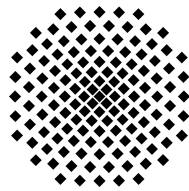


Einfluss des Stark-Effekts auf die optischen Eigenschaften von (In,Ga)As/GaAs- Einzelquantenpunkten

Diplomarbeit

von

Moritz Vogel



Hauptberichter: Prof. Dr. P. Michler

Mitberichter: Prof. Dr. H. Gießen

Universität Stuttgart

Februar 2006

Für meine Eltern, denen ich alles zu verdanken habe.

Für Selina, mit der ich während des Studiums so viel erlebt habe.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	7
1.1	Einführung in das Themengebiet	7
1.2	Stand der Forschung	7
1.3	Ziele dieser Arbeit	8
2	Grundlagen	9
2.1	Quasiteilchen	9
2.1.1	Exzitonen in Halbleitern	9
2.2	Idealisierte niederdimensionale Halbleiterstrukturen	10
2.2.1	Quantisierung der Energie	11
2.2.2	Dichte der Ladungsträger-Zustände	14
2.2.3	Elektron-Loch-Paare in Quantenpunkten	15
2.3	Reale Quantenpunkte - Feinstruktur	16
2.3.1	Austauschwechselwirkung und Feinstruktur	16
2.3.2	Feinstruktur und verschränkte Photonen	18
2.3.3	Einfluss durch piezoelektrische Felder und Gittersymmetrie auf atomarer Skala	19
2.4	Quantenpunkte in elektrischen Feldern, Stark-Effekt	19
2.4.1	Quantenpunkte in einem vertikalen elektrischen Feld	20
2.4.2	Quantenpunkte in einem lateralen elektrischen Feld	20
2.4.3	Spektrale Diffusion	21
2.5	Photonen: Zustände und Statistik	21
2.5.1	Korrelationsfunktion zweiter Ordnung	22
2.5.2	Nichtklassisches Licht: Fock-Zustände	23
2.5.3	Kohärentes Licht: Glauber-Zustände	23
2.5.4	Gemischte Zustände: Thermisches Licht	23
2.5.5	Charakteristiken verschiedener Zustände, Fano-Faktor	24
2.5.6	Quantenpunkte und die Erzeugung von Fock-Zuständen	27
3	Die (In,Ga)As/GaAs-Quantenpunktproben	29
3.1	Molekularstrahlepitaxie	29
3.1.1	„Thermal annealing“	29
3.2	Elektrische Kontaktierung	30

4	Experimenteller Aufbau und Messmethoden	33
4.1	Quantenoptische Untersuchungen an einzelnen Halbleiterquantenpunkten . .	33
4.2	Photonenkorrelationsspektroskopie	35
4.2.1	„Hanbury Brown & Twiss“-Korrelator	35
4.3	Hochauflösende optische Spektroskopie	36
4.3.1	Hochauflösende Gitterspektrometer	36
4.3.2	Fourierspektroskopie	36
4.3.3	Fabry-Perot-Interferometrie	36
5	Ergebnisse	41
5.1	Test des Fabry-Perot-Interferometers	41
5.1.1	Bestimmung des Auflösungsvermögens des Fabry-Perot-Interferometers	42
5.2	Die RTA-Proben	44
5.2.1	Hochauflösende Linienbreitenmessungen an den RTA-Proben	45
5.2.2	Korrelationsmessungen an den RTA-Proben	50
5.2.3	Resonante Anregung der RTA-Proben	53
5.2.4	Messungen bei angelegtem elektrischen Feld	57
5.3	Optimierungen zur hochauflösenden Spektroskopie	72
5.3.1	Erhöhung der Lichtsammelleffizienz mit Hilfe von Feststoff- Immersionlinsen	72
5.3.2	Bragg-Reflektoren	73
5.4	Die Insitu-Proben	75
5.4.1	Voruntersuchungen an den Insitu-Proben	75
5.4.2	Feldabhängige Messungen an der Insitu 64070-Probe	79
5.4.3	Die 1λ -Kavität	80
6	Zusammenfassung	95
6.1	Ausblick	96
	Abbildungsverzeichnis	98
	Tabellenverzeichnis	101
	Literaturverzeichnis	103

Kapitel 1

Einleitung

1.1 Einführung in das Themengebiet

Niederdimensionale Halbleiterstrukturen haben nicht nur eine große Bedeutung bei der Fabrikation von Hochfrequenz- und Niederstrombauteilen erreicht, sondern auch im Bereich der Quantenoptik. So lassen sich mit Hilfe von Quantenpunkten (QDs) Einzelphotonenquellen realisieren [34], [46], [62], die neben aussichtsreichen neuen Anwendungen in der immer stärker durch optische Technologien geprägten Kommunikationstechnik auch die Möglichkeit bieten, die fundamentalen quantenmechanischen Eigenschaften von Licht zu untersuchen.

Vielversprechende Prognosen für die Verwendung von Halbleiter-Quantenpunkten auf neuen Gebieten wie der intrinsisch sicheren Quantenkryptographie [20], der zukünftigen Realisierung eines Quantencomputers [24], [29] oder der Quantenteleportation [28], machen QDs in einem weiten Themenfeld zum Gegenstand spannender aktueller Forschung.

1.2 Stand der Forschung

Die optische Spektroskopie ist eine der wichtigsten Methoden zur Untersuchung von Quantenpunkten. Ausgehend von Studien an Quantenpunkt-Ensembles [9], die aufgrund der statistischen strukturellen Fluktuationen selbstorganisierter Quantenpunkte eine inhomogen verbreiterte Lumineszenz zeigen, konnten mit zunehmenden experimentellen Erfahrungen erstmals 1992 auch einzelne Quantenpunkte untersucht werden [5]. Seitdem wurde an einzelnen Quantenpunkten intensiv Forschung betrieben.

Nachdem sich herausgestellt hat, dass die in einer Kaskade aus dem Quantenpunkt emittierten Photonen aufgrund einer Exziton-Feinstrukturaufspaltung klassisch polarisationskorreliert sind, aber keine quantenmechanische Verschränkung zeigen [31], [55], [45], wird intensiv daran geforscht, diese Feinstrukturaufspaltung zu beeinflussen. Ziel ist es, Quantenpunkte als maßgeschneiderte Quellen verschränkter Photonenpaare für die Quanteninformationstechnologie nutzbar zu machen.

So wird versucht, die Feinstrukturaufspaltung durch besondere Herstellungsverfahren der Quantenpunkte zu verringern [53] und dieses mit Hilfe von magnetischen [52] oder in jüngster Zeit auch mit elektrischen [22] Feldern zu beeinflussen. Stevenson et al. zeigen 2006 erstmals die Erzeugung verschränkter Photonenpaare mit Hilfe eines durch ein magnetisches Feld beeinflussten InAs/GaAs-Quantenpunktes [51]. Aufgrund der besseren Implementierbarkeit in eine „On-Chip“-Mikrosystemtechnik wäre die Beeinflussung durch elektrische Felder je-

doch der bevorzugte Steuerungsmechanismus. Erste Hinweise auf die Kontrolle der Exziton-Feinstruktur durch ein elektrisches Feld wurden 2004 von Kowalik et al. gezeigt [21], die (im Rahmen der Meßgenauigkeit des verwendeten experimentellen Aufbaus) eine Reduktion der Feinstrukturaufspaltung beobachten konnten.

Eine spektrale Durchstimmung der Exzitonen-Rekombinationsenergie aufgrund eines äußeren elektrischen Feldes ist bisher hauptsächlich in Strukturen untersucht worden, bei denen das Feld entlang der Wachstumsrichtung (d.h. in vertikaler Richtung) angelegt wurde. Die Ergebnisse dieser Messungen legen ein permanent vorhandenes Dipolmoment nahe [40],[18],[11]. Bei lateraler (in der Ebene der Quantenpunkte liegender) Feldrichtung wird eine annähernd quadratische Abhängigkeit der Exzitonen-Rekombinationsenergie in CdSe-Quantenpunkten [49] und InGaN-Quantenpunkten [19] vom elektrischen Feld beobachtet. Gotoh et al. [13] zeigen, dass kleine InGaAs-Quantenpunkte nur eine sehr schwache Abhängigkeit vom elektrischen Feld zeigen, während bei großen Quantenpunkten eine deutliche Verschiebung zu niedrigeren Energien auftritt.

1.3 Ziele dieser Arbeit

Im Kontext der weltweiten Bemühungen, quantenmechanisch verschränkte Photonenpaare mit Hilfe von Halbleiter-Quantenpunkten zu erzeugen, soll in dieser Arbeit der Einfluss lateraler elektrischer Felder auf die optischen Eigenschaften von (In,Ga)As/GaAs-Quantenpunkten untersucht werden.

Um eine für die Feinstrukturuntersuchungen speziell an diesen Quantenpunkten nötige hohe Auflösung zu erreichen, soll hierzu eine auf diesem Gebiet noch nicht verwendete Methode eingeführt werden. Die auf Vielstrahlinterferenz beruhende Fabry-Perot-Interferometrie soll in das bestehende Mikrophotolumineszenzexperiment implementiert werden. Eine Beschreibung dieses Verfahrens befindet sich in Kapitel 4.3.3, die Charakterisierung des Auflösungsvermögens erfolgt in Kapitel 5.1.1. Die Ergebnisse der hochauflösenden Messungen sind in den daran anschließenden Kapiteln dargestellt.

Die Quantenpunktproben, die vom Max-Planck Institut für Festkörperforschung (Gruppe Dr. habil. O. G. Schmidt) in Stuttgart hergestellt werden, sind durch bestimmte Aufheizverfahren (Kapitel 3.1.1) bearbeiteten worden. Die so getemperten Proben zeigen eine schmalere Ensemble-Lumineszenz [41], was auf eine gesteigerte strukturelle Homogenität der Quantenpunkte untereinander schließen lässt. In dieser Arbeit sollen diese Proben auch darauf untersucht werden, ob diese Aufheizung zu einer kleineren Feinstrukturaufspaltung einzelner Quantenpunkte führt.

Der Einfluss elektrischer Felder ist aber nicht nur im Zusammenhang mit verschränkten Photonen interessant sondern von generellem Interesse, da sich mit Hilfe des elektrischen Feldes die Emissionsenergien der Exzitonenübergänge gezielt und reversibel durchstimmen lassen. Das Feldverhalten verschiedener optischer Übergänge ist in Kapitel 5.2.4 dargestellt. So könnten in Zukunft mit Hilfe elektrischer Felder möglicherweise einzelne Übergänge von QDs kontrolliert in Resonanz mit den Emissionsmoden von Mikro-Resonatorstrukturen [56] gebracht werden. Des Weiteren tragen diese Messungen zu einem tieferen Verständnis der Quantenpunkte bei. Eine derartige Kontrolle individueller Quantenpunkte könnte die gezielte Untersuchung quanten-elektrodynamischer Effekte (starke Kopplung / schwache Kopplung [42]) erheblich vereinfachen.

Kapitel 2

Grundlagen

Zum Verständnis der Arbeit soll zunächst die grundlegende Idee der Quantenpunkte behandelt werden. Dazu werden einfache idealisierte Modelle herangezogen. Im Kapitel 2.3 werden reale Quantenpunkte mit ihren Abweichungen von einer perfekten Symmetrie behandelt. Nach einer kurzen Einführung in die Photonenstatistik 2.5 werden die Vorteile der Halbleiterquantenpunkte für die Quantenoptik und mögliche Anwendungen in der Kommunikationstechnologie besprochen (Kap. 2.5.6).

2.1 Quasiteilchen

Die Landau-Theorie [26], [25] beschreibt in guter Weise niedrige Einteilchanregungen eines Vielteilchensystems aus wechselwirkenden Elektronen. Dabei werden diese Anregungen als quasi-frei von Wechselwirkungen mit den anderen Elektronen betrachtet. Diese werden durch neue Eigenschaften, wie einer effektiven Masse m_{eff} , der Einteilchenanregung berücksichtigt. Bei dieser Anregung handelt es sich folglich nicht mehr um ein Elektron, deshalb wird sie als Quasiteilchen bezeichnet. Dieses Konzept erleichtert die Beschreibung von Vielteilchensystemen erheblich und lässt sich noch erweitern. So hat es sich als zweckmäßig erwiesen fehlende Elektronen im Gitter eines Festkörpers ebenfalls als Quasiteilchen zu beschreiben. Diese werden Defektelektronen oder Löcher genannt. Sie besitzen auch eine effektive Masse aber eine positive Ladung und können sich genauso quasi-frei durch den Festkörper bewegen.

2.1.1 Exzitonen in Halbleitern

Die Beobachtung zeigt, dass Photonen in einem Kristall absorbiert werden können, auch wenn ihre Energie kleiner als die der Bandlücke E_g ist. Dabei entsteht ein gebundenes Elektron-Loch-Paar. Die Schwellenenergie für die Erzeugung solcher so genannter Exzitonen ist dabei in Folge der anziehenden Coulomb-Wechselwirkung um ihre Bindungsenergie gegenüber der Bandlückenenergie des Kristalls reduziert. Für die Erzeugung von Exzitonen gilt also $\hbar\omega \leq E_g$. Für GaAs beträgt die Bindungsenergie von Exzitonen $E_b = 4.2 \text{ meV}$ [23]. Für die Erzeugung eines freien Elektron-Loch-Paares ist hingegen eine Energie größer als die der Bandlücke erforderlich $\hbar\omega \geq E_g$. Schwach gebundene Exzitonen, bei denen der Elektron-Loch-Abstand groß ist im Vergleich zur Gitterkonstanten, werden Mott-Wannier-Exzitonen genannt. Stark gebundene Exzitonen werden Frenkel-Exzitonen genannt. Exzitonen können sich durch den Kristall bewegen wobei sie Energie transportieren daher werden sie auch als Quasiteilchen betrachtet.

Wichtig sind sie für diese Arbeit, da sie instabil gegenüber Strahlungsrekombination sind. Dabei fällt das Elektron unter Emission eines Photons in das Loch im Valenzband zurück. Es können sich auch mehrere Elektronen und Löcher binden, dieser Komplex wird dann je nach Anzahl der Ladungsträger Bi-/Triexziton oder schlicht Multiexziton genannt. Eine besondere Bedeutung haben Exzitonen im Zusammenhang mit niederdimensionalen Halbleiterstrukturen wie Quantenpunkten (Kapitel 2.2.3).

2.2 Idealisierte niederdimensionale Halbleiterstrukturen

Wenn die Bewegung eines Ladungsträgers räumlich auf Skalen seiner de Broglie Wellenlänge eingeschränkt ist, werden Quantisierungseffekte sichtbar [4]. Die de Broglie Wellenlänge hängt nur von der Temperatur T und der effektiven Masse m_{eff} des Elektrons oder Lochs ab.

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{\sqrt{3m_{\text{eff}}kT}} \quad (2.1)$$

In der Halbleiterphysik erreicht man den Einschluss der Ladungsträger durch die Verwendung von Heterostrukturen (siehe Abbildung 2.1). Da in diesen die effektive Masse m_{eff} sehr viel kleiner sein kann als die Masse eines freien Elektrons m_0 ($m_{\text{eff,GaAs}} = 0.067m_0$ [27]), kann die de Broglie Wellenlänge recht groß werden, und Quantisierungseffekte treten schon bei Größen auf, die einem hundertfachen der Gitterkonstante entsprechen können.

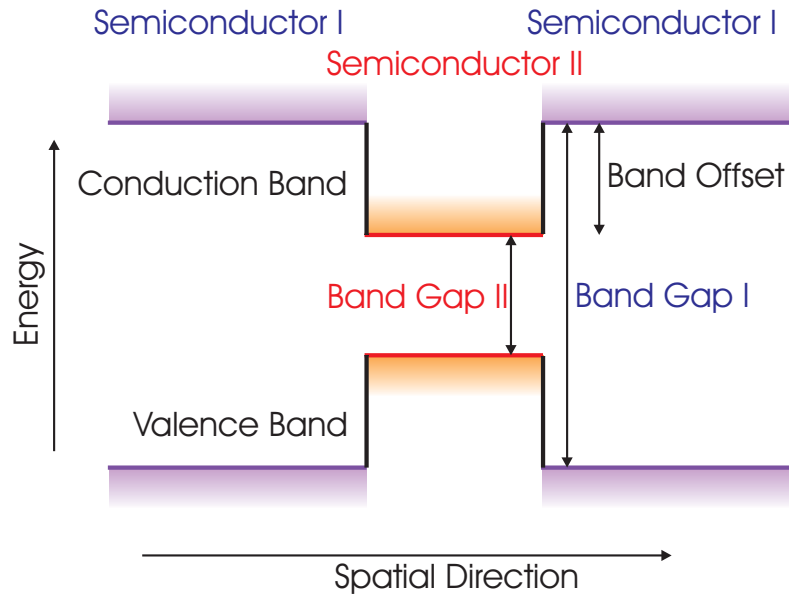


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der Bandlücken einer Halbleiter-Heterostruktur. Die unterschiedlichen Energielagen des Valenz- und des Leitungsbandes verschiedener Materialien führt zu einer Modulation der Bandstruktur. Dadurch lassen sich auch komplexere Bandstrukturen entwerfen. Dies ermöglicht eine hohe Designfreiheit beim Entwurf von Potentiallandschaften für Elektronen und Löcher.

Es gibt aber auch eine untere Grenze für die Größe solcher Strukturen. Es sollte zumindest ein gebundener Zustand existieren. Die minimale Größe D_{min} hängt im wesentlichen von der

Tiefe des Potentials, also vom Bandversatz der Heterostruktur ab. Für das Elektronenniveau in einem sphärischen Quantenpunkt gilt nach [4]:

$$D_{min} = \frac{h}{2\sqrt{2m_{\text{eff}}\Delta E_c}} \quad (2.2)$$

wobei ΔE_c den Versatz im Leitungsband angibt. Eine maximale Größe ist unter anderem dadurch gegeben, dass die gebundenen Zustände mit zunehmender Größe näher zusammenrücken und so die spektrale Selektion verschiedener Übergänge schwieriger wird. Außerdem soll eine thermische Besetzung der höheren Zustände verhindert werden.

Im Folgenden sollen die Effekte, die aufgrund der kleinen Strukturen und Kombinationen verschiedener Materialien zustande kommen, genauer betrachtet werden.

2.2.1 Quantisierung der Energie

Man beginnt mit der einfachen Einteichen-Schrödingergleichung

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_{\text{eff}}}\Delta + V(x, y, z) \right] \Psi^n(x, y, z) = E^n \Psi^n(x, y, z) \quad . \quad (2.3)$$

Hierbei ist das Potential $V(x, y, z)$ der Heterostruktur durch die unterschiedlichen Energien der Bänder der beteiligten Materialien gegeben. Da Halbleiter eine kristalline Gitterstruktur besitzen, wird das periodische Gitterpotential in der effektiven Masse m_{eff} berücksichtigt. Die Eigenfunktionen $\Psi^n(x, y, z)$ zum Energieeigenwert E^n sind in die x,y,z-Richtungen separierbar.

$$\Psi(x, y, z) = \Psi(x)\Psi(y)\Psi(z) \quad (2.4)$$

Dies führt zu einer Entkopplung der Energien.

$$E(x, y, z) = E_x^{n(x)} + E_y^{n(y)} + E_z^{n(z)} \quad (2.5)$$

Ohne Einschränkung durch ein Potential $V(x, y, z)$ ergibt sich die Lösung für ein freies Teilchen mit einer effektiven Masse m_{eff} gemäß

$$E(x, y, z) = \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m_{x\text{eff}}} + \frac{\hbar^2 k_y^2}{2m_{y\text{eff}}} + \frac{\hbar^2 k_z^2}{2m_{z\text{eff}}} = \frac{\hbar^2 k_{\vec{r}}^2}{2m_{\vec{r}\text{eff}}} \quad . \quad (2.6)$$

Schränkt man nun die Bewegung des Ladungsträgers in einer Dimension ein, z.B. der z-Richtung, dann kann sich dieser nur noch in der x,y-Ebene frei bewegen. Die Eigenfunktionen entlang der Quantisierungsachse $\Psi_n(z)$ sind dann Lösungen zur eindimensionalen Schrödingergleichung.

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_{\text{eff}}}\Delta + V(z) \right] \Psi^n(z) = E_z^n \Psi^n(z) \quad (2.7)$$

Falls der Energieeigenwert E_z^n kleiner als die Energiebarriere in z-Richtung ist, handelt es sich bei den Eigenfunktionen $\Psi^n(z)$ um gebundene Zustände. Betrachtet man nur niedrige Zustände bzw. ein tiefes Potential werden die Wellenfunktionen außerhalb des Potentials verschwinden und die Näherung des unendlich tiefen Potentialtopfes mit der Breite L_z kann herangezogen werden.

$$V(z) = 0, \text{ falls } -L_z/2 \leq z \leq L_z/2 \quad (2.8)$$

$$= \infty, \text{ sonst} \quad (2.9)$$

Die Lösungen sind dann:

$$E_{(z)}^n = \frac{\hbar^2 k_z^2}{2m_{\text{eff}}} \left(\frac{n\pi}{L_z} \right)^2 \quad (2.10)$$

$$\Psi_k^n(x, y, z) = \frac{1}{\sqrt{L_x L_y}} e^{ik_x p_x} e^{ik_y p_y} \Theta^n(z) \quad (2.11)$$

$$\text{mit } \Theta^n(z) = \sqrt{\frac{2}{L_z}} \sin\left(\frac{n\pi z}{L_z}\right) \text{ für gerade } n \quad (2.12)$$

$$\Theta^n(z) = \sqrt{\frac{2}{L_z}} \cos\left(\frac{n\pi z}{L_z}\right) \text{ für ungerade } n \quad (2.13)$$

Mit periodischen Randbedingungen in der x- und y-Richtung ergeben sich damit ebenfalls die Quantisierungsbedingungen für Bewegungen/Zustände in der Ebene senkrecht zur Haupt-Quantisierungsachse.

$$k_x = n_x \frac{2\pi}{L_x} \quad (2.14)$$

$$k_y = n_y \frac{2\pi}{L_y} \quad (2.15)$$

Schränkt man die Bewegungsfreiheit des Ladungsträgers in einer weiteren Dimension ein, so erhält man einen eindimensionalen Quantendraht. Die Bewegung sei frei in der x-Richtung. Das Problem ist wieder separierbar und man erhält:

$$E_x^n = \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m_{\text{eff}}} + E_y^{n_y} + E_z^{n_z} \quad (2.16)$$

$$\Psi_k^n(x, y, z) = \frac{1}{\sqrt{L_x}} e^{ik_x p_x} \Theta^{n_y}(y) \Theta^{n_z}(z) \quad (2.17)$$

Für den Fall eines unendlich tiefen Potentials $V(y, z)$ ergibt sich für $\Theta^{n_y}(y)$ und $\Theta^{n_z}(z)$ wieder das Ergebnis aus 2.11.

In Quantenpunkten ist die Bewegungsfreiheit nun in allen drei Raumdimensionen beschränkt. Im einfachen Fall einer „Quantenbox“ ergibt sich

$$E(x, y, z) = E_x^{n(x)} + E_y^{n(y)} + E_z^{n(z)} \quad ; \quad (2.18)$$

mit den Eigenfunktionen

$$\Psi(x, y, z) = \Theta^{n_x}(x) \Theta^{n_y}(y) \Theta^{n_z}(z) \quad . \quad (2.19)$$

Betrachtet man wieder ein unendlich tiefes Potential $V(x, y, z)$ so folgt:

$$E(x, y, z) = \frac{\hbar^2 \pi^2}{2m_{\text{eff}}} \left(\frac{n_x}{L_x} \right)^2 + \frac{\hbar^2 \pi^2}{2m_{\text{eff}}} \left(\frac{n_y}{L_y} \right)^2 + \frac{\hbar^2 \pi^2}{2m_{\text{eff}}} \left(\frac{n_z}{L_z} \right)^2 \quad (2.20)$$

Für $\Theta^{n_x}(x)$, $\Theta^{n_y}(y)$ und $\Theta^{n_z}(z)$ gilt wieder das Ergebnis aus 2.11. Im Falle eines würfelförmigen Quantenpunktes $L_x = L_y = L_z$ und wenn alle effektiven Massen entlang der drei Raumdimensionen gleich sind $m_{\text{eff}} = m_{y\text{eff}} = m_{z\text{eff}}$ ist der Grundzustand E_{111} aufgrund des Spins (Pauli-Prinzip) zweifach entartet und der erste angeregte Zustand E_{112} E_{121} E_{211} ist sechsfach entartet. Man erhält also wie im Atom einen zweifach entarteten S-Zustand und einen sechsfach entarteten P-Zustand. Aufgrund dessen werden Quantenpunkte oft als künstliche Atome bezeichnet. Um die Ähnlichkeit zwischen Atomen und Quantenpunkten weiter zu erläutern eignen sich aufgrund des zentralsymmetrischen Potentials kugelförmige Quantenpunkte am besten.

Kugelförmige Quantenpunkte

Quantenpunkte, die in kolloidalen Lösungen hergestellt werden, haben oft sphärische Gestalt. Zu Vereinfachung geht man wieder von einer starken Bindung der Ladungsträger im Quantenpunkt mit Radius R aus und verwendet ein unendlich tiefes Potential.

$$V(r) = 0, \text{ falls } r \leq R \quad (2.21)$$

$$= \infty, \text{ sonst} \quad (2.22)$$

Aufgrund der Zentralsymmetrie des Problems vertauscht der Drehimpulsoperator \hat{L} mit dem Hamiltonoperator \hat{H} . Deshalb verwendet man die Schrödingergleichung in sphärischen Koordinaten.

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_{\text{eff}}} \left(\frac{1}{r^2} \frac{\delta}{\delta r} r^2 \frac{\delta}{\delta r} - \frac{\hat{L}^2}{r^2} \right) + V(r) \right] \Psi(r, \theta, \phi) = E \Psi(r, \theta, \phi) \quad (2.23)$$

Die zugehörigen Eigenzustände sind separiert in ein Produkt aus einem Radialanteil und einem Winkelanteil Y_{lm} mit

$$E^{nl} = \frac{\hbar^2}{2m_{\text{eff}}} \left(\frac{X^{nl} r}{R} \right)^2 ; n = 1, 2, 3, \dots ; l = 0, 1, 2, \dots \quad (2.24)$$

$$\Psi^{nlm}(r, \theta, \phi) = A j^l \frac{\hbar^2}{2m_{\text{eff}}} \left(\frac{X^{nl} r}{R} \right) Y^{lm}(\theta, \phi) \quad (2.25)$$

Dabei sind j^l sphärische Besselfunktionen ($j^0(x) = \sin(x)/x$), die Y_{lm} sind Kugelflächenfunktionen. Die Koeffizienten X^{nl} sind die Nullstellen der sphärischen Besselfunktionen. Man kann demzufolge die Niveaus mit der herkömmlichen aus der Atomphysik bekannten Nomenklatur versehen. Der S-Zustand gehört zu $l = 0$, der P-Zustand zu $l = 1$ und so weiter. Allerdings gibt es aufgrund der unterschiedlichen Potentiale keine Einschränkung $l \leq n$ wie dies im Coulombpotential der Fall ist [6].

Weitere Geometrien und Modelle

Ein weiterer instruktiver Modellansatz zur Beschreibung von Quantenpunktstrukturen erhält man mit dem Ansatz eines harmonischen Oszillator Potentials. Daraus folgen äquidistante Energieniveaus für die Ladungsträger. Der harmonische Oszillator in zwei Dimensionen kombiniert mit einem Kastenpotenzial in Wachstumsrichtung stellt für viele reale Quantenpunkte eine gute Näherung dar. Weitere theoretische Beschreibungen gehen von pyramidalen Geometrien, Pyramidenstümpfen, Halbkugeln oder Linsenförmigen Quantenpunkten aus. Es werden auch Verspannungen (englisch „Strain“) aufgrund der unterschiedlichen Gitterkonstanten zwischen Substrat und Quantenpunkt sowie Materialdurchmischungen und Materialgradienten berücksichtigt. Solche Rechnungen sind aufwendig und in der Regel nur numerisch lösbar.

2.2.2 Dichte der Ladungsträger-Zustände

In einem dreidimensionalen Festkörper ist die Zustandsdichte ρ eine kontinuierliche Funktion der Energie

$$\rho_{3D}(E) = \frac{m_{\text{eff}}V}{\pi^2\hbar^2} \sqrt{\frac{2m_{\text{eff}}}{\hbar^2}E} \quad (2.26)$$

mit wurzelförmigen Verlauf (Abbildung 2.2). Dabei ist V das Volumen des Systems.

Im zweidimensionalen Fall ergibt sich aus 2.11

$$\rho_{2D}(E) = 2 \sum_{k_x, k_y, n} \delta \left[E - E_z^n - \frac{\hbar^2 k^2}{2m_{\text{eff}}} \right] \quad (2.27)$$

Mit Hilfe der periodischen Randbedingungen 2.15 lassen sich die Summen über k_x und k_y in Integrale umwandeln [6]. Es ergibt sich schließlich eine Summe von Stufenfunktion $\Omega(E)$

$$\rho_{2D}(E) = \frac{m_{\text{eff}}A}{\pi^2\hbar^2} \sum_n \Omega(E - E_z^n) \quad (2.28)$$

Falls für die Fläche $A = V/L_z$ gilt, dann liegen die Kanten der Stufenfunktion gerade auf der Wurzelfunktion der Zustandsdichte des dreidimensionalen Festkörpers (Abbildung 2.2). Der Unterschied der Energielücken zwischen 2D- und 3D-Strukturen ist proportional zu $1/L_z^2$. Dies führt zu einer größeren Bandlücke im 2D-Fall. Der energetisch günstigste Zustand im untersten Band besitzt im 2D-Fall eine endliche Besetzungsmöglichkeit, wohingegen sie im 3D-Fall Null ist [58].

Für eine eindimensionale Struktur der Länge L_z ergibt sich die Zustandsdichte zu [6]

$$\rho_{1D}(E) = \sum_{n_x, n_y} \frac{L_z}{\pi} \sqrt{\frac{2m_{\text{eff}}}{\hbar^2}} (E - E_x^{n_x} - E_y^{n_y})^{-1/2} \quad (2.29)$$

Die Zustandsdichte ist Null, falls $E \leq E_x^1 + E_y^1$. Die Energielücke ist folglich wieder größer als im 3D-Fall. Aber nun besitzt die Zustandsdichte an den Punkten $E = E_x^{n_x} - E_y^{n_y}$ eine Singularität. Die Zustände liegen dort sehr dicht. Im Falle nulldimensionaler Strukturen ist die Zustandsdichte eine Folge von Deltafunktionen für diskrete Energien.

$$\rho_{0D}(E) = \sum_{n_x, n_y, n_z} \delta(E - E_{n_x n_y n_z}) \quad (2.30)$$

Als Konsequenz dieser Zustandsdichte $\rho_{0D}(E)$ weisen die Spektren von Quantenpunkten quasi-diskrete Übergangsenergien auf.

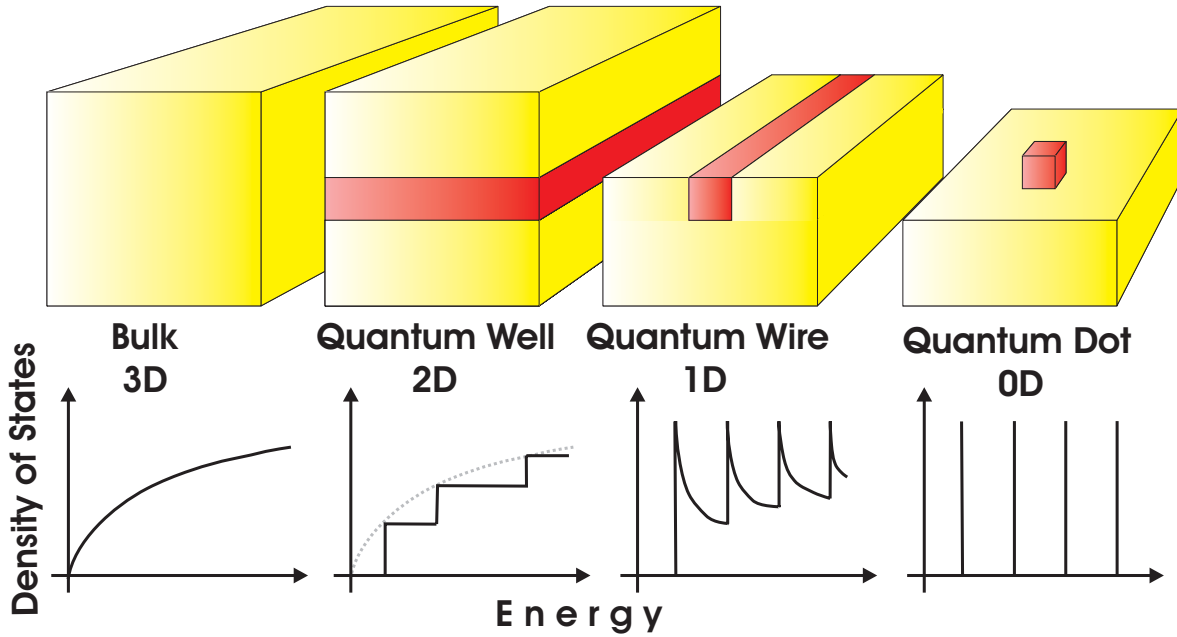


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung niederdimensionaler Halbleiterstrukturen und der zugehörigen Zustandsdichten der Elektronen. Für dreidimensionale Festkörper ergibt sich eine wurzelförmige Abhängigkeit der Zustandsdichte von der Energie. Für den zweidimensionalen Fall erhält man eine Stufenfunktion und für Quantenpunkte (0D) ergibt sich eine Folge von Deltafunktionen zu diskreten Energien.

