g und aus den inkohärenten Aufspaltungen zwischen X_1 und X_2 von ungefähr $20 \mu\text{eV}$ aufgrund der Feinstrukturaufspaltung und zwischen C_1 und C_2 von ungefähr $50 \mu\text{eV}$ verursacht durch die leichte Elliptizität des Resonators. Diese Messung ist vergleichbar mit einem früheren Experiment, in dem Exzitonen von zwei unterschiedlichen Quantenpunkten kohärent mit der Resonatormode wechselwirkten [Rei06b]. Man muss sich hier vor Augen führen, dass g genau die Kopplung zwischen den zylindersymmetrischen Basismoden von Kavität und Exziton aus Gleichung (10.3) reprä-

sentiert. Im Gegensatz dazu ergeben sich die tatsächlich im Experiment beobachteten Moden aus der Kopplung von vermischten Polarisationszuständen, beschrieben durch die Parameter α und β .

Einen genaueren Einblick in die physikalischen Vorgänge bei der Kopplung dieses Systems aus Exzitonenspin und Photon bietet eine Analyse der Linienbreiten aller Moden. In Abb. 10.5b) sind sowohl die gemessenen als auch die berechneten Linienbreiten gezeigt. Der Bereich der Wechselwirkung zwischen ungefähr 24 K und 28 K offenbart sich durch ein Annähern der Halbwertsbreiten aller vier Moden. Im Bereich der ersten Wechselwirkung bei 24,5 K tauschen die Linienbreiten von X_1 und C_1 aus, was als Zeichen der starken Kopplung zu deuten ist.

Schon aus Abb. 10.5a) ist ersichtlich, dass sich die Energiepositionen von C_1 und C_2 im Bereich der ersten Wechselwirkung annähern. Der energetische Abstand zwischen den unteren beiden Moden um 24,5 K beträgt nur noch $44 \mu\text{eV}$ im Vergleich zur Modenaufspaltung von $\alpha \approx 50 \mu\text{eV}$ weit außerhalb der Wechselwirkung. Daraus folgt, dass eine Kopplung der Resonatormoden mit den Spinzuständen des Exzitons im Quantenpunkt stattfindet. Diese Interpretation einer Photon-Photon-Wechselwirkung mit Beteiligung des Exzitons ist konsistent mit dem Verhalten der Linienbreiten. In Abb. 10.5b) ist ebenfalls eine Beeinflussung der Mode C_2 im Bereich der Wechselwirkung von C_1 und X_1 zu erkennen.

Besonders hervorzuheben ist dabei die Tatsache, dass der Schnittpunkt der Linienbreiten von C_1 und X_1 nach oben verschoben ist. Normalerweise würde man für den einfachen Fall der Kopplung eines Exzitons mit einer Resonatormode als identische Linienbreite in Resonanz den Mittelwert $(\Gamma_C + \Gamma_X)/2 = 63 \mu\text{eV}$ erwarten, der in Abb. 10.5b) als gestrichelte Linie angedeutet ist. Die gemessenen höheren Linienbreiten deuten auf einen eher photonischen Charakter der gekoppelten Moden hin, was offenbar auf die Beteiligung zweier Resonatormoden an der Spin-vermittelten Kopplung zurückzuführen ist. Diese Art der Kopplung von zwei photonischen Moden über den Spinzustand eines Exzitons ist von grundlegendem Interesse, besonders im Hinblick auf etwaige zukünftige Anwendungen aus dem Bereich der Quanten-Informationsverarbeitung [Yao04].

10.3 Rechnergestützte Simulationen

Um einen genaueren Einblick in die physikalischen Vorgänge des oben beschriebenen Systems zu erlangen, wurden Simulationen mit Hilfe des Computer-Algebra-Programms Mathematica vorgenommen. Im Einzelnen wurden die Verläufe der Energiepositionen und der Linienbreiten der Emission für verschiedene Magnetfelder über Real- und Imaginärteil des Hamiltonoperators (10.3) berechnet. Um größere Klarheit in der Darstellung zu erreichen, wurden dabei die Temperaturabhängig-

keiten der Moden außer Acht gelassen und lediglich die energetische Verstimmung zwischen Exziton und Resonator variiert.

In Abb. 10.6 sind die Verläufe der Emissionsenergien und der Linienbreiten für verschiedene magnetische Flussdichten dargestellt. Für diese Simulationen wurden, entsprechend dem Experiment, eine Aufspaltung der Resonatormoden von $\alpha = 50 \mu\text{eV}$, eine Feinstrukturaufspaltung von $\beta = 20 \mu\text{eV}$ und eine Kopplungskonstante von $g = 38 \mu\text{eV}$ angenommen. Die Linienbreite der Kavitätsmoden betrug $\Gamma_C = 90 \mu\text{eV}$ und die der Exzitonenmoden $\Gamma_X = 36 \mu\text{eV}$. Die Zeeman-Aufspaltung entspricht einem Landé- g -Faktor, der im Experiment zu $g_{\text{Landé}} = 0,66$ bestimmt wurde. Im jeweils linken Bereich der Abbildungen repräsentieren die Farben rot und orange die beiden Kavitätsmoden und die Farben gelb und grün die Exzitonenmoden. Im rechten Teil, also nach der Wechselwirkung, ist die Farbgebung naturgemäß vertauscht. Bei Magnetfeldern über 1,2 T findet zuerst eine Wechselwirkung zwischen rot und gelb statt, später dann entsprechend zwischen orange und grün (angedeutet durch vertikale graue Linien). Im Einklang mit der größeren Zeeman-Aufspaltung sind die Wechselwirkungsbereiche bei höherem Magnetfeld weiter voneinander entfernt.

10.3.1 Charakter der Wechselwirkung

Beim Betrachten der Linienbreiten in Abb. 10.6 fällt auf, dass diese im Moment der Wechselwirkung größer sind, je stärker das angelegte Magnetfeld ist. Die horizontale schwarze Linie bei $63 \mu\text{eV}$ gibt das arithmetische Mittel $(\Gamma_C + \Gamma_X)/2$ zwischen den Linienbreiten von Resonator- und Exzitonenmode außerhalb der Resonanz an. Diese Linienbreite würde bei der starken Kopplung von einer Exzitonen- und einer Kavitätsmode im Moment der Resonanz für beide Lorentzprofile auftreten. Eine Linienbreite oberhalb dieser schwarzen Linie lässt auf einen eher photonischen Charakter der betreffenden Mode schließen. Insgesamt hängt also offensichtlich die Ausprägung des photonischen Charakters der wechselwirkenden Moden vom angelegten Magnetfeld ab.

Dieser Zusammenhang wurde in Abb. 10.7 detailliert simuliert. Aufgetragen in rot ist die Linienbreite der wechselwirkenden Moden zum Zeitpunkt der Resonanz in Abhängigkeit des Magnetfeldes und die blaue Linie bezeichnet wieder den Mittelwert von $63 \mu\text{eV}$. Ebenfalls dargestellt sind die experimentell bestimmten Werte der Linienbreite in Resonanz (schwarze Punkte). Bei 0 T entspricht die Linienbreite exakt dem Mittelwert, was aufgrund der mangelnden Wechselwirkung (vermittelt durch das Magnetfeld) auch durchaus zu erwarten ist. Mit wachsender Flussdichte fällt die Kurve zunächst ab, bis sie bei 1,2 T erneut die schwarze Linie kreuzt und dann mit abnehmender Steigung weiter zunimmt. Für sehr große Magnetfelder (hier nicht gezeigt) nähert sich der Wert asymptotisch an $72 \mu\text{eV}$ an. Dieser Grenzwert ergibt sich aus dem arithmetischen Mittel der Linienbreiten von den beiden Resona-

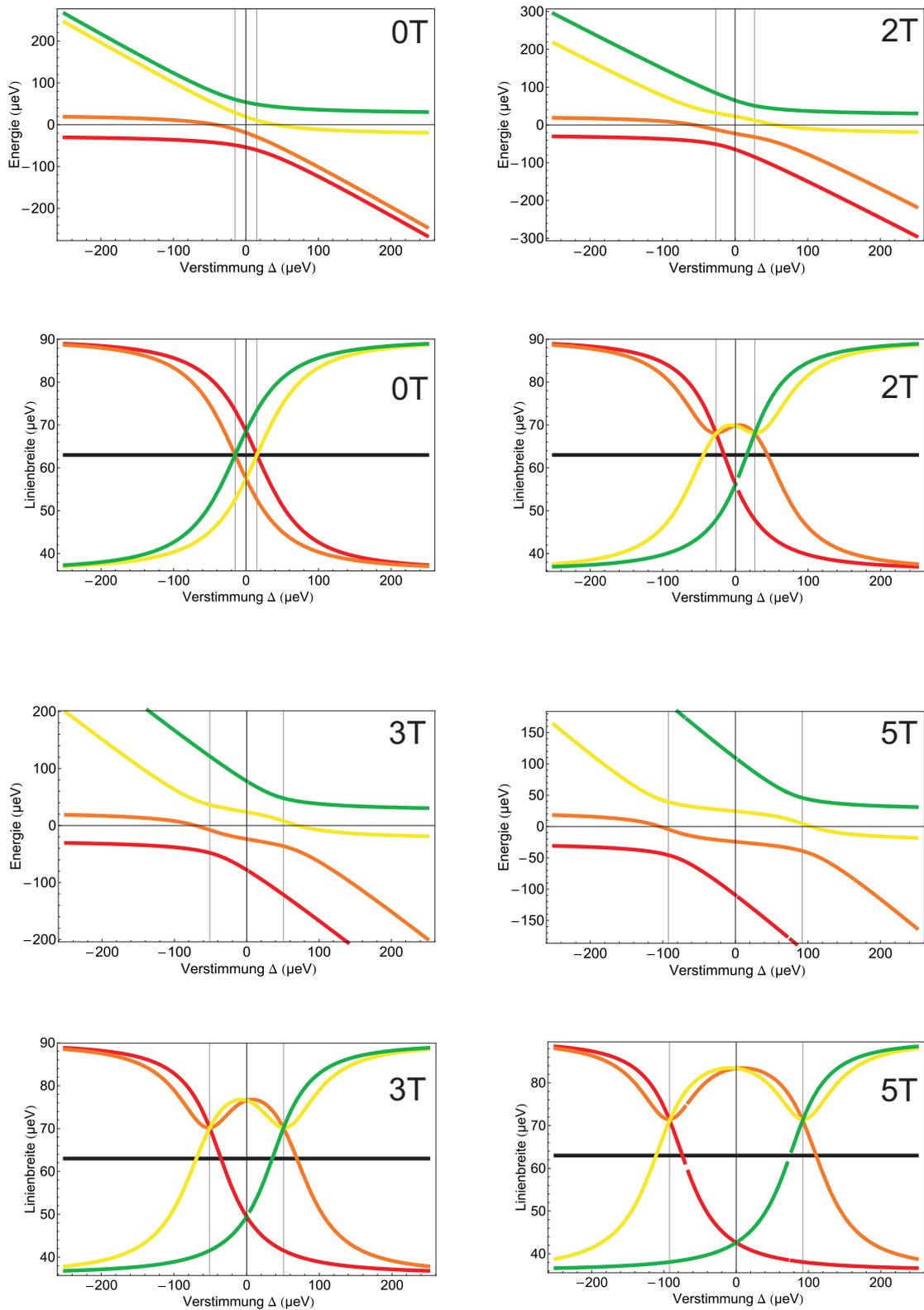


Abbildung 10.6: Simulation der Energiepositionen und der Linienbreiten der Emission des oben untersuchten Systems exemplarisch unter dem Einfluss eines Magnetfeldes bei 0 T, 2 T, 3 T und 5 T.

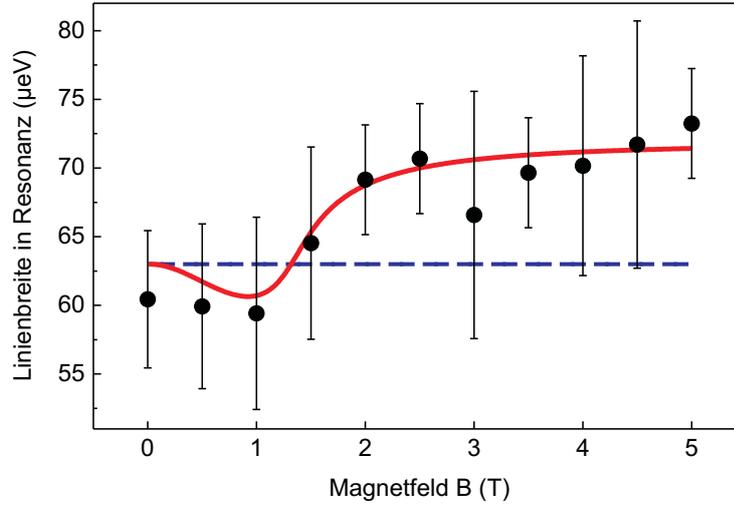


Abbildung 10.7: Simulation der Linienbreite der koppelnden Resonator- und Exzitonmode im Moment der resonanten Wechselwirkung in Abhängigkeit des Magnetfeldes (rot). Mittelwert der Linienbreiten von Exziton- und Kavitätsmode (blau) und experimentell bestimmte Werte (schwarz).

tormoden und einer Exzitonmode ($\frac{\Gamma_C + \Gamma_C + \Gamma_X}{3}$), da bei sehr großen Magnetfeldern die andere Exzitonmode zu weit abgespalten und deshalb nicht mehr effizient an der Kopplung beteiligt ist.

Oberhalb von 1,2 T besitzen die koppelnden Moden also eher photonischen Charakter, was im Einklang mit dem oben beschriebenen Experiment bei 3 T steht. Darüber hinaus nimmt natürlich mit wachsendem Magnetfeld die über die Spinzustände vermittelte Kopplung der photonischen Moden zu, die im Folgenden noch näher diskutiert wird. Zwischen 0 und 1,2 T hingegen weisen die koppelnden Moden eher exzitonischen Charakter auf. Der Übergang findet genau bei dem Magnetfeld statt, wo die Aufspaltung der Exzitonmoden und die der Kavität gleich groß sind. Für 1,2 T ergibt sich $\tilde{\beta} = \sqrt{\beta^2 + (g_{Landé} \cdot \mu_B \cdot B)^2} = \alpha = 50 \mu\text{eV}$. Unterhalb von 1,2 T ist die Aufspaltung der exzitonischen Moden kleiner als die der photonischen und oberhalb von 1,2 T verhält sich die Situation genau umgekehrt. Anschaulich kann der eher exzitonische bzw. eher photonische Charakter der Wechselwirkung dadurch begründet werden, dass durch die energetische Aufspaltung der Moden in Resonanz diejenige Komponente, welche die geringere Aufspaltung aufweist, energetisch näher an der Resonanzenergie liegt und dadurch stärker an der Wechselwirkung teilnehmen kann als die jeweils andere.

10.3.2 Stärke der Photon-Photon-Kopplung

Um die Stärke der über die Spinzustände vermittelten Kopplung der photonischen Moden quantitativ diskutieren zu können, muss zunächst diese Kopplung genau definiert werden. Zur Veranschaulichung sind die relevanten Energiedifferenzen in Abb. 10.8 eingezeichnet.

Die Photon-Photon-Kopplung E_{pp} repräsentiert dabei die Differenz aus dem energetischen Abstand ΔE_0 (schwarze Pfeile) und der Energiedifferenz ΔE_{mag} (blaue Pfeile):

$$E_{pp} = \Delta E_0 - \Delta E_{mag}. \quad (10.4)$$

Diese beiden Energiedifferenzen entsprechen dem jeweiligen Abstand der photonartigen Moden im Moment der Resonanz bei zwei verschiedenen Situationen: die farbige gezeichneten Verläufe bilden die Energiepositionen der Emission ab unter der Einwirkung der auch im Experiment beobachteten Kopplung der photonischen Moden, vermittelt durch die Spinzustände im Magnetfeld. Die schwarz dargestellten Verläufe hingegen repräsentieren die (gedachten) Emissionsenergien, wenn diese Wechselwirkung nicht existiert. Genaueren Aufschluss gibt eine Betrachtung der zugehörigen Hamiltonoperatoren. Der Operator für die (farbigen) Energieverläufe unter Einschluss der Wechselwirkung ist identisch mit (10.3), wird hier jedoch zur besseren Übersicht und Vergleichbarkeit in linearer Basis dargestellt:

$$\hat{H}_{lin} = \begin{pmatrix} \tilde{E}_C - \frac{\alpha}{2} & 0 & g & 0 \\ 0 & \tilde{E}_C + \frac{\alpha}{2} & 0 & g \\ g & 0 & \tilde{E}_X - \frac{\beta}{2} & \frac{\delta}{2} \\ 0 & g & \frac{\delta}{2} & \tilde{E}_X + \frac{\beta}{2} \end{pmatrix} \quad (10.5)$$

Als Basis dienen hier die Zustände $|C_1\rangle, |C_2\rangle$ und $|X_X\rangle, |X_Y\rangle$. Außerdem sind \tilde{E}_C und \tilde{E}_X wieder die komplexen Energieeigenwerte der Resonator- und Exzitonmoden. Alle anderen Bezeichnungen wurden ebenfalls analog beibehalten. Von besonderem Interesse sind in diesem Operator die Terme $\frac{\delta}{2}$, die die Zeeman-Aufspaltung beschreiben und somit vom Magnetfeld abhängen. Für $B = 0$ ist auch $\delta = 0$ und folglich existieren als Elemente abseits der Diagonalen nur die Kopplungsfaktoren g . Diese wirken aber aufgrund ihrer Positionen nur zwischen einer Kavitäts- und einer Exzitonmode, jeweils aus Spalte 1 und 3 ($|C_1\rangle$ und $|X_X\rangle$) bzw. aus Spalte 2 und 4 ($|C_2\rangle$ und $|X_Y\rangle$). In diesem Fall ist keine Wechselwirkung zwischen den beiden Photonen- oder auch den beiden Exzitonmoden untereinander möglich. In Anwesenheit eines magnetischen Feldes besitzen die beiden Elemente abseits der Diagonalen $\frac{\delta}{2}$ einen endlichen Wert. Dies führt zu einer direkten Kopplung zwischen den beiden Exzitonenzuständen (Spalte 3 und 4). Über deren individuelle