2.2.3 Elektron-Loch-Paare in Quantenpunkten

In Kapitel 2.1.1 wurde beschrieben, wie Elektronen und Löcher aufgrund der Coulombanziehung Exzitonen und Multiexzitonen bilden können. Erzeugt man Elektronen und Löcher in einer Quantenpunktprobe können diese in den Potentialtopf „fallen“ den die Quantenpunkte im Bändermodell verursachen. Die in einem Quantenpunkt gebundenen Ladungsträgerpaare werden im Folgenden (und in Übereinstimmung mit der gängigen Fachliteratur) ebenfalls Exzitonen bzw. Multiexzitonen genannt. Man sollte dabei aber bedenken, dass bei starkem Einschluss (engl. confinement) der Ladungsträger im Quantenpunkt die Coulombpotentiale von Elektron und Loch jedoch kleiner sind als das Einschlusspotential und letzteres daher die Eigenschaften des „Exzitons“ bzw. der „Multiexzitonen“ bestimmt. Dabei ist die Exzitonenbindungsenergie in Quantenpunkten aufgrund des durch den Einschluss erzwungenen größeren Überlapps der Wellenfunktionen gegenüber Bulk-Exzitonen erhöht.

Ladungsträger in einem Quantenpunkt relaxieren auf die niedrigsten freien Energieniveaus. In Abbildung 2.3 ist schematisch dargestellt, wie zwei Elektronen und zwei Löcher durch Rekombination zwei Photonen erzeugen. Dabei wird in einem kaskadierten Prozeß erst ein Photon durch Rekombination des Biexzitons und dann ein weiteres Photon durch Rekombination des Exzitons erzeugt.

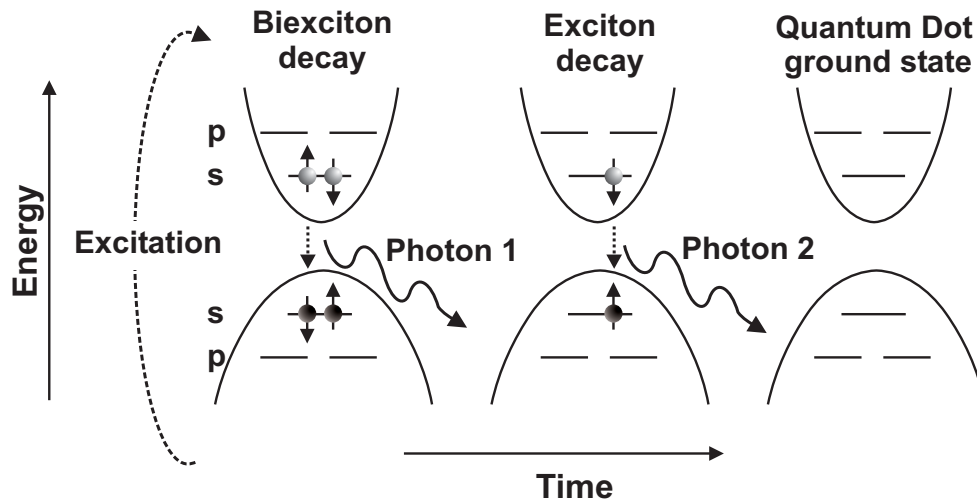


Abbildung 2.3: In Folge einer initialen optischen (oder elektrischen) Anregung gelangen zwei Elektronen und zwei Löchern in einen Quantenpunkt. In einem kaskadierten Prozess zerfällt erst das Biexziton unter Aussendung eines Photons und schließlich das Exziton. Aufgrund der Coulombwechselwirkung zwischen den Ladungsträgern haben die beiden Photonen eine etwas unterschiedliche Energie.

Die Zustände des Biexzitons, des Exzitons und des leeren Quantenpunktes können als Dreineiveausystem betrachtet werden. Aufgrund der Coulombwechselwirkung der Ladungsträger haben die beiden Photonen der Kaskade eine etwas unterschiedliche Energie (bei kleinen (In,Ga)As/GaAs Quantenpunkten etwa 2 meV). Die verschiedenen Übergänge lassen sich daher spektral trennen.

Gelangen ungleich viele Elektronen wie Löcher in den Quantenpunkt, so ist dieser elektrisch geladen. Der einfachste optisch aktive Fall wäre ein Elektron-Loch-Paar mit einem überschüssigen Elektron bzw. Loch. Dies wäre dann ein negativ, bzw. positiv geladenes Exziton (X^\pm), welches auch Trion genannt wird.

2.3 Reale Quantenpunkte - Feinstruktur

In realen Quantenpunkten muss berücksichtigt werden, dass die Drehimpulse der Ladungsträger zu einer Austauschwechselwirkung führen. Des Weiteren sind die bisher betrachteten Formen idealisierte Geometrien, wie sie in der Wirklichkeit nicht oder nur in gewisser Näherung vorkommen.

2.3.1 Austauschwechselwirkung und Feinstruktur

Die Austauschwechselwirkung wird durch eine Kopplung des Spins S_e des Elektrons mit dem Drehimpuls des Lochs J_h verursacht [31].

$$\hat{H}_{exchange} = - \sum_{i=x,y,z} a_i \hat{J}_{h,i} \cdot \hat{S}_{e,i} + b_i \hat{J}_{h,i}^3 \cdot \hat{S}_{e,i} \quad (2.31)$$

Dabei bezeichnen a_i und b_i die Kopplungskonstanten in den verschiedenen Ordnungen der Spinoperatoren der Löcher $\hat{J}_{h,i}$ und der Elektronen $\hat{S}_{e,i}$. Aufgrund der Verspannung in selbstorganisierten Quantenpunkten kommt es zu einer energetischen Aufspaltung von Schwer- und

Leichtlochzuständen (benannt nach den effektiven Massen der beteiligten Valenzbänder), die einige meV beträgt [31]. Diese Aufspaltung ist groß im Vergleich zur Feinstrukturaufspaltung nach Gleichung 2.31. In Lumineszenz sind deshalb nur die Schwerlochzustände (hh) sichtbar und die Leichtlochzustände können vernachlässigt werden.

Es bleiben zwei Lochzustände mit $\hat{J}_{hh} = 3/2$, $J_{hh,z} = \pm 3/2$ sowie zwei Elektronenzustände mit $\hat{S}_e = 1/2$, $S_{e,z} = \pm 1/2$, aus deren Kombinationen vier Exzitonenzustände gebildet werden können. Diese werden durch die Projektion des Gesamtdrehimpulses $M_z = J_{hh,z} + S_{e,z}$ charakterisiert. Für eine parallele Konfiguration erhält man $M_z = \pm 2$. Da das bei der durch die Rekombination des Exzitons erzeugte Photon den Spin eins besitzt müssen sich nach optischen Auswahlregeln Anfangs- und Endzustände um $\Delta M = \pm 1$ unterscheiden.

Da der Quantenpunkt Grundzustand den Spin null besitzt sind die Zustände $|\pm 2\rangle$ nach optischen Auswahlregeln verboten und deshalb in Photolumineszenz nicht zu sehen (engl. dark exciton). Die antiparallele Konfiguration mit $M_z = \pm 1$ ist jedoch optisch aktiv (engl. bright exciton). Ohne Berücksichtigung des Terms 2.31 sind alle vier Exzitonenniveaus entartet. Die Austauschwechselwirkung führt jedoch zu einer Aufspaltung der optisch aktiven (hellen) und der optisch inaktiven (dunklen) Zustände.

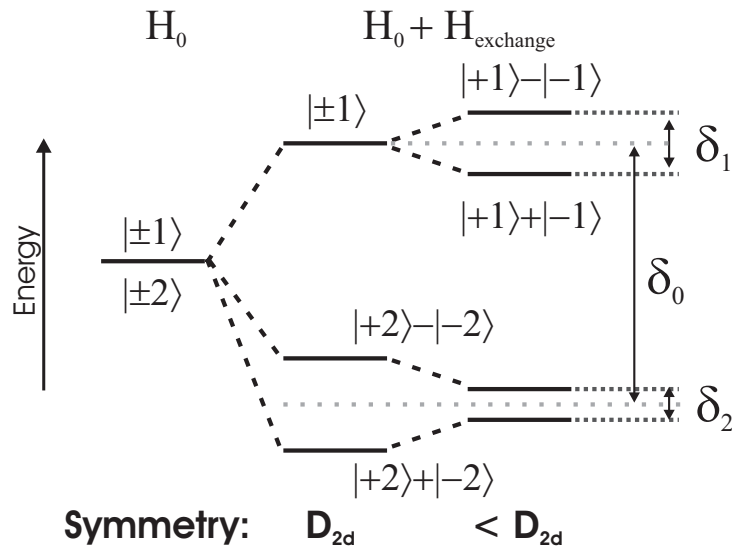


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung der Feinstrukturaufspaltung des Exzitonenzustandes. Erst durch eine zusätzliche Symmetriereduktion des Quantenpunktes werden im Zusammenspiel mit der Austauschwechselwirkung zwei Exzitonenzustände optisch aktiv.

Ideale selbstorganisierte (In,Ga)As/GaAs-Quantenpunkte wachsen zu einer linsenförmigen Struktur mit zylindrischer Geometrie D_{2d} . Im Falle dieser hohen Symmetrie sind die dunklen Zustände mit $|\pm 2\rangle$ bereits aufgrund der Austauschwechselwirkung um einen Betrag δ_2 aufgespalten und bilden neue symmetrische und antisymmetrische Zustände. Die Zustände mit $|\pm 1\rangle$ sind noch entartet.

Im Allgemeinen ist die Symmetrie realer Quantenpunkte infolge einer durch die unterschiedlichen Hauptkristallachsen verursachten Anisotropie in der Wachstumsebene weiter reduziert. Daher werden auch die Zustände mit $|\pm 1\rangle$ um einen Betrag δ_1 aufgespalten. Dabei werden aus Linearkombinationen neue symmetrische und antisymmetrische Zustände gebildet.

$$|1, -\rangle = A|+1\rangle - B|-1\rangle \quad (2.32)$$

$$|1, +\rangle = C|+1\rangle + D|-1\rangle \quad (2.33)$$

$$|2, -\rangle = E|+2\rangle - F|-2\rangle \quad (2.34)$$

$$|2, +\rangle = G|+2\rangle + H|-2\rangle \quad (2.35)$$

Es existieren nun zwei optisch aktive Exzitonenzustände daraus ergeben sich zwei Zerfallswege für die Biexziton-Exziton-Kaskade (Abbildung 2.5). Eine linsenförmige Geometrie mit leichter Asymmetrie in der Ebene $r_x \neq r_y$ entspricht schon sehr gut den bisherigen Messungen an selbstorganisierten Quantenpunkten. Je nach Exzitonenzustand ($|1, -\rangle$ oder $|1, +\rangle$) sind die beiden Photonen einer Kaskade entlang der einen oder anderen Achse des Quantenpunktes linear polarisiert. Bei vollständigem Verlust der Symmetrie kommt es zu einer Mischung der hellen und dunklen Exzitonenzustände, wodurch alle Übergänge im Spektrum sichtbar werden [31].

2.3.2 Feinstruktur und verschränkte Photonen

Weil beide Photonen einer Biexziton-Exziton-Kaskade aus einer Quelle stammen (demselben Quantenpunkt), sollten diese quantenmechanisch verschränkt sein. Die Feinstrukturaufspaltung führt aber dazu, dass die Zerfallswege (siehe Abbildung 2.5) durch die Feinstrukturaufspaltung ΔE_{FS} (auch wenn diese experimentell nicht immer sichtbar ist) prinzipiell energetisch unterscheidbar werden. Diese Information zerstört die Verschränkung und führt zu klassischer Polarisationskorrelation. Es werden dann jeweils ko-linear polarisierte Photonen in einer Kaskade erzeugt [45], [55]. Ohne Feinstrukturaufspaltung hingegen sind die Photonen in einer Superposition aus kreuz-zirkularen Polarisationszuständen verschränkt.

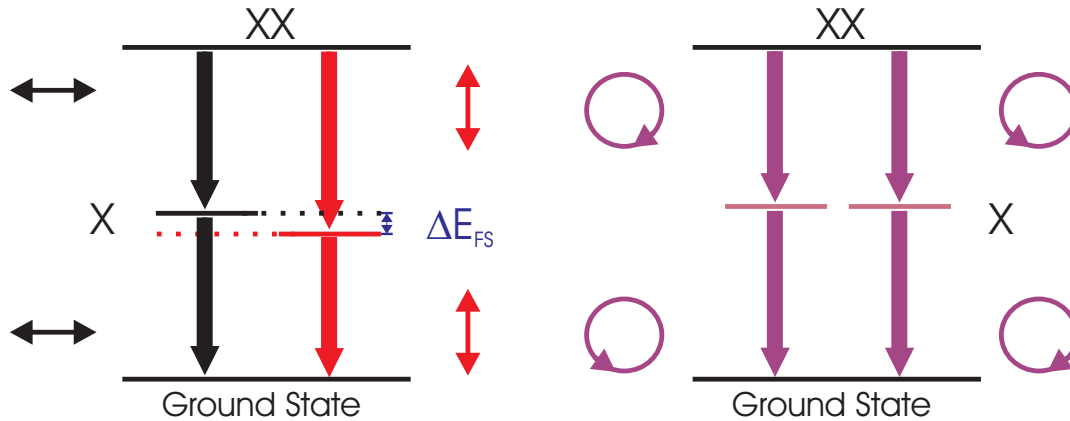


Abbildung 2.5: Schematische Darstellung des Einflusses der Feinstrukturaufspaltung ΔE_{FS} auf die Photonenkaskade. Die Feinstrukturaufspaltung des Exzitonenniveaus führt zu einer prinzipiellen Unterscheidbarkeit der Zerfallskanäle und somit zum Verlust der Polarisationsverschränkung. In Abwesenheit der Feinstrukturaufspaltung befinden sich die Photonen in einem aus der Superposition von rechts- und linkszirkularen Polarisationszuständen gebildeten verschränkten Zustand.

Streng genommen muss die Asymmetrie-induzierte Feinstrukturaufspaltung zur Erzeugung verschränkter Photonen nicht exakt Null sein sondern lediglich kleiner als die durch die Heisenbergsche Unschärferelation begrenzte natürliche Linienbreite.

2.3.3 Einfluss durch piezoelektrische Felder und Gittersymmetrie auf atomarer Skala

Detaillierte Rechnungen (basierend auf einem Modell mit einer Millionen Atome) von G. Bester et al. [3] zeigen, dass selbst bei idealer Rotationsymmetrie eines (In,Ga)As/GaAs-Quantenpunktes, aufgrund der Gittersymmetrie auf atomarer Skala eine Feinstrukturaufspaltung der optisch aktiven Zustände erfolgt. Auch eine Polarisationsanisotropie soll ebenfalls schon bei symmetrischen Quantenpunkten auftreten.

Die aufgrund der Gitterfehlpassung zwischen dem Quantenpunkt und seiner Umgebung resultierenden piezoelektrischen Felder besitzen einen großen Einfluss auf dessen optische Eigenschaften [15], [16]. Berechnungen von M. Grundmann et al. [16] zeigen, dass die Symmetrie des Hamiltonoperators durch die piezoelektrische Ladungsdichte reduziert wird, selbst wenn der Quantenpunkt bzw. der Verspannungstensor eine hohe Symmetrie besitzt. Laut M. Grundmann ist der Einfluss der piezoelektrischen Felder im Wesentlichen proportional zur Größe der Quantenpunkte. Untersuchungen der Feinstrukturaufspaltung in Abhängigkeit der Quantenpunktgröße von R. Seguin et al. [48] legen nahe, dass die piezoelektrischen Felder sogar den größten Anteil an der Feinstrukturaufspaltung von InGaAs-Quantenpunkten haben. Diese piezoelektrischen Felder sollten sich mit Hilfe externer elektrischer Felder beeinflussen lassen.

2.4 Quantenpunkte in elektrischen Feldern, Stark-Effekt

Aufgrund ihrer unterschiedlichen Ladungen entfernen sich Elektronen und Löcher mit zunehmenden Feld voneinander. Exzitonen werden daher, wie Atome und Moleküle, in elektrischen Feldern polarisiert. Dadurch wird ein zur Feldstärke F proportionales Dipolmoment μ_{ind} erzeugt. Da die Energie eines Dipols linear mit dem Feld wächst, ergibt sich aufgrund der Polarisierbarkeit $\alpha = \mu_{ind}F$ auch ein zu F^2 proportionaler Term. Für nicht zu hohe Felder wird deshalb die Änderung der Übergangsenergie durch die auch aus der Atom- und Molekülphysik bekannten Formel 2.36 beschrieben [39].

$$\Delta E = \mu_{el}F + \mu_{ind}F = \mu_{el}F + \alpha F^2 \quad (2.36)$$

Dabei ist μ_{el} das permanente elektrische Dipolmoment und α die Polarisierbarkeit in Feldrichtung. Bei hohen Dipolmomenten μ_{el} in Feldrichtung ergibt sich ein linearer Stark-Effekt, während bei Abwesenheit eines solchen ein rein quadratischer Stark-Effekt beobachtet wird. In größeren Quantenpunkten können sich die Ladungsträger weiter voneinander entfernen als in kleineren, welches sich in einem stärkeren Polarisationsgrad des Lumineszenzlichtes niederschlägt [14]. Wie im Bänderdiagramm in Abbildung 2.6 gezeigt, werden die Bänder durch ein elektrisches Feld verkippt und die Einteilchenzustände von Elektronen Ψ_e und Löchern Ψ_h energetisch abgesenkt.

Wir erwarten also folgende Effekte in Bezug auf die optischen Eigenschaften von Quantenpunkten unter dem Einfluss des Stark-Effektes [35], [36]:

- Eine Abnahme der Lumineszenzenergie aufgrund der Absenkung der Energie der Einteilchenzustände.
- Eine Abnahme der Lumineszenzenergie aufgrund eines induzierten Dipols.

- Eine Abnahme oder Zunahme der Lumineszenzenergie aufgrund eines permanenten Dipols je nach Feldrichtung.
- Eine Abnahme der Oszillatorstärke und somit der optischen Aktivität aufgrund des geringer werdenden Überlapps der Wellenfunktionen. Wird das Potential des elektrischen Feldes grösser als das Einschlusspotential, tunnelt (bzw. remittieren) die Ladungsträger schließlich aus dem Quantenpunkt hinaus, und das Signal verschwindet ganz.
- Die Verringerung des Überlapps der Wellenfunktionen führt zu einer Abnahme der Exzitonen-Bindungsenergie. Dies führt wiederum zu einer Erhöhung der Energie des Übergangs.

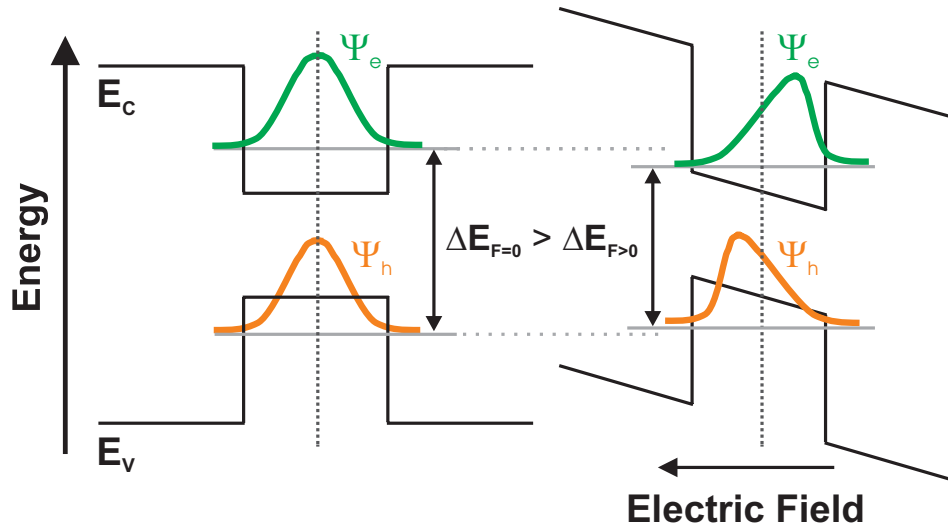


Abbildung 2.6: Bändermodell ohne und mit angelegtem elektrischen Feld. In dieser schematischen Darstellung ist die Abnahme der Einteilchenenergiezustände bei angelegtem Feld zu erkennen. Dies führt zu einer Abnahme der Übergangsenergie. Die ebenfalls dargestellte Verschiebung der Wellenfunktionen führt zu einer Verringerung der Bindungsenergie und zu einem induzierten Dipolmoment.

2.4.1 Quantenpunkte in einem vertikalen elektrischen Feld

Um ein vertikales Feld zu erreichen, werden auf die Ober- und Unterseite der Probe elektrische Kontakte aufgedampft. Die Kontakte sind dadurch näher zusammen als dies in der lateralen Konfiguration möglich ist. Aufgrund des stärkeren Einschlusses der Ladungsträger in z-Richtung ist die Polarisierbarkeit in dieser Richtung geringer. Deshalb sollte der Einfluss eines vertikalen Feldes geringer sein als der eines lateralen. Dies steht aber teilweise im Gegensatz zu bisherigen Messungen [61]. Da epitaktisch hergestellte Quantenpunkte aufgrund der Asymmetrie in Wachstumsrichtung (z.B. Pyramidenform) ein elektrisches Dipolmoment in dieser Richtung besitzen, wird unter vertikalen Feldern auch ein deutlicher Einfluss des linearen Stark-Effektes beobachtet [40],[18],[11].

2.4.2 Quantenpunkte in einem lateralen elektrischen Feld

Da die Feinstrukturaufspaltung der optisch aktiven Exzitonzustände durch eine Asymmetrie (der Form) der Quantenpunkte in der Wachstumsebene zustande kommt, ist auch ein elek-

trisches Feld in dieser Ebene nötig um diese Aufspaltung zu beeinflussen. Erste Ergebnisse in dieser Hinsicht stammen von Kowalik et al. [21], die eine Verringerung der Feinstrukturaufspaltung in einer polarisationsaufgelösten Messung in Abhängigkeit vom angelegten elektrischen Feld beobachten konnten.

Um ein laterales Feld zu erreichen, werden Mikrokontakte im Abstand d auf die Probenoberfläche aufgebracht (siehe dazu Kapitel 3.2). Die Feldstärke F errechnet sich in guter Näherung aus der angelegten Spannung U .

$$F \approx \frac{U}{d} \quad (2.37)$$

Eine Dielektrizitätskonstante ϵ muss im Falle einer stabilisierten Spannungsquelle, die Ladungsträger nachliefert und somit die dielektrischen Abschirmfelder kompensiert, nicht berücksichtigt werden (ansonsten gilt $F \approx U/\epsilon d$, $\epsilon_{GaAs} = 12.35$).

Eine quantenmechanische Beschreibung des Einflusses eines elektrischen Feldes auf die Feinstrukturkomponenten von Quantenpunkten mit einer lateralen Asymmetrie ist bisher noch nicht gelungen. Aus einer einfachen störungstheoretischen Betrachtung folgt ebenfalls eine lineare und eine quadratische Abhängigkeit der Zustände vom elektrischen Feld. Da dies keine zusätzlichen Informationen zum besprochenen phänomenologischen Ansatz bringt, sei an dieser Stelle nur der Hamiltonien angegeben.

$$\hat{H}_{gesamt} = \hat{H}_0 + \hat{H}_F = \hat{H}_0 + eF(r_e - r_h) \quad (2.38)$$

Dabei ist \hat{H}_0 der ungestörte Hamiltonoperator. \hat{H}_F beschreibt den Einfluss des elektrischen Feldes F auf die Elektronen und Löcher mit den Koordinaten r_e und r_h .

2.4.3 Spektrale Diffusion

Selbst in Abwesenheit eines experimentell gezielt angelegten elektrischen Feldes sind Quantenpunkte ständig schnell wechselnden Feldern ausgesetzt. Störstellen im Gitter, sowie die durch die Anregung erzeugten Ladungsträger und Oberflächenzustände führen zu statistischen Fluktuationen des Feldes am Ort eines Quantenpunktes auf einer Zeitskala von Millisekunden [44],[43]. Dies führt zu einer Variation der energetischen Lage der Zustände. Bei typischen Aufnahmezeiten für Mikrophotolumineszenzmessungen im Bereich von einer bis mehrerer Sekunden erscheinen Linien im Spektrum deshalb verbreitert. Diese inhomogene Verbreiterung ist außer von der Belichtungszeit auch von der Leistungsdichte der Anregung abhängig (engl. power broadening).

2.5 Photonen: Zustände und Statistik

In diesem Kapitel sollen in prägnanter Weise die wichtigsten Zustände des elektromagnetischen Feldes vorgestellt werden. Verschiedene Lichtquellen zeigen unabhängig von ihrer Intensität unterschiedliche Emissionsstatistiken. Zur experimentellen Klassifizierung dieser Statistiken dient die Intensitätskorrelation des Lichtfeldes, die auch als Korrelationsfunktion zweiter Ordnung bezeichnet wird. Zur besseren Vergleichbarkeit werden alle folgenden Zustände in Photonenanzahlzustände [30] entwickelt dargestellt.

2.5.1 Korrelationsfunktion zweiter Ordnung

Die (normierte) Korrelationsfunktion zweiter Ordnung liefert die Korrelation zweier zeitlich getrennter Intensitätssignale $I(t_1)$ und $I(t_2)$ einer Quelle und wurde erstmals 1963 von Glauber [12] eingeführt.

$$g^{(2)}(t_1, t_2) = \frac{\langle I(t_1)I(t_2) \rangle}{\langle I(t_1) \rangle^2} \quad (2.39)$$

Handelt es sich um stationäre Felder $E(t)$, so ist die mittlere Intensität $|E(t)|^2 = I(t)$ zeitunabhängig, und die Korrelationsfunktion hängt nur noch von der zeitlichen Differenz $\tau = t_2 - t_1$ ab.

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} \quad (2.40)$$

Die Korrelationsfunktion $g^2(\tau)$ stellt also die Änderung des Korrelationsintegrals [17] als Funktion der Verzögerungszeit τ dar und ermöglicht so Aussagen über die mittlere Dauer von Intensitätsschwankungen im Lichtstrahl des Emitters [57]. Da für die Varianz allgemein gilt

$$\langle \Delta I^2 \rangle = \langle I^2 \rangle - \langle I \rangle^2 \quad (2.41)$$

folgt für $\tau \rightarrow 0$

$$g^{(2)}(0) = 1 + \frac{\langle \Delta I^2 \rangle}{\langle I \rangle^2} \quad (2.42)$$

Für eine thermische Lichtquelle ist $\langle \Delta I^2 \rangle = \langle I \rangle^2$ und daher $g^{(2)}(\tau) = 2$. Für große Zeitdifferenzen $\tau \rightarrow \infty$ geht eine Korrelation der Ereignisse verloren [17] daher wird $\langle \Delta I^2 \rangle = 0$ und $g^2(\infty) = 1$. Aus Gleichung 2.42 ist ersichtlich, dass die Korrelationsfunktion in dieser klassischen Darstellung nicht kleiner als 1 werden kann.

Wechselt man jetzt durch die Quantisierung des Strahlungsfeldes in die quantenmechanische Beschreibung, so entspricht die normierte Korrelationsfunktion im Photonenbild der Wahrscheinlichkeit ein zweites Photon nach der Verzögerung τ nach einem ersten Photon zu detektieren:

$$g_n^2(\tau) = \frac{\langle \hat{n}(t)\hat{n}(t+\tau) \rangle}{\langle \hat{n}(t) \rangle^2} \quad (2.43)$$

Dabei sind $|n(t)\rangle$ und $|n(t+\tau)\rangle$ Photonenzahl bzw. Fockzustände. Berechnet man nun hiermit $g_n^2(0)$, so ergibt sich im Gegensatz zur klassischen Beschreibung

$$g_n^2(0) = 1 + \frac{\langle \Delta \hat{n}^2 \rangle - \langle \hat{n} \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2} \quad (2.44)$$

Beim Vergleich von 2.42 und 2.44 ergibt sich ein zusätzlicher Summand $-\langle \hat{n} \rangle / \langle \hat{n} \rangle^2$. Der anschauliche Grund hierfür ist, dass man ein Photon nur einmal nachweisen kann. Dies wird in der klassischen Beschreibung nicht berücksichtigt. So sind nach der quantenmechanischen Beschreibung auch Korrelationsfunktionen mit $g_n^2(\tau) < 1$ möglich, weshalb derartiges Licht auch als nichtklassisches Licht bezeichnet wird. Um unterschiedliche Korrelationsfunktionen zu verstehen und interpretieren zu können, müssen verschiedene Zustände des elektromagnetischen Feldes betrachtet werden.

2.5.2 Nichtklassisches Licht: Fock-Zustände

Photonenzahl- oder Fockzustände sind in klassischer Betrachtung nicht denkbar. Sie sind Eigenzustände zum Photonenzahloperator \hat{n}_i .

$$\hat{n}_i |n_i\rangle = n_i |n_i\rangle \quad (2.45)$$

n_i ist eine natürliche Zahl und gibt die Anzahl der Photonen in der Mode i an. Die Varianz $\langle \Delta \hat{n}^2 \rangle_{Fock}$ der Photonen pro Mode ist Null.

$$\langle \Delta \hat{n}^2 \rangle_{Fock} = \langle \hat{n}^2 \rangle - \langle \hat{n} \rangle^2 = nn - n^2 = 0 \quad (2.46)$$

2.5.3 Kohärentes Licht: Glauber-Zustände

Kohärente Zustände zeichnen sich dadurch aus, dass das Produkt aus der Unbestimmtheit der Phase $\Delta\phi$ und der Amplitude Δn minimal ist. Sie sind Eigenzustände zum Vernichtungsoperator $\hat{a} |\alpha\rangle = \alpha |\alpha\rangle$ und lassen sich in einer Superposition von Photonenzahlzuständen $|n\rangle$ darstellen.

$$|\alpha\rangle = e^{-\frac{1}{2}|\alpha|^2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} |n\rangle \quad (2.47)$$

Damit folgt für die Varianz

$$\langle \Delta \hat{n}^2 \rangle_{Glauber} = \langle \hat{n}^2 \rangle - \langle \hat{n} \rangle^2 = \langle \hat{n} \rangle \quad (2.48)$$

Die relative Varianz

$$\left[\frac{\langle \Delta \hat{n}^2 \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2} \right]_{Glauber} = \frac{1}{\hat{n}} \xrightarrow{n \rightarrow \infty} 0 \quad (2.49)$$

lässt sich leichter interpretieren. Für höhere Photonenzahlen n werden die Fluktuationen immer geringer. Kohärentes Licht lässt sich durch Laser, die deutlich über der Schwelle zum Lasing betrieben werden, erzeugen.

2.5.4 Gemischte Zustände: Thermisches Licht

Bisher wurden nur reine Feldzustände betrachtet, der generelle Fall lässt sich aus einer Mischung von verschiedenen reinen Zuständen mit verschiedenen Gewichtungen b_n darstellen. Deshalb beschreibt man diese gemischten Zustände mit einem statistischen Operator $\hat{\rho}$, der Dichteoperator oder Dichtematrix genannt wird.

$$\hat{\rho} = b_1 |b_1\rangle \langle b_1| + b_2 |b_2\rangle \langle b_2| + \dots = \sum_{n=0}^{\infty} b_n |b_n\rangle \langle b_n| \quad (2.50)$$

Die Erwartungswerte für gemischte Zustände ergeben sich aus der Spur der Dichtematrix.

$$\langle \hat{x} \rangle = \text{Sp} \{ \hat{x} \hat{\rho} \} \quad (2.51)$$

Ein wichtiges Beispiel für solch einen gemischten Zustand ist der thermische Zustand, welcher sich als Mischung von Fockzuständen schreiben lässt. Dabei sind die Gewichtungen b_n^{th} durch die Bose-Einstein-Verteilung gegeben.

$$b_n^{th} = \frac{\bar{n}^n}{(\bar{n} + 1)^{n+1}} = \frac{1}{1 + \bar{n}} \left(1 + \frac{1}{\bar{n}}\right) \quad (2.52)$$

\bar{n} gibt die mittlere Photonenzahl in der Mode an und geht von $\bar{n} = 0$ bei $T = 0$ (Vakuum) bis zu immer höheren Werten für höhere Temperaturen T . Damit ergibt sich für thermische Zustände [2]:

$$\hat{\rho}_{th} = \sum_{n=0}^{\infty} b_n^{th} |n\rangle \langle n| = \frac{\bar{n}^0}{(\bar{n} + 1)^1} |0\rangle \langle 0| + \frac{\bar{n}^1}{(\bar{n} + 1)^2} |1\rangle \langle 1| + \frac{\bar{n}^2}{(\bar{n} + 1)^3} |2\rangle \langle 2| + \dots = \frac{1}{Z} e^{-\beta \hat{H}} \quad (2.53)$$

Dabei ist Z die Verteilungsfunktion $Z = 1 / (1 - e^{-\beta \hbar \omega})$ und $\beta = 1 / (k_B T)$. Das Licht eines thermischen Strahlers zeigt chaotisches Verhalten, die komplexen Feldamplituden sind nicht festgelegt. Für die Varianz folgt

$$\langle \Delta \hat{n}^2 \rangle_{Thermisch} = \langle \hat{n}^2 \rangle - \langle \hat{n} \rangle^2 = \langle \hat{n}^2 \rangle + \langle \hat{n} \rangle \quad (2.54)$$

und die relative Varianz ergibt sich zu

$$\left[\frac{\langle \Delta \hat{n}^2 \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2} \right]_{Thermisch} = \frac{\langle \hat{n}^2 \rangle + \langle \hat{n} \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2} = 1 + \frac{1}{\langle \hat{n} \rangle} \xrightarrow{n \rightarrow \infty} 1 \quad (2.55)$$

Damit sind die Fluktuationen der Photonenzahl pro Mode mindestens von der selben Größe wie die Photonenzahl selbst! Diese Fluktuationen führen zu einem Häufungsverhalten (engl. photon bunching) des thermischen Lichts.

2.5.5 Charakteristiken verschiedener Zustände, Fano-Faktor

Da alle wichtigen Zustände eingeführt und in Fockdarstellung angegeben sind, lassen sich die verschiedenen Korrelationsfunktionen zweiter Ordnung direkt ausrechnen. Von besonderem Interesse ist dabei die Korrelation bei $\tau = 0$ (Gleichung 2.44). Mit Hilfe der Varianzen Gln. 2.46, 2.48 und 2.54 lassen sich die Werte von $g_n^2(0)$ angeben.

$$g_n^2(0)_{Fock} = 1 + \frac{\langle \Delta \hat{n}^2 \rangle - \langle \hat{n} \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2} = 1 + \frac{0 - \langle \hat{n} \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2} = 1 - \frac{1}{n} \quad (2.56)$$

$$g_n^2(0)_{Glauber} = 1 + \frac{\langle \Delta \hat{n}^2 \rangle - \langle \hat{n} \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2} = 1 + \frac{\langle \hat{n} \rangle - \langle \hat{n} \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2} = 1 \quad (2.57)$$

$$g_n^2(0)_{Thermisch} = 1 + \frac{\langle \Delta \hat{n}^2 \rangle - \langle \hat{n} \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2} = 1 + \frac{\langle \hat{n}^2 \rangle + \langle \hat{n} \rangle - \langle \hat{n} \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2} = 2 \quad (2.58)$$

Da Werte kleiner eins nach der klassischen Korrelationsfunktion Gl. 2.40 nicht erlaubt sind, zeigt eine Messung mit kleineren $g_n^2(\tau)$ -Werten klar quantenmechanisches Verhalten und verifiziert den Fock-Zustand. Für einen Einzelphotonenemitter ($n = 1$) gilt $g_n^2(0) = 0$.

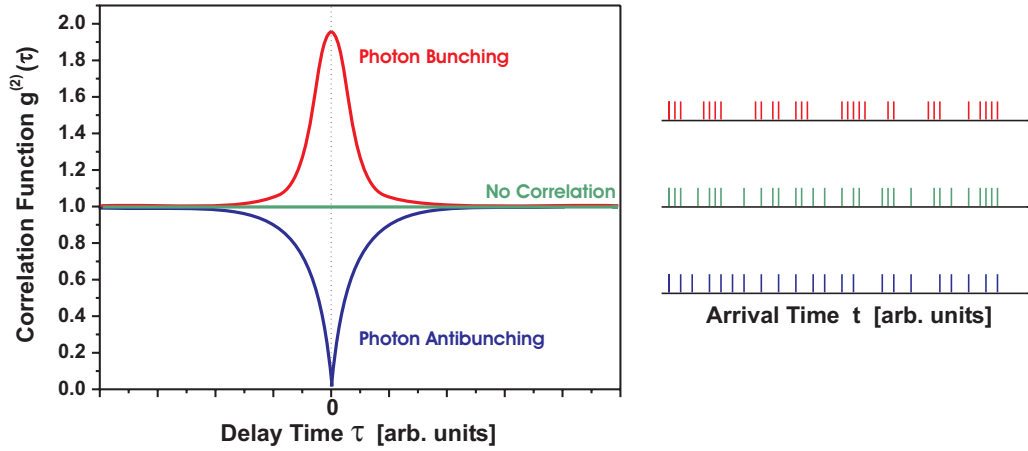


Abbildung 2.7: Korrelationsfunktion zweiter Ordnung. Der thermische Zustand ist rot, der Glauber-Zustand grün und der Fock-Zustand blau dargestellt. Die Breite des Bunchingsignals ist ein Maß für die Kohärenzzeit der Photonen des thermischen Strahlers. Rechts ist eine schematische Darstellung der Photonen im Lichtbündel gezeigt. Wie jedes Modell hat auch dieses Grenzen und dient nur zur Veranschaulichung der Ankunftszeit t der Photonen am Detektor.

In Abbildung 2.7 sind die verschiedenen Korrelationsfunktionen der Zustände dargestellt. Für kleine τ erhält man für den thermischen Zustand eine Photonen-Häufung, d.h. die Wahrscheinlichkeit, kurz nach einem Photon gleich ein weiteres anzutreffen, ist erhöht. Bei einem Fock-Zustand verhält es sich genau umgekehrt (engl. Antibunching). Für große Verzögerungszeiten τ gehen die Korrelationen in beiden Fällen verloren. In Glauber-Zuständen sind die Photonen stets unkorreliert.

Von großer Bedeutung ist aber nicht nur ob die Photonen zeitlich gehäuft oder einzeln bei einem Detektor ankommen sondern auch mit welcher Wahrscheinlichkeit $P(n)$ man eine Anzahl von n Photonen in einem Zustand vorfindet. Dafür bildet man den Erwartungswert.

Präpariert man nun den Zustand so, dass die mittlere Photonenzahl \bar{n} beträgt, ist es für mögliche Anwendungen, zum Beispiel in der Kommunikationsbranche wichtig wie groß die Abweichungen vom präparierten Mittelwert sind.

Für den thermischen Zustand gilt mit Gl. 2.52

$$\begin{aligned}
 P_{\text{Thermisch}}(n) &= \langle n | \hat{\rho}_{th} | n \rangle \\
 &= \langle n | \left(\frac{\bar{n}^0}{(\bar{n}+1)^1} |0\rangle \langle 0| + \frac{\bar{n}^1}{(\bar{n}+1)^2} |1\rangle \langle 1| + \dots + \frac{\bar{n}^n}{(\bar{n}+1)^{n+1}} |n\rangle \langle n| + \dots \right) | n \rangle \\
 &= \frac{\bar{n}^n}{(\bar{n}+1)^{n+1}} \quad .
 \end{aligned} \tag{2.59}$$

Aus diesem Ergebnis lässt sich leicht ersehen, dass man unabhängig von der mittleren Photonenzahl \bar{n} pro Mode immer mit größter Wahrscheinlichkeit null Photonen antrifft. Dieses erstaunliche Ergebnis wird einsichtiger, wenn man das vorher besprochene Korrelationsverhalten beachtet. Die Photonen kommen vorzugsweise gehäuft vor, damit aber eine mittlere Photonenzahl \bar{n} pro Mode erreicht wird, müssen einige Moden leer bleiben, um die Häufung in anderen Moden auszugleichen.

Für den Glauber-Zustand (Gl. 2.47) gilt

$$P_{\text{Glauber}}(n) = |\langle n|\alpha \rangle|^2 = \left| \langle n| e^{-\frac{1}{2}|\alpha|^2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} |n \rangle \right|^2 = e^{-\frac{1}{2}|\alpha|^2} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} \quad . \quad (2.60)$$

Dies ist eine Poissonverteilung um die mittlere Photonenzahl $\bar{n} = |\alpha|^2$. Die maximale Wahrscheinlichkeit, eine bestimmte Anzahl Photonen anzutreffen, entspricht im Gegensatz zum thermischen Zustand also tatsächlich der präparierten mittleren Photonenzahl. Jedoch ist diese Wahrscheinlichkeit immer noch geringer als die Summe der Wahrscheinlichkeiten eine Anzahl Photonen nahe der mittleren Photonenzahl zu erhalten. Dies schränkt auch die Verwendung von Lasern stark ein.

Anders verhält es sich mit dem Fock-Zustand. Da dieser Eigenzustand zum Photonen-zahloperator ist, ist die Anzahl Photonen pro Mode deterministisch festgelegt. Wenn ein Fock-Zustand $|n_i\rangle$ n_i Photonen enthält, dann ist die Wahrscheinlichkeit n Photonen in einer Mode anzutreffen

$$P_{\text{Fock}}(n) = |\langle n|n_i \rangle|^2 = \begin{cases} 1 & \text{für } n = n_i \\ 0 & \text{für } n \neq n_i \end{cases} \quad . \quad (2.61)$$

Fockzustände bilden deshalb ideale Voraussetzungen für optische Kommunikationssysteme und Quantenkryptografie. Oft werden die statistischen Verteilungen mit der Poissonverteilung verglichen. Dazu wird der Fano-Faktor f aus der Varianz über der mittleren Photonenzahl definiert [10].

$$f = \frac{\langle \Delta \hat{n}^2 \rangle}{\bar{n}} \quad (2.62)$$

Damit ergibt sich:

Fano-Faktor f	Verteilung	Zustand
$= 0$	Deterministisch	Photonenzahl-Zustand (Fock)
< 1	Sub-Poisson-Verteilung	Sub-Poisson-Zustand
$= 1$	Poisson-Verteilung	Kohärenter-Zustand (Glauber)
> 1	Super-Poisson-Verteilung	Super-Poisson-Zustand (thermischer)

Tabelle 2.1: Der Fano-Faktor f gibt an, ob die Photonenzahlverteilung eines Zustandes breiter oder schmaler ist als eine Poissonverteilung. Die Verteilung wird dann super- oder sub-Poissonverteilung genannt.

Lange Zeit standen nur thermische Lichtquellen zur Verfügung. Deren Licht wurde räumlich sowie nach Frequenzen gefiltert und weiter verwendet. Als 1960 T. H. Maiman den ersten funktionierenden Laser baute [32], wurden auch die Glauber-Zustände experimentell zugänglich. Die Erzeugung von Fockzuständen ist heutzutage mittels Einzelphotonenquellen wie einzelnen Atomen, Ionen oder Molekülen möglich. Diese Systeme sind aber nur schwer handhabbar. Quantenpunkte bieten ebenfalls die Möglichkeit zur Erzeugung von Fock-Zuständen. Im Folgenden soll dargelegt werden, welche Vorteile Quantenpunkte auf dem Gebiet der Quantenoptik gegenüber anderen Systemen bieten.

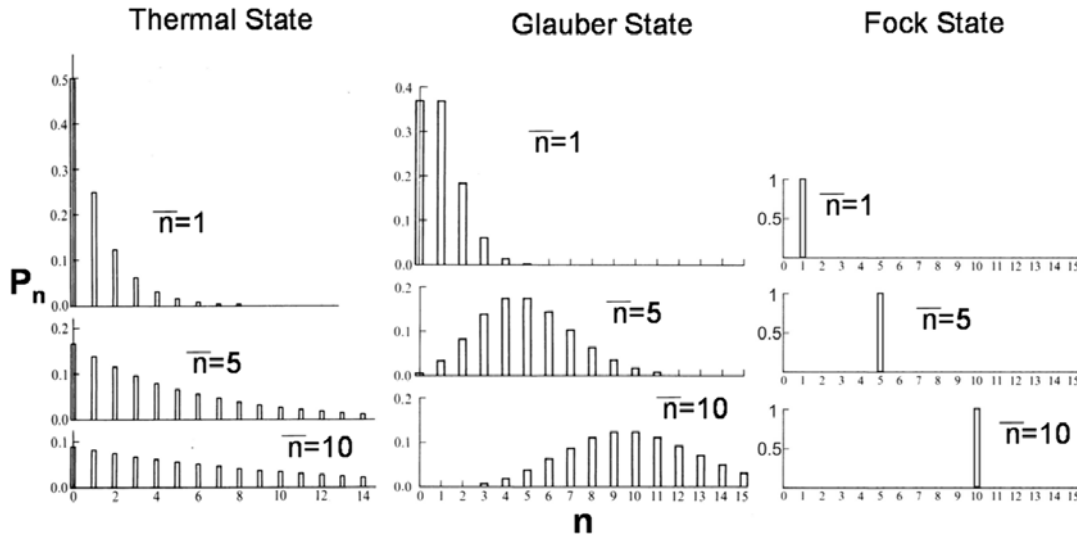


Abbildung 2.8: Veranschaulichung der Statistik verschiedener Photonen-Zustände. Bei thermische Zuständen ist die häufigste Besetzungszahl n pro Mode immer 0. Für Glauber-Zustände ergibt sich eine Poisson-Verteilung um die mittlere Bestzungszahl \bar{n} und Fock-Zustände liefern deterministische Photonenzahlen.

2.5.6 Quantenpunkte und die Erzeugung von Fock-Zuständen

In Kapitel 2.2.3 wurde dargelegt, dass Multiexzitonen in einem Kaskadenprozess zerfallen, und sich einzelne Photonen der Kaskade spektral selektieren lassen. Regt man nun mit einem gepulsten Laserstrahl an, dessen zeitlicher Pulsabstand viel größer ist als die mittlere Lebensdauer der Ladungsträger im Quantenpunkt, so können durch jeden Anregungspuls nur einmal Ladungsträger in den Quantenpunkt gelangen. Selektiert man spektral den letzten Übergang der Kaskade, so erhält man höchstens ein Photon pro Laserpuls. Dies wurde im Jahr 2000 selbst bei Raumtemperatur von Michler et al. [34], [33] demonstriert.

In Abbildung 2.9 sind die Korrelationsfunktionen zweiter Ordnung für die Photolumineszenz eines Quantenpunktes dargestellt. Dabei wird links kontinuierlich angeregt und es ergibt sich ein Photon-Antibunching als Kennzeichen eines Fock-Zustandes. Korreliert man Photonen einer Kaskade (also unterschiedlicher Energie) miteinander, so ergibt sich, da Photonen immer nur einzeln erzeugt werden, ein Antibunching bei $\tau \leq 0$ gefolgt von einem Bunching für $\tau > 0$. Das kommt daher, dass kurz nach der Emission eines Photons ein weiteres aus der Kaskade folgt. Je nach Einstellung des Start- und Stoppsignals (näheres zur Messung siehe Kapitel 4.2), kann das Bunchingsignal auch links vom Antibunchingdip auftreten. Unter der Voraussetzung, dass die strahlende Lebensdauer wesentlich kleiner ist als die Repetitionsrate der Laserpulse ($\tau_{rad} \ll t_{rep}$), können unter gepulster Anregung nur zeitlich nahe zu einem Anregungslaserpuls Photonen emittiert werden. Bei einem Einzelphotonenemitter sind Korrelationssignale nur zwischen Photonen möglich, die durch verschiedene Anregungspulse ausgelöst werden. Deshalb fehlt der Peak bei $\tau = 0$.

Ein sensationeller Vorteil von Quantenpunkten gegenüber anderen Einzelphotonenemittern ist der Wirkungsquerschnitt des Anregungsvorganges. Bei parametrischer Fluoreszenz kommt im Mittel nur ein emittiertes Photon auf 10^{10} Pump-Photonen [37]. Bei atomaren Systemen ist die Effizienz noch schlechter, da hierbei der quantenelektrodynamische Absorp-

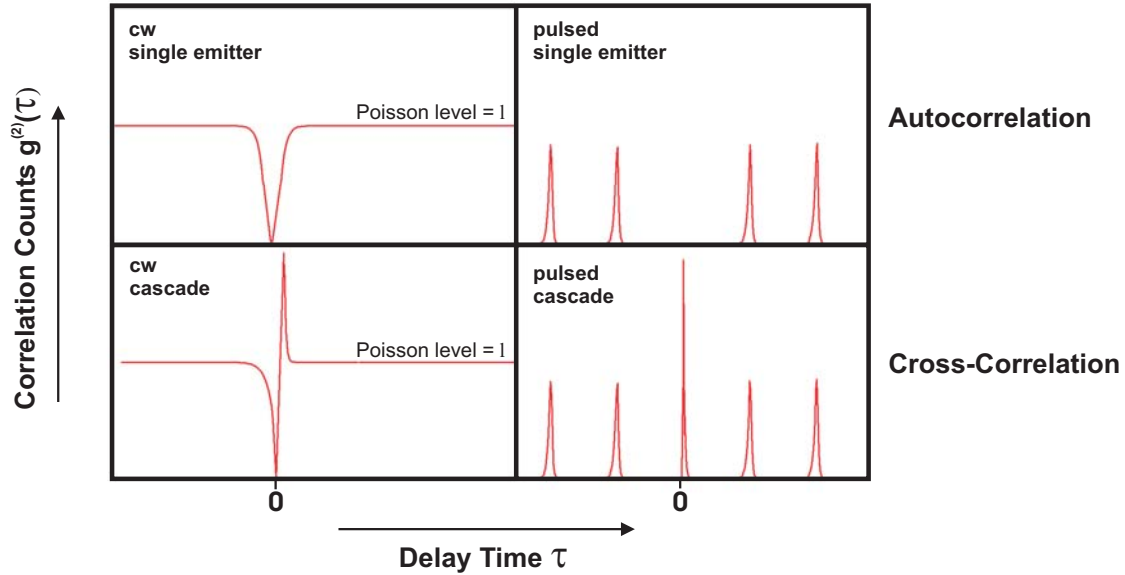


Abbildung 2.9: Schematische Korrelationsfunktionen zweiter Ordnung für die Lumineszenz eines Quantenpunktes. Links wird der Quantenpunkt kontinuierlich angeregt, rechts gepulst. Oben ist die Korrelation eines Zustandes mit sich selbst und unten die zwischen zwei Zuständen einer Kaskade dargestellt. Unter gepulster Anregung äussert sich das Antibunching dadurch, dass der Peak bei $\tau = 0$ schmaler ist als die übrigen Peaks.

tionswirkungsquerschnitt des Atoms selbst maßgebend ist. Im Gegensatz dazu kann durch geeignete Wahl der Anregungsbedingungen die Effizienz pro Laserpuls bei Quantenpunkten nahe 1 liegen.

Aus diesem Grund sind Quantenpunkte das erste System, bei dem neben dem Bunchingsignal der Kaskade auch der Antibunchingdip beobachtet werden konnte [37]. In anderen Systemen wird dieser aufgrund der schlechten Effizienz des Anregungsprozesses durch Ereignisse, die dem Untergrund des Signals zugeschrieben werden aufgefüllt.

Quantenpunkte lassen sich gut in die bestehende Halbleitertechnik integrieren. Sie sind leichter handhabbar als vergleichbare Einzelphotonenemitter; sie benötigen keine Ultrahochvakuumbedingungen und auch keine Millikelvin-Temperaturen. Sie sind langzeitstabil und lassen sich in großer Anzahl und verschiedenen Dichten herstellen und einzeln adressieren.

Noch viel versprechender sind Quantenpunkte im Hinblick auf die Erzeugung verschränkter Photonenpaare. Erst in jüngster Zeit ist es mit Hilfe eines magnetischen Feldes gelungen, die Feinstruktur zu beeinflussen und Quantenpunkte als Quelle verschränkter Photonen zu verwenden [51]. Zur Integration von Quantenpunkten in einer Quantenkommunikationstechnik und zur Quantenkryptografie ist es jedoch wünschenswert die Feinstruktur mit Hilfe von elektrischen Feldern zu manipulieren, da hierfür keine großen Magnete notwendig sind. Die Kontakte zur Erzeugung von elektrischen Feldern lassen sich direkt in Mikrostrukturen integrieren (siehe Kapitel 3.2).

Kapitel 3

Die (In,Ga)As/GaAs-Quantenpunktproben

Dieses Kapitel soll einen Überblick über die vom *Max-Planck-Institut für Festkörperforschung* hergestellten Proben liefern, die im Rahmen dieser Arbeit untersucht und mit elektrischen Feldern manipuliert wurden. Bei allen Proben handelt es sich um (In,Ga)As-Quantenpunkte, die in einer GaAs-Matrix eingebettet sind. Dieses Materialsystem wurde gewählt, da schon viel Erfahrung damit besteht und die Ausgangsmaterialien in hochreiner Form zur Verfügung stehen. Dies ist wichtig für die Vermeidung von Fehlstellen. Die Austauschwechselwirkung ist in diesem System um bis zu einer Größenordnung kleiner als in II-VI Halbleitern wie CdSe/ZnSe [39]. Aus diesem Grund erwartet man eine intrinsisch kleine Anfangsfeinstrukturaufspaltung. Hergestellt werden die Proben mittels der Molekularstrahlepitaxie nach dem Stranski-Krastanow-Verfahren [9].

3.1 Molekularstrahlepitaxie

Bei der Molekularstrahlepitaxie werden hochreine atomare Schichten unter Ultrahochvakuumbedingungen auf ein geeignetes Substrat aufgewachsen. Das Substrat befindet sich auf einem beheizbaren Halter in der Wachstumskammer. Die aufzuwachsenden, zunächst festen Substanzen befinden sich in Nebenkammern. Über die Temperatur dieser Kammern kann die Verdampfungsrate der Quell-Materialien bestimmt werden. Schnell schaltende Ventile regeln die Depositionszeit und dadurch die Schichtdicke dieser Materialien auf dem Substrat. Aufgrund des hohen Vakuums sind Stöße mit Restgasatomen sehr unwahrscheinlich und der Strahl wird kaum aufgeweitet oder abgelenkt. Das Substrat wird unter dem Strahl rotiert, um eine möglichst homogene Abscheidung zu erreichen.

3.1.1 „Thermal annealing“

Nach dem Wachsen der Quantenpunktprobe kann diese nochmals aufgeheizt werden, um eine bessere Homogenität und eine höhere Symmetrie der Quantenpunkte zu erreichen [53]. Durch den Temperierungsprozess lässt sich die Rekombinationsenergie der (Multi-)Exzitonen verschieben [41]. In der vorliegenden Arbeit wurden dazu zwei verschiedene Verfahren verwendet.

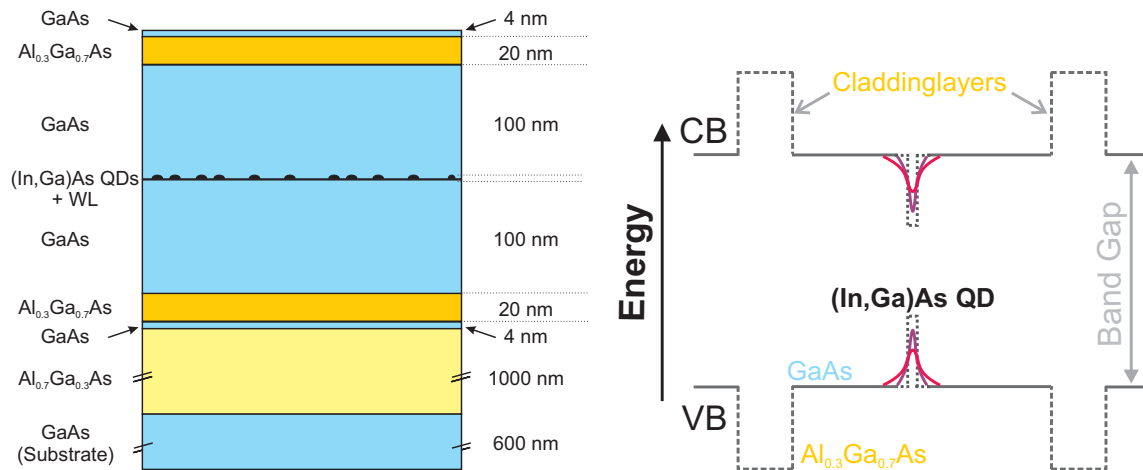


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des Probenaufbaus (links) und des Bänderdiagramms (rechts). Die Claddinglayer (dunkelgelb eingezeichnet) verhindern die Diffusion der Ladungsträger und führen somit zu einer Erhöhung der Anregungseffektivität der Quantenpunkte. Die Aufheizung der Quantenpunktprobe führt zu einer Veränderung des Einschlusspotentials. Dadurch nimmt die Rekombinationsenergie der Ladungsträger im Quantenpunkt zu.

„Rapid thermal annealing: RTA“

Beim „Rapid thermal annealing“ kurz RTA wird die Probe nach vollendetem Wachstumsprozess in einem Ofen für kurze Zeit (30 s) auf Temperaturen weit oberhalb der Wachstumstemperatur von 500°C aufgeheizt. Dabei wurden verschiedene Quantenpunktproben auf 990 , 970 oder 955°C aufgeheizt. Die Quantenpunkte werden dadurch flacher, dafür breiter. Vor dem RTA-Prozess besitzen die Quantenpunkte einen Basisdurchmesser von etwa 40 nm und eine Höhe von $5\text{--}6\text{ nm}$. Des Weiteren findet eine Durchmischung mit dem Barrierenmaterial der Umgebung statt. Die In/Ga-Durchmischung führt zu einer Reduzierung der Verspannungen im Gitter. Dies führt wiederum zu einer Verringerung der piezoelektrischen Felder (Kapitel 2.3.3) und damit zu einer Verkleinerung der Feinstrukturaufspaltung des Exzitonenniveaus (siehe Kapitel 2.3.1).

„Insitu thermal annealing“

Beim „Insitu thermal annealing“ wird die Quantenpunktprobe noch in der Wachstumskammer, am Ende des Wachstumsprozesses, innerhalb von 2 Minuten von 500°C auf 560°C aufgeheizt. Daraufhin wird die Probe 2 Minuten lang bei 560°C getempert. Vor dieser Aufheizung besitzen die Insitu-Quantenpunkte einen Basisdurchmesser von etwa 40 nm und eine Höhe von etwa $2\text{--}3\text{ nm}$. Durch den Temperierungsprozess werden die Quantenpunkte wie beim RTA-Verfahren flacher und homogener. Das Einschlusspotential wird schwächer.

3.2 Elektrische Kontaktierung

Mit Hilfe einer Ätzmaske werden die Kontakte Abb. (3.2) zum anlegen von lateralen elektrischen Feldern lithografisch hergestellt. Aufgelötete Mikrodrähte (engl. bondings) verbinden die Schottkykontakte mit dem Probenhalter. Auf den Probenhalter werden mit Hilfe von

Leitsilber Drähte befestigt, die den Kryostaten mit der Probe verbinden. Der Kryostat ist mit einem Computer verbunden, mit dem sich die Spannungen an den Kontakten regeln lassen. Zur genauen Kontrolle der erfolgreichen Kontaktierung und der Mikrodrähte wurden alle Proben unter dem Mikroskop untersucht.

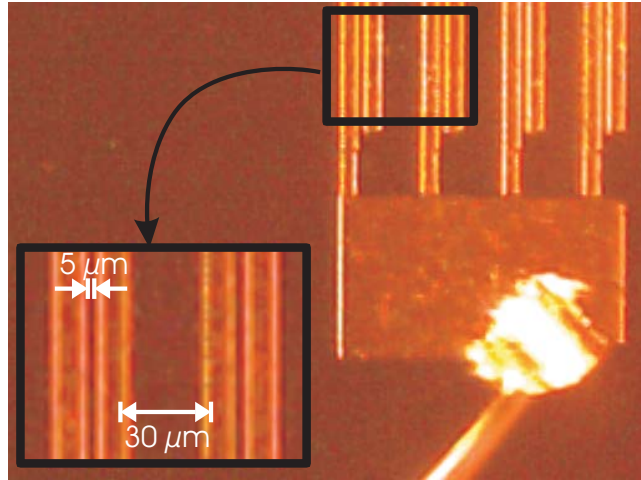


Abbildung 3.2: Ein durch ein Mikroskop aufgenommenes Bild einer kontaktierten RTA-Probe.

Zur sukzessiven Verbesserungen zur Erzeugung zeitlich stabiler elektrischer Felder wurden in enger Zusammenarbeit mit der Epitaxiegruppe von O.G. Schmidt (A. Rastelli, MPI Stuttgart) Änderungen vorgenommen. Es wurden isolierende Oxidschichten zwischen der Halbleiteroberfläche und den Kontakten eingeführt. Die Breite der Kontaktstreifen (siehe Abb. 3.2) wurde von $5\text{ }\mu\text{m}$ auf $40\text{ }\mu\text{m}$ erhöht und auf jeder neu kontaktierten Probe befinden sich nun nicht mehr nur Kontakte mit Spaltbreiten von $5\text{ }\mu\text{m}$ sondern auch in Abständen von $10\text{ }\mu\text{m}$, $15\text{ }\mu\text{m}$ und $20\text{ }\mu\text{m}$. Dies ermöglicht eine höhere Flexibilität und durch die höheren Spaltbreiten lässt sich die Homogenität des Feldes am Ort der zu untersuchenden Quantenpunkte besser gewährleisten. Um die abnehmende Feldstärke bei größerem Kontaktabstand zu kompensieren wurde vom Autor ein stabiler Spannungverstärker entworfen und hergestellt. Mit diesem lässt sich die aufgrund der computergesteuerten Spannungsversorgung auf 10 V begrenzte Maximalspannung verdreifachen. Des Weiteren besitzt der Spannungverstärker einen Multimeteranschluss und ermöglicht so eine Echtzeit-Kontrolle der angelegten Spannung.

Zum Ende der vorliegenden Arbeit wurde ein 2D-optimiertes Kontaktlayout ebenfalls selbst entwickelt, welches für zukünftige Analysen zu Verfügung steht (bedauerlicherweise aber nicht mehr im Rahmen der Arbeit verwendet werden konnte). In Abbildung 3.4 ist dieses Kontaktlayout schematisch dargestellt. Aufgrund der Linearität der Maxwellgleichungen gilt das Superpositionsprinzip für elektrische Felder. Durch unterschiedliche Spannungsdifferenzen zweier Kontaktpaare, die um 90° gegeneinander gedreht sind, lassen sich so beliebige laterale Feldrichtungen erreichen. Dies ermöglicht eine extrem hohe Flexibilität. An individuellen Quantenpunkten können Dipolmomente und Polarisierbarkeiten (siehe Kapitel 2.4) in beliebiger lateraler Richtung untersucht und verglichen werden. So können auch eventuell auftretende Anisotropien erforscht werden.

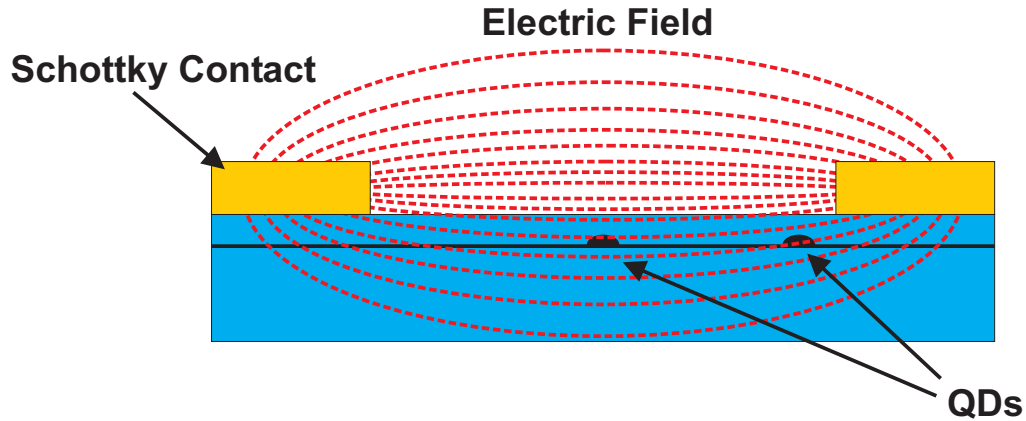


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung des elektrischen Feldes (nicht Maßstabsgetreu). Befindet sich ein Quantenpunkt nahe am Rand eines Schottkykontaktes, erfährt er ein inhomogenes elektrisches Feld. In der Mitte zwischen den Kontakten ist der Feldverlauf sehr homogen.

Sample Mask : Crossed E-Field

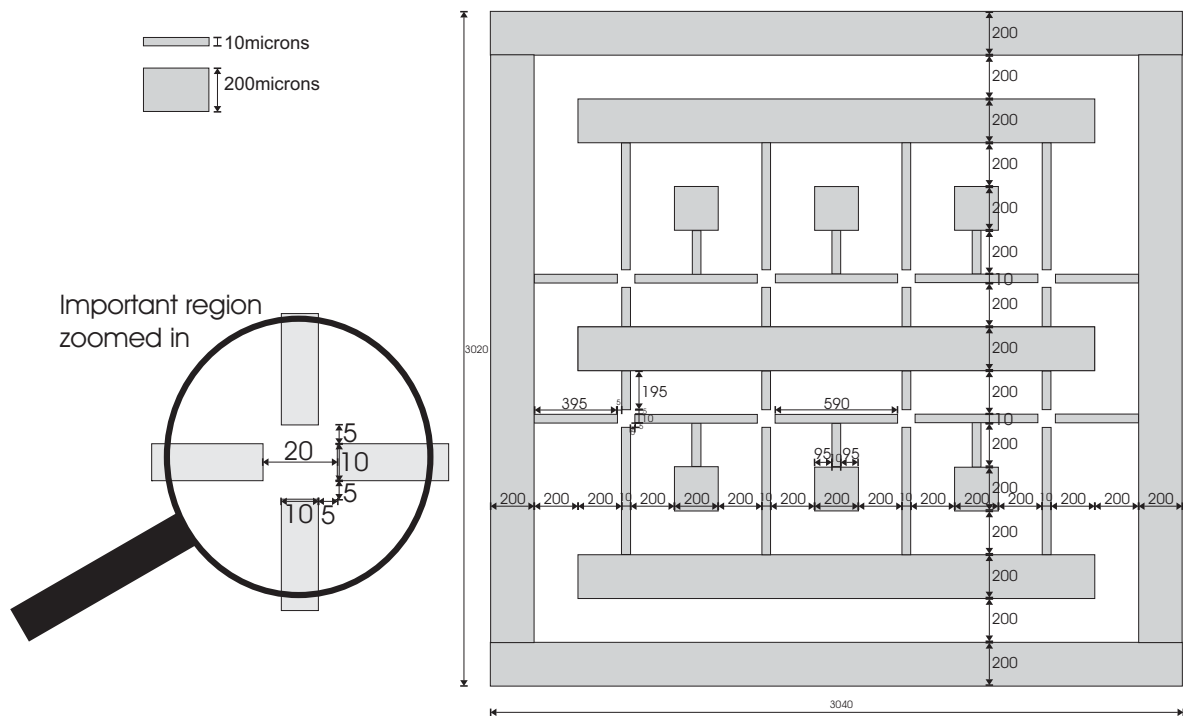


Abbildung 3.4: Entwurf einer Probenmaske zur Herstellung von Schottkykontakten, die eine Superposition zweier elektrischer Felder erlauben. Auf der linken Seite ist exemplarisch eine der acht aktiven Zonen vergrößert dargestellt. In diesen Gebieten lassen sich elektrische Felder in beliebiger lateraler Richtung erzeugen. Dies ermöglicht eine hohe Flexibilität bei der Untersuchung von individuellen Quantenpunkten und möglichen Anisotropien.

Kapitel 4

Experimenteller Aufbau und Messmethoden

Im folgenden Kapitel werden die Voraussetzungen zur Untersuchung einzelner Quantenpunkte erläutert, sowie die experimentellen Gegebenheiten für die innerhalb dieser Arbeit durchgeführten Messungen dargestellt.