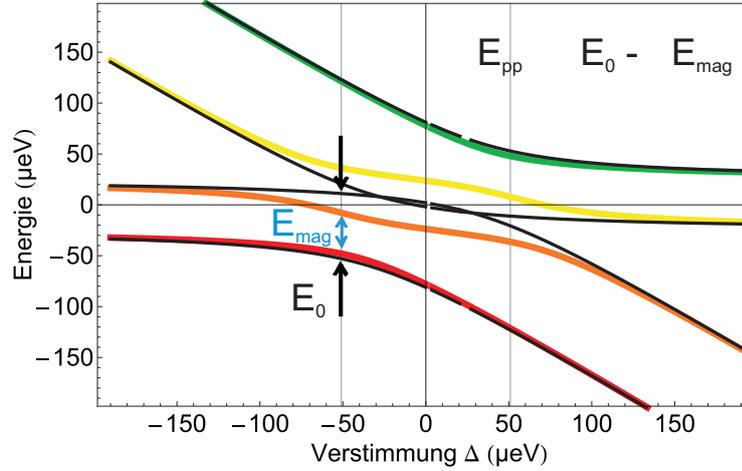


Abbildung 10.8: Definition der Kopplungsstärke der Photon-Photon-Wechselwirkung E_{pp} . Dabei ist ΔE_0 der Abstand der beiden photonartigen Moden unter Ausschluss der Wechselwirkung im Magnetfeld und ΔE_{mag} der Abstand der beiden photonartigen Moden mit der beobachteten Wechselwirkung.

Kopplung g an die einzelnen Resonatormoden wiederum entsteht die beobachtete Photon-Photon-Wechselwirkung (Spalte 1 und 2).

Den selben Sachverhalt kann man sich auch mit Hilfe einer Betrachtung der Polarisationen veranschaulichen. Für $B = 0$ sind alle vier Zustände vollständig linear polarisiert. Somit kann keine Wechselwirkung zwischen den verschiedenen Polarisationen auftreten. Erst mit steigendem Magnetfeld findet ein Übergang hin zu den zirkularen Spin-Eigenzuständen statt. Es bilden sich elliptische Polarisationszustände aus, wie auch in Abb. 10.4 dargestellt, die als Superposition linearer Basiszustände betrachtet werden können. Durch diese Vermischung der linearen Basiszustände ist nun eine Kopplung zwischen den Exzitonenzuständen und folglich auch zwischen den Photonenzuständen möglich.

Der Hamiltonoperator, der die schwarzen Kurven aus Abb. 10.8 - also die Energieverläufe ohne die eben diskutierte Wechselwirkung - erzeugt, darf abseits der Diagonalen natürlich wieder nur die Kopplungsfaktoren g enthalten. Um allerdings die Zeemanaufspaltung trotzdem noch im Modell zu beschreiben, rücken die Terme $\frac{\delta}{2}$ ebenfalls auf die Diagonale. Dieser Hamiltonoperator stellt sich folgendermaßen dar:

$$\hat{H}_0 = \begin{pmatrix} \tilde{E}_C - \frac{\alpha}{2} & 0 & g & 0 \\ 0 & \tilde{E}_C + \frac{\alpha}{2} & 0 & g \\ g & 0 & \tilde{E}_X - \sqrt{\left(\frac{\beta}{2}\right)^2 + \left(\frac{\delta}{2}\right)^2} & 0 \\ 0 & g & 0 & \tilde{E}_X + \sqrt{\left(\frac{\beta}{2}\right)^2 + \left(\frac{\delta}{2}\right)^2} \end{pmatrix} \quad (10.6)$$

Mit diesen Überlegungen sind die Energieverläufe aus Abb. 10.8 nachvollziehbar und die dadurch definierte Photon-Photon-Wechselwirkung E_{pp} kann im Folgenden näher diskutiert werden. Als Maß für die Stärke der Photon-Photon-Wechselwirkung dient also die Abweichung der Emissionsenergien zwischen zwei Situationen: in Resonanz bei der starken Kopplung mit und ohne die Wechselwirkung der Resonatormoden, vermittelt über die Spinzustände. Für ein Magnetfeld von 3 T, analog dem oben aufgeführten Experiment, ergibt sich nach dieser Definition eine Wechselwirkungsstärke von $E_{pp} = 24 \mu\text{eV}$.

Abb. 10.9 zeigt Simulationen der Größe E_{pp} unter Variation verschiedener Parameter. Die verbleibenden Konstanten wurden, sofern nicht anders erwähnt, mit bekanntem Wert beibehalten und der blaue Punkt bezeichnet jeweils die im Experiment vorherrschenden Bedingungen. In Teilbild a) ist das angelegte Magnetfeld variiert. Für 0 T findet, wie oben beschrieben, keine Wechselwirkung statt und E_{pp} ist 0. Danach steigt die Kurve immer stärker an bis zu einer Flussdichte von 1,2 T und darüber wird der Anstieg wieder schwächer. Mit wachsendem Magnetfeld geht die anfänglich lineare Polarisierung aller Moden immer mehr in zirkuläre Polarisierung über und somit wird der Kopplungsmechanismus effizienter und E_{pp} steigt. Für sehr große Flussdichten sind aber andererseits die beiden Komponenten des Exzitons durch den Zeeman-Effekt so stark aufgespalten, dass sich dieser Effekt nicht mehr voll auswirken kann. Insgesamt nimmt dadurch der Anstieg des Graphen bei höheren Magnetfeldern etwas ab.

Zur Simulation von E_{pp} in Abhängigkeit der Kopplungsstärke g (Teilbild b)) wurde ein Magnetfeld von 3 T angenommen. Der Bereich unterhalb von $g = 20 \mu\text{eV}$ ist hier nicht gezeigt, da dort nach dem Kriterium (6.16) nur schwache Kopplung auftritt, was in diesem Zusammenhang nicht von Interesse ist. E_{pp} steigt zunächst leicht an bis zu einem Maximum bei $g = 28 \mu\text{eV}$, um im weiteren Verlauf wieder abzufallen. Dabei bewegt sich die Photon-Photon-Kopplung allerdings nur in einem relativ kleinen Intervall ungefähr zwischen 20 und 25 μeV . Insgesamt ändert sich E_{pp} im Bereich der starken Kopplung nicht signifikant mit g . Ist also die Kopplungskonstante g ausreichend groß, so hat sie nur geringen Einfluss auf die Photon-Photon-Wechselwirkung.

Teilbild c) von Abb. 10.9 zeigt die Kopplungsstärke E_{pp} in Abhängigkeit der Aufspaltung der Resonatormoden α . Die Kurve startet im Ursprung, steigt zunächst an bis zu ihrem Maximum bei $\alpha = 116 \mu\text{eV}$ und fällt im weiteren Verlauf wieder ab. Das Maximum befindet sich genau an dem Punkt, wo die Aufspaltung der exzitonischen Moden, verursacht durch die Feinstruktur und den Zeeman-Effekt, und die Aufspaltung der Resonatormoden gleich groß sind. An diesem Punkt ist der energetische Abstand aller vier Moden am geringsten, wodurch die gesamte Wechselwirkung maximal wird. So ist für gleiche Aufspaltungen sowohl der photonische, als auch der exzitonische Anteil gleichermaßen beteiligt. Für kleinere Magnetfelder bildet sich