4.1 Quantenoptische Untersuchungen an einzelnen Halbleiterquantenpunkten

Für jede optische Untersuchung an InAs-Quantenpunkten ist es erforderlich diese zu kühlen um zu verhindern, dass die Ladungsträger aufgrund ihrer thermischen Energie aus dem Quantenpunkt heraus tunneln oder wieder emittiert werden und um die Ankopplung an Phononen zu unterdrücken. Dafür wird die Probe mit Hilfe eines Helium-Durchfluss-Kryostaten (*Cryo-Vac Konti*) auf bis zu 4 K heruntergeköhlt. Um Eisbildung zu verhindern, wird das Innere des Kryostaten mittels einer Turbopumpe (*Tribodyn*) evakuiert. Dabei werden Drücke von $P \approx 1 \times 10^{-6}$ mbar erreicht. Zur Gewährleistung der Temperaturstabilität, ist in dem Kaltfinger, durch den das Helium strömt und der den thermischen Kontakt zur Probe herstellt, auch eine Heizspule implementiert. Durch geeignete Wahl der Heizspannung und des Heliumdurchflusses ist es so möglich, jede Temperatur zwischen 4 K und 300 K mit einer Genauigkeit von $\Delta T = \pm 0.5$ K einzustellen.

Um die Proben anzuregen, stehen ein kontinuierlicher (cw) (*Coherent Ringlaser 899*) und ein gepulster (*Coherent MIRA 900*) Ti:Sapphir Laser zur Verfügung. Beide werden durch einen cw-Festfrequenz, 10 W Dioden-Pumplaser (*Coherent Verdi-V10*) gespeist. Mittels eines herausnehmbaren, speziell für hohe Laserleistungen konzipierten Spiegels lassen sich so entweder Laserpulse mit einer Pulsbreite von $\Gamma \approx (1.5 - 2)$ ps und einer Repetitionsrate von 76 MHz oder kontinuierliche Laserstrahlung erzeugen. Beide Laserquellen können im nahinfraroten (NIR) Spektralbereich durchgestimmt werden (Fundamentalmode des Pulslasers ($\lambda = 695$ nm - 1010 nm) und ermöglichen so verschiedene Anregungsbedingungen. So können Ladungsträger im Barrierenmaterial oder in der zweidimensionalen Benetzungsschicht (WL) erzeugt werden, um von dort die Quantenpunkte durch Relaxation zu besetzen. Wenn man resonant die Energie eines Überganges im Quantenpunkt trifft, ist es sogar möglich, Ladungsträger direkt im Quantenpunkt zu erzeugen.

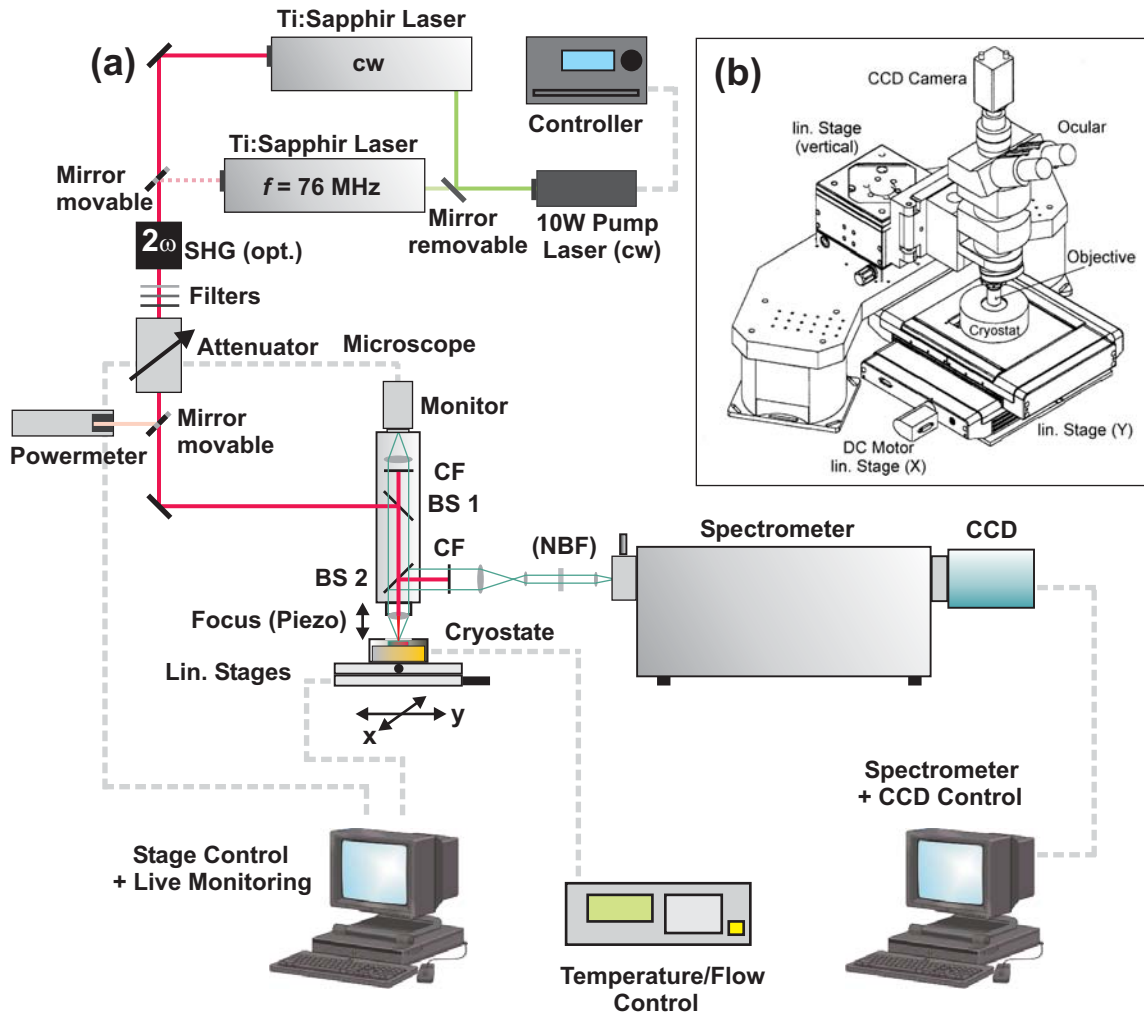


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung des Mikrophotolumineszenz-Experiments (a). Technische Zeichnung des Mikroskops und des auf den Lineartischen montierten Kryostaten (b).

Die viel zu hohe (mittlere) Ausgangsleistung der Laser ($\approx 1 \text{ W}$) wird zuerst mit Neutralfiltern (Graugläsern) in den Mikrowattbereich abgeschwächt. Die Feinabstimmung der Leistung erfolgt dann mit einem variablen Abschwächer (*Newport*), der keinen Strahlversatz verursacht.

Einzelne Quantenpunkte zu untersuchen stellt hohe Anforderungen an die experimentelle Ausstattung. Mit hoher Genauigkeit muss der Laserfokus auf der Probe oder wie in diesem Fall, die Probe unter dem Laserfokus im Sub-Mikrometerbereich bewegt werden können. Nur so können individuelle Quantenpunkte angefahren und mechanische Drifts während des Experiments ausgeglichen werden. Dies wird durch zwei mittels Stepper-Motoren angetriebenen (x,y)-Linearverschiebertischen, auf denen der Kryostat montiert ist, erreicht. Die Feinabstimmung erfolgt durch hysteresekompensierte Piezo-Aktuatoren. Dabei wird in der Ebene eine Genauigkeit von $\pm 50 \text{ nm}$ erreicht.

Um nicht zu viele Quantenpunkte gleichzeitig anzuregen, ist neben einer niedrigen Quantenpunktdichte eine hohe Fokussierung des anregenden Laserstrahls erforderlich. Dafür wird ein Mikroskop (*Olympus*) mit austauschbaren Objektiven verwendet (Fokusedurchmesser:

$\approx 1 \mu\text{m}$ für das 100x Objektiv, $\approx 2 \mu\text{m}$ für das 50x). Das selbe Objektiv, dass zur Fokussierung des Laserstrahls verwendet wird, dient auch dazu die Photolumineszenz der Probe zu sammeln und über einen Strahlteiler (BS 2 siehe Skizze 4.1) an ein Spektrometer weiterzuleiten. Da die Probe im Kryostaten sitzt, sind Objektive mit langem Arbeitsabstand nötig. Um dennoch möglichst wenig Licht zu verlieren werden Objektive mit hoher numerischer Aperatur ($NA = 0.5 - 0.8$) verwendet. Über eine Kamera kann der Laserfokus auf der Probenoberfläche beobachtet werden.

Zur spektralen Zerlegung des Lumineszenzlichtes wird ein computergesteuertes Gitterspektrometer (*Acton Research*) mit 750 mm Fokallänge verwendet. Es kann zwischen drei verschiedenen Strichgittern mit 300, 1200 oder 1800 1/mm gewählt werden. Eine sensitive, mit flüssigem Stickstoff gekühlte CCD-Kamera nimmt die Spektren auf („1D-vertical binning“ Modus) oder gibt die räumliche Verteilung spektraler Information in einem kombinierten 2D Intensitätsfarbverlaufsdiagramm aus („imaging“ Modus).

Dem Experimentator stehen ein hochauflösendes Wellenlängenmessgerät (*Coherent Wave Master*) und ein Autokorrelator (*APE Pulse Check*), welcher kontinuierlich die Laserpulsbreite ausmisst, zur Verfügung. Zur Einstellung der Pumpleistung kann das anregende Laserlicht über einen Klappspiegel einfach auf ein Leistungsmessgerät (*Coherent Field Master*) umgeschaltet werden. Dies ermöglicht eine einfache Kontrolle über die Anregungsbedingungen und stellt definierte und wiederholbare experimentelle Bedingungen sicher.

4.2 Photonenkorrelationsspektroskopie

Mit Hilfe der Photonenkorrelationsspektroskopie lässt sich die Emissionsstatistik (Kapitel 2.5) eines Emitters messen und somit verifizieren, ob es sich dabei um einen Einzelphotonenemitter handelt. Des Weiteren benutzt man diese Art von Messungen um herauszufinden, in welcher Reihenfolge Übergänge erfolgen oder ob bestimmte Linien in einem Spektrum überhaupt zu ein-und demselben Emitter gehören. Die Korrelationspektroskopie stellt somit ein mächtiges Mittel zum Verständnis der Vorgänge in Quantenpunkten dar.

4.2.1 „Hanbury Brown & Twiss“-Korrelator

Der klassische Aufbau eines Photonenkorrelationsexperimentes ist der „Hanbury Brown & Twiss“-Korrelator (HBT) [17]. Zum Nachweis der Emissionsstatistik eines Quantenpunktes wird das von der Probe kommende Licht spektral gefiltert und über einen 50/50-Strahlteiler auf zwei hocheinsensitive Avalanche-Photodioden (*APD: Perkin Elmer: AQR-14*) gelenkt. Dort werden die ankommenden Photonen zeitaufgelöst in elektrische Signale umgewandelt und mit Hilfe eines Vielkanalanalysators (*MCA*) aufgenommen. Die zeitliche Auflösung des gesamten HBT-Aufbaus beträgt dabei etwa 700 ps.

Werden in beiden Photodioden Photonen gleicher Frequenz nachgewiesen, (man untersucht also nur eine Spektrallinie des Quantenpunktes) nennt man diese Messung eine zeitliche *Autokorrelation*. Werden Photonen unterschiedlicher Frequenz miteinander korreliert, wobei hier die Filterung erst nach dem Strahlteiler erfolgt, nennt man die Messung eine *Kreuzkorrelation*.

Diese Messung ermöglicht Aussagen über Kaskadenverhalten und die Reihenfolge der korrelierten Übergänge. In der vorliegenden Arbeit wurden insbesondere für die Kreuzkorrelationsmessungen zwei Gitterspektrometer (beide *Acton Research*, 1200 1/mm Gitter) mit 500 mm und 750 mm fokaler Länge als variable Schmalbandfilter verwendet. Dafür wird das

mit Hilfe des Gitters spektral zerlegte Licht nicht auf die CCD-Kamera, sondern über einen computergesteuerten internen Klappspiegel und durch einen variablen Spalt aus dem Spektrometer ausgekoppelt. Das Spektrometer arbeitet hierbei also als Monochromator. Durch den variablen Spalt lässt sich die spektrale Breite bzw. Auflösung des austretenden Lichtbündels verändern. Diese Art der Messung ermöglicht eine hohe Flexibilität, da man nicht durch (alternativ vorhandene) Interferenzfilter auf schmale Spektralbereiche eingeschränkt wird und jede Wellenlänge in den interessanten Spektralbereichen einstellen und selektieren kann.

4.3 Hochauflösende optische Spektroskopie

Zur Untersuchung der Feinstruktur (siehe Kapitel 2.3.1) in (Bi)Exzitonen ist eine noch höhere Auflösung erforderlich als mit den oben beschriebenen Gitterspektrometern erreichbar ist. Deshalb ist eine Erweiterung der Messapparatur erforderlich um diese Untersuchungen durch zu führen.

4.3.1 Hochauflösende Gitterspektrometer

Die naheliegende Idee ein höher auflösendes Mehrfachgitterspektrometer zu verwenden hat das Problem, dass mit zunehmender Auflösung immer weniger Licht auf einen einzelnen Pixel der Nachweiskamera trifft und das thermische Rauschen der Kamera die Messung zunehmend erschwert. Eine Kopplung des Spektrometers mit einer APD wäre experimentell und finanziell sehr aufwendig.

4.3.2 Fourierspektroskopie

In einem Michelson-Interferometer wird das ankommende Licht durch einen Strahlteiler geteilt und über zwei Spiegel, von denen einer beweglich ist, zurück zum Strahlteiler und schließlich auf einen Photodetektor gelenkt. Durch den beweglichen Spiegel wird die eine Armlänge des Interferometers variiert und dadurch die Interferenzbedingung am Strahlteiler. Dies äußert sich in einer zeitlichen Modulation der Intensität $I(t)$ am Detektor. Werden z.B. zwei monochromatische Lichtwellen ähnlicher Frequenz eingestrahlt, erhält man als Intensitätssignal eine Schwebung. Über eine Fouriertransformation in den Frequenzraum erhält man dann die spektrale Information $I(\omega)$. Ein Vorteil dieses Systems ist, dass ständig alle Wellenlängen des Spektrums gleichzeitig gemessen werden. Allerdings muss das gesuchte Spektrum erst aufwendig rekonstruiert werden. Die Dauer einer Messung zur Bestimmung der Linienbreiten kann mehrere Stunden betragen.

4.3.3 Fabry-Perot-Interferometrie

In dieser Arbeit wurde ein neuer Weg eingeschlagen und zum erstenmal (nach dem Wissensstand des Autors) wurde die Fabry-Perot-Interferometrie zur hochauflösenden Spektrallinienuntersuchung an einem Einzelphotonenemitter verwendet. Dazu wird ein Mikrophotolumineszenzaufbau wie in Abbildung 4.3 gezeigt eingesetzt. Wobei das Spektrometer wie in Kapitel 4.2 als Monochromator Verwendung findet. Die so selektierte Lumineszenz wird durch ein piezogesteuertes Fabry-Perot-Interferometer (*Burleigh*) auf eine Avalanche Photodiode (APD: *Perkin Elmer: AQR-14*) gelenkt.

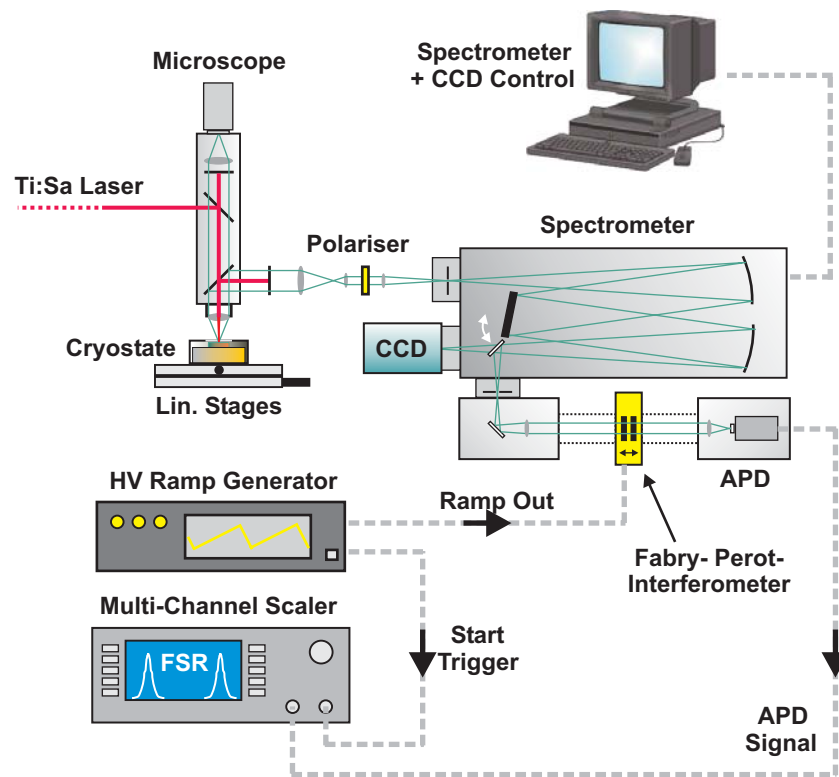


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung des Hochauflösenden Mikrophotolumineszenzaufbaus (nach [54]). Das Spektrometer dient als Vorfilter und das Fabry-Perot-Interferometer wirkt als extrem schmalbandiger variabler Filter. Das transmittierte Licht wird mit einer Avalanche Photodiode detektiert.

Ein Hochfrequenz-Rampengenerator (*Burleigh RG-93 Ramp Generator*) dient zur periodischen Ansteuerung der Piezo-Aktuatoren, die den Spiegelabstand des Interferometers variieren. Ein Vielkanalskalierer (*Stanford Research SR-430 MCS*) summiert die Signale der Photodiode mit Hilfe eines Triggersignals (welches auf die Scans des Interferometers synchronisiert ist) in verschiedene Kanäle. Jeder Kanal entspricht dabei einem spezifischem Spiegelabstand d . Die Integrationszeit pro Kanal und Scanperiode beträgt $327.68 \mu\text{s}$ bei 1024 Kanälen. Durch das periodische Signal (Dreiecksspannung) des Hochfrequenzgenerators wird der Spiegelabstand immer in gleicher Weise linear verändert. So entsteht über viele Perioden bzw. wenige Minuten Messzeit ein Abbild der Lumineszenz auf dem Multikanalskalierer.

Die Vorteile dieser Methode sind:

- Eine sehr hohe Auflösung, realisiert in einem kompakten Aufbau;
- eine direkte visuelle Ausgabe der Messung ohne vorherige Rechnung (wie dies bei 4.3.2 nötig ist);
- eine kurze Messzeit;
- eine durch die sensitive Avalanche-Photodiode sichergestellte hohe Nachweisempfindlichkeit.

Funktionsweise eines durchstimmbaren Fabry-Perot-Interferometers

Im Gegensatz zu einem Fabry-Perot-Etalon, besteht ein Fabry-Perot-Interferometer (FPI) nicht aus einer beidseitig verspiegelten Quarzplatte sondern aus zwei planparallelen Quarzplatten, deren innen liegende Seiten verspiegelt sind und deren jeweiligen Außenseiten mit einer Antireflexschicht bedampft sind. Trifft nun Licht der Wellenlänge λ unter dem Winkel α auf diese Anordnung, so tritt zwischen den beiden Platten im Abstand d Vielstrahlinterferenz auf. Für konstruktive Interferenz muss der Wegunterschied zweier benachbarter Teilstrahlen ein vielfaches der Wellenlänge betragen. Aus einfachen geometrischen Betrachtungen ergibt sich für den Gangunterschied Δs :

$$\Delta s = 2d\sqrt{n^2 - \sin^2 \alpha} \quad (4.1)$$

Hierbei ist n der Brechungsindex des Materials zwischen den beiden Platten. Aus dem Gangunterschied ergibt sich eine entsprechende Phasendifferenz δ .

$$\delta = \frac{2\pi\Delta s}{\lambda} + \Delta\phi \quad (4.2)$$

Wobei der Term $\Delta\phi$ etwaige Phasensprünge an Grenzflächen berücksichtigt. Die Gesamtamplitude der transmittierten Welle erhält man unter Berücksichtigung der Reflexivität R ($R < 1$) durch phasenrichtige Summation aller Teilwellen. Da in unserem Fall das Licht senkrecht auf das Fabry-Perot-Interferometer einfällt ($\alpha = 0^\circ$) erhält man unendlich viele Teilwellen. Aus dem Grenzwert der Geometrischen Reihe und kurzer Umformung ergeben sich die berühmten *Airy-Formeln* für die Intensitäten der reflektierten I_R und der transmittierten I_T Lichtwelle [7].

$$I_R = I_0 \frac{F \sin^2(\delta/2)}{1 + F \sin^2(\delta/2)} \quad (4.3)$$

$$I_T = I_0 \frac{1}{1 + F \sin^2(\delta/2)} \quad (4.4)$$

Dabei ist $F = 4R(1 - R)^{-2}$ eine Abkürzung. Aus $I_R + I_T = 1$ sieht man leicht, dass Absorption dabei vernachlässigt wurde. Der *Kontrast* K^* des Interferometers ergibt sich aus dem Verhältnis von maximaler zu minimaler Transmission.

$$K^* = \frac{I_{T_{max}}}{I_{T_{min}}} = 1 + F = \left(\frac{1 + R}{1 - R} \right)^2 \quad (4.5)$$

Der Wellenlängenbereich zweier aufeinander folgender Maxima, in dem es zu keiner Überschneidung unterschiedlicher Transmissionsordnungen kommen kann, wird *freier Spektralbereich* $\delta\nu$ genannt.

$$\delta\nu = \nu_{1max} - \nu_{2max} = \frac{c}{\Delta s} = \frac{c}{2d\sqrt{n^2 - \sin^2 \alpha}} = \frac{c}{2nd} \quad (4.6)$$

Die *Phasenhalfbreite* ϵ erhält man aus Gleichung 4.4.

$$\epsilon = 4 \arcsin \left(\frac{1 - R}{2} \sqrt{R} \right) \approx \frac{2(1 - R)}{2\sqrt{R}} = \frac{r}{\sqrt{F}} \quad (4.7)$$

Das \approx -Zeichen in Gleichung 4.7 gilt für hohe Reflektivitäten $R \gg (1 - R)$, d.h. $F \gg 1$.

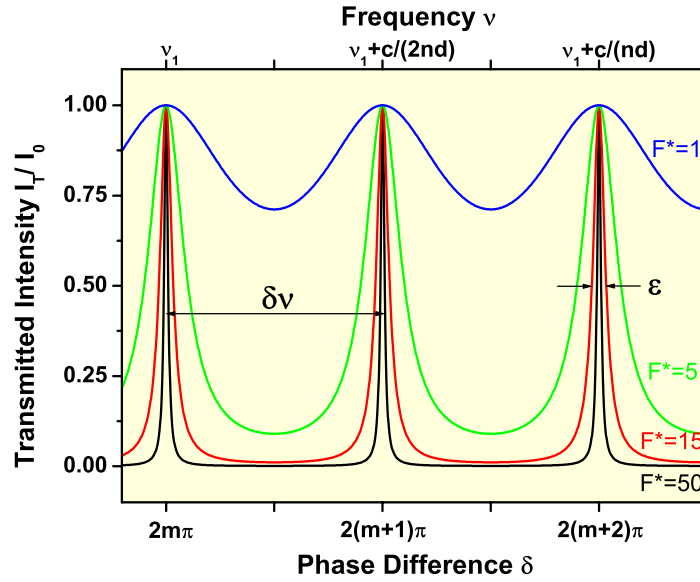


Abbildung 4.3: Transmissionskurven für verschiedene Finessen F^* bei idealer Reflektivität R .

Dem freien Spektralbereich $\delta\nu$ entspricht eine Phasenänderung von genau 2π . Daher ergibt sich die Halbwertsbreite in Frequenzeinheiten $\Delta\nu$ aus den Gleichungen 4.7 und 4.6 zu

$$\Delta\nu = \epsilon \frac{\delta\nu}{2\pi} = \frac{2\delta\nu}{\pi\sqrt{F}} \quad (4.8)$$

Schließlich definiert man noch die *Finesse* F^* als Verhältnis aus freiem Spektralbereich $\delta\nu$ und Halbwertsbreite $\Delta\nu$.

$$F^* = \frac{\delta\nu}{\Delta\nu} = \frac{2\pi}{\epsilon} = \frac{\pi\sqrt{F}}{2} = \frac{\pi\sqrt{R}}{1-R} \quad (4.9)$$

Sie ist ein Maß für die Qualität des Interferometers und bestimmt das Auflösungsvermögen $\nu/\Delta\nu$ gemäß

$$\frac{\nu}{\Delta\nu} = \frac{2\pi\nu}{\epsilon\delta\nu} = F^* \frac{\nu}{\delta\nu} \quad (4.10)$$

Dabei gelten nach [7] zwei Linien noch als aufgelöst, wenn die Vertiefung zwischen den entsprechenden Transmissionsmaxima tiefer als $0.8 I_{max}$ ist.

So fungiert das Fabry-Perot-Interferometer mit festem Plattenabstand d als Durchlassfilter der Breite $\Delta\nu$. Variiert man nun den Abstand d der Interferometerspiegel verschiebt sich die Durchlassfunktion I_T spektral, d.h. man kann z.B. das Profil eines Lasers oder - wie in dieser Arbeit - Exzitonenübergänge in einem Quantenpunkt abrastern. Dabei ist die Auflösung umso besser je höher die Finesse F^* . Jedoch hängt die Finesse nicht nur wie bisher betrachtet von der Reflexivität R , sondern auch empfindlich von der Parallelität der Platten (also der Justage), sowie von der Beschaffenheit der Spiegeloberflächen und Beugungseffekten ab. Deshalb wird eine Gesamtfinesse F_g^* definiert, in der die verschiedenen Beiträge F_i^* berücksichtigt werden.

$$\frac{1}{F_g^*} = \sum_i \frac{1}{F_i^*} \quad (4.11)$$

Kapitel 5

Ergebnisse

Im Rahmen der Diplomarbeit sind 15 verschiedene Proben untersucht worden. Aufgrund der Fülle der Messungen und um einen flüssigeren Stil zu gewährleisten, wurde darauf verzichtet die Proben und deren Eigenschaften in dieser Arbeit im Detail darzustellen. Eine Einteilung findet, wie im Kapitel 3 bereits dargelegt, lediglich in die grundsätzlich unterschiedlichen RTA und Insitu getemperten Proben statt. Falls nicht anders angegeben sind alle Messungen bei 4 K durchgeführt worden. Spektren sind in der Regel eine Sekunde integriert worden.

5.1 Test des Fabry-Perot-Interferometers

Da die Intensität der Photolumineszenz einzelner Quantenpunkte nicht zum justieren des Interferometers ausreicht, wird der Laser verwendet, um eine Grundjustage bzw. einen Test der Auflösung des Geräts durchzuführen. Zur Aufnahme des Laserlichtes wird der cw-Laser auf 870.5 nm eingestellt, da bei den sonst üblichen Anregungswellenlängen bei rund 800 nm die Reflektivität der Spiegel des Interferometers nicht mehr den spezifizierten hohen Werten für (920 ± 50) nm entspricht und sich somit ein verfälschtes Bild ergeben würde. Die erniedrigte Reflektivität würde zu einer Verringerung der Gesamtfinesse F_g^* führen.

Die Linienbreite des Lasers liegt im Femtometerbereich ($\Delta\nu \approx 1$ MHz) und ist auch mit Hilfe des Fabry-Perot-Interferometers nicht aufzulösen. Sie kann daher als Deltafunktion angenommen werden. Abbildung 5.1 zeigt folglich die Gerätefunktion, bestehend aus dem Spektrometer als Vorfilter, dem Interferometer, der Photodiode und der Messelektronik. Den größten Beitrag liefert dabei das Interferometer. Je besser das Interferometer justiert ist, desto schmäler kann es den Laser abbilden. Die Variation des Abstandes der beiden Spiegel des Interferometers (4.3.3) wurde so gewählt, dass die Airy-Durchlassfunktion (Formel 4.4) dreimal mit der Laserwellenlänge zusammenfällt. Dass die so erzeugten Darstellungen des Lasers alle in Höhe und Form gleich aussehen zeigt, dass die Spiegel gleichmäßig bewegt wurden und dabei keine Verkipfung auftrat. Das Interferometer funktioniert demzufolge einwandfrei, und aus der Breite der abgebildeten Linien lässt sich eine durch die Gerätefunktion bedingte Auflösungsgrenze errechnen.

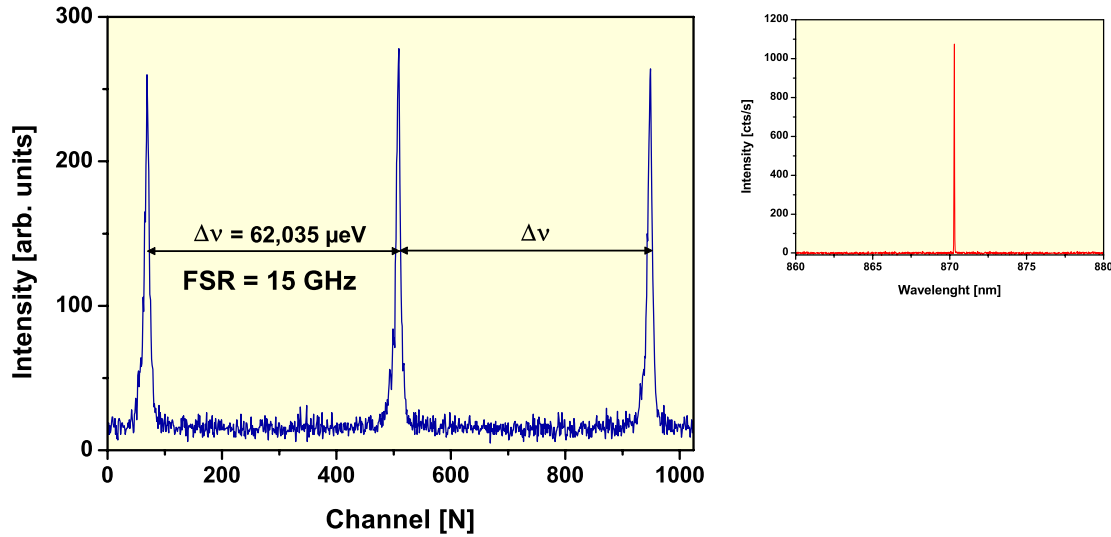


Abbildung 5.1: Hochauflösende Linienuntersuchung des cw-Lasers. Die Änderung des Spiegelabstands im Interferometer wurde so eingestellt, dass die Airy-Durchlassfunktion dreimal mit dem Laser zusammenfällt. Oben rechts ist von der Probe reflektiertes Laserserlicht bei $\lambda_{\text{Laser}} = 870.5 \text{ nm}$, mit Hilfe des Spektrometers aufgenommen, dargestellt. Es ist im Wesentlichen nur ein Pixel der CCD Kamera ausgeleuchtet worden. Die Auflösung des Spektrometers reicht demnach nicht aus, um den extrem schmalbandigen ($\Delta\nu \approx 1 \text{ MHz}$) cw-Laser aufzulösen. Auch die MCS-Darstellung der Laserlinie zeigt nur die Verbreiterung aufgrund der Gerätefunktion an. Je schmaler die Linie, desto besser ist das Interferometer justiert. Dass die Linien immer die gleiche Form und Höhe haben zeigt, dass das Interferometer gleichmäßig abstastet und die Piezos richtig arbeiten, d.h. über den gesamten Verstellbereich wird parallel gescannt.

5.1.1 Bestimmung des Auflösungsvermögens des Fabry-Perot-Interferometers

Die drei Abbildungen der Laserlinie wurden mit je einer Lorentzfunktion approximiert (nicht gezeigt). Der Mittelwert der Linienbreiten in Kanälen (ch) ergibt sich zu

$$\frac{\Gamma_1 + \Gamma_2 + \Gamma_3}{3} = \frac{8.9959 \text{ ch} + 8.1866 \text{ ch} + 9.4500 \text{ ch}}{3} = 8.8775 \text{ ch} \approx 9 \text{ ch} \quad . \quad (5.1)$$

Der Abstand zwischen der ersten und zweiten sowie der zweiten und dritten Linie beträgt jeweils 440 Kanäle. Da der freie Spektralbereich (FSR) 15 GHz (entspricht $\Delta E_{\text{fsr}} = 62.035 \mu\text{eV}$) bekannt ist, ergibt sich für die Energie pro Kanal

$$E_{\text{FPI}}^{\text{ch}} = \frac{\Delta E_{\text{fsr}}}{\text{Anzahl der Kanäle im FSR}} = \frac{62.035 \mu\text{eV}}{440 \text{ ch}} \approx 0.14 \frac{\mu\text{eV}}{\text{ch}} \quad . \quad (5.2)$$

Daraus folgt mit Gl. 5.1 das Auflösungsvermögen des FPI

$$\Delta E_{\text{FPI}} = 0.14 \frac{\mu\text{eV}}{\text{ch}} \cdot 9 \text{ ch} = 1.26 \mu\text{eV} \quad . \quad (5.3)$$

Wie die Erfahrung gezeigt hat, kann das Auflösungsvermögen sich aber von Messung zu Messung aufgrund der Justage geringfügig ändern. Da die Airyfunktion symmetrisch ist, ist die Verbreiterung durch die Gerätefunktion ebenfalls symmetrisch. Das bedeutet, dass die

Auflösung bezüglich einer mittleren Energielage, also dem Schwerpunkt einer abgebildeten Linie, nicht durch die Gerätefunktion begrenzt ist. In noch folgenden (z.B. polarisationsaufgelösten) Messungen können so noch höhere Auflösungen erreicht werden, die vom Signal- zu Rauschverhältnis und der Peakbreite der jeweiligen Messung abhängen. In der weiter unten gezeigten Messung eines hochaufgelösten Exzitonenübergangs Abb. 5.4 beträgt die Genauigkeit, mit der der Schwerpunkt der Peaks festgelegt werden kann, umgerechnet $\Delta E_{\text{FPI}}^{Sp} = 0.05 \mu\text{eV}$.

5.2 Die RTA-Proben

Die ersten einer ganzen Reihe von untersuchten Proben sind nach der in Kapitel 3.1.1 beschriebenen RTA-Methode präpariert worden. So wurde der Emissionswellenlängenbereich der Quantenpunkte an die experimentellen Begebenheiten (Sensitivität der Photodioden) angepasst. Des Weiteren verspricht man sich durch dieses Verfahren symmetrischere Quantenpunkte und eine Verringerung der Verspannungen im Gitter (siehe Kapitel 3.1.1). In einem Bereich hoher Quantenpunktdichte wurde zunächst eine Ensemblelumineszenzmessung durchgeführt, die in Abbildung 5.2 zu sehen ist.

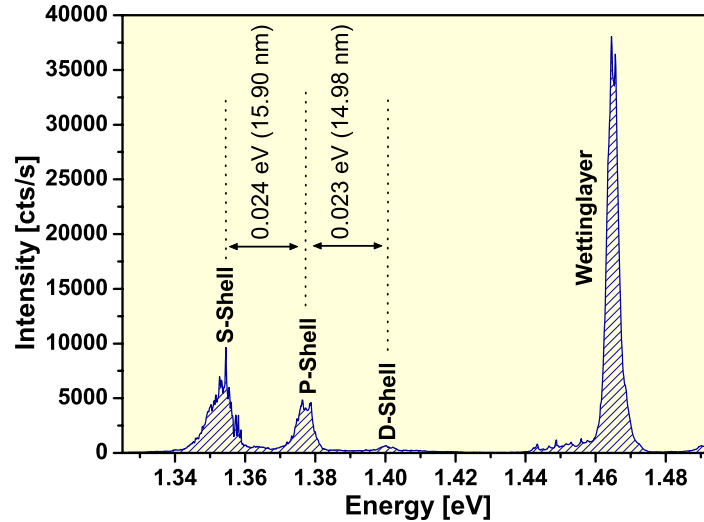
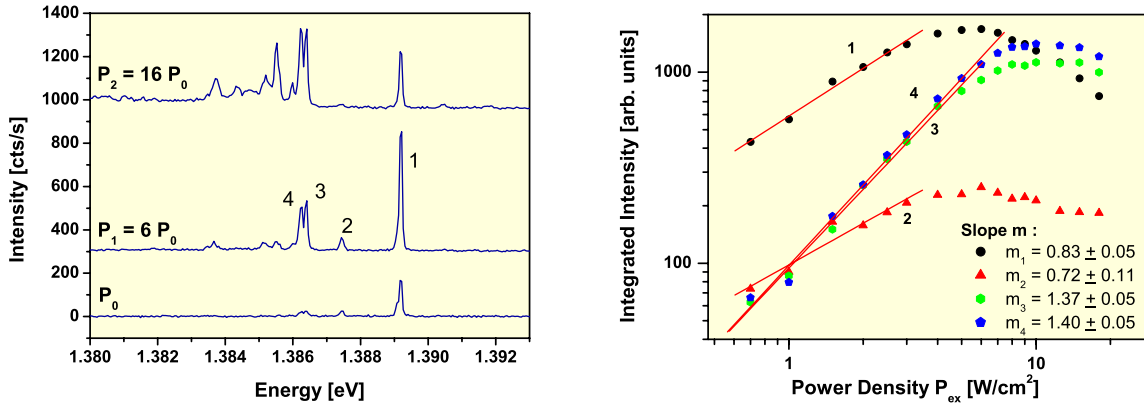


Abbildung 5.2: Ensemblelumineszenz der RTA 970-Probe. Deutlich sichtbar ist die Schalenstruktur der Quantenpunkte sowie die Lumineszenz der zweidimensionalen Benetzungsschicht (Wettinglayer). Eine nicht resonante optische Anregung erfolgte hier im cw (Dauerstrich)-Betrieb des Lasers bei $\lambda_{\text{Laser}} = 794 \text{ nm}$ mit einer Leistungsdichte von $P_{\text{ex}} = 2.6 \text{ W/cm}^2$. Die Größe des Laserspots betrug $2 \text{ }\mu\text{m}$.

Die S-Schalen Emission der Quantenpunkte liegt in einer näherungsweise gaußförmigen Verteilung um 1.353 eV . Die Schalenabstände sind in qualitativer Übereinstimmung mit dem Modell eines parabolischen Einschlusspotentials der Ladungsträger nahezu äquidistant. Ungewöhnlich ist die intensive Emission der Benetzungsschicht (engl. Wettinglayer). Zur Untersuchung von Einzelquantenpunkten kommen aufgrund der hohen Quantenpunktdichte nur solche in Frage, die abseits vom Ensemblemaximum emittieren. Ein typisches Einzelquantenpunktspektrum ist in Abb. 5.3(a) für drei verschiedene Anregungsleistungen P dargestellt.

Bei niedrigen Pumpleistungen P ist die Einfangrate von Ladungsträgern in den Quantenpunkt kleiner als die Rekombinationsrate. Die Wahrscheinlichkeit, dass sich mehr als ein Elektronen-Loch-Paar im Quantenpunkt aufhält, ist dementsprechend gering und nur die Exzitonline (1) ist im Spektrum Abb. 5.3(a) sichtbar. Bei höheren Pumpleistungen können sich auch mehrere Ladungsträger im Quantenpunkt aufhalten, und das Biexziton erscheint im Spektrum. Die Linien 3 und 4 verhalten sich sehr ähnlich und kommen aufgrund ihrer Pumpleistungsabhängigkeit prinzipiell beide für das Biexziton in Frage. Ungefähr die Hälfte aller Quantenpunkte der RTA 970-Probe zeigt diese Doppelstruktur. Bei den restlichen lässt sich das Biexziton eindeutig zuordnen.



(a) Leistungsabhängige Lumineszenzmessung an einem typischen Quantenpunkt der RTA 970-Probe.

(b) Die zugehörigen integrierten Peakintensitäten in einem doppellogarithmischen Graphen.

Abbildung 5.3: Leistungsabhängige Lumineszenzmessung an einem typischen einzelnen Quantenpunkt der RTA 970-Probe (links). Die integrierten Peakintensitäten sind in einem doppellogarithmischen Graphen (rechts) dargestellt. Die Pumpleistungsabhängigkeit der Intensität identifiziert die mit 1 gekennzeichnete Linie als Exzitonenübergang, Line 3 oder 4 sind dem Biexziton zuzuschreiben ($\lambda_{Laser} = 794$ nm, cw).

Dass der Biexzitonübergang bei hohen Leistungen gegenüber dem Exzitonübergang dominant wird zeigt, dass es sogar wahrscheinlich wird, dass nach der Rekombination des Biexzitons ein neues Elektron-Loch-Paar in den Quantenpunkt relaxiert noch ehe das verbleibende einzelne Exziton zerfällt. Gleichzeitig erscheinen auf der niederenergetischen Seite des Biexzitons höhere Multiexzitonen.

Noch deutlicher sichtbar ist das Verhalten in Abb. 5.3(b). Aufgetragen sind die Peakintensitäten gegen die Pumpleistungsdichte P_{ex} . Bei kleinen Leistungsdichten dominiert das Exziton. Wenn die Raten für den Ladungsträgereinfang in den Quantenpunkt und die strahlende Rekombination der Ladungsträger vergleichbar werden, tritt Sättigung auf. Dieses Verhalten spiegelt sich in einer Abnahme der Intensität des Exzitons gegenüber der des Biexzitons mit steigender Generationsrate freier Ladungsträger im GaAs-Barrierenmaterial des QDs wider. Die Linie 2 ist schon bei niedrigen Leistungen zu sehen und zeigt nur eine sehr schwache Leistungsabhängigkeit, sie ist aufgrund ihrer energetischen Position [39] vermutlich einem geladenen Exziton zuzuschreiben.

5.2.1 Hochauflösende Linienbreitenmessungen an den RTA-Proben

Die in Abb. 5.3(a) gezeigte Exzitonline wurde nach dem in Kapitel 4.3.3 dargestellten Verfahren hochaufgelöst untersucht.

In Abb. 5.4 sieht man zweimal die gleiche Spektrallinie im Abstand des freien Spektralbereiches (FSR) $\Delta\nu$. Da dieser bekannt ist, lassen sich die Kanäle in Energien umrechnen. Dabei bleibt die absolute Energie aber nur im Rahmen der Auflösung des verwendeten Spektrometers bestimmbar.

$$\Delta E_{fsr} = h\Delta\nu = h \cdot 15 \text{ GHz} = 9.93911 \cdot 10^{-24} \text{ J} = 62.0351 \cdot 10^{-6} \text{ eV} \quad (5.4)$$

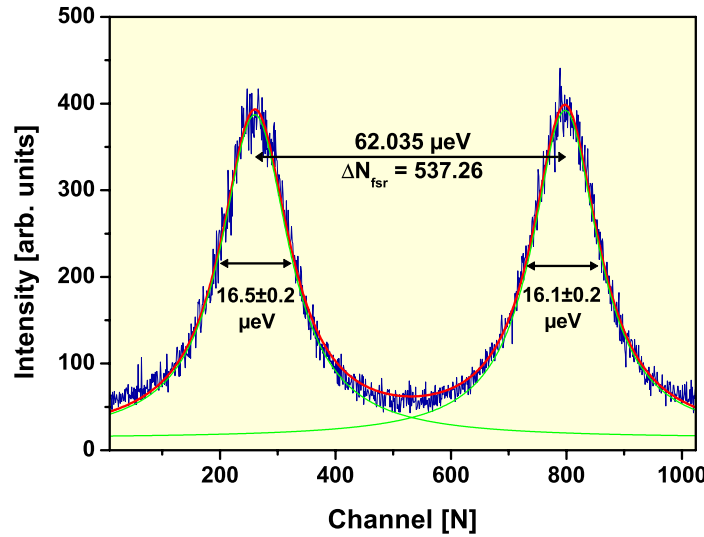


Abbildung 5.4: Hochauflösende Linienbreitenmessung eines Exzitonenübergangs. Zu sehen ist zweimal die gleiche Spektrallinie im Abstand des freien Spektralbereichs (FSR) $\Delta E_{\text{fsr}} = 62.035 \mu\text{eV}$ des Fabry-Perot-Interferometers. Die Anzahl der Kanäle im FSR beträgt bei dieser Messung $\Delta N_{\text{fsr}} = 537.26$. Angeregt wurde kontinuierlich bei 795 nm, die Leistungsdichte P_{ex} betrug 4.56 W/cm^2 . Die Aufnahme ergibt sich aus 1000 periodischen Abstandsvariationen der Interferometer Spiegel. Jede Periode dauert eine halbe Sekunde, folglich wurde 500 s lang integriert.

$$\Delta E_{\text{kanal}} = \frac{\Delta E_{\text{fsr}}}{\text{Anzahl der Kanäle im FSR}} = \frac{\Delta E_{\text{fsr}}}{\Delta N_{\text{fsr}}} = \frac{62.035 \mu\text{eV}}{537.26} \approx 0.115 \mu\text{eV} \quad (5.5)$$

Ein Kanal entspricht also einem Energieunterschied von $\Delta E_{\text{fsr}}/\Delta N_{\text{fsr}}$. So lässt sich die aus dem Lorentzfit gegebene Linienbreite in Kanälen einfach in eine Energie umrechnen. Man mittelt über die beiden Peaks, um den Fehler zu verringern und erhält für die Linienbreite des Exzitonenübergangs $E_{\text{FWHM},X} = 16.3 \pm 0.1 \mu\text{eV}$.

In diesem Fall ist aber nur ein Übergang (zweimal) zu sehen und nicht etwa zwei Feinstrukturkomponenten. Es wurden mehrere Quantenpunkte dieses Typs untersucht, ohne dass eine Feinstruktur nachweisbar war.

Abbildung 5.5 zeigt eine Übersicht der bestimmten Linienbreiten. Die rot eingezeichneten Halbwertsbreiten der zuvor auf 970°C aufgeheizten Probe sind geringer als die grün eingezeichneten der RTA 955-Probe. Die höhere so genannte „annealing“ Temperatur führt also zu symmetrischeren Quantenpunkten und als Konsequenz dessen zu schmalere Linienbreiten. Die jeweiligen Durchschnittswerte \odot sind als gestrichelte Linien eingezeichnet.

$$\odot \Gamma_{955} = \frac{1}{i} \sum_i \Gamma_{955}^i = 18.1225 \mu\text{eV} \quad (5.6)$$

$$\odot \Gamma_{970} = \frac{1}{i} \sum_i \Gamma_{970}^i = 14.2769 \mu\text{eV} \quad (5.7)$$

Die durch die Heisenbergsche Unschärferelation begrenzte Linienbreite $\Delta\Gamma$ ergibt sich aus der Lebensdauer des Exzitons $\Delta\tau$. Ein Erfahrungswert für die X-Lebensdauer von InGaAs-Quantenpunkten beträgt eine Nanosekunde (siehe Abb. 5.37).

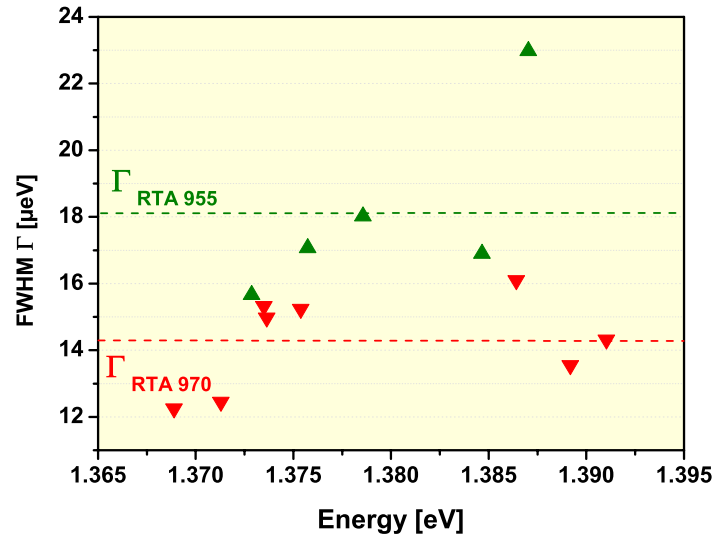


Abbildung 5.5: Gemessene Linienbreiten der RTA 970- (rot) und RTA 955-Proben (grün). Die durchschnittliche Halbwertsbreite der bei höherer Temperatur prozessierten RTA 970-Probe ist deutlich geringer, als die der RTA 955-Probe. In beiden Fällen liegt die Linienbreite noch über der durch die Unschärferelation bedingten lebensdauerbegrenzten Linienbreite.

$$\Delta\Gamma \geq \frac{\hbar}{\Delta\tau} \approx \frac{\hbar}{1 \text{ ns}} \quad (5.8)$$

$$\Delta\Gamma \geq 0.66 \text{ } \mu\text{eV} \quad (5.9)$$

Es stellt sich daher die Frage, warum trotz der hohen Auflösung des Interferometers keine Feinstruktur aufgelöst werden konnte und weshalb die gemessene Linienbreite nicht noch kleiner ist. Die Antwort liefert die „spektrale Diffusion“ (Kapitel 2.4.3): Über die Dauer einer Messung kann die Energie des Übergangs aufgrund von Ladungsträgerfluktuationen in der Umgebung des Quantenpunktes variieren [44],[43].

Ein Beleg für den Einfluss der spektralen Diffusion liefern hochauflösende Messungen an zwei verschiedenen Quantenpunkten. Nach kurzer Integrationszeit ist eine Doppelstruktur in den Messungen an beiden Exzitonen dieser Quantenpunkte zu sehen. Eine dieser Messungen ist in Abb. 5.6 gezeigt. Um die Doppelstruktur besser sehen zu können sind die Messdaten (grau) geglättet worden (blau). Da diese Doppelstruktur auf den beiden hochauflösten Darstellungen der Exzitonlinie in gleicher Weise zu sehen ist, kann eine statistische Fluktuation ausgeschlossen werden. Bei längerer Integrationszeit verschwindet diese Struktur aufgrund der spektralen Diffusion.

Da die Feinstruktur in keiner Messung eindeutig aufgelöst werden konnte und die einzelnen Feinstrukturkomponenten linear polarisiert sein sollten (Kapitel 2.3.1), wurde ein Polarisator bestehend aus einem $\lambda/2$ -Plättchen und einem polarisierenden Strahlteiler (PBS, Teilungsverhältnis 500:1) vor das Spektrometer gestellt. Dadurch wird sichergestellt, dass das polarisationsabhängige Reflexionsverhalten des Gitterspektrometers keinen Einfluss auf die Messung nimmt, da der polarisationsabhängige Strahlteiler immer nur Licht gleicher Polarisation transmittiert. Über die Drehung des $\lambda/2$ -Plättchens werden im Laufe der Messung verschiedene einfallende Polarisationsanteile auf die Transmissionsebene des Strahlteilers projiziert.

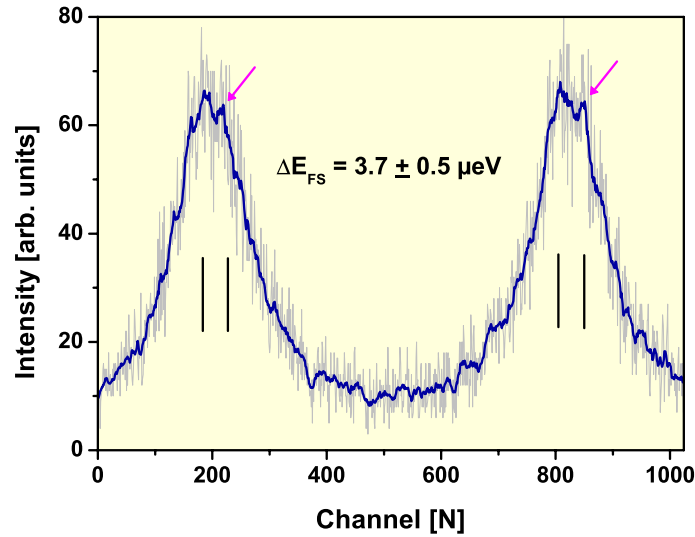


Abbildung 5.6: Gezeigt ist eine weitere hochauflösende Messung eines Exzitonenüberganges. Die experimentellen Daten (grau) wurden geglättet (blau) um den Einfluss des Rauschens zu vermindern. Auf beiden Linien ist symmetrisch ein zweiter Peak zu sehen. Bei längerer Integrationszeit t_{int} verschwindet die Andeutung dieser Feinstruktur ($\lambda_{Laser} = 794$ nm, cw, $t_{int} = 125$ s, $P_{ex} = 8.5$ W/cm²).

So wurden in Abhängigkeit der Polarisierung mehrere hochauflösende Linienbreitenmessungen derselben Spektrallinie durchgeführt.

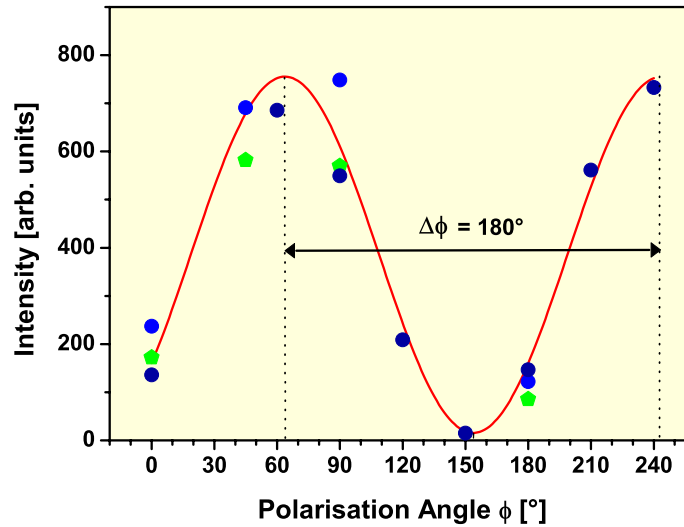


Abbildung 5.7: Polarisationsabhängige Intensität eines Exzitonenübergangs (hell- und dunkelblau) sowie eines Biexzitonenübergangs (grüne Fünfecke) desselben Quantenpunktes. Hell- und dunkelblaue Punkte Kennzeichnen verschiedene Messreihen. Der Fehler ist kleiner als die Größe der Punkte. Verschiedene Messreihen dürfen sich aber aufgrund unterschiedlicher Justage unterscheiden. Gemessen wurde unter kontinuierlicher Anregung bei $\lambda_{Laser} = 901.5$ nm mit einer Leistungsdichte von $P_{ex} = 5.45$ W/cm². Die gezeigte Auswertung einer Serie von hochauflösenden Linienmessungen zeigt eindeutig nur eine linear polarisierte Komponente. Für zwei zueinander senkrecht polarisierte Komponenten sollte das Signal nie verschwinden.

Abbildung 5.7 zeigt das Ergebnis der Auswertung einer solchen Messserie. Aufgetragen sind die gemessenen Intensitäten in Abhängigkeit der Polarisation. Der angegebene Winkel ist dabei die Richtung des elektrischen Feldvektors der Photonen, gegenüber der Labortischebene gemessen. Wie man sieht, zeigt die Intensität eine Oszillation, mit einer Periode von 180° und geht bei $\approx 154^\circ$ nahezu auf null zurück. Dies zeigt ganz deutlich, dass das aufgenommene Licht linear in einer Richtung polarisiert ist (bei einer Drehung von $180^\circ \hat{=} \pi$ geht der schwingende Feldvektor in sich selbst über).

Neben der Intensität wurde auch die Peaklage, in Abhängigkeit der Polarisation ausgewertet. Die Peaklage ändert sich um weniger als $2 \mu\text{eV}$ um eine mittlere Lage, was innerhalb der Fehlergrenzen des Experiments liegt und somit konsistent mit der Beobachtung nur einer linearpolarisierten Spektrallinie ist. Für den Fall, dass man zwei Feinstrukturkomponenten aufgenommen hätte und nur die spektrale Auflösung nicht ausreichend wäre, hätte sich die Intensität nicht in dieser Form ändern dürfen und die Peakposition der beobachteten Emissionslinie, also die Energie, sollte sich in Abhängigkeit der Polarisation stärker ändern.

Eine weitere Messung an einem anderen Quantenpunkt ergab ein ähnliches Verhalten. Aufgrund dessen wurde auf Kosten der Auflösung der freie Spektralbereich des Fabry-Perot-Interferometers erhöht, indem der Grundabstand der Spiegel verringert wurde (da $FSR \propto 1/d$). Die zu Grunde liegende Idee dieser experimentellen Hervorgehensweise ergibt sich aus der Überlegung, dass wenn der Abstand der beiden Feinstrukturkomponenten größer sein sollte als der freie Spektralbereich des Interferometers, könnte immer nur eine Komponente beobachtet werden. Jedoch konnte auch mit größerem freien Spektralbereich keine Feinstruktur beobachtet werden. Vermutlich geht durch die zusätzliche Polarisationsoptik zu viel Licht verloren. Noch im Folgenden dargestellte Messungen zeigen, dass die beiden Feinstrukturkomponenten nicht gleich Intensiv sein müssen. Die experimentelle Erfahrung mit dem Fabry-Perot-Interferometer zeigt, dass bei nicht ausreichender Intensität einer Spektrallinie nur Rauschen aufgenommen wird. Auch eine Verlängerung der Integrationszeit führt dann zu keinem Ergebnis. Möglicherweise liegt die Intensität der einen Feinstrukturkomponente gerade über dieser Schwelle, so dass sich diese mit zunehmender Integrationszeit immer besser aufnehmen lässt, wohin gegen die zweite Komponente unterhalb dieser Schwelle liegt und diese deshalb auch bei langen Integrationszeiten nicht zu beobachten ist. In Abwesenheit von Polarisationsoptik ($\lambda/2 + PBS$) sind beide Komponenten Intensiv genug und lassen sich nach kurzen Integrationszeiten im Rauschen erahnen, sind aber Aufgrund der spektralen Diffusion bei längeren Integrationszeiten nicht mehr zu trennen. Um dies zu verhindern, wurden Versuche unternommen die Quantenpunkte resonant anzuregen (siehe Kapitel 5.2.3).

5.2.2 Korrelationsmessungen an den RTA-Proben

Für eine triggerbare Quelle (verschränkter) Photonenpaare ist es eine Voraussetzung, dass die in Kapitel 2.5 besprochenen Korrelationen unter gepulster Anregung Einzelphotonenemission und ein Kaskadenverhalten zwischen Biexziton und Exziton zeigen.

Da die Zeitbasis für die Korrelationsmessungen nicht nur von der elektronisch eingestellten Verzögerung zwischen Start- und Stop-Photon, sondern auch von der Länge der verwendeten Kabel und der Geschwindigkeit der Messelektronik abhängt, ist eine Eichung erforderlich. Dies geschieht durch eine Autokorrelationsmessung des gepulsten Ti:Sa Lasers, wie in Abb. 5.8 gezeigt.

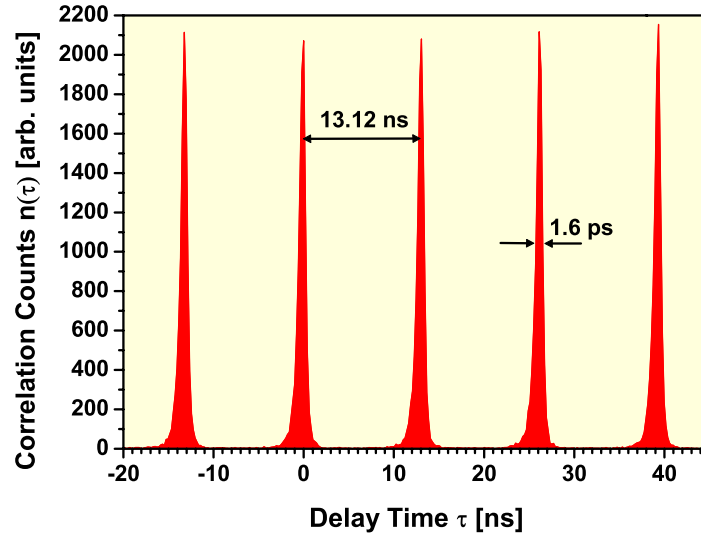


Abbildung 5.8: Autokorrelationsmessung des ps-Puls lasers. Aus der bekannten Pulsfrequenz von 76 MHz ergibt sich die Zeitbasis für diese und folgende Korrelationsmessungen. Da es sich bei einem Laser nicht um einen Einzelphotonenemitter, sondern um eine Poisson-verteilte kohärente Lichtquelle handelt, ist auch der Photonen-Koinzidenzpeak bei $\tau = 0$ zu sehen.

Dabei zeigt der Laser natürlich keine Einzelphotonenemission sondern die Statistik einer kohärenten Lichtquelle (siehe Kapitel 2.5). Aus der bekannten Pulsfrequenz ergibt sich aber eine sehr genaue Zeiteichung für die folgenden Korrelationsmessungen. Da die Relaxation der Ladungsträger in die Quantenpunkte, gefolgt von strahlender Rekombination wesentlich schneller erfolgt (einige ps) [43] als die Anregung durch aufeinander folgende Laserpulse ($\Delta t_{puls} = 13.12$ ns), sollten sich die Lagen der Laserpeaks und deren Abstände auch in den gepulsten Korrelationsmessungen an den Quantenpunkten widerspiegeln. Überraschenderweise ist dies aber, wie im Folgenden gezeigt wird, nicht der Fall.

Abbildung 5.9 zeigt die Autokorrelationsmessung eines Exzitonübergangs eines Quantenpunktes der RTA 970-Probe. Dabei erfolgte die Anregung durch den gepulsten Ti:Sa Laser. Deutlich zu sehen ist der Antibunching-Dip als Kennzeichen eines nichtklassischen Einzelphotonenemitters $g^2(0) = 0.3 < 0.5$. Einzelne Korrelationspeaks (wie sie in Abb. 5.8 bei der Autokorrelationsmessung des Lasers zu erkennen sind) treten aber nicht auf. Das Ergebnis der Messung erscheint vielmehr wie eine Autokorrelation unter kontinuierlicher Anregung.

Die Messung wurde unter besonderer Beachtung der Laserperformance wiederholt, um einen cw-Anteil des Lasers auszuschließen. Das dargelegte Verhalten zeigte sich jedoch wieder.

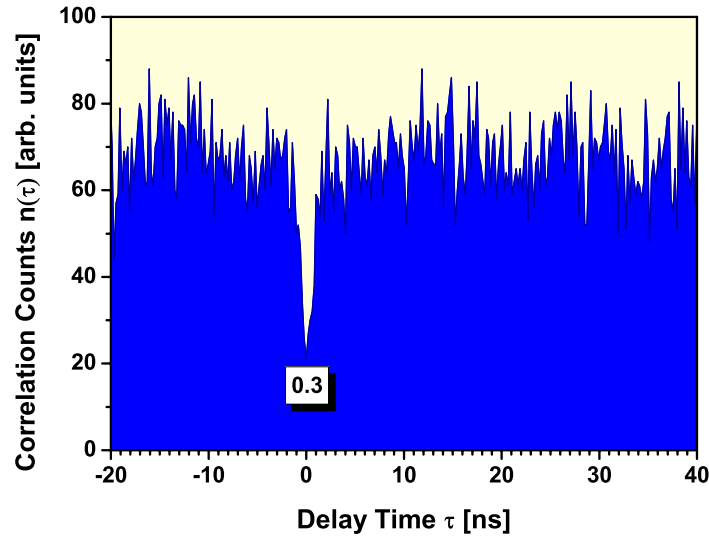


Abbildung 5.9: Autokorrelation eines Quantenpunktes der RTA 970-Probe unter gepulster Anregung bei $\lambda_{\text{Laser}} = 818 \text{ nm}$ und $P_{\text{ex}} = 2.97 \text{ W/cm}^2$. Der Dip bei $\tau = 0$ lässt auf Einzelphotonenemission schließen. Es werden jedoch ständig Koinzidenzen beobachtet, auch zu Zeiten $\tau \in [\tau_{\text{laser},n}; \tau_{\text{laser},n+1}]$, an denen kein anregender Laserpuls zur Verfügung stand. Die Quantenpunkte beziehen folglich auch zwischen den Laserpulsen Ladungsträger, welche verzögert zu strahlender Rekombination führen. Die Integrationszeit betrug 4000 s.

Auch Messungen mit niedrigerer Anregungsleistung, das Exziton blieb dabei weit unterhalb der Sättigung, sowie höherer Anregungsleistung (Exziton in Sättigung) lieferten ebenfalls ähnliche Ergebnisse.

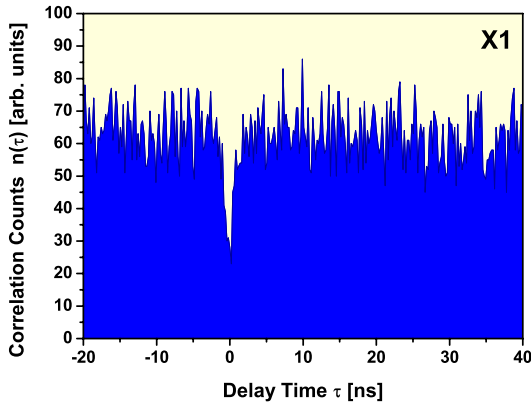
Messungen an weiteren Quantenpunkten zeigen ein ähnliches Verhalten. Bei einigen Quantenpunkten (Abb. 5.10(d)) sind die eigentlich zu erwartenden Korrelationspeaks noch andeutungsweise auf einem hohen Untergrund zu sehen. Andere Korrelationsmessungen sehen aus, als seien sie unter kontinuierlichen Anregungsbedingungen entstanden.

Aus unbekannten Gründen müssen auch einige Zeit nach einem Anregungslaserpuls noch Ladungsträger vorhanden sein, die in den Quantenpunkt tunneln können. Dies sollte nur möglich sein, wenn die Ladungsträger in einem etwa durch Störstellen (Verunreinigungen) verursachten Potential gebunden sind. In Rücksprache mit der MBE-Gruppe von O.G. Schmidt (MPI Stuttgart) entstanden dabei zwei mögliche Erklärungen für diesen Sachverhalt.

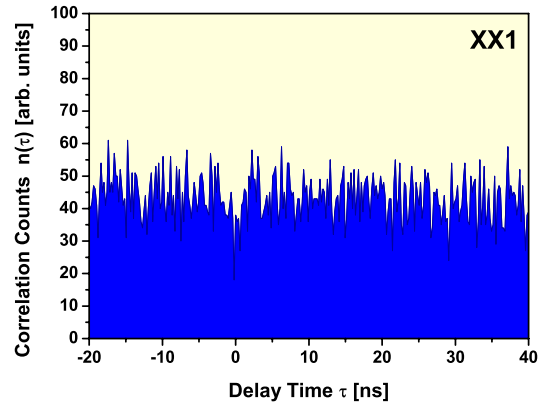
1. Die zur Steigerung der Lumineszenz hergestellten Claddinglayer (siehe Kap. 3) fangen und halten die Ladungsträger auf einer Zeitskala, die länger als der Pulsabstand des Lasers ist.
2. Die Wettinglayer wird durch den thermischen Aufheizungsprozess (RTA siehe 3.1.1) teilweise zerstört und bildet zusammen mit dem Barrierenmaterial Inseln in denen die Ladungsträger gefangen werden und von dort in die Quantenpunkte tunneln können.

Die erste Erklärung ist insofern nahe liegend, als dass die Claddinglayer extra zu dem Zweck eingeführt wurden die räumliche Diffusion der Ladungsträger zu verhindern und so die Lumineszenz zu steigern.

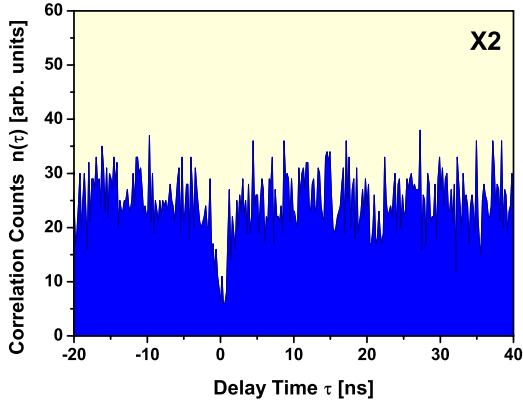
Für die zweite Möglichkeit spricht die, im Vergleich zu später untersuchten Proben, ungewöhnlich starke (bis zu 10x höhere) optische Aktivität der Wettinglayer.