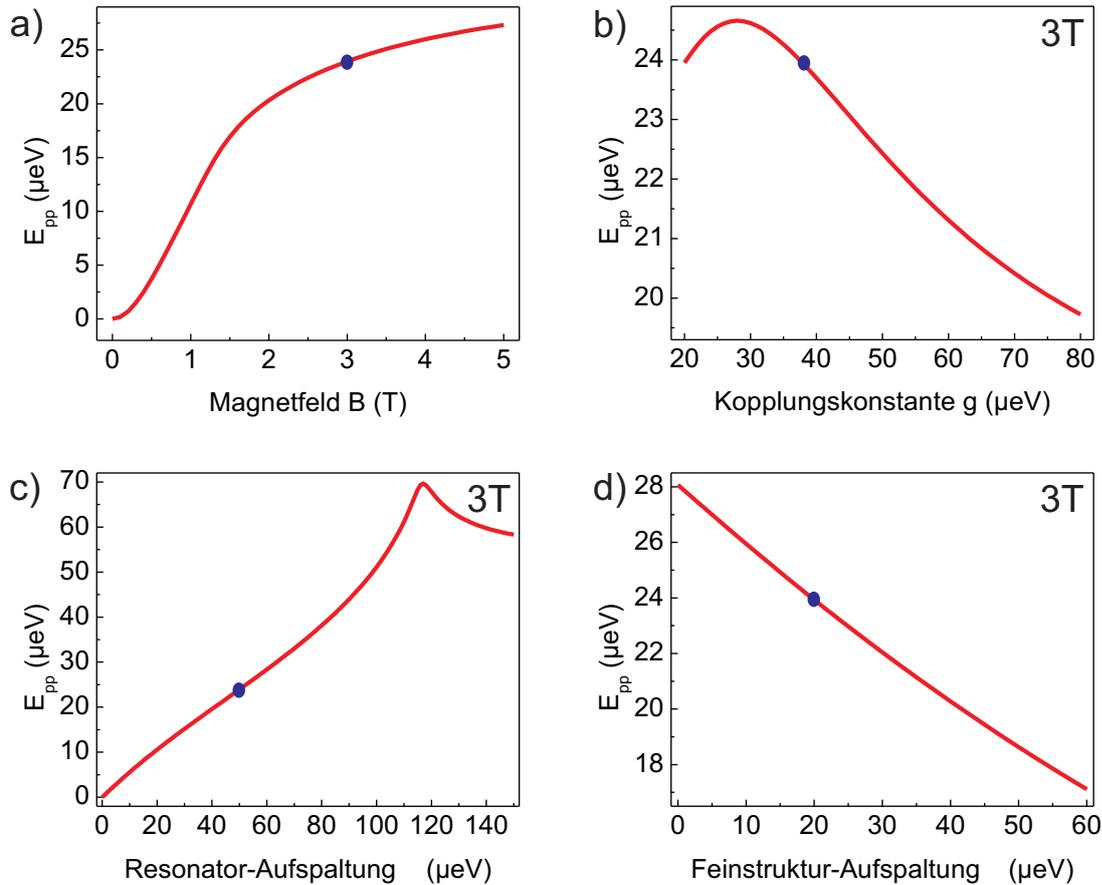


Abbildung 10.9: Simulation der Kopplungsstärke der Photon-Photon-Wechselwirkung E_{pp} unter Variation folgender Parameter: a) Magnetfeld B , b) Kopplungsstärke g bei 3 T, c) Aufspaltung der Resonatormoden α bei 3 T, d) Feinstruktur-Aufspaltung β bei 3 T. Der blaue Punkt bezeichnet jeweils die Bedingungen aus dem Experiment.

noch kein Maximum aus, da hier die Exzitonenmoden noch nicht weit genug in die Resonatormoden verschoben sind. Im Hinblick auf den Polarisationszustand ist zu erwähnen, dass sich im Gegensatz zu den exzitonenischen Moden bei den Resonatormoden lediglich die Energieposition mit der Aufspaltung ändert. Die Polarisation der photonischen Moden wird vom Magnetfeld nicht beeinflusst.

Der Zusammenhang zwischen E_{pp} und der Feinstrukturaufspaltung β ist in Teilbild d) dargestellt. Für einen ideal rotationssymmetrischen Quantenpunkt ohne Feinstrukturaufspaltung ergibt sich eine Photon-Photon-Kopplung von 28 μeV bei einer Flussdichte von 3 T. Für eine ansteigende Feinstrukturaufspaltung fällt die Kurve kontinuierlich ab. Dies kann an Hand von Abb. 10.6 veranschaulicht werden. Für eine größere Aufspaltung der beiden Exzitonenlinien hat die zweite Komponente einen immer geringeren Einfluss auf die Kopplung zwischen der ersten Komponente und der jeweiligen Resonatormode. Eine Verdeutlichung über die Polarisationszustände

führt zu folgendem Bild: je größer β ist, desto stärker ist auch für ein gegebenes Magnetfeld die Tendenz zum Erhalt der linearen Polarisation ausgeprägt. Dieser Effekt wirkt der effizienten Photon-Photon-Kopplung entgegen.

Insgesamt lässt sich feststellen, dass die Parameter g , α und β beim oben beschriebenen Experiment sehr nahe an ihrem jeweiligen Optimum im Hinblick auf eine möglichst große Photon-Photon-Kopplung waren. Für eine wesentlich kleinere Feinstrukturaufspaltung β hätte sich zwar theoretisch ein höherer Wert von E_{pp} ergeben, allerdings wären dann die beiden Linien überhaupt nicht mehr aufzulösen und das Experiment in dieser Form nicht durchführbar gewesen.

10.4 Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde das äußere magnetische Feld nicht nur als Instrument zur Verstimmung von Exziton und Kavitätsmode genutzt, sondern es konnte damit auch Einfluss auf die Kopplungsstärke im Quantenpunkt-Mikroresonator-System genommen werden. Darüber hinaus konnte auch eine Kopplung zweier ansonsten unabhängiger Photonenzustände über den Spinzustand eines Exzitons gezeigt werden. Dies stellt ein Ergebnis von grundlegender Relevanz dar und ist besonders im Hinblick auf zukünftige Anwendungen in der Quanteninformationsverarbeitung von Interesse.

Für weitergehende Untersuchungen wäre es wichtig, definierte Ausgangszustände zu präparieren, um so das System in eine bestimmte Richtung lenken und besser kontrollieren zu können. Dazu bieten sich in erster Linie die folgenden beiden Ansatzpunkte an: zum einen müsste dies durch eine resonante Anregung, abgestimmt auf ein bestimmtes Quantenpunkt-Exziton, in Verbindung mit einer definierten Polarisation des Laserlichts geschehen. Zum zweiten könnten durch eine Variation des im Moment noch kreisrunden Querschnitts des Mikropillars gezielte Polarisationszustände der Resonatormode realisiert werden. Sobald diese Freiheitsgrade des Systems zufriedenstellend eingeschränkt bzw. kontrolliert werden, so können sich zukünftige Experimente noch stärker auf die direkte Suche nach Effekten ausrichten, die für potentielle Anwendungen nützlich sind oder diese erst ermöglichen.

Literaturverzeichnis

- [Alb08] M. Albert und J. W. Bartha, *Atomlagenabscheidung als Werkzeug für die Nanotechnologie*, *Vakuum in Forschung und Praxis* **20**(1), S. 7 (2008).
- [Alb10] F. Albert, T. Braun, T. Heindel, C. Schneider, S. Reitzenstein, S. Höfling, L. Worschech und A. Forchel, *Whispering gallery mode lasing in electrically driven quantum dot micropillars*, *Appl. Phys. Lett.* **97**(10), 101108 (2010).
- [Ale03] R. Aleksiejunas, M. Sudžius, T. Malinauskas, J. Vaitkus, K. Jarašiunas und S. Sakai, *Determination of free carrier bipolar diffusion coefficient and surface recombination velocity of undoped GaN epilayers*, *Appl. Phys. Lett.* **83**(6), S. 1157 (2003).
- [And91] L. C. Andreani, F. Tassone und F. Bassani, *Radiative lifetime of free excitons in quantum wells*, *Solid State Communications* **77**(9), S. 641 (1991).
- [And99] L. C. Andreani, G. Panzarini und J. M. Gérard, *Strong-Coupling Regime for Quantum Boxes in Pillar Microcavities: Theory*, *Phys. Rev. B* **60**, S. 13276 (1999).
- [Bao08] J. Bao, D. C. Bell, F. Capasso, J. B. Wagner, T. Mårtensson, J. Trägårdh und L. Samuelson, *Optical Properties of Rotationally Twinned InP Nanowire Heterostructures*, *Nano Lett.* **8**(3), S. 836 (2008).
- [Bay99] M. Bayer, A. Kuther, A. Forchel, A. Gorbunov, V. B. Timofeev, F. Schäfer, J. P. Reithmaier, T. L. Reinecke und S. N. Walck, *Electron and Hole g Factors and Exchange Interaction from Studies of the Exciton Fine Structure in $\text{In}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}\text{As}$ Quantum Dots*, *Phys. Rev. Lett.* **82**, S. 1748 (1999).
- [Bay02] M. Bayer und A. Forchel, *Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in $\text{In}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}\text{As}/\text{GaAs}$ self-assembled quantum dots*, *Phys. Rev. B* **65**(4), S. 041308 (2002).
- [Bec01] C. Becher, A. Kiraz, P. Michler, A. Imamoglu, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang und E. Hu, *Nonclassical radiation from a single self-assembled InAs quantum dot*, *Phys. Rev. B* **63**(12), S. 121312 (2001).