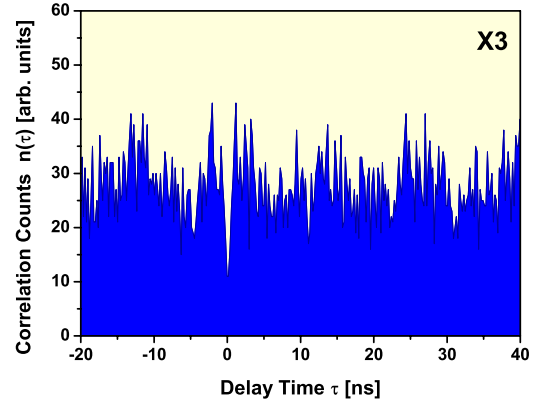
(a) Autokorrelation eines Exzitonenüberganges. Die Integrationszeit betrug $t_{int} = 3000$ s.



(b) Autokorrelation des zu (a) gehörigen Biexzitonenüberganges. Die Integrationszeit betrug $t_{int} = 2020$ s.



(c) Autokorrelation eines Exzitonenüberganges eines weiteren Quantenpunktes. Die Integrationszeit betrug $t_{int} = 5000$ s.



(d) Autokorrelation eines Exzitonenüberganges eines weiteren Quantenpunktes. Die Integrationszeit betrug $t_{int} = 4000$ s.

Abbildung 5.10: Autokorrelationen verschiedener Quantenpunkte der RTA-970 Probe unter gepulster (ps) Anregung. Das Wiederauffüllen der Quantenpunkte zwischen den Laserpulsen ist in verschiedenen Quantenpunkten verschieden stark ausgeprägt. So sind in (c) und (d) die Peaks noch ansatzweise zu erkennen.

5.2.3 Resonante Anregung der RTA-Proben

Die Probleme bei der gepulsten Anregung sollten sich in jedem Fall erübrigen, wenn resonant Ladungsträger in einer höheren Schale des Quantenpunktes erzeugt werden. Die so erzeugten Ladungsträger würden in die leere S-Schale relaxieren und dort strahlend rekombinieren. Ein Einfluss der Wetting- bzw. Claddinglayer wäre in diesem Fall ohne Bedeutung. Experimentell ergibt sich dabei die Schwierigkeit, dass der Laser spektral dann nur etwa 15 nm von der Quantenpunktlumineszenz entfernt, emittiert. Dies ergibt sich aus dem Schalenabstand in Abbildung 5.2. Dabei ist die abfallende Flanke des Lasers aufgrund der hohen Intensität (auch 15 nm entfernt) im Spektrum dominant. Höhere Lasermoden stellen ein weiteres Problem dar. Eine solche Messung ist deshalb nur mit Interferenzfiltern, zur Unterdrückung von Laserstreulicht bzw. klaren spektralen Trennung der Quantenpunktlumineszenz, möglich. Diese sind sowohl im Anregungs- sowie auch im Auslesestrahlengang verwendet worden. Dabei wurde sowohl mit dem kontinuierlichen als auch mit dem Puls laser versucht die schmalbandige Resonanz einer höheren Quantenpunktschale zu treffen. Dabei wurde auf verschiedene Weisen vorgegangen:

- Zum einen wurde das Spektrometer auf die Wellenlänge eingestellt, bei der man die Lumineszenz erwartet, also $\lambda \approx 900$ nm. Dann wurde der verwendete Laser über einen großen Bereich durchgestimmt, um eine Resonanz zu treffen. Die Laserkavität muss dabei immer wieder nachjustiert werden um die Stabilität des Lasers zu gewährleisten.
- Zum anderen wurde der Laser auf die erwartete Energie der P-Schale gestimmt also auf ungefähr 885 nm und die Probe wurde unter dem Laserfokus durch bewegt. So gelangen immer neue Quantenpunkte in den Fokus, und mit etwas Geduld wird für einen die Resonanz getroffen.

Leider blieben sämtliche Versuche einer solchen Anregung auf den RTA-Proben erfolglos. Selbst Versuche, Quantenpunkte über die Wettinglayer anzuregen, gelangen bei der RTA 970-Probe nur in Ausnahmefällen. Da diese Resonanz sehr groß ist kann ein Verfehlen der Wettinglayerresonanz beim Durchstimmen des Lasers ausgeschlossen werden. Es existiert also keine, oder nur eine sehr schwache Kopplung zwischen der Wettinglayer und den Quantenpunkten. Dies liefert auch eine Erklärung für die schon erwähnte hohe optische Aktivität der Wettinglayer. Ladungsträger, die einmal in die Wettinglayer gelangen, oder dort erzeugt werden können nicht in die Quantenpunkte relaxieren, und rekombinieren folglich alle in der Wettinglayer. Dies ist ein deutliches Zeichen dafür, dass die Wettinglayer durch das RTA-Verfahren (Kap. 3.1.1) verändert wurde. Auf den RTA 955-Proben gelang die Anregung von Quantenpunkten über die Wettinglayer fast ausnahmslos. Die Veränderung der Wettinglayer ist also bei 955°C nicht so stark wie bei 970°C, deshalb wurden spätere Proben mit nur noch höchstens 955°C thermisch aufgeheizt.

In Abbildung 5.11 ist eine Autokorrelation bei gepulster Anregung über die Wettinglayer dargestellt. Dort sind zwar Koinzidenz-Häufungen zu sehen, die der Position der Laseranregungspulse entsprechen, jedoch werden auch in diesem Fall Ladungsträger nachgeliefert, was zu einem Auffüllen der Bereiche zwischen den Peaks führt. Die Abwesenheit des Peaks bei $\tau = 0$ ns zeigt, dass es sich wieder um einen Emitter handelt, der immer nur ein Photon nach dem anderen emittiert.

Wie man in den Abbildungen 5.12(b) und 5.12(a) sehen kann, ist bei einer Anregung des Quantenpunktes über die Wettinglayer das Signal- zu Rauschverhältnis deutlich schlechter,

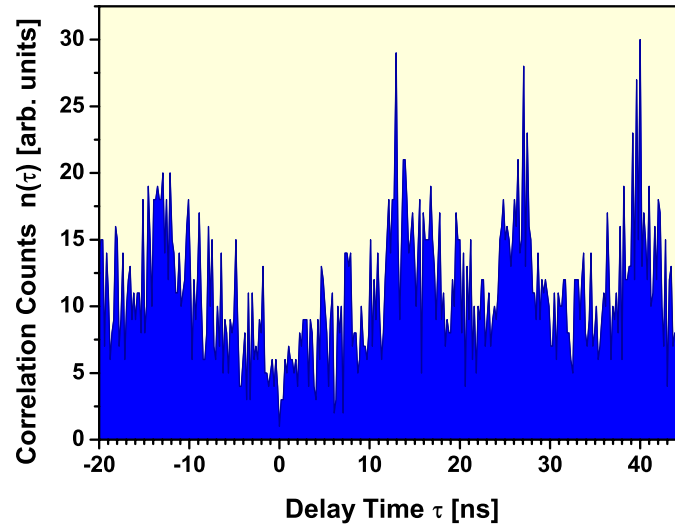
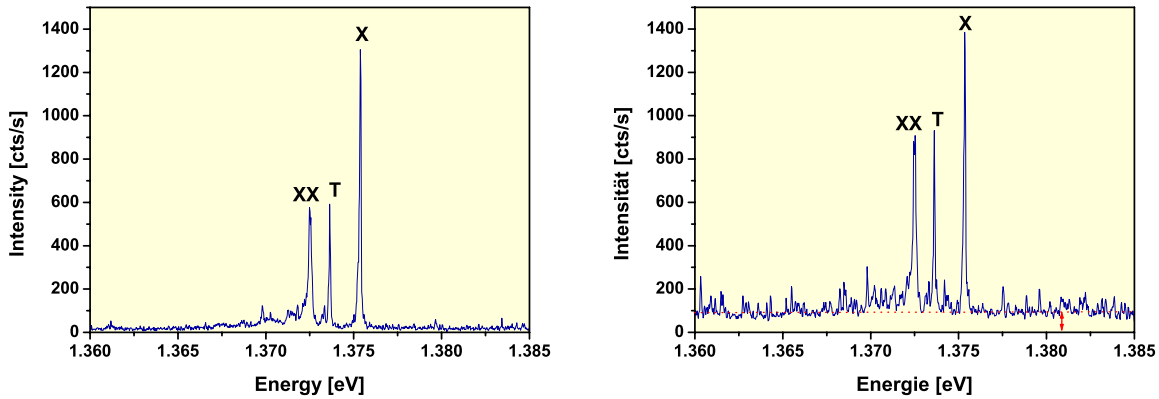


Abbildung 5.11: Autokorrelationsmessung bei gepulster Anregung über die Wettinglayer bei $\lambda_{Laser} = 846$ nm auf einer RTA 955-Probe mit einer Leistungsdichte von $P_{ex} = 131.29$ W/cm². Im Abstand der Anregungspulse sind Überhöhungen zu sehen, allerdings sind auch zwischen den Pulsen Koinzidenzen erfolgt. Der Peak bei $\tau = 0$ ns fehlt, das Zeichen einer Einzelphotonenquelle. Die Integrationszeit betrug $t_{int} = 5500$ s.

als wenn die Anregung über das Barrierenmaterial erfolgt. Gezeigt sind zwei Spektren ein und desselben Quantenpunktes der RTA 970-Probe. Die Anregungsleistung wurde so gewählt, dass das Exziton die maximale Intensität erreicht. Dabei ist die Anregung über die Wettinglayer 5.12(b) sogar effektiver als die Anregung über das Barrierenmaterial 5.12(a). Zwar sind die Intensitäten in beiden Fällen gleich, aber im Fall der Barrierenanregung ist 1.66 mal mehr Pumpleistung erforderlich wie als der Wettinglayeranregung.



(a) Spektrum eines über ein Exzitonenniveau des Barrierenmaterials bei $\lambda_{Laser} = 818$ nm mit $P_{ex} = 21.22$ W/cm² angeregten Quantenpunktes

(b) Spektrum eines über die Wettinglayer bei $\lambda_{Laser} = 842$ nm mit $P_{ex} = 12.7$ W/cm² angeregten Quantenpunktes

Abbildung 5.12: Vergleich von Spektren eines Quantenpunktes unter Anregung über das Barrieren- bzw. Wettinglayer Material. Das Rauschen im Spektrum 5.12(b) ist deutlich stärker, noch problematischer ist der Untergrund von 100 cts/s.

Außer dem stärkeren Rauschen ist in 5.12(b) auch ein konstanter Untergrund von rund 100 cts/s über das ganze Spektrum zu sehen. Bei Anregung über die Barriere beträgt dieser lediglich 15 cts/s. Photonen dieses Untergrundes können zwar zu ungewollten Koinzidenz-Ereignissen in den Korrelationsmessungen führen, nicht aber das behandelte Problem bei der gepulsten Anregung erklären. Unkorrelierte Ereignisse werden durch die Koinzidenzmessung stark unterdrückt.

Da alle Versuche erfolglos blieben, einzelne Quantenpunkte resonant über eine höhere Schale anzuregen, wurde die Probe in einem Bereich hoher Quantenpunktdichte (Ensemble) untersucht, in der die Schalenstruktur in Photolumineszenz deutlich zu erkennen ist.

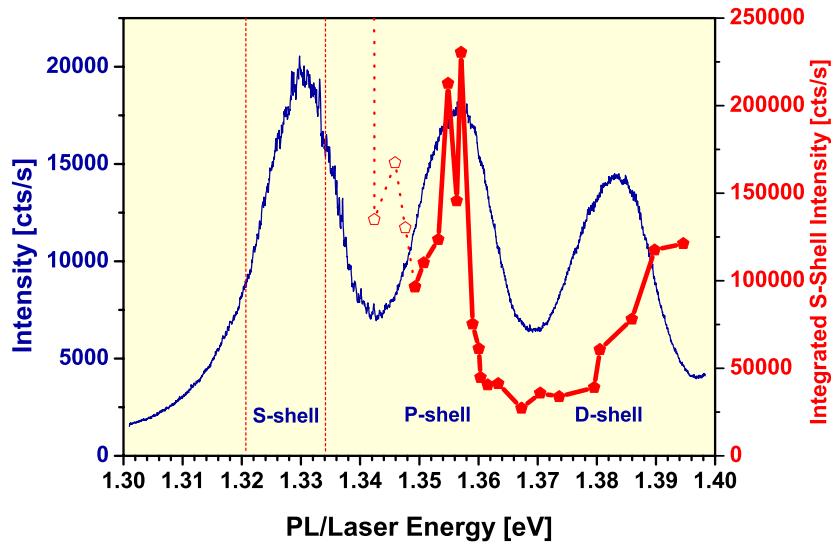


Abbildung 5.13: Integrierte Photolumineszenzintensität der S-Schale (rot) unter Variation der Wellenlänge des anregenden Lasers. Der geringe Abstand zwischen Detektions- und Anregungswellenlänge macht den Einsatz von Interferenzfiltern unverzichtbar. Aufgrund der vorhandenen Interferenzfilter wird nur die rot markierte Fläche der S-Schale integriert und der Rest unterdrückt. Deutlich zu sehen ist eine Erhöhung der S-Schalenintensität, wenn die Anregungswellenlänge im Bereich der P- und D-Schale liegt (blau eingezeichnet). Es werden folglich Sub-Ensembles der Quantenpunkte angeregt, mit denen der Laser in quasi-Resonanz liegt.

In 5.13 ist zum einen die Schalenstruktur der Ensemblelumineszenz (blau) zu sehen. Diese wurde aufgenommen, indem mit dem Laser Elektronen und Löcher in der Barriere erzeugt wurden. Da mit hoher Leistungsdichte angeregt wurde, sind auch die P- und D-Schale in Lumineszenz zu erkennen. Die vorhandenen Ladungsträger füllen erst die S-Schale und werden dann in die höheren Schalen eingeordnet. Diese sind dann mit abnehmender Intensität im Spektrum zu erkennen. Nun wurde in einem zweiten Schritt die Laserwellenlänge in die Nähe der D-Schale gestimmt und langsam bis zur S-Schale variiert. Dabei wurde der Spektralbereich um 1.321 - 1.334 eV, in dem die S-Schale beobachtet wurde untersucht. Der geringe Abstand zwischen Detektions- und Anregungswellenlänge macht den Einsatz von Interferenzfiltern unverzichtbar, da sonst die abfallende Flanke des um viele Größenordnung intensiveren Lasers die Photolumineszenz überdecken würde.

Der Laser trifft im Bereich der D- und P-Schale resonant die Niveaus einiger Quantenpunkte des Ensembles. Die so angeregten Sub-Ensembles emittieren nach der Relaxation der Ladungsträger aus der S-Schale. Steht der Laser zwischen den zuvor bestimmten Schalen,

nimmt die Lumineszenz der S-Schale stark ab. In diesem Fall werden also keine Ladungsträger in der Probe erzeugt. Die Quantenpunkte, die um das Ensemblemaximum bei 1.328 eV emittieren, besitzen also höhere Schalen und können resonant angeregt werden. Da diese aber in zu hoher Dichte vorliegen, werden nur Quantenpunkte untersucht die höherenergetisch emittieren und in niedrigerer Dichte vorhanden sind. Da die Rekombinationsenergie dieser Quantenpunkte höher ist (1.37 - 1.40 eV), sind deren Einschlusspotentiale im Bändermodell flacher. Es besteht die Möglichkeit, dass diese Quantenpunkte keine höheren Schalen besitzen und deshalb alle Versuche der gezielten resonanten Anregung fehlschlagen.

Die Schwierigkeiten bei der Anregung über die Benetzungsschicht schließen auch die in 5.2.2 erwähnte Möglichkeit aus, dass die durch den Temperierungsprozess veränderte Benetzungsschicht das Nachliefern der Ladungsträger und die ungewollten Koinzidenzen bei den Korrelationsmessungen erklären kann. Vergleichsmessungen an Proben ohne Claddinglayer zeigen, dass auch diese nicht für dieses Verhalten verantwortlich gemacht werden kann. Selbst an Insitu-Proben konnte in weniger ausgeprägter Form dieser Nachfülleffekt nachgewiesen werden (Abbildung 5.40(b)). Auch an II/VI-Halbleiterquantenpunkten wurde diese Anomaly schon beobachtet [1]. Es handelt sich wohl um ein allgemeineres Problem und die ersten Erklärungsversuche können durch die durchgeführten Messungen ausgeschlossen werden. Möglicherweise sind Störstellen oder Grenzflächenzustände zwischen den Quantenpunkten und dem umgebenden Material dafür verantwortlich.

5.2.4 Messungen bei angelegtem elektrischen Feld

Aufgrund der Erfahrungen mit den ersten RTA-Proben wurden in enger Zusammenarbeit mit dem Max-Planck-Institut für Festkörperforschung neue Proben für die feldabhängigen Messungen entwickelt, die keine Claddinglayer mehr enthalten und mit 955°C getempert wurden. Die Schottkykontakte haben einen Abstand von 5 μm und wurden auf verschiedenen Proben entweder entlang der $[1\bar{1}0]$ - oder $[110]$ -Hauptkristallachsen aufgebracht.

RTA-Proben mit elektrischem Feld parallel zur $[1\bar{1}0]$ -Kristallachse

Es ist bekannt, dass selbstorganisierte InAs-Quantenpunkte eine Elongation in der $[110]$ -Richtung des Substrates aufweisen [50]. Nach einem einfachen Potentialtopfmodell (Kapitel 2.2.1) folgt, dass die Energieeigenzustände mit $1/L^2$ von der Potentialbreite L abhängen. Das bedeutet, dass die Eigenzustände die in der $[1\bar{1}0]$ -Richtung quantisiert sind eine etwas höhere Energie besitzen sollten, als jene die entlang der elongierten Achse der Quantenpunkte liegen. Da ein elektrisches Feld zur Abnahme der Energie der Einteilchenzustände (Ψ_e, Ψ_h) sowie zur Abnahme der Energie des Exzitonzustandes führt (Kapitel 2.4), sollte ein entlang der $[1\bar{1}0]$ -Richtung liegendes Feld die Energie, des aufgrund der geringeren Topfbreite L , etwas höher liegenden Niveaus absenken. So erhofft man sich die durch Asymmetrie induzierte Feinstrukturaufspaltung (Kapitel 2.3.1) des Exzitonniveaus aufzuheben um verschränkte Photonenpaare zu erzeugen. Die Separation der Wellenfunktionen in die entsprechenden Raumrichtung ist aber nur nach diesem einfachen Modell zulässig. Da der Einfluss eines elektrischen Feldes auf die Feinstrukturkomponenten aufgrund der Komplexität des Problems noch nicht theoretisch untersucht wurde, dient dieses jedoch als Motivation und Gedankenstütze. Die feldabhängige Energieverschiebung der elektrischen Übergänge wird mit der in Kapitel 2.4 beschriebenen Formel approximiert.

$$\Delta E = \mu_{el}F + \mu_{ind}F = \mu_{el}F + \alpha F^2 \quad (5.10)$$

Die Fitparameter ergeben dann das permanente elektrische Dipolmoment μ_{el} und die Polarisierbarkeit α in Feldrichtung.

Abbildung 5.14 zeigt eine der ersten durchgeführten feldabhängigen Messungen. Ähnlich dieser sahen alle Feldserien, die an dieser Probe durchgeführt wurden, aus. Nach einer anfänglich näherungsweise parabolischen Rotverschiebung der Photolumineszenz bis etwa 5 V schieben die Linien nicht weiter. Wie sich nach dem Ausbau der Probe aus dem Kryostaten zeigte erhöht sich die Spannung auf der Probe nur bis 4.9 V mit der äußeren Spannungsquelle. Versucht man höhere Spannungen anzulegen, fällt die Spannung zwischen den Kontakten sogar ab und pendelt sich schließlich bei etwa 4.8 V - 5 V ein. Die feldabhängige Energielage der gezeigten Spektrallinie folgt also lediglich dem wahren Feldverlauf auf der Probe.

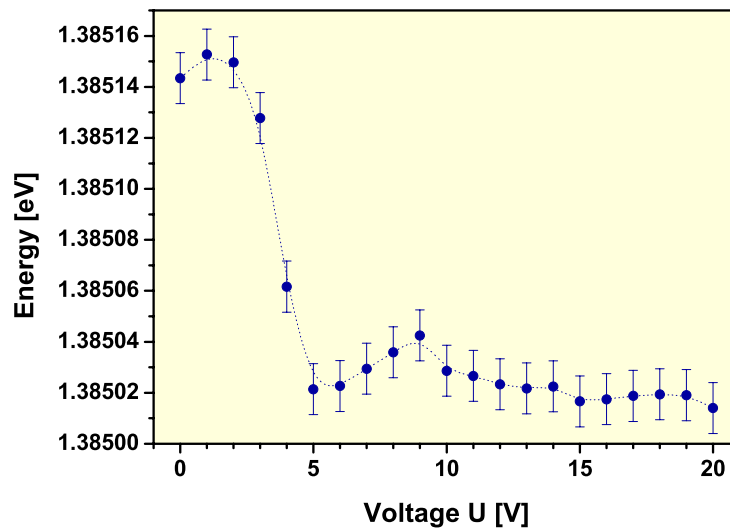


Abbildung 5.14: Feldabhängige Energielage eines exzitonischen Überganges. Angeregt wurde mit einem gepulsten Laser über die Barriere bei $\lambda_{\text{Laser}} = 800 \text{ nm}$. Das Verhalten entspricht nur bis etwa $U = 5 \text{ V}$ der erwarteten Feldabhängigkeit. Bei höheren Spannungen schiebt der Übergang erst wieder zu höheren Energien und bleibt dann näherungsweise konstant. Wie spätere Untersuchungen der Probe gezeigt haben, lassen sich auf dieser keine höheren Spannungen anlegen. Bei etwa 5 V eingestellter Spannung kommt es auf der Probe zu einem Kurzschluss und die Spannung sinkt wieder.

Die in Abb. 5.14 auf der x-Achse eingezeichneten Ziffern bezeichnen die von außen angelegte Spannung und geben für $U > 4.8 \text{ V}$ nicht die Spannung auf der Probe an. Deshalb sind im Folgenden nur Messungen (5.15, 5.16(a), 5.16(b), 5.17, 5.18(a), 5.18(b), 5.19, 5.20, 5.21) gezeigt, bei denen die Spannung bis auf höchstens $\pm 4.8 \text{ V}$ geregelt wurde. Da aus diesen Messungen Polarisierbarkeiten α und permanente Dipolmomente μ_{el} bestimmt wurden, sind nicht die Spannungen sondern die mit Hilfe von Gl. 2.36 berechneten elektrischen Felder F aufgetragen.

In Abbildung 5.15 sind die feldabhängigen Rekombinationsenergien des Exzitons und des Biexzitons dargestellt. Auffällig ist, dass die Linien nur bei negativen Spannungen zu niedrigeren Energien schieben, also eine Rotverschiebungen zeigen. Für positive Feldrichtung ist keine Verschiebung der Linien zu erkennen, deren Intensität nimmt jedoch stark ab, so dass schon bei $F = 2.5 \text{ kV/cm}$ kein Signal messbar ist.

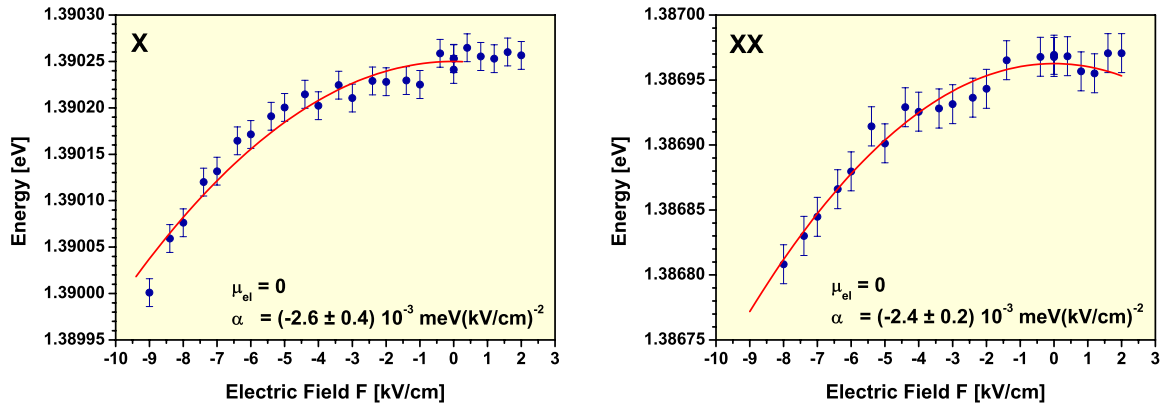
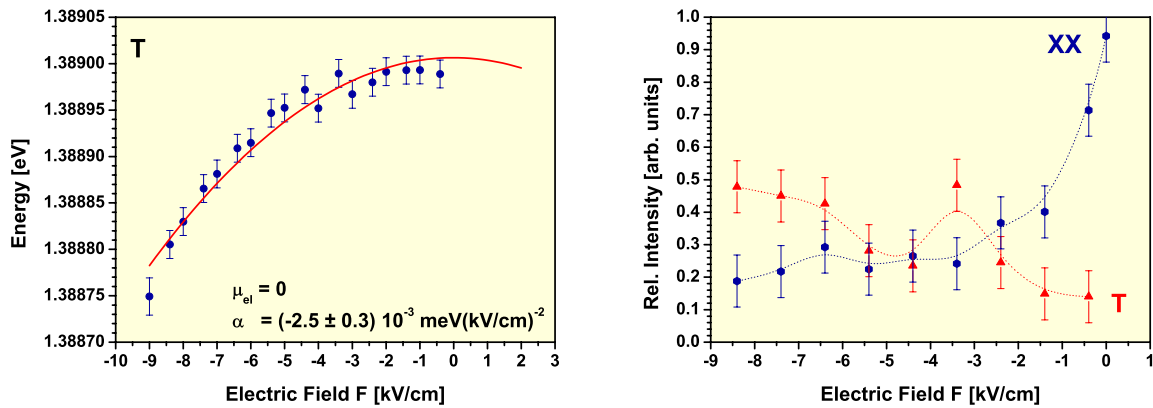


Abbildung 5.15: Feldabhängige Lumineszenzenergie eines Exzitons (links) und eines Biexzitons (rechts). Angeregt wurde gepulst bei 800.7 nm mit einer Leistungsdichte von $P_{ex} = 4.32 \text{ W/cm}^2$.



(a) Stark-Effekt des zu 5.15 gehörigen Trions T.

(b) Relative Intensitäten des XX und des T.

Abbildung 5.16: Feldabhängige Lumineszenzenergie des geladenen Exzitons (links) und die relativen Intensitäten des Biexzitons und des geladenen Exzitons normiert auf die Intensität des Exzitons (rechts). Angeregt wurde gepulst bei 800.7 nm mit $P_{ex} = 4.32 \text{ W/cm}^2$. Der geladene Zustand zeigt eine ähnliche Feldabhängigkeit wie die neutralen Zustände aus Abb. 5.15. Die Intensität dieses Zustandes nimmt relativ zu den anderen Zuständen zu.

In Abbildung 5.16(a) ist auch noch das Verhalten des (vermutlich) geladenen Exzitons dargestellt. Dieses liegt energetisch zwischen Exziton und Biexziton und ist in allen Quantenpunkten der RTA-Proben mit unterschiedlicher Ausprägung im Spektrum zu sehen. Für positive Felder verschwindet es sofort, während für negative Feldstärken dessen relative Intensität sogar zunimmt 5.16(b).

Die Intensitäten von Biexziton und Trion sind für die Auswertung auf die des Exzitons normiert worden. Auf diese Weise werden Schwankungen, die aufgrund einer geänderten Anregungsbedingung im Signal auftreten können, ausgeglichen. Nach Abbildung 5.16(b) fällt die Intensität des Biexzitons noch wesentlich schneller als die des Exzitons. Die Intensität des geladenen Zustandes nimmt relativ zum Exziton zu und steigt auch absolut gesehen an, eine Abbildung dazu wird aber erst zu einem anderen Quantenpunkt weiter unten gezeigt.

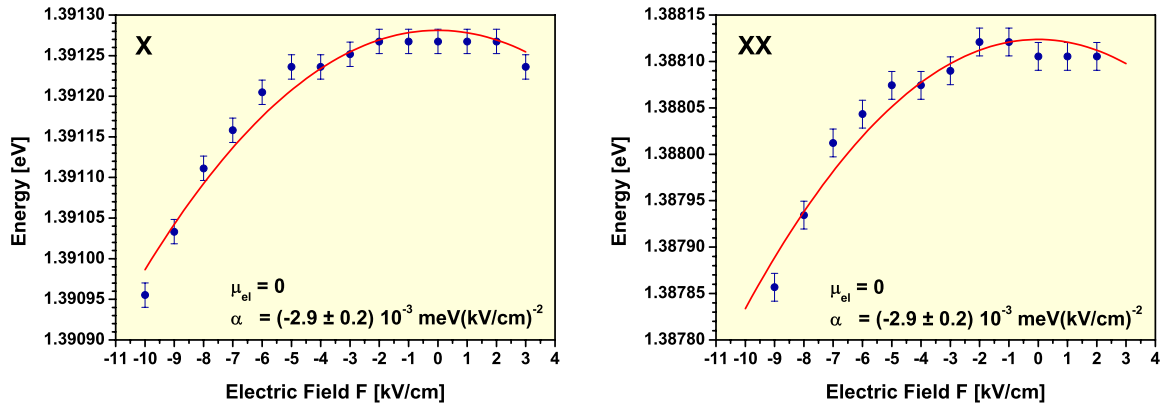
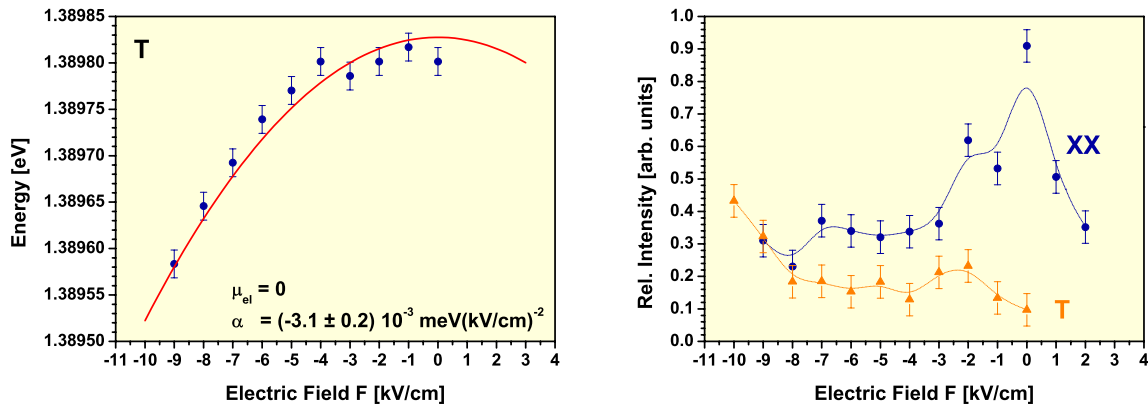


Abbildung 5.17: Feldabhängige Lumineszenzenergie eines Exzitons (links) und eines Biexzitons (rechts). Angeregt wurde gepulst bei 801.4 nm mit $P_{ex} = 1.92 \text{ W/cm}^2$.



(a) Stark-Effekt des zu 5.17 gehörigen Trions T.

(b) Relative Intensitäten des XX und des T.

Abbildung 5.18: Feldabhängige Lumineszenzenergie des geladenen Exzitons (links) und die relative Intensität des Biexzitons und des geladenen Exzitons normiert auf die Intensität des Exzitons (rechts). Angeregt wurde gepulst bei $\lambda_{Laser} = 801.4 \text{ nm}$ mit $P_{ex} = 1.92 \text{ W/cm}^2$.

Die nächsten drei Abbildungen (5.17, 5.18(a), 5.18(b)) zeigen an einem weiteren Quantenpunkt exakt das gleiche Verhalten. Die Feldrichtung ist wieder die gleiche, jedoch ist die Polarität (Vorzeichen) der Spannung jetzt genau umgekehrt. So wurden an Kanal 1 jetzt positive Spannungen angelegt, was in der Feldrichtung negativen Spannungen an Kanal 0 entspricht (obige Messungen). In beiden Fällen ist nur in \vec{E}_- -Feldrichtung eine Rotverschiebung zu beobachten. Betrachtet man jedoch die erste gezeigte feldabhängige Messung 5.14 so erkennt man, dass dort nur für positive Spannungen und dem entsprechend in \vec{E}_+ -Feldrichtung eine Rotverschiebung gemessen wurde. In welche Richtung ein Quantenpunkt einen quadratischen Stark-Effekt zeigt, ist also von Quantenpunkt zu Quantenpunkt verschieden und hängt weder alleine von der Richtung des Feldes noch von der Polarität der zu Grunde liegenden Spannung ab. Eine mögliche Erklärung könnte die Lage der Quantenpunkte zwischen den Kontakten sein, da nur genau zwischen den Kontakten ein homogenes Feld herrscht (Kapitel 3.2).

Neben vielen Messungen, die einen parabolischen Stark-Effekt in nur einer Feldrichtung aufweisen, wurde auch an einigen wenigen Quantenpunkten wie in Abb. 5.19 dargestellt ist, ein symmetrischer Stark-Effekt beobachtet.

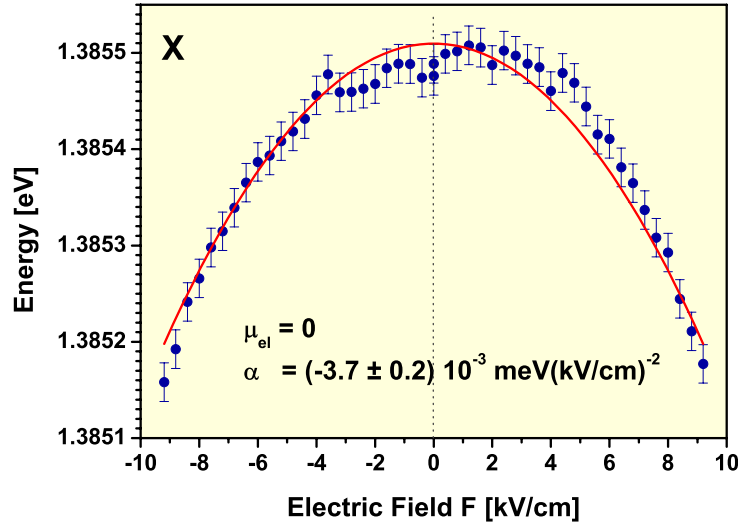


Abbildung 5.19: Feldabhängige Energielage eines exzitonen Überganges. Erstmals ist eine symmetrische Verschiebung um den Nullpunkt herum zu sehen. Die Anregung erfolgte gepulst bei 801.6 nm mit einer Leistungsdichte von $P_{ex} = 1.46 \text{ W/cm}^2$.

Auch für den geladenen und den biexzitonen Zustand ergab sich in diesem Fall ein symmetrisches Verhalten.

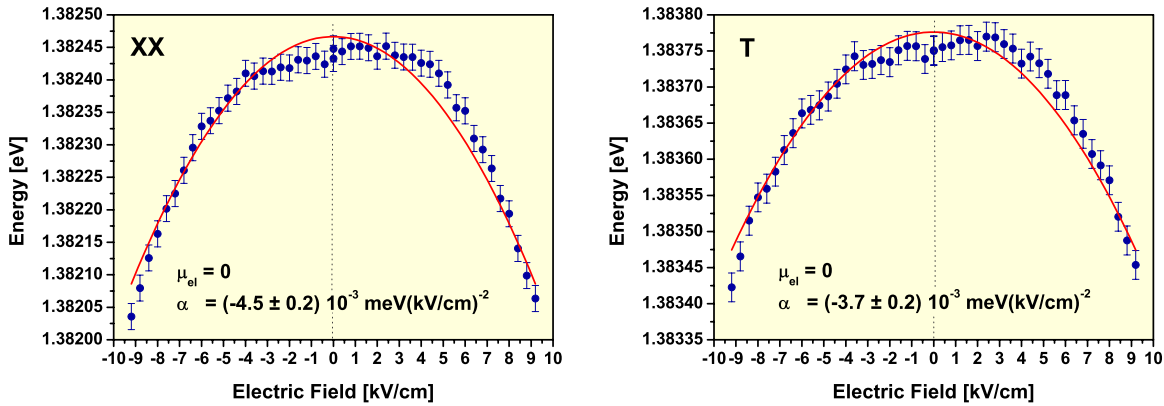


Abbildung 5.20: Feldabhängige Lumineszenzenergie des Exzitons (links) und des Trions (rechts). Angeregt wurde gepulst bei 801.6 nm mit $P_{ex} = 1.46 \text{ W/cm}^2$.

An diesem Quantenpunkt wurde neben einer ausführlichen Feldserie auch eine mit weniger Messwerten aufgenommen. Die Ergebnisse der verkürzten Messserie, für die das Experiment sehr stabil blieb, sind in Abbildung 5.21 als Absolutwerte aller Intensitäten der drei betrachteten Spektrallinien zusammengestellt.

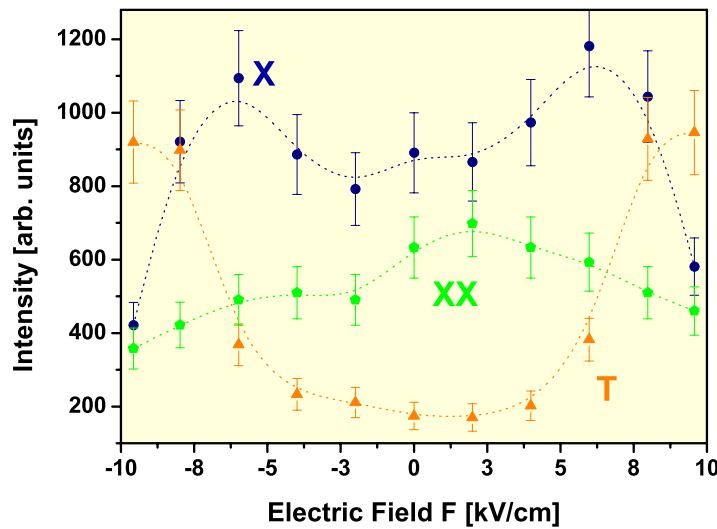


Abbildung 5.21: Feldabhängige Intensitäten des Exzitons (blau), des geladenen Exzitons (gelb) und des Biexzitons (grün). Die Intensitätsverteilung ist symmetrisch zu $F = 0$ kV/cm. Der Fehler wurde großzügig abgeschätzt und ergibt sich aus dem maximalen Rauschsignal zusammen mit 10% des Intensitätssignals selbst.

Die Intensität des Biexzitons nimmt aufgrund abnehmender Oszillatorstärke monoton ab, das Exziton gewinnt für kleine Felder sogar noch an Intensität und verliert ab $|F| = 5$ kV/cm drastisch an Intensität. Der geladene Zustand verzeichnet wieder einen Intensitätsgewinn. Auch weitere Messungen bestätigen, dass sich durch anlegen eines elektrischen Feldes gezielt ein geladener Zustand begünstigen lässt.

Diskussion der Polarisierbarkeiten

Die bisher gezeigten Feldserien entsprechen sehr gut den Erwartungen (Formel 2.36). Sie zeigen einen quadratischen Stark-Effekt, ein permanentes Dipolmoment μ_{el} ist in Übereinstimmung mit der Erwartung für eine hohe Symmetrie der Quantenpunkte in der Wachstumsebene nicht vorhanden. Die bestimmten Polarisierbarkeiten α liegen alle im Bereich um $2\text{-}5 \cdot 10^{-3}$ meV/(kV/cm)². Da die Polarisierbarkeiten alle ähnlich sind kann geschlossen werden, dass auch die Quantenpunkte untereinander ähnlich sind.

Die bestimmten Polarisierbarkeiten stimmen sehr gut mit den von [49] gemessenen Ergebnissen an CdSe/ZnSe-Quantenpunkten überein. Die ebenfalls in lateraler (Schottkykontakte) Feldkonfiguration bestimmte Polarisierbarkeit beträgt $\alpha_{CdSe} = 4.9 \cdot 10^{-3}$ meV/(kV/cm)². In vertikalen Feldern wurde von verschiedenen Gruppen an InGaAs-Quantenpunkten ein linearer Stark-Effekt gemessen und daraus permanente Dipolmomente bestimmt [11], [18], [40]. Bisherige Veröffentlichungen zu Polarisierbarkeiten von InGaAs-Quantenpunkten sind dem Autor nicht bekannt.

Um eine genaue Messung der Polarisierbarkeiten sicherzustellen, wäre es bei zukünftigen Messungen zu empfehlen, genau zwischen den Kontakten Messen zu ätzen. Aufgrund der Größe des Laserpunktes auf den Probe ist es nicht möglich zu garantieren, dass die untersuchten Quantenpunkte sich in der Mitte zwischen den Kontakten und damit im (überwiegend) homogenen Regime des lateralen elektrischen Feldes befinden. Die gezeigten Messungen legen nahe, dass der Stark-Effekt in der Tat sehr empfindlich von der Lage der Quantenpunkte, also von

der Homogenität des elektrischen Feldes abhängt. Das Feld ist nur nahe der Mitte zwischen den Kontakten homogen, in der Nähe der Kontakte entspricht es aufgrund der Geometrie der Probe eher dem eines langen Drahtes (siehe abb. 3.3).

Auch der Einfluss anderer Quantenpunkte oder von Defekten führt zu einer Änderung des Feldes am Ort der Quantenpunkte. Wie schon weiter oben diskutiert wurde, ist die Quantenpunktdichte auf der Probe recht hoch und es wird deshalb abseits vom Ensemble Maximum detektiert. Angeregt werden dennoch sehr viele Quantenpunkte. Diese werden alle durch das elektrische Feld polarisiert. Die so induzierten Dipole richten sich im Feld aus und führen zu einer Schwächung des Feldes in der aktiven Zone. Auch dieser Effekt könnte durch schmale Mesen signifikant reduziert werden. Die absolute Feldstärke am Ort der untersuchten Quantenpunkte ist deshalb mit einer gewissen Unsicherheit behaftet. Die relativen Feldstärken sind aufgrund der spannungsstabilisierten Computersteuerung und einer vor der Messung wiederholt durchgeführten Eichung der Spannung (und der festen Orte individueller Quantenpunkte) als exakt anzunehmen.

Da die aus der Anpassung an die Messpunkte abgeleiteten Polarisierbarkeiten α quadratisch vom Absolutwert des elektrischen Feldes abhängen, sind diese stärker von den diskutierten Unsicherheiten beeinflusst. Das bedeutet nicht, dass die Polarisierbarkeiten α mit großen Fehlern behaftet sind. So führen unterschiedliche Messungen zu unterschiedlichen Zeiten an verschiedenen Stellen der Probe zu ähnlichen Ergebnissen. Die Messungen sind also gut reproduzierbar, sie sind jedoch nur für diese Art der Proben gültig. Auf Proben mit anderen Quantenpunktdichten und Kontaktschemen sind sie dagegen nur bedingt anwendbar.

Unabhängig von diesen Unsicherheiten zeigen alle untersuchten Quantenpunkte auch aus noch im Folgenden dargestellten Messungen an anderen Proben und unterschiedlich gewachsenen Quantenpunkten, dass sich Biexziton, Exziton und Trion generell sehr ähnlich verhalten. So sind alle Polarisierbarkeiten dieser Zustände eines individuellen Quantenpunktes nahezu identisch. Auch die leichten Abweichungen von einem perfekten parabolischen Feldverhalten zeigen alle Zustände in gleicher Weise.

Feldabhängig Messungen an weiteren RTA-Proben

Die bisher gezeigten Messungen des Stark-Effekts entsprechen sehr gut den Erwartungen. Messungen an anderen Proben ergaben jedoch insbesondere für kleine Felder ein abweichendes Verhalten.

Die in Abbildung 5.22 gezeigte feldabhängige Rotverschiebung eines exzitonischen Überganges wurde unter gepulster (blau) und unter kontinuierlicher Anregung gemessen. Für beide Messungen zeigt der Zustand das gleiche Verhalten. Der Stark-Effekt ist also nicht davon abhängig ob sich ständig freie Ladungsträger in der Nähe des Quantenpunktes befinden oder nicht. Beide Messserien sind lediglich um einen kleinen Betrag gegeneinander verschoben. Die Lumineszenz unter gepulster Anregung liegt etwas höherenergetisch. Vermutlich senken die unter kontinuierlicher Anregung ständig anwesenden freien Ladungsträger die Energie des Exzitonenzustands etwas ab. Der leichte Versatz, insbesondere der orangenen Messreihe, bei $F = 0$ kV/cm ist darauf zurückzuführen, dass Aufgrund von Drifts im Experiment nachjustiert werden musste. Die Rejustage lässt sich nur bei $F = 0$ kV/cm durchführen und so wurde die Halbserie in der die experimentelle Instabilität auftrat wiederholt. Die Anregungsleistung am Ort des Quantenpunktes kann sich dabei leicht ändern. Dies führt, wie auch der Vergleich zwischen gepulster und kontinuierlicher Anregung zeigt, zu einer kleinen Änderung der Rekombinationsenergie.

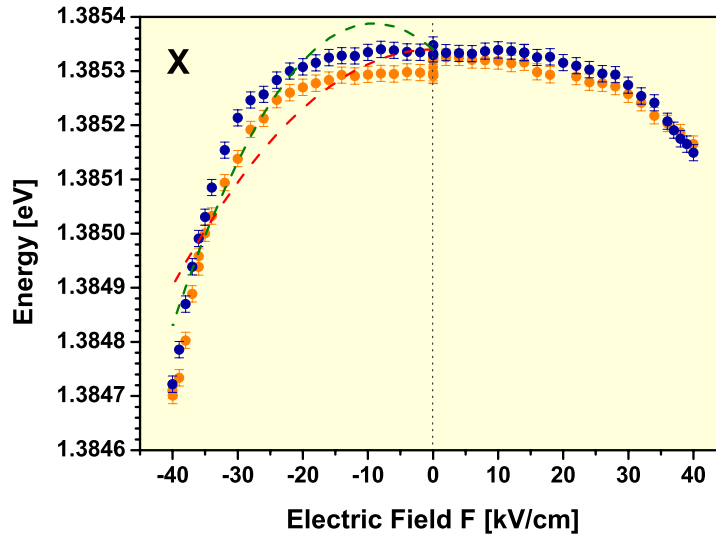


Abbildung 5.22: Asymmetrischer Stark-Effekt eines exzitonischen Überganges. Gezeigt sind zwei Serien, eine unter gepulster Anregung (blau) und eine unter kontinuierlicher Anregung (orange) bei jeweils $\lambda_{Laser} = 798 \text{ nm}$ mit $P_{ex} = 1.41 \text{ W/cm}^2$. Weder ohne permanentes Dipolmoment (rote Striche) noch unter Berücksichtigung eines solchen (grüne Striche), können die gemessenen Daten gut approximiert werden.

In der folgenden Abbildung 5.23 sind der Stark-Effekt für das zugehörige Biexziton und den geladenen Zustand dargestellt. Es zeigt sich wieder ein sehr ähnliches Verhalten für alle drei Zustände.

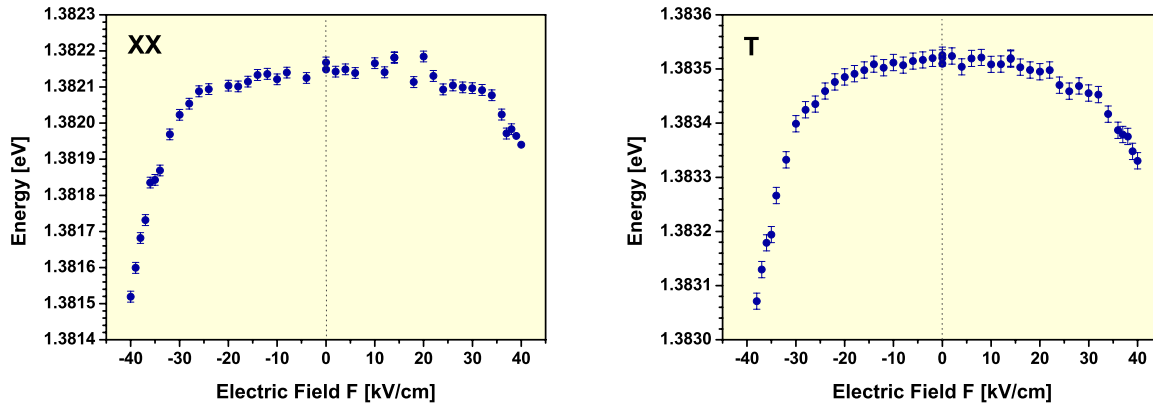


Abbildung 5.23: Feldabhängige Lumineszenzenergie des Biexzitons (links) und des geladenen Exzitons (rechts). Angeregt wurde kontinuierlich bei $\lambda_{Laser} = 798 \text{ nm}$ mit $P_{ex} = 1.41 \text{ W/cm}^2$.

Die oben gezeigten Messungen sind insofern sehr typisch für viele untersuchte Quantenpunkte, als dass sich eine Änderung der Lumineszenzenergie erst ab einem kritischen elektrischen Feld einstellt. Bei diesem Quantenpunkt ändert sich bis zu 20 kV/cm nichts an der Linienposition und erst bei höheren Felder fängt die Linie an eine parabolische Rotverschiebung zu zeigen. Deshalb lassen sich die Messreihen nicht durch ein Polynom zweiten Grades beschreiben. In Abb. 5.22 sind zum Vergleich eine Approximation mit einem an-

genommenen permanenten Dipolmoment (grüne Striche) eingezeichnet sowie ohne linearen Term (rote Striche).

Im Folgenden sind weitere Stark-Effekte verschiedener Quantenpunkte gezeigt. Die zugehörigen Biexzitonen und Trionen zeigen wieder, selbst bei anormalem feldabhängigen Verhalten des Exzitons stets ein vergleichbares Verhalten. Aus Platzgründen sind deshalb nur die Messreihen der Exzitonen dargestellt.

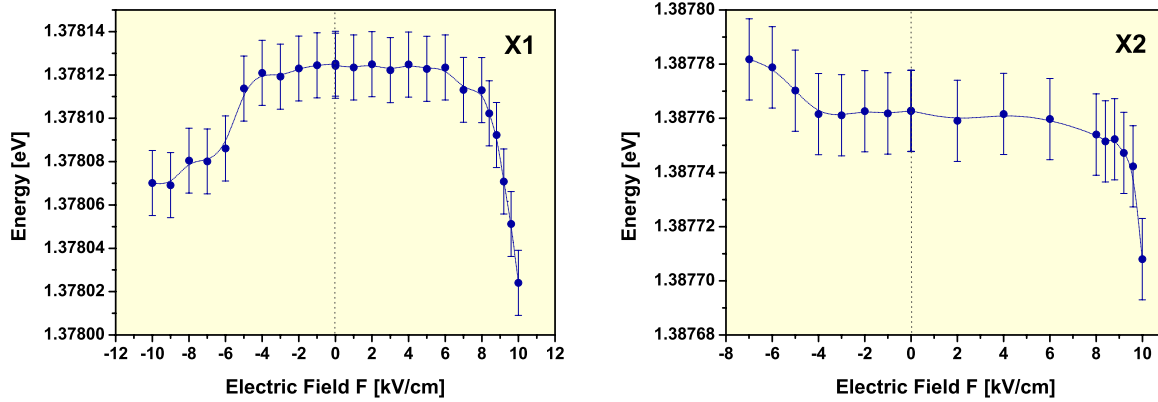


Abbildung 5.24: Feldabhängige Lumineszenzenergie der Exzitonen zweier Quantenpunkte. Angeregt wurde kontinuierlich bei $\lambda_{Laser} = 804.5$ nm mit $P_{ex} = 1.0$ W/cm² (links) bzw. $\lambda_{Laser} = 800.0$ nm mit $P_{ex} = 0.48$ W/cm² (rechts).

Neben dem Ausbleiben einer Verschiebung bei kleinen Feldern ergibt sich für X2 (aus Abb. 5.24) sogar eine Blauverschiebung bei negativen Feldstärken.

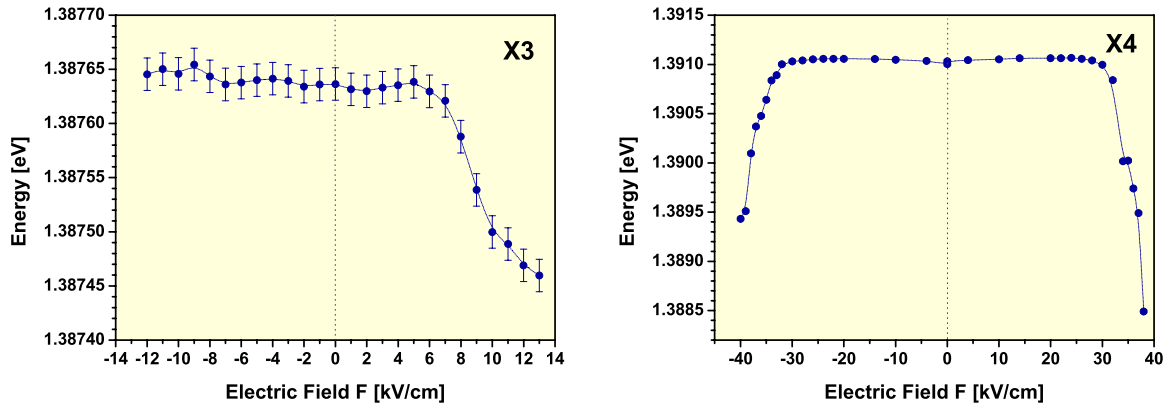


Abbildung 5.25: Feldabhängige Lumineszenzenergie der Exzitonen zweier weiterer QDs. Angeregt wurde kontinuierlich bei $\lambda_{Laser} = 798.0$ nm mit $P_{ex} = 1.0$ W/cm². In der rechten Abbildung (X4) befindet sich der Quantenpunkt zum Zeitpunkt der Messung unter einer Feststoff-Immersionsslinse. Die Verschiebung der Lumineszenzenergie dieses Quantenpunktes ist mit $\Delta E = 2.5$ meV ungewöhnlich stark ausgeprägt. Die Fehlerbalken sind kleiner als die Größe der eingezeichneten Messpunkte.

Auch bei X3 und X4 (Abb. 5.25) zeigt sich erst bei höheren Feldern ein Einfluss auf die energetische Linienlage. In Abbildung 5.25 ist ein Übergang gezeigt, der auch bei sehr

hohen Feldern noch optische Aktivität zeigt (X4). Der Quantenpunkt, an dem diese Messung durchgeführt wurde, befand sich unter einer Immersionslinse. Auf Grund der Höhe der elektrischen Schottky-Kontakte ($h \approx 100$ nm) befindet sich ein Vakuumpalt zwischen Linse und Probenoberfläche. Dieser verhindert den positiven Einfluss der Immersionslinse auf die Lichtsammelleistung des Experiments. Sie hat jedoch einen Einfluss auf das Feldverhalten der darunter liegenden Quantenpunkte. So ließen sich dort wesentlich höhere Rotverschiebungen erreichen. Das Feld wurde jedoch instabil. Über einen Zeitraum von wenigen Minuten bewegen sich die Spektrallinien wieder auf ihre ursprünglichen Positionen zurück.

RTA 955-Probe mit elektrischem Feld parallel zur [110]-Kristallachse

Zum Vergleich wurde auch eine Probe mit Kontakten versehen, die um genau 90° zu denen der übrigen Proben gedreht sind. Das Feld liegt also parallel zur [110]-Kristallrichtung an. Die Intensität der Lumineszenzsignale auf dieser Probe sind sehr niedrig. Die Sättigung des Exzitonüberganges tritt im Vergleich zu den $[1\bar{1}0]$ -Proben (mit 500-1500 cts/s) schon bei niedrigeren Zählraten von etwa 100 cts/s ein. Da bei solch einem niedrigen Signal keine Korrelationsmessungen gemacht werden können, wurde die Probe nur kurz untersucht. Dabei zeigte sich aber ein interessanter Effekt, der in Abb. 5.26 und Abb. 5.27 dargestellt ist.

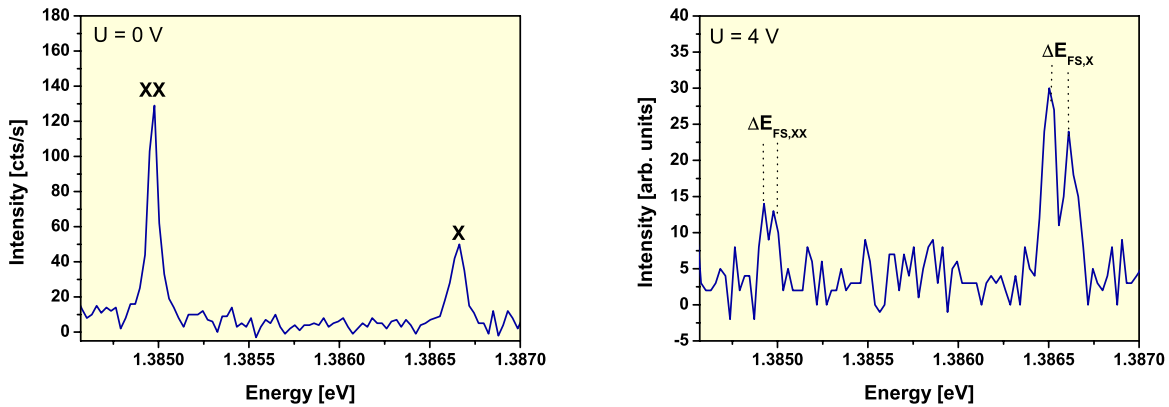


Abbildung 5.26: Gezeigt sind zwei Spektren eines QDs der RTA[110]-Probe, bei einer angelegten Spannung von $U = 0$ V (links) und $U = 4$ V (rechts). Eine Aufspaltung der Exzitonlinie und der Biexzitonlinie bei $U = 4$ V ist deutlich zu erkennen. Angeregt wurde kontinuierlich bei $\lambda_{Laser} = 797.6$ nm mit einer Leistungsdichte von $P_{ex} = 1.88$ W/cm².

So wurde an einem Quantenpunkt unter variabler angelegter Spannung eine Aufspaltung (siehe Abbildung 5.27) sichtbar. Da diese sowohl auf dem Exziton als auch auf dem Biexziton zu sehen ist und sich reversibel mit dem Feld einstellen lässt, liegt die Vermutung nahe, dass die Feinstrukturaufspaltung durch das angelegte Feld vergrößert wurde und sich schließlich mit dem Spektrometer auflösen ließ.

Einen Nachweis könnte eine polarisationsaufgelöste Messung liefern. Da jedoch insbesondere bei angelegter Spannung das Signal so niedrig ist, dass selbst die in Abbildung 5.27 dargestellten Messungen schon mehrere Sekunden integriert wurden, konnte eine solche Messung nicht durchgeführt werden. Es sieht jedoch so aus als sei die am Anfang des Kapitels geäußerte Vermutung, dass sich die Feinstruktur mit einem äußeren Feld beeinflussen lässt richtig. Dort wurde dargelegt, dass ein Feld parallel zur kürzeren Quantenpunktachse den

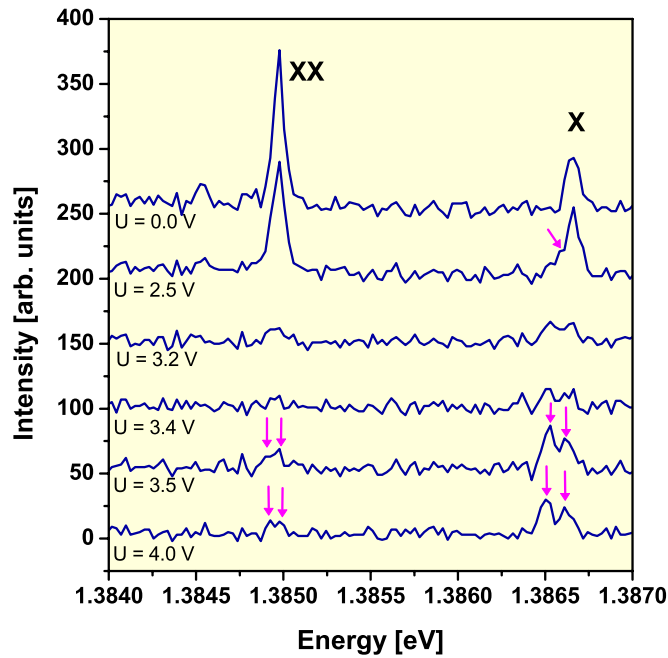


Abbildung 5.27: Gezeigt sind mehrere Spektren in Abhängigkeit von der angelegten Spannung. Die verschiedenen Spektren sind (um jeweils 50 cts/s) vertikal gegeneinander verschoben dargestellt. Angeregt wurde kontinuierlich bei $\lambda_{\text{Laser}} = 797.6 \text{ nm}$ mit $P_{\text{ex}} = 1.88 \text{ W/cm}^2$.

zugehörigen Zustand energetisch absenken sollte und ihn dabei dem Zustand entlang der längeren Quantenpunktachse angleichen sollte. In diesem Fall liegt das Feld aber entlang der elongierten Achse und senkt damit den schon tiefer liegenden Zustand weiter ab. Dabei wird die Feinstrukturaufspaltung größer und beide Zerfallswege (siehe Abbildung 2.5) werden direkt durch das Gitterspektrometer sichtbar. Eine Änderung der Aufspaltung mit dem Feld ist nicht sinnvoll auszuwerten, da dafür die Auflösung der CCD-Kamera zu gering ist. So sind bis $U = 3.5 \text{ V}$ beide Komponenten jeweils höchstens durch einen Pixel voneinander getrennt. Bei $U = 3.5 \text{ V}$ sind es bei dem Biexziton (rechts) drei Pixel von Peak zu Peak und beim Exziton vier. Diese Diskrepanz kann durch die unterschiedlichen Intensitäten und die Pixelstruktur der CCD-Kamera erklärt werden. Die Dublettstruktur ist also im Rahmen der Auflösung bei Exziton und Biexziton ähnlich, dies stellt ebenfalls ein Indiz dafür dar, dass es sich dabei um die Feinstrukturkomponenten handelt.

Es wurde auch eine Blauverschiebung mit zunehmendem Feld beobachtet. Die in Abb. 5.28 gezeigte Messung zeigt für negative Felder eine Rotverschiebung, aber in umgekehrter Feldrichtung nimmt die Energie des Exzitonenzustandes zu.

In der Hoffnung, durch eine Änderung der Anregungsbedingungen Stark-Effekte zu beobachten, bei denen sich eine quadratische Abhängigkeit vom elektrischen Feld ergibt, wurden Messungen unter verschiedenen Anregungsenergien gemacht. Abbildung 5.29 zeigt eine solche Messung (an einem weiteren Quantenpunkt). Die blau dargestellte Messserie ist unter Anregung energetisch oberhalb der GaAs-Barriere aufgenommen worden. Die grün und die orange eingezeichneten Serien sind unter Anregung über zwei verschiedene Resonanzen innerhalb der Benetzungsschicht bei $\lambda_{\text{Laser}} = 847.3 \text{ nm}$ mit entstanden. Es zeigt sich aber kein qualitativer Unterschied im feldabhängigen Verhalten.

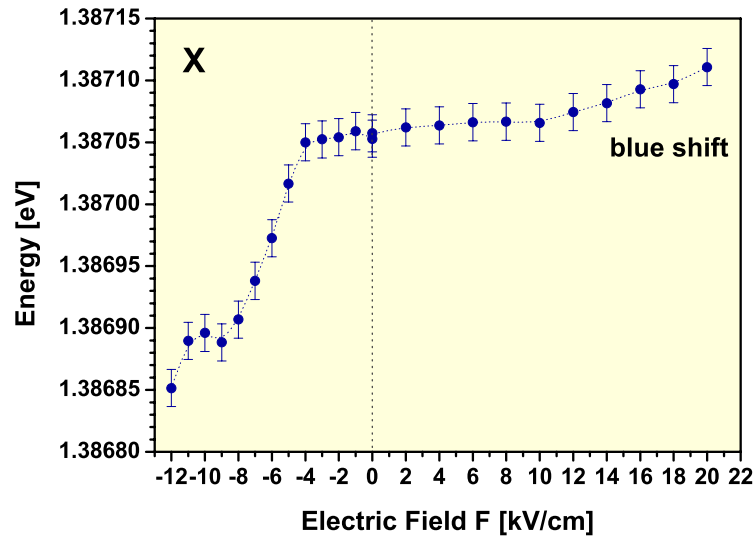


Abbildung 5.28: Anomaler Stark-Effekt eines exzitonischen Übergangs. Die Rekombinationsenergie erhöht sich bei hohen positiven Feldstärken. Die Anregung erfolgte kontinuierlich bei $\lambda_{Laser} = 797.62$ nm und einer Leistungsdichte von $P_{ex} = 4.8$ W/cm².

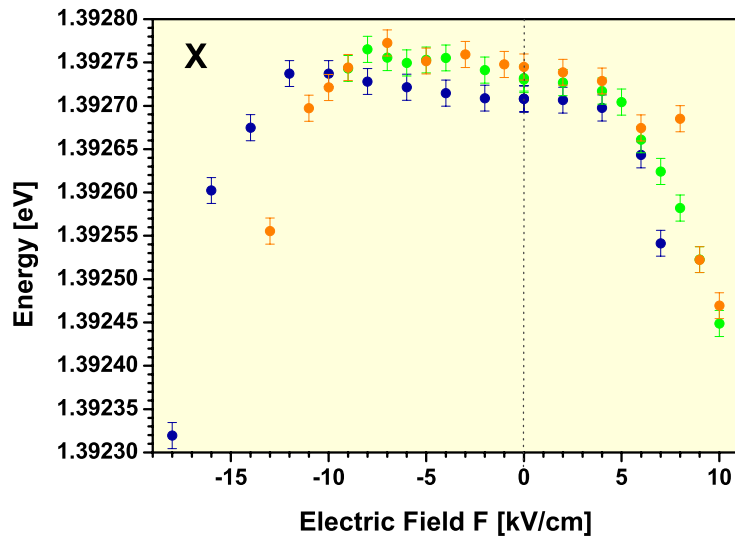


Abbildung 5.29: Feldabhängige Rekombinationsenergie eines Exzitons unter kontinuierlicher Anregung über die Barriere (blau) bei $\lambda_{Laser} = 797.62$ nm mit $P_{ex} = 1.92$ W/cm² und quasi-resonanter Anregung über die Benetzungsschicht bei $\lambda_{Laser} = 847.3$ nm mit $P_{ex} = 4.49$ W/cm² (grün/orange).

Diskussion der feldabhängigen Rekombinationsenergien

Eine quantitative Diskussion der feldabhängigen Messungen an verschiedenen Quantenpunkten ist aufgrund der Komplexität dieser Vielteilchensysteme mit Einflüssen von Verspannungen im Gitter, Fluktuationen in der Indium-Konzentration und Abhängigkeiten von Größe und Form der Quantenpunkte mit rein optischen Untersuchungsmethoden nicht möglich. Mit den in Kapitel 2.4 beschriebenen Einflüssen lassen sich jedoch qualitative Betrachtungen anstellen.