- [Ben93] C. H. Bennett, G. Brassard, C. Crépeau, R. Jozsa, A. Peres und W. K. Wootters, *Teleporting an unknown quantum state via dual classical and Einstein-Podolsky-Rosen channels*, Phys. Rev. Lett. **70**(13), S. 1895 (1993).
- [Boc97] U. Bockelmann, W. Heller und G. Abstreiter, *Microphotoluminescence studies of single quantum dots. II. Magnetic-field experiments*, Phys. Rev. B **55**(7), S. 4469 (1997).
- [Bor10] M. Borgström, J. Wallentin, J. Trägårdh, P. Ramvall, M. Ek, L. Wallenberg, L. Samuelson und K. Deppert, *In situ etching for total control over axial and radial nanowire growth*, Nano Res. **3**, S. 264 (2010).
- [Bot91] S. Bothra, S. Tyagi, S. Ghandhi und J. Borrego, *Surface recombination velocity and lifetime in InP*, Solid-State Electronics **34**(1), S. 47 (1991).
- [Bun99] G. E. Bunea, W. D. Herzog, M. S. Ünlü, B. B. Goldberg und R. J. Molnar, *Time-resolved photoluminescence studies of free and donor-bound exciton in GaN grown by hydride vapor phase epitaxy*, Appl. Phys. Lett. **75**(6), S. 838 (1999).
- [Cal00] E. Calleja, M. A. Sánchez-García, F. J. Sánchez, F. Calle, F. B. Naranjo, E. Muñoz, U. Jahn und K. Ploog, *Luminescence properties and defects in GaN nanocolumns grown by molecular beam epitaxy*, Phys. Rev. B **62**(24), S. 16826 (2000).
- [Cal01] E. Calleja, M. A. Sánchez-García, F. Calle, F. B. Naranjo, E. Muñoz, U. Jahn, K. Ploog, J. Sánchez, J. M. Calleja, K. Saarinen und P. Hautojärvi, *Molecular beam epitaxy growth and doping of III-nitrides on Si(1 1 1): layer morphology and doping efficiency*, Materials Science and Engineering B **82**(1-3), S. 2 (2001).
- [Cal05] R. Calarco, M. Marso, T. Richter, A. Aykanat, R. Meijers, A. v.d.Hart, T. Stoica und H. Luth, *Size-dependent Photoconductivity in MBE-Grown GaN-Nanowires*, Nano Lett. **5**(5), S. 981 (2005).
- [Chè10] C. Chèze, L. Geelhaar, O. Brandt, W. Weber, H. Riechert, S. Münch, R. Rothmund, S. Reitzenstein, A. Forchel, T. Kehagias, P. Komninou, G. Dimitrakopoulos und T. Karakostas, *Direct comparison of catalyst-free and catalyst-induced GaN nanowires*, Nano Res. **3**, S. 528 (2010).
- [Chi88] A. Chiari, M. Colocci, F. Fermi, Y. Li, R. Querzoli, A. Vinattieri und W. Zhuang, *Temperature Dependence of the Photoluminescence in GaAs-GaAlAs Multiple Quantum Well Structure*, phys. stat. sol. (b) **147**(1), S. 421 (1988).

- [Cir97] J. I. Cirac, P. Zoller, H. J. Kimble und H. Mabuchi, *Quantum State Transfer and Entanglement Distribution among Distant Nodes in a Quantum Network*, Phys. Rev. Lett. **78**(16), S. 3221 (1997).
- [Col11] Colorado School of Mines, *RCA clean*, http://inside.mines.edu/fs_home/cwolden/chen435/clean.htm (2011).
- [Cra08] S. Crankshaw, S. Reitzenstein, L. C. Chuang, M. Moewe, S. Münch, C. Böckler, A. Forchel und C. Chang-Hasnain, *Recombination dynamics in wurtzite InP nanowires*, Phys. Rev. B **77**(23), S. 235409 (2008).
- [Dem07] W. Demtröder, *Laserspektroskopie*, Springer (2007).
- [Dua04] L.-M. Duan und H. J. Kimble, *Scalable Photonic Quantum Computation through Cavity-Assisted Interactions*, Phys. Rev. Lett. **92**(12), S. 127902 (2004).
- [Fur08] F. Furtmayr, M. Vielemeyer, M. Stutzmann, A. Laufer, B. K. Meyer und M. Eickhoff, *Optical properties of Si- and Mg-doped gallium nitride nanowires grown by plasma-assisted molecular beam epitaxy*, J. Appl. Phys. **104**(7), 074309 (2008).
- [Gay98] B. Gayral, J. M. Gerard, B. Legrand, E. Costard und V. Thierry-Mieg, *Optical Study of GaAs/AlAs Pillar Microcavities with Elliptical Cross Section*, Appl. Phys. Lett. **72**, S. 1421 (1998).
- [Gay01] B. Gayral, *Controlling spontaneous emission dynamics in semiconductor micro cavities*, Ann. Phys. Franc. **26**(2), S. 1 (2001).
- [Gee07] L. Geelhaar, C. Cheze, W. M. Weber, R. Averbeck, H. Riechert, T. Kehagias, P. Komninou, G. P. Dimitrakopoulos und T. Karakostas, *Axial and radial growth of Ni-induced GaN nanowires*, Appl. Phys. Lett. **91**(9), 093113 (2007).
- [Geo11] Georgia Institute of Technology, *RCA clean*, <http://www.ece.gatech.edu/research/labs/vc/processes/rcaClean.html> (2011).
- [Gér98] J. M. Gérard, B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard und V. Thierry-Mieg, *Enhanced Spontaneous Emission by Quantum Boxes in a Monolithic Optical Microcavity*, Phys. Rev. Lett. **81**, S. 1110 (1998).
- [Han88] E. Hanamura, *Very large optical nonlinearity of semiconductor microcrystallites*, Phys. Rev. B **37**(3), S. 1273 (1988).

- [Has89] H. Hasegawa, M. Akazawa, H. Ishii und K. Ichirou Matsuzaki, *Control of compound semiconductor-insulator interfaces by an ultrathin molecular-beam epitaxy Si layer*, Proceedings of the 16th Annual Conference on the Physics and Chemistry of Semiconductor Interfaces **7**(4), S. 870 (1989).
- [HB56] R. Hanbury-Brown und R. Q. Twiss, *Correlation between Photons in Two Coherent Beams of Light*, Nature **177**, S. 27 (1956).
- [Hec02] E. Hecht, *Optics*, Addison Wesley (2002).
- [Hei10a] T. Heindel, C. Schneider, M. Lerner, S. H. Kwon, T. Braun, S. Reitzenstein, S. Höfling, M. Kamp und A. Forchel, *Electrically driven quantum dot-micropillar single photon source with 34% overall efficiency*, Appl. Phys. Lett. **96**(1) (2010).
- [Hei10b] J. Heinrich, A. Huggenberger, T. Heindel, S. Reitzenstein, S. Höfling, L. Worschech und A. Forchel, *Single photon emission from positioned GaAs/AlGaAs photonic nanowires*, Appl. Phys. Lett. **96**(21), 211117 (2010).
- [Ima97] A. Imamoglu, H. Schmidt, G. Woods und M. Deutsch, *Strongly Interacting Photons in a Nonlinear Cavity*, Phys. Rev. Lett. **79**(8), S. 1467 (1997).
- [Ima99] A. Imamoglu, D. D. Awschalom, G. Burkard, D. P. DiVincenzo, D. Loss, M. Sherwin und A. Small, *Quantum Information Processing Using Quantum Dot Spins and Cavity QED*, Phys. Rev. Lett. **83**(20), S. 4204 (1999).
- [Ion11] A. M. Ionescu und H. Riel, *Tunnel field-effect transistors as energy-efficient electronic switches*, Nature **479**, S. 329 (2011).
- [Jac94] B. Jacobs, Dissertation, Physikalisches Institut der Julius-Maximilians-Universität Würzburg, Lehrstuhl für Technische Physik (1994).
- [Jaf10] P. Jaffrennou, J. Claudon, M. Bazin, N. S. Malik, S. Reitzenstein, L. Worschech, M. Kamp, A. Forchel und J.-M. Gérard, *Whispering gallery mode lasing in high quality GaAs/AlAs pillar microcavities*, Appl. Phys. Lett. **96**(7), 071103 (2010).
- [Jen00] T. Jennewein, C. Simon, G. Weihs, H. Weinfurter und A. Zeilinger, *Quantum Cryptography with Entangled Photons*, Phys. Rev. Lett. **84**, S. 4729 (2000).
- [Jia07] X. Jiang, Q. Xiong, S. Nam, F. Qian, Y. Li und C. Lieber, *InAs/InP Radial Nanowire Heterostructures as High Electron Mobility Devices*, Nano Lett. **7**(10), S. 3214 (2007).

- [Joh08] J. Johansen, S. Stobbe, I. S. Nikolaev, T. Lund-Hansen, P. T. Kristensen, J. M. Hvam, W. L. Vos und P. Lodahl, *Size dependence of the wavefunction of self-assembled InAs quantum dots from time-resolved optical measurements*, Phys. Rev. B **77**(7), S. 073303 (2008).
- [Kha05] V. K. Khanna, *Physical understanding and technological control of carrier lifetimes in semiconductor materials and devices: A critique of conceptual development, state of the art and applications*, Prog. Quant. Elec. **29**(2), S. 59 (2005).
- [Kis08] C. Kistner, T. Heindel, C. Schneider, A. Rahimi-Iman, S. Reitzenstein, S. Höfling und A. Forchel, *Demonstration of strong coupling via electro-optical tuning in high-quality QD-micropillar systems*, Opt. Express **16**(19), S. 15006 (2008).
- [Kli06] C. Klingshirn, *Semiconductor Optics*, Springer, Secaucus, NJ, USA (2006).
- [Kot01] R. Kotlyar, T. L. Reinecke, M. Bayer und A. Forchel, *Zeeman spin splittings in semiconductor nanostructures*, Phys. Rev. B **63**(8), S. 085310 (2001).
- [Löf08] A. Löffler, *Selbstorganisiertes Wachstum von (Ga)InAs/GaAs-Quantenpunkten und Entwicklung von Mikroresonatoren höchster Güte für Experimente zur starken Exziton-Photon-Kopplung*, Dissertation, Physikalisches Institut der Julius-Maximilians-Universität Würzburg, Lehrstuhl für Technische Physik (2008).
- [Li97] C. F. Li, Y. S. Huang, L. Malikova und F. H. Pollak, *Temperature dependence of the energies and broadening parameters of the interband excitonic transitions in wurtzite GaN*, Phys. Rev. B **55**(15), S. 9251 (1997).
- [Li03] H. E. Li und K. Iga, *Vertical-cavity surface-emitting laser devices*, Springer (2003).
- [Lu09] H.-L. Lu, Y. Terada, Y. Shimogaki, Y. Nakano und M. Sugiyama, *In situ passivation of InP surface using H₂S during metal organic vapor phase epitaxy*, Appl. Phys. Lett. **95**(15), 152103 (2009).
- [Mag99] M. H. Magnusson, K. Deppert, J.-O. Malm, J.-O. Bovin und L. Samuelson, *Size-selected gold nanoparticles by aerosol technology*, Nanostruct. Mat. **12**(1-4), S. 45 (1999).
- [Mai90] B. E. Maile, A. Forchel, R. Germann, J. Straka, L. Korte und C. Thanner, *Lateral quantization induced emission energy shift of buried GaAs/AlGaAs quantum wires*, Appl. Phys. Lett. **57**(8), S. 807 (1990).

- [Man71] A. Many, Y. Goldstein und N. Grover, *Semiconductor Surfaces*, North-Holland Publishing Co., Amsterdam (1971).
- [Mat07] M. Mattila, T. Hakkarainen, H. Lipsanen, H. Jiang und E. I. Kauppinen, *Enhanced luminescence from catalyst-free grown InP nanowires*, Appl. Phys. Lett. **90**(3), 033101 (2007).
- [Mei06] R. Meijers, T. Richter, R. Calarco, T. Stoica, H.-P. Boehm, M. Marso und H. Lüth, *GaN-nanowhiskers: MBE-growth conditions and optical properties*, J. Cryst. Growth **289**(1), S. 381 (2006).
- [Men06] T. Mensing, S. Reitzenstein, A. Löffler, J. Reithmaier und A. Forchel, *Magneto-optical investigations of single self assembled $In_{0.3}Ga_{0.7}As$ quantum dots*, Physica E **32**(1-2), S. 131 (2006).
- [Mor94] H. Morkoç, S. Strite, G. B. Gao, M. E. Lin, B. Sverdlov und M. Burns, *Large-band-gap SiC, III-V nitride, and II-VI ZnSe-based semiconductor device technologies*, J. Appl. Phys. **76**(3), S. 1363 (1994).
- [Nak04] T. Nakaoka, T. Saito, J. Tatebayashi und Y. Arakawa, *Size, shape, and strain dependence of the g factor in self-assembled In(Ga)As quantum dots*, Phys. Rev. B **70**(23), S. 235337 (2004).
- [Nil08] H. A. Nilsson, T. Duty, S. Abay, C. Wilson, J. B. Wagner, C. Thelander, P. Delsing und L. Samuelson, *A Radio Frequency Single-Electron Transistor Based on an InAs/InP Heterostructure Nanowire*, Nano Lett. **8**(3), S. 872 (2008).
- [Nol90] D. D. Nolte, *Surface recombination, free-carrier saturation, and dangling bonds in InP and GaAs*, Solid-State Electronics **33**(2), S. 295 (1990).
- [Noz01] A. J. Nozik, *Spectroscopy and hot electron relaxation dynamics in semiconductor quantum wells and quantum dots*, Ann. Rev. Phys. Chem. **52**(1), S. 193 (2001).
- [Oga92] K. Ogawa, K.-I. Haraguchi, K. Hiruma, Y. Fujisaki, T. Katsuyama und G. Fasol, *Spectral and temporal features of photoluminescence of gallium arsenide quantum-wire crystals*, J. Lumin. **53**(1-6), S. 387 (1992).
- [Oh08] S. H. Oh, K. v. Benthem, S. I. Molina, A. Y. Borisevich, W. Luo, P. Werner, N. D. Zakharov, D. Kumar, S. T. Pantelides und S. J. Pennycook, *Point Defect Configurations of Supersaturated Au Atoms Inside Si Nanowires*, Nano Lett. **8**(4), S. 1016 (2008).

- [Ort05] G. Ortner, I. Yugova, G. B. H. von Högersthal, A. Larionov, H. Kurtze, D. R. Yakovlev, M. Bayer, S. Fafard, Z. Wasilewski, P. Hawrylak, Y. B. Lyanda-Geller, T. L. Reinecke, A. Babinski, M. Potemski, V. B. Timofeev und A. Forchel, *Fine structure in the excitonic emission of InAsGaAs quantum dot molecules*, Phys. Rev. B **71**(12), S. 125335 (2005).
- [Par04] Y. S. Park, C. M. Park, D. J. Fu, T. W. Kang und J. E. Oh, *Photoluminescence studies of GaN nanorods on Si (111) substrates grown by molecular-beam epitaxy*, Appl. Phys. Lett. **85**(23), S. 5718 (2004).
- [Pas05] P. P. Paskov, R. Schifano, B. Monemar, T. Paskova, S. Figge und D. Hommel, *Emission properties of a-plane GaN grown by metal-organic chemical-vapor deposition*, J. Appl. Phys. **98**(9), 093519 (2005).
- [Pel92] W. S. Pelouch, R. J. Ellingson, P. E. Powers, C. L. Tang, D. M. Szymd und A. J. Nozik, *Comparison of hot-carrier relaxation in quantum wells and bulk GaAs at high carrier densities*, Phys. Rev. B **45**(3), S. 1450 (1992).
- [Pem09] K. Pemasiri, M. Montazeri, R. Gass, L. M. Smith, H. E. Jackson, J. Yarrison-Rice, S. Paiman, Q. Gao, H. H. Tan, C. Jagadish, X. Zhang und J. Zou, *Carrier Dynamics and Quantum Confinement in type II ZB-WZ InP Nanowire Homostructures*, Nano Lett. **9**(2), S. 648 (2009).
- [Pet95] J. Petalas, S. Logothetidis, S. Bouladakis, M. Alouani und J. M. Wills, *Optical and electronic-structure study of cubic and hexagonal GaN thin films*, Phys. Rev. B **52**(11), S. 8082 (1995).
- [Pfü10] C. Pfüller, O. Brandt, T. Flissikowski, C. Chèze, L. Geelhaar, H. Grahn und H. Riechert, *Statistical analysis of excitonic transitions in single, free-standing GaN nanowires: Probing impurity incorporation in the poissonian limit*, Nano Res. **3**, S. 881 (2010).
- [Pur46] E. M. Purcell, *Spontaneous Emission Probabilities at Radio Frequencies*, Phys. Rev. **69**, S. 681 (1946).
- [Put08] M. C. Putnam, M. A. Filler, B. M. Kayes, M. D. Kelzenberg, Y. Guan, N. S. Lewis, J. M. Eiler und H. A. Atwater, *Secondary Ion Mass Spectrometry of Vapor-Liquid-Solid Grown, Au-Catalyzed, Si Wires*, Nano Lett. **8**(10), S. 3109 (2008).
- [Rei04] J. P. Reithmaier, G. Sek, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. Keldysh, V. Kulakovskii, T. L. Reinecke und A. Forchel, *Strong Coupling in a Single Quantum Dot Semiconductor Microcavity System*, Nature **432**, S. 197 (2004).

- [Rei06a] 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*, Appl. Phys. Lett. **89**(5), 051107 (2006).
- [Rei06b] S. Reitzenstein, A. Löffler, C. Hofmann, A. Kubanek, M. Kamp, J. P. Reithmaier, A. Forchel, V. D. Kulakovskii, L. V. Keldysh, I. V. Ponomarev und T. L. Reinecke, *Coherent photonic coupling of semiconductor quantum dots*, Opt. Lett. **31**(11), S. 1738 (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*, Appl. Phys. Lett. **90**(25), 251109 (2007).
- [Rei09a] S. Reitzenstein, C. Böckler, A. Bazhenov, A. Gorbunov, S. Münch, A. Löffler, M. Kamp, V. D. Kulakovskii und A. Forchel, *Single quantum dot controlled gain modulation in high-Q micropillar lasers*, phys. stat. sol. (b) **246**(2), S. 277 (2009).
- [Rei09b] S. Reitzenstein, N. Gregersen, C. Kistner, M. Strauss, C. Schneider, L. Pan, T. R. Nielsen, S. Höfling, J. Mork und A. Forchel, *Oscillatory variations in the Q factors of high quality micropillar cavities*, Appl. Phys. Lett. **94**(6), 061108 (2009).
- [Res05] M. A. Reshchikov und H. Morkoc, *Luminescence properties of defects in GaN*, J. Appl. Phys. **97**(6), 061301 (2005).
- [Rie96] W. Rieger, T. Metzger, H. Angerer, R. Dimitrov, O. Ambacher und M. Stutzmann, *Influence of substrate-induced biaxial compressive stress on the optical properties of thin GaN films*, Appl. Phys. Lett. **68**(7), S. 970 (1996).
- [Ros03] Y. Rosenwaks, I. Tsimberova, H. Gero und M. Molotskii, *Minority-carrier recombination in p-InP single crystals*, Phys. Rev. B **68**, S. 115210 (2003).
- [Sch02] F. Schwabl, *Quantenmechanik*, Springer (2002).
- [Seg05] R. Seguin, A. Schliwa, S. Rodt, K. Pötschke, U. W. Pohl und D. Bimberg, *Size-Dependent Fine-Structure Splitting in Self-Organized InAs/GaAs Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **95**(25), S. 257402 (2005).

- [Sek06] G. Sek, P. Poloczek, K. Ryczko, J. Misiewicz, A. Löffler, J. P. Reithmaier und A. Forchel, *Photoreflectance determination of the wetting layer thickness in the $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ quantum dot system for a broad indium content range of 0.3–1*, J. Appl. Phys. **100**(10), 103529 (2006).
- [Sho52] W. Shockley und W. T. Read, *Statistics of the Recombinations of Holes and Electrons*, Phys. Rev. **87**(5), S. 835 (1952).
- [Sol01] G. S. Solomon, M. Pelton und Y. Yamamoto, *Single-Mode Spontaneous Emission from a Single Quantum Dot in a Three-Dimensional Microcavity*, Phys. Rev. Lett. **86**, S. 3903 (2001).
- [Spi79] W. E. Spicer, I. Lindau, P. Pianetta, P. W. Chye und C. M. Garner, *Fundamental studies of III-V surfaces and the (III-V)-oxide interface*, Thin Solid Films **56**(1-2), S. 1 (1979).
- [Sto10] S. Stobbe, T. W. Schlereth, S. Höfling, A. Forchel, J. M. Hvam und P. Lodahl, *Large quantum dots with small oscillator strength*, Phys. Rev. B **82**(23), S. 233302 (2010).
- [Sto11] S. Stobbe, J. M. Hvam und P. Lodahl, *On the interpretation of wave function overlaps in quantum dots*, phys. stat. sol. (b) **248**(4), S. 855 (2011).
- [Sug02] M. Sugisaki, H.-W. Ren, S. V. Nair, K. Nishi und Y. Masumoto, *External-field effects on the optical spectra of self-assembled InP quantum dots*, Phys. Rev. B **66**(23), S. 235309 (2002).
- [Sze07] S. M. Sze und K. K. Ng, *Physics of Semiconductor Devices*, Wiley (2007).
- [Tak00] T. Takagahara, *Theory of exciton doublet structures and polarization relaxation in single quantum dots*, Phys. Rev. B **62**(24), S. 16840 (2000).
- [The06] C. Thelander, P. Agarwal, S. Brongersma, J. Eymery, L. Feiner, A. Forchel, M. Scheffler, W. Riess, B. Ohlsson, U. Gösele und L. Samuelson, *Nanowire-based one-dimensional electronics*, Mat. Today **9**(10), S. 28 (2006).
- [Thu04] F. Thuselt, *Physik der Halbleiterbauelemente*, Springer (2004).
- [Trä08] J. Trägårdh, *Optical spectroscopy of single nanowires*, Dissertation, Department of Physics, Lund University, Sweden (2008).
- [Var67] Y. P. Varshni, *Temperature dependence of the energy gap in semiconductors*, Physica **34**(1), S. 149 (1967).

- [Vug05] L. K. van Vugt, S. J. Veen, E. P. A. M. Bakkers, A. L. Roest und D. Vanmaekelbergh, *Increase of the Photoluminescence Intensity of InP Nanowires by Photoassisted Surface Passivation*, J. Am. Chem. Soc. **127**, S. 12357 (2005).
- [Wag64] R. S. Wagner und W. C. Ellis, *Vapor-Liquid-Solid Mechanism of Single Crystal Growth*, Appl. Phys. Lett. **4**(5), S. 89 (1964).
- [Wal98] S. N. Walck und T. L. Reinecke, *Exciton diamagnetic shift in semiconductor nanostructures*, Phys. Rev. B **57**(15), S. 9088 (1998).
- [Wan11] Y. Wang, Y.-T. Chen, H. Zhao, F. Xue, F. Zhou und J. C. Lee, *Impact of SF₆ plasma treatment on performance of TaN-HfO₂-InP metal-oxide-semiconductor field-effect transistor*, Appl. Phys. Lett. **98**(4), S. 043506 (2011).
- [War97] R. J. Warburton, C. S. Dürr, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro und P. M. Petroff, *Charged Excitons in Self-Assembled Semiconductor Quantum Dots*, Phys. Rev. Lett. **79**(26), S. 5282 (1997).
- [Wee06] M. H. M. van Weert, O. Wunnicke, A. L. Roest, T. J. Eijkemans, A. Y. Silov, J. E. M. Haverkort, G. W. 't Hooft und E. P. A. M. Bakkers, *Large redshift in photoluminescence of p-doped InP nanowires induced by Fermi-level pinning*, Appl. Phys. Lett. **88**(4), 043109 (2006).
- [Wil] F. E. Williams, J. Phys. and Chem. Sol., Number = 3-4, Pages = 265–275, Title = Theory of the energy levels of donor-acceptor pairs, Url = <http://www.sciencedirect.com/science/article/B6TXR-46M72B7-S/2/4a438c8ace4aacca0db6aa416a98f36c>, Volume = 12, Year = 1960 .
- [Yab87] E. Yablonovitch, C. J. Sandroff, R. Bhat und T. Gmitter, *Nearly ideal electronic properties of sulfide coated GaAs surfaces*, Appl. Phys. Lett. **51**(6), S. 439 (1987).
- [Yab89] E. Yablonovitch, B. J. Skromme, R. Bhat, J. P. Harbison und T. J. Gmitter, *Band bending, Fermi level pinning, and surface fixed charge on chemically prepared GaAs surfaces*, Appl. Phys. Lett. **54**(6), S. 555 (1989).
- [Yam00] Y. Yamamoto, F. Tassone und H. Cao, *Semiconductor cavity quantum electrodynamics*, Springer (2000).
- [Yao04] W. Yao, R. Liu und L. J. Sham, *Nanodot-Cavity Electrodynamics and Photon Entanglement*, Phys. Rev. Lett. **92**(21), S. 217402 (2004).
- [Yao05] W. Yao, R.-B. Liu und L. J. Sham, *Theory of Control of the Spin-Photon Interface for Quantum Networks*, Phys. Rev. Lett. **95**(3), S. 030504 (2005).

- [Yoo06] J. Yoo, Y.-J. Hong, S. J. An, G.-C. Yi, B. Chon, T. Joo, J.-W. Kim und J.-S. Lee, *Photoluminescent characteristics of Ni-catalyzed GaN nanowires*, Appl. Phys. Lett. **89**(4), 043124 (2006).
- [Yu01] P. Y. Yu und M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors*, Springer, 3. Auflage (2001).
- [Zeg07] B. van Zeghbroeck, *Principles of Semiconductor Devices*, Colorado Press (2007).
- [Zha08] H. Zhao, D. Shahrjerdi, F. Zhu, H.-S. Kim, I. OK, M. Zhang, J. H. Yum, S. K. Banerjee und J. C. Lee, *Inversion-type indium phosphide metal-oxide-semiconductor field-effect transistors with equivalent oxide thickness of 12 Å using stacked HfAlO_x/HfO₂ gate dielectric*, Appl. Phys. Lett. **92**(25), 253506 (2008).

Publikationen

Veröffentlichungen

- S. Reitzenstein, A. Bazhenov, A. Gorbunov, C. Hofmann, S. Münch, A. Löffler, M. Kamp, J. P. Reithmaier, V. D. Kulakovskii, and A. Forchel. Lasing in high-Q quantum-dot micropillar cavities. *Appl. Phys. Lett.* **89**, 051107 (2006)
- S. Reitzenstein, S. Münch, C. Hofmann, A. Forchel, S. Crankshaw, L. C. Chuang, M. Moewe, and C. Chang-Hasnain. Time resolved microphotoluminescence studies of single InP nanowires grown by low pressure metal organic chemical vapor deposition. *Appl. Phys. Lett.* **91**, 091103 (2007)
- S. Crankshaw, S. Reitzenstein, L. C. Chuang, M. Moewe, S. Münch, C. Böckler, A. Forchel, and C. Chang-Hasnain. Recombination dynamics in wurtzite InP nanowires. *Phys. Rev. B* **77**, 235409 (2008)
- S. Reitzenstein, C. Böckler, A. Bazhenov, A. Gorbunov, S. Münch, A. Löffler, M. Kamp, V. D. Kulakovskii, and A. Forchel. Single quantum dot controlled gain modulation in high-Q micropillar lasers. *Phys. Status Solidi B* **246**, 277 (2009)
- S. Münch, S. Reitzenstein, P. Franek, A. Löffler, T. Heindel, S. Höfling, L. Worschech, and A. Forchel. The role of optical excitation power on the emission spectra of a strongly coupled quantum dot-micropillar system. *Opt. Express* **17**, 12821 (2009)
- S. Reitzenstein, S. Münch, P. Franek, A. Rahimi-Iman, A. Löffler, S. Höfling, L. Worschech, and A. Forchel. Control of the Strong Light-Matter Interaction between an Elongated In_{0.3}Ga_{0.7}As Quantum Dot and a Micropillar Cavity Using External Magnetic Fields. *Phys. Rev. Lett.* **103**, 127401 (2009)
- S. Reitzenstein, C. Schneider, S. Münch, C. Kistner, M. Strauss, A. Huggenberger, P. Franek, P. Weinmann, M. Kamp, S. Höfling, L. Worschech, and A. Forchel. Semiconductor Cavity Quantum Electrodynamics with Single Quantum Dots. *Acta Phys. Pol. A* **116**, 445 (2009)

- S. Reitzenstein, C. Kistner, S. Münch, T. Heindel, C. Schneider, M. Strauss, A. Rahimi-Iman, K. Morgener, S. Höfling, M. Kamp, and A. Forchel. Quantum dot micropillar lasers. *Proc. SPIE* **7631**, 76311J (2009)
- P. Yao, P. K. Pathak, E. Illes, S. Hughes, S. Münch, S. Reitzenstein, P. Franek, A. Löffler, T. Heindel, S. Höfling, L. Worschech, and A. Forchel. Nonlinear photoluminescence spectra from a quantum-dot cavity system: Interplay of pump-induced stimulated emission and anharmonic cavity QED. *Phys. Rev. B* **81**, 033309 (2010)
- S. Münch, S. Reitzenstein, M. Borgström, C. Thelander, L. Samuelson, L. Worschech, and A. Forchel. Time-resolved photoluminescence investigations on HfO₂ capped InP nanowires. *Nanotechnology* **21**, 105711 (2010)
- C. Chèze, L. Geelhaar, O. Brandt, W. Weber, H. Riechert, S. Münch, R. Rothemund, S. Reitzenstein, A. Forchel, T. Kehagias, P. Komninou, G. Dimitrakopoulos, T. Karakostas. Direct comparison of catalyst-free and catalyst-induced GaN nanowires. *Nano Res.* **3**, 528 (2010)
- S. Reitzenstein, S. Münch, P. Franek, A. Löffler, S. Höfling, L. Worschech, and A. Forchel. Exciton spin state mediated photon-photon coupling in a strongly coupled quantum dot microcavity system. *Phys. Rev. B* **82**, 121306(R) (2010)
- L. Geelhaar, C. Chèze, B. Jenichen, O. Brandt, C. Pfüller, S. Münch, R. Rothemund, S. Reitzenstein, A. Forchel, T. Kehagias, P. Komninou, G. P. Dimitrakopoulos, T. Karakostas, L. Lari, P. R. Chalker, M. H. Gass, H. Riechert. Properties of GaN Nanowires Grown by Molecular Beam Epitaxy. *J. Sel. Top. Quantum Electron.* **17**, 878 (2011)

Tagungsbeiträge

- S. Münch, S. Reitzenstein, C. Hofmann, S. Crankshaw, L. Chuang, M. Moewe, C. Chang-Hasnain and A. Forchel. Micro-Photoluminescence studies of individual InP-nanowires grown by low pressure MOVPE. *Vortrag bei: Frühjahrstagung des Arbeitskreises Festkörperphysik, Deutsche Physikalische Gesellschaft*, 26.-30. März 2007, Regensburg
- S. Münch, S. Reitzenstein, M. Kamp, N. Sköld, J. Trägårdh, S. Crankshaw, C. Chang-Hasnain, L. Samuelson and A. Forchel. Optical studies on chemical and core-shell surface-passivation techniques of InP and GaAs Nanowires. *Poster bei: International Conference on Nano Science and Technology (ICN+T) 2007*, 2.-6. Juli 2007, Stockholm

-
- S. Münch, N. Sköld, S. Reitzenstein, J. Trägårdh, A. Gorbunov, M. Kamp, L. Samuelson and A. Forchel. Optical studies on surface passivation by both wet-chemical sulfur treatment and epitaxial core-shell growth of GaAs Nanowires. *Vortrag bei: Frühjahrstagung des Arbeitskreises Festkörperphysik, Deutsche Physikalische Gesellschaft*, 25.-29. März 2008, Berlin
 - S. Münch, S. Reitzenstein, P. Franeck, A. Rahimi-Iman, A. Löffler, S. Höfling, L. Worschech and A. Forchel. Magnetic field controlled interaction strength of a strongly coupled quantum dot-micropillar system. *Poster bei: International Nano-Optoelectronic Workshop (iNOW) 2009*, 2.-15. August 2009, Stockholm und Berlin
 - S. Münch, S. Reitzenstein, P. Franeck, A. Löffler, S. Höfling, L. Worschech and A. Forchel. Magnetic field controlled interaction strength of a strongly coupled quantum dot-micropillar system. *Vortrag bei: Frühjahrstagung des Arbeitskreises Festkörperphysik, Deutsche Physikalische Gesellschaft*, 21.-26. März 2010, Regensburg
 - und diverse Beiträge bei den vierteljährlichen Tagungen des EU-Projektes NODE bzw. bei internationalen Konferenzen als Koautor

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich all denen danken, die einen wesentlichen Beitrag zum Gelingen dieser Arbeit geleistet haben:

Prof. Dr. Alfred Forchel für die interessante Themenstellung und die freundliche Aufnahme am Lehrstuhl für Technische Physik, mit dessen hervorragender technischer Ausstattung und den exzellenten experimentellen Möglichkeiten.

Prof. Dr. Stephan Reitzenstein für die wissenschaftliche Betreuung dieser Arbeit und die vielen anregenden Diskussionen, die hilfreichen Ratschläge und die nette Zusammenarbeit.

Prof. Dr. Jean Geurts für die Übernahme des Zweitgutachtens, sowie Prof. Dr. Wolfgang Kinzel für seine Teilnahme als Prüfer im Promotionskolloquium.

Meinen Masterstudenten Ralph Rothemund, Philipp Franeck und Peter Gold für die freundschaftliche Atmosphäre, die erfolgreiche Zusammenarbeit und die vielen erhellenden Diskussionen.

Den Praktikanten Maximilian Aulbach, Felix Keller, Franz Münzhuber und Christian Platt für die tatkräftige Unterstützung und die angenehme Zeit im Labor.

Den Kooperationspartnern Shanna Crankshaw, Roger Chen, Michael Moewe und Connie Chang-Hasnain von der Universität von Kalifornien in Berkeley, Caroline Chèze, Oliver Brandt, Lutz Geelhaar und Henning Riechert vom Paul-Drude-Institut für Festkörperelektronik in Berlin, sowie Magnus Borgström, Claes Thelander und Lars Samuelson von der Universität Lund für die Bereitstellung zahlreicher Nanodraht-Proben und die erfolgreiche wissenschaftliche Zusammenarbeit.

Den Gastwissenschaftlern Anatolii V. Bazhenov und Alexander Gorbunov von der Russischen Akademie der Wissenschaften in Tschernogolowka für die vielen messtechnischen Tipps, die herzliche Atmosphäre und die zahlreichen Diskussionen.

Den Kooperationspartnern Ilya V. Ponomarev und Tom L. Reinecke vom Naval Research Laboratory in Washington, D.C., sowie Peijun Yao und Steven Hughes von der Queen's Universität in Kingston (Ontario, Kanada) für die gute und erfolgreiche Zusammenarbeit zur starken Kopplung im Magnetfeld.

Ferdinand Albert, Carolin Böckler, Tristan Braun, Tobias Heindel, Caroline Kistner, Stefan Kremling, Kai Morgener, Jonathan Prechtel, Arash Rahimi-Iman, Johannes Renner, Thomas Schmidt, Michael Schneider für das freundschaftliche Arbeitsklima und die gegenseitige Hilfsbereitschaft bei messtechnischen Herausforderungen im Labor.

Gerhard Heller für die tatkräftige Unterstützung bei der Behebung von kleineren und größeren technischen Problemen im Labor.

Monika Emmerling, Silke Kuhn und Adriana Wolf für die fachkundige und schnelle Prozessierung erstklassiger Halbleiterstrukturen.

Allen weiteren Mitarbeitern des Lehrstuhls für Technische Physik für das gute Arbeitsklima und die freundliche Atmosphäre.

Ganz besonders meiner Familie, ohne deren Unterstützung mein Studium und die Promotion nicht möglich gewesen wäre.

Versicherung an Eides statt

gemäß §5 Abs. 2 Zi. 2 der Promotionsordnung der Fakultät für Physik und Astronomie der Universität Würzburg.

Hiermit versichere ich an Eides statt, dass ich die vorliegende Dissertation eigenständig, d.h. insbesondere selbständig und ohne Hilfe eines kommerziellen Promotionsberaters angefertigt und keine anderen 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 13. Juli 2004 wurde mir von der Heriot-Watt University in Edinburgh, Schottland der akademische Grad „Master of Physics in Optoelectronics and Lasers“ verliehen. Am 31. Juli 2006 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 18. Mai 2012

Steffen Münch