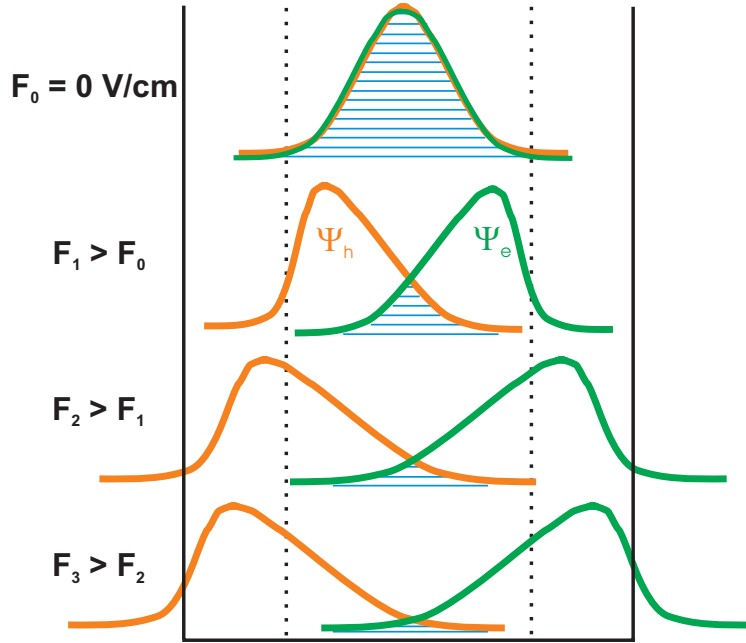


Abbildung 5.30: Schematische Darstellung des Überlapps der Wellenfunktionen von Elektron Ψ_e und Loch Ψ_h . Mit zunehmendem elektrischen Feld verringert sich der Überlapp und damit die Bindungsenergie. Da die experimentellen Daten kein permanentes Dipolmoment erkennen lassen, kann gefolgert werden, dass der Überlapp der Elektron- und Lochwellenfunktionen bei Abwesenheit eines elektrischen Feldes sehr hoch ist. Der Überlapp nimmt mit zunehmenden Feld erst stark ab und bei höheren Feldern, wenn nur noch die Ausläufer der Wellenfunktionen überlappen, ist die Änderung des Überlapps nur noch gering. D.h. der differentielle Wellenfunktionenüberlapp nimmt mit zunehmendem Feld ab. Der Abstand der mittleren Aufenthaltswahrscheinlichkeit und damit das induzierte Dipolmoment wächst jedoch stets linear mit dem Feld. Für kleine Quantenpunkte (gestrichelte Linien) ist das maximal erreichbare induzierte Dipolmoment und damit die maximal erreichbare Energieabsenkung im elektrischen Feld auf kleinere Werte beschränkt.

In Abbildung 5.30 ist schematisch dargestellt, wie sich der Wellenfunktionsüberlapp und damit die Bindungsenergie des Exzitons mit zunehmendem Feld verringert. Aufgrund des Einschlusses der Ladungsträger im Potential des Quantenpunktes und der Beobachtung, dass kein permanentes elektrisches Dipolmoment vorhanden ist, kann gefolgert werden, dass der Überlapp der Elektron- und Lochwellenfunktionen in Abwesenheit eines äußeren Feldes sehr groß ist. Während für höhere Felder die differentielle Änderung des Wellenfunktionenüberlapps klein ist, kann dieser Effekt bei kleineren Feldern von Bedeutung sein.

Für kleine Felder kann die Änderung der Bindungsenergie eine Abnahme der Rekombinationsenergie (aufgrund der Energie des Dipols im elektrischen Feld (Kapitel 2.4)) verhindern.

Während für größere Felder die verminderte Energie aufgrund des induzierten Dipols überwiegt. Die maximale Separation der Ladungsträger ist durch die Größe des Quantenpunktes beschränkt. Deshalb kann es vorkommen, dass für kleine Quantenpunkte (gestrichelte Linie in 5.30) nur eine unwesentliche Verschiebung auftritt, da sich beide Effekte gerade aufheben.

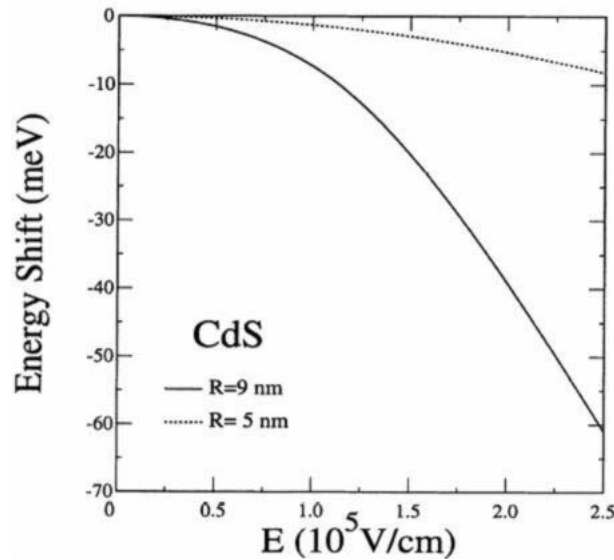


Abbildung 5.31: Berechnete Energieverschiebungen des Exziton Grundzustandes in einem kugelförmigen CdS Quantenpunkt für zwei Radien ($R = 9$ nm) und ($R = 5$ nm) als Funktion des elektrischen Feldes (aus[59]).

Diese Überlegungen die beobachtete, nur schwach ausgeprägte Feldabhängigkeit auf die Exziton-Biexziton-Bindungsenergie zurück zu führen wird durch detaillierte Rechnungen von G. W. Wen et al. [59] bestätigt. In einem idealisierten Modell für kugelförmige Quantenpunkte berechnen Wen et al. unter Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkungen zwischen Elektronen und Löchern den Einfluss eines elektrischen Feldes auf die eingeschlossenen Exzitonen und die Elektron-Loch-Verteilung im Quantenpunkt. Dazu wird ein numerisches Matrix-Diagonalisierungsverfahren verwendet um den gesamten Hamiltonien zu diagonalisieren. Aufgrund der Berücksichtigung der Coulomb-Wechselwirkung werden keine Einteilchenzustände, sondern gekoppelte Elektron-Loch-Zustände verwendet um die Exziton Wellenfunktion zu entwickeln. In Abb. 5.31 ist ein Ergebnis dieser Rechnungen dargestellt (aus[59]). Für zwei Quantenpunkt Größen, ist die Energieverschiebung Aufgrund des Stark-Effekts dargestellt. Die Exziton Energieverschiebung fällt für den kleineren Quantenpunkt wesentlich geringer aus. Auch eine Abweichung von einer quadratischen Feldabhängigkeit ist deutlich zu erkennen. Wen et al. führen diese Tatsache auf Elektron-Loch-Wechselwirkungen zurück.

Möglicherweise ist der Einfluss der Elektron-Loch-Wechselwirkungen auf das Feldverhalten in denen in dieser Arbeit untersuchten flachen InGaAs-Quantenpunkten noch stärker ausgeprägt. Da auf unterschiedlichen Quantenpunktproben ein mehr oder weniger stark ausgeprägtes Plateau-Verhalten für kleine Felder beobachtet werden kann, liegt der Schluss nahe, dass die Geometrie des Quantenpunktes einen großen Einfluss auf die Energieverschiebung in Abhängigkeit äußerer elektrischer Felder besitzt.

Ein sehr ähnliches feldabhängiges Verhalten wurde in jüngster Zeit von Ohmori et al. beobachtet [38]. So wird an einem InGaAs-Quantenpunkt in einem lateralen elektrischen Feld

ebenfalls ein deutliches Plateau-Verhalten für kleine Felder nachgewiesen und daher keine Polarisierbarkeit bestimmt.

Wolst et al. vergleichen den Einfluss eines vertikalen und eines lateralen elektrischen Feldes auf die optischen Eigenschaften von einzelnen InAs-Quantenpunkten [61]. Im Gegensatz zu der Erwartung, dass in lateraler Richtung Aufgrund der größeren Ausdehnung des Quantenpunktes eine stärkere Abhängigkeit vom elektrischen Feld vorliegt, wird in vertikaler Feldrichtung eine wesentlich stärkere Rotverschiebung nachgewiesen. In lateraler Richtung tritt nahezu keine Veränderung der Lumineszenzenergie auf. Wolst et al. schreiben diese Beobachtung ebenfalls der Abnahme der Exziton-Bindungsenergie zu.

5.3 Optimierungen zur hochauflösenden Spektroskopie

Nur mit den intensivsten Quantenpunkten der ersten Proben (RTA 970 und RTA 955 mit Claddinglayer) ist eine hochauflösende Spektrallinienuntersuchung überhaupt möglich und auch dann im Allgemeinen sehr schwierig. Deshalb wurden verschiedene Methoden verfolgt, die Photonen-Sammeleffizienz (und somit die Intensität des gemessenen Quantenpunkt-Signals) zu erhöhen. Die erste durchgeführte Änderung bestand aus einem Wechsel des verwendeten Objektivs zu Gunsten einer höheren numerischen Apertur ($NA = 0.8$). Die dadurch erzielte Signalsteigerung ist jedoch noch nicht ausreichend und so wurden weitere Verbesserungen durchgeführt.

5.3.1 Erhöhung der Lichtsammelleffizienz mit Hilfe von Feststoff-Immersionlinsen

Aufgrund des hohen Brechungsindex von GaAs $n_{GaAs} = 3.5$ kommt es beim Übergang von der Probe zum Vakuum schon bei Winkeln $\alpha > 17^\circ$ bezüglich des Lots (siehe Abb. 5.32) zu einer Totalreflexion an der Grenzfläche. Deshalb kann nur ein geringer Anteil der Lumineszenz überhaupt mit Hilfe des Objektivs aufgesammelt werden. Mit Hilfe von Immersionlinsen kann man die Totalreflexion verringern oder bei idealer Anpassung der Brechungsindizes sogar verhindern. Da die verwendeten Objektive aber eine endliche numerische Aperatur besitzen, ist eine vollständige Anpassung der Brechungsindizes aber nicht notwendig. Aufgrund der halbkugelförmigen Geometrie tritt beim Übergang des Lichtstrahls von der Immersionlinse zum Vakuum keine Totalreflexion mehr auf (Abb. 5.32).

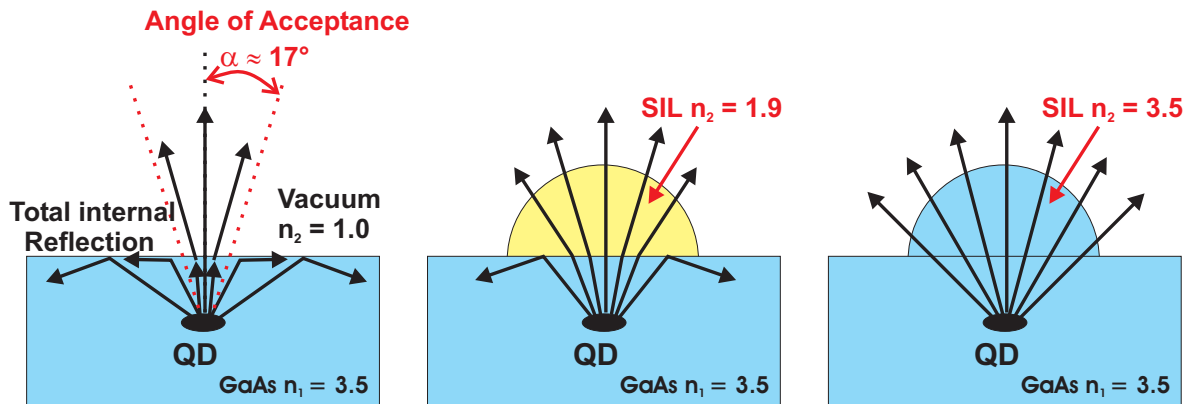


Abbildung 5.32: Schematische Darstellung der Lichtauskopplung aus einer GaAs-Probe ohne und mit Einsatz von Feststoff-Immersionlinsen.

Eine freundlicherweise von Prof. H. Gießen zur Verfügung gestellte Immersionlinse aus Zirkon ($n = 2.1$) zeigte eine deutliche Steigerung der Lichtsammelleistung des Experiments. Die Intensitäten steigerten sich teilweise um einen Faktor 3 - 4. Leider konnten auf Proben mit Schottkykontakten keine Messungen mit Unterstützung der Linse durchgeführt werden, da der durch die Kontakte verursachte Spalt zwischen Probenoberfläche und Linse deren optische Wirkung verhindert.

5.3.2 Bragg-Reflektoren

Die Verwendung eines Spiegels, der die Lumineszenz welche rückseitig (in Richtung des Kryostatenbodens) erfolgt zum Mikroskop reflektiert, wurde bereits in einer frühen Phase der Arbeit vom Autor vorgeschlagen. So sollte sich die Lichtausbeute ungefähr um einen Faktor 2 verbessern lassen. Solche Spiegel lassen sich in der (Nano)-Halbleitertechnik durch Mehrfachschichten aus zwei Materialien mit unterschiedlichen Dielektrizitätszahlen ϵ herstellen (enlg. distributed Bragg reflectors, kurz DBR). Je größer dabei der Indexkontrast $\Delta n_{1,2} \propto \text{Re}(\epsilon_{1,2})$ ist, desto höher ist die Reflektivität R eines so genannten Bragg-Spiegelpaares, welches aus zwei $\lambda/4$ -Schichten besteht. Dabei wurden nach ersten Erfolgen auch Proben hergestellt, die auf der Oberseite ein DBR-Spiegelpaar besitzen. Die Herstellung erfolgte durch das Max-Planck-Institut für Festkörperforschung, Simulationen dazu jedoch vom Autor.

Mit Hilfe des Programms „T-Matrix“ wurden eine Reihe von Simulationen durchgeführt. So konnte der Einfluss von Claddinglayern, verschiedenen DBR-Strukturen und unterschiedlich dicken Bufferlayern (Schichten zwischen aktiver Zone und weiteren funktionellen Schichten wie z.B. DBR-Spiegeln) untersucht werden. Dabei wurden auch materialspezifische Parameter, wie eine Wellenlängenabhängige Absorption, verschiedener Materialien berücksichtigt. Auf Grundlage der so gewonnenen Erkenntnisse, wurde die Größe der Kavität optimiert und die Anzahl der unteren DBR-Spiegelpaare gegenüber einer ersten Version von 13 auf 15 Paare erhöht, sowie ein oberes DBR-Spiegelpaar eingeführt. Der Einfluss, der unterschiedlichen Reflektivitäten von 13 oder 15 Spiegelpaaren auf die Feldamplitude der stehenden Welle am Ort der Quantenpunkte, ist laut den Simulationsdaten noch sehr deutlich. Bei einer weiteren Erhöhung der Anzahl der Spiegelpaare wird der Unterschied zunehmend geringer. Je höher die Anzahl der Spiegelpaare ist, desto eher können aber auch Defekte auftreten. Aufgrund der Simulationsdaten wurde ein optimiertes Probendesign („ 1λ -Kavität“) entworfen, welches vom Max-Planck-Institut umgesetzt worden ist.

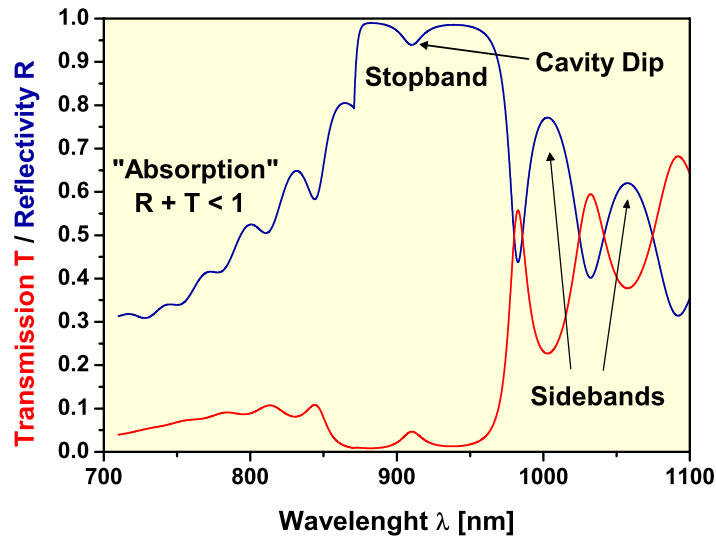


Abbildung 5.33: Simulationsdaten zu einer 1λ -Kavität mit 15 DBR-Paaren unterhalb und einem DBR-Paar oberhalb der aktiven Zone. Dargestellt ist die Transmission T (rot) und die Reflektivität R (blau) unter Berücksichtigung von Absorption.

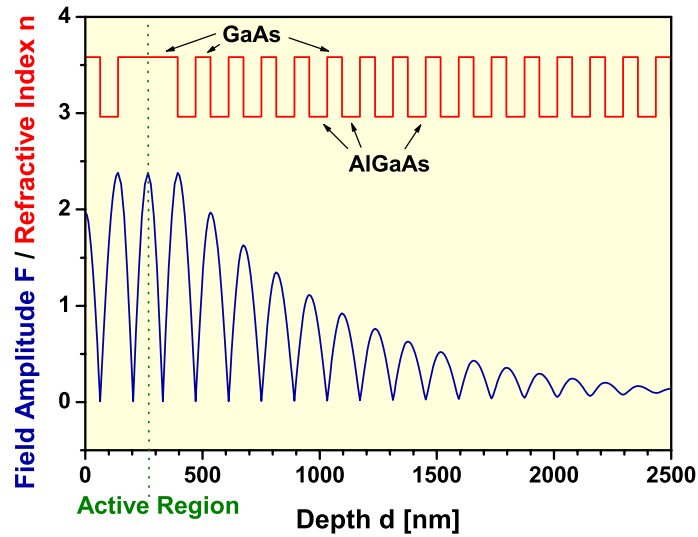


Abbildung 5.34: Simulationsdaten zu einer 1λ -Kavität mit 15 DBR-Paaren unterhalb und einem DBR-Paar oberhalb der aktiven Zone. Dargestellt ist der Brechungsindex n (rot) und die Feldamplitude F (blau) in Abhängigkeit von der Tiefe unter der Probenoberfläche.

In Abb. 5.33 ist die Reflektivität R und die Transmission T dieser optimierten Struktur dargestellt. Innerhalb des Wellenlängenbereichs von 870 - 950 nm (Stoppband), in dem die Quantenpunkte Emission zeigen, ist die Reflektivität sehr hoch (zwischen 94% und 99%). Die Vertiefung im Stoppband, der so genannte Kavitäts-Dip fällt gezielt schwach aus, da eine starke Kavitätsmode und deren Einfluss auf die Spektren der Quantenpunkte in diesem Fall nicht erwünscht ist.

In Abb. 5.34 ist die Feldamplitude des elektrischen Feldes E in Abhängigkeit der Tiefe d unter der Probenoberfläche dargestellt. Die aktive Zone, in der sich die Quantenpunkte befinden, ist am Ort der (absolut) maximalen Feldamplitude zentriert. So wird eine konstruktive Interferenz des Lichtfelds sichergestellt, um eine Maximale Intensität der Photolumineszenz zu erreichen. Anhand des eingezeichneten Brechungsindex lässt sich die Schichtfolge der GaAs- und AlGaAs-Schichten nachvollziehen ($n_{GaAs} \approx 3.66$, $n_{AlGaAs} \approx 2.99$ bei 900 nm [27]).

5.4 Die Insitu-Proben

Da schon geringe Mengen von GaAs die Eigenschaften von reinen Halbleitern wie Germanium oder Silizium verändern, konnte der für das RTA-Verfahren benötigte Ofen nicht mehr verwendet werden. Gleichzeitig wurde über die Verwendung der in Kapitel 5.3.2 beschriebenen Bragg-Reflektoren nachgedacht. Man befürchtete eine Degeneration dieser Strukturen als Folge der hohen Temperaturen. So wurde entschieden, die Bearbeitung der Quantenpunktproben auf das in Kapitel 3.1.1 beschriebene „Insitu Thermal Annealing“ umzustellen.

5.4.1 Voruntersuchungen an den Insitu-Proben

Da das Wachstumsverfahren der Quantenpunkte geändert wurde, sollten erst Proben ohne aufwendige DBR-Strukturen oder Kontakte untersucht werden. Diese Voruntersuchungen sollten dabei sicherstellen, dass die Quantenpunktdichte nicht zu hoch ist um einzelne Quantenpunkte untersuchen zu können. Damit Quantenpunkte mit Hilfe des Fabry-Perot-Interferometers untersucht werden können, muss die Linienbreite der Exzitonenübergänge innerhalb dessen freien Spektralbereichs liegen. Unter Verwendung des Spektrometers sollten die Linien daher möglichst auflösungsbegrenzt sein.

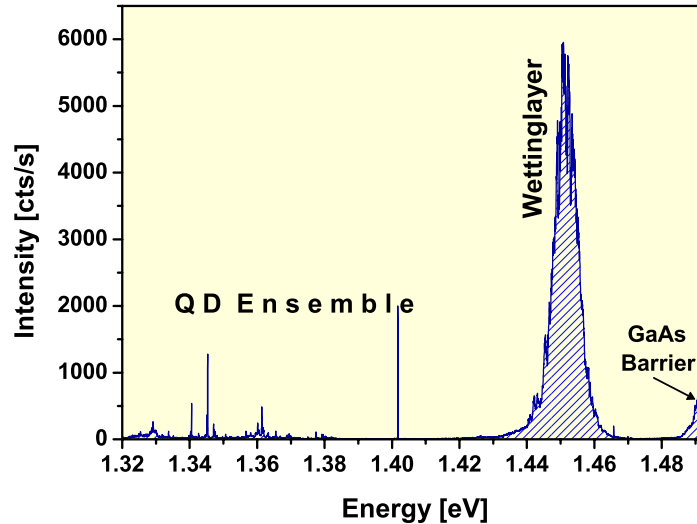
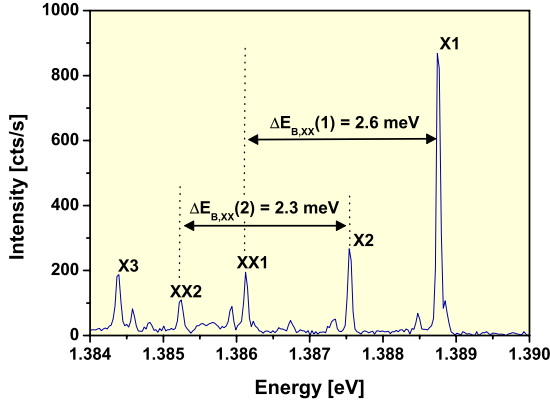


Abbildung 5.35: Übersichtsspektrum einer Insitu-Probe. Die Wettinglayerlumineszenz bei 1.45 eV ist dominant aber bedeutend schwächer als auf der RTA 970-Probe (Abb. 5.2). Zu sehen sind auch Spektrallinien verschiedener Quantenpunkte des Ensembles ($\lambda_{\text{Laser}} = 795.0 \text{ nm}$, cw, $P_{\text{ex}} = 25 \text{ W/cm}^2$).

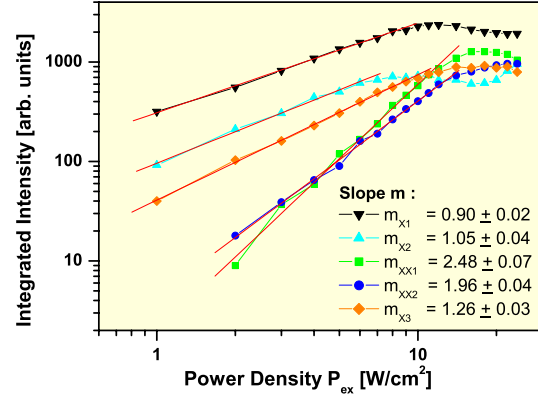
Die im Übersichtsspektrum 5.35 gezeigten Linien einzelner Quantenpunkte sind durch die Auflösung des Spektrometers begrenzt. Die Sättigungsintensität des Exzitonenübergangs beträgt zwischen 1000 und 2000 cts/s. Wie man an den einzelnen separierten Linien des Quantenpunkt Ensembles sehen kann, ist auch die Dichte der Quantenpunkte gering. Diese Art der Proben eignet sich daher gut für weitere Untersuchungen.

Insitu-Probe mit DBR-Reflektor

In ersten Messungen einzelner, auf die neue Art gewachsener Quantenpunkte sollten zuerst grundlegende Eigenschaften der Lumineszenz, wie der Spektrale Abstand von Biexzitonen und Exzitonen, das Signal- zu Rauschverhältnis und das Korrelationsverhalten untersucht werden.



(a) Charakteristisches Spektrum mehrerer Quantenpunkte, die über einer DBR-Struktur gewachsen wurden.



(b) Leistungsabhängigkeit der Intensitäten in einen doppellogarithmischen Graphen.

Abbildung 5.36: Spektrum und Leistungsabhängigkeit unter kontinuierlicher Anregung bei $\lambda_{Laser} = 732.0$ nm.

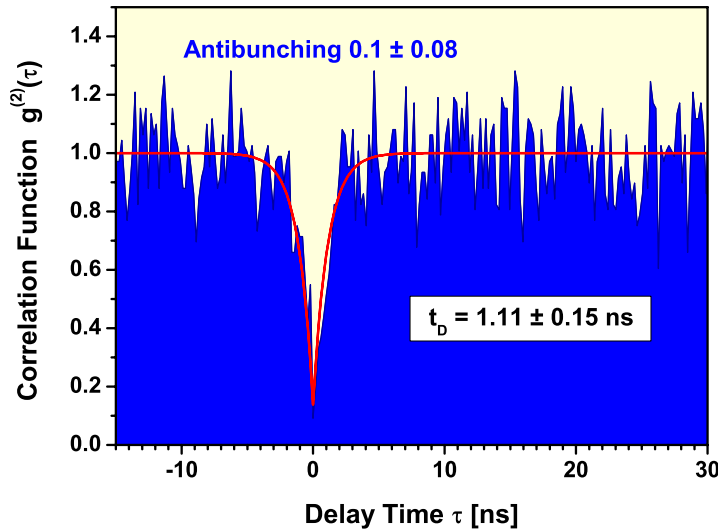
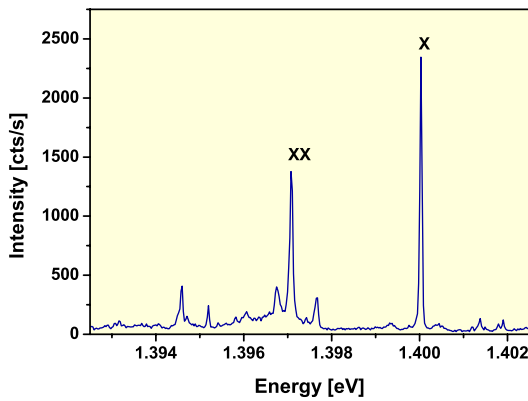


Abbildung 5.37: Autokorrelation des Exzitonüberganges X1 unter kontinuierlicher Anregung bei $\lambda_{Laser} = 773.2$ nm mit $P_{ex} = 4.2$ W/cm² und einer Integrationszeit von $t_{int} = 11500$ s. Die Korrelationsfunktion $g_{\tau}^{(2)}$ zeigt bei $\tau = 0$ einen Einbruch auf 10% des Poissonlevels. Die ermittelte Zerfallszeit des Exzitons beträgt $t_D = 1.11 \pm 0.15$ ns.

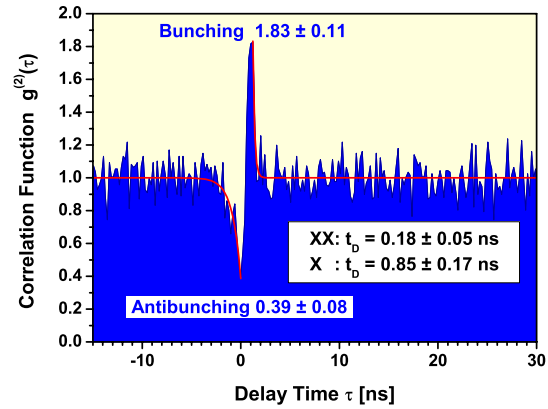
Die dominanten Linien in Spektrum 5.36(a) lassen sich mit Hilfe der leistungsabhängigen Intensitätsmessungen Abb. 5.36(b) verschiedenen Quantenpunkten zuordnen. Der Energieunterschied zwischen den Photonen der Biexziton-Exziton-Kaskade beträgt ungefähr 2.5 meV. Diese lassen sich daher spektral gut trennen. Auf dem intensivsten Exzitonübergang (Linie X1) wurde eine Autokorrelation (Abbildung 5.37) durchgeführt.

Schon nach kurzer Messzeit zeigt sich trotz des leichten Untergrunds bei X1 ein sehr deutliches Antibunching auf 10% des Poissonlevels. Die aus dem Fit ermittelte Zerfallszeit $t_D = 1.11 \pm 0.15$ ns ist von der Anregungsleistung abhängig und gibt eine untere Grenze für die Lebensdauer des Zustandes an. Im Falle sehr niedriger Anregungsleistung (wie in diesem Fall) entspricht die Zerfallszeit in etwa der Lebensdauer.

In Abbildung 5.38(a) ist das Spektrum eines weiteren Quantenpunktes zu sehen. Der Abstand zwischen den Photonen der XX-X-Kaskade beträgt ungefähr 3 meV. Des Weiteren ist ein für viele Quantenpunkte dieser Art typischer Untergrund unter der XX-Linie zu sehen. Dieser stört die in 5.38(b) gezeigte Kreuzkorrelation aber nicht. Das fast schon lehrbuchartige Kaskadenverhalten zwischen XX und X bestätigt aufgrund der Emissionssequenz $|XX\rangle \rightarrow |X\rangle \rightarrow |0\rangle$ die Identifikation der Linien.



(a) Spektrum eines Quantenpunktes, der über einer DBR-Struktur gewachsen wurde.

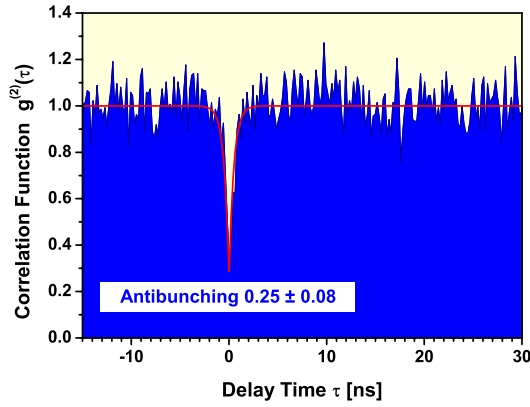


(b) Kreuzkorrelation unter kontinuierlicher Anregung. Die Korrelationszählrate n_τ zeigt einen Einbruch auf 39% des Poissonlevels bei $\tau = 0$ und direkt danach einen Anstieg auf 183%.

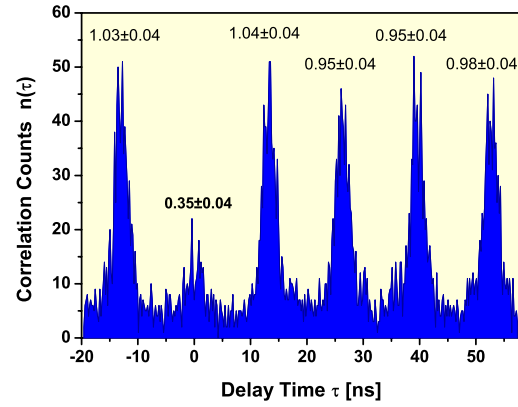
Abbildung 5.38: Spektrum und XX-X-Kreuzkorrelation ($t_{int} = 6800$ s) unter kontinuierlicher Anregung bei $\lambda_{Laser} = 773.2$ nm mit $P_{ex} = 4.2$ W/cm².

Am gleichen Quantenpunkt wurde auf dem Exzitonübergang zum Vergleich eine Autokorrelation unter kontinuierlicher (Abb. 5.39(a)) und unter gepulster (Abb. 5.39(b)) Anregungsleistung durchgeführt. In beiden Fällen ist ein deutliches Antibunching zu sehen. Unter kontinuierlicher Anregung ist dieser Effekt etwas ausgeprägter.

Aufgrund der Erfahrungen mit dem RTA-Proben (siehe Kapitel 5.2.2) wurde das Korrelationsverhalten an weiteren Quantenpunkten, insbesondere unter gepulster Anregung untersucht.

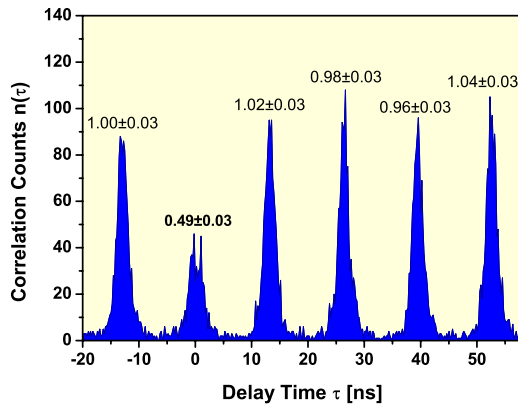


(a) Autokorrelation unter kontinuierlicher Anregung. Die Korrelationsfunktion $g_{\tau}^{(2)}$ zeigt einen Einbruch auf ein viertel des Poissonlevels bei $\tau = 0$.

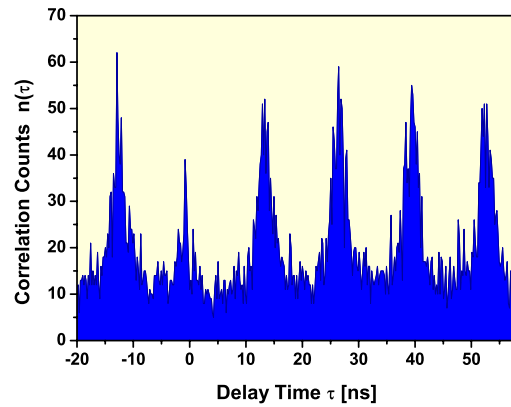


(b) Autokorrelation unter gepulster Anregung. Die Korrelationszählrate n_{τ} zeigt einen Einbruch auf 35% des Poissonlevels bei $\tau = 0$.

Abbildung 5.39: Autokorrelationen unter kontinuierlicher ($t_{int} = 3600$ s, $P_{ex} = 4.2$ W/cm², $\lambda_{Laser} = 773.2$ nm) (a) und gepulster Anregung (b) ($t_{int} = 8816$ s, $P_{ex} = 2.1$ W/cm², $\lambda_{Laser} = 773.2$ nm) eines Quantenpunktes der über einer DBR-Struktur gewachsen wurde.



(a) Autokorrelation unter gepulster Anregung. Die Korrelationszählrate n_{τ} zeigt einen Einbruch auf 49% des Poissonlevels bei $\tau = 0$.



(b) Autokorrelation unter gepulster Anregung. Die Korrelationszählrate n_{τ} zeigt einen Einbruch bei $\tau = 0$. Wie bei den RTA-Proben findet an diesem Quantenpunkt ein Nachfülleffekt statt.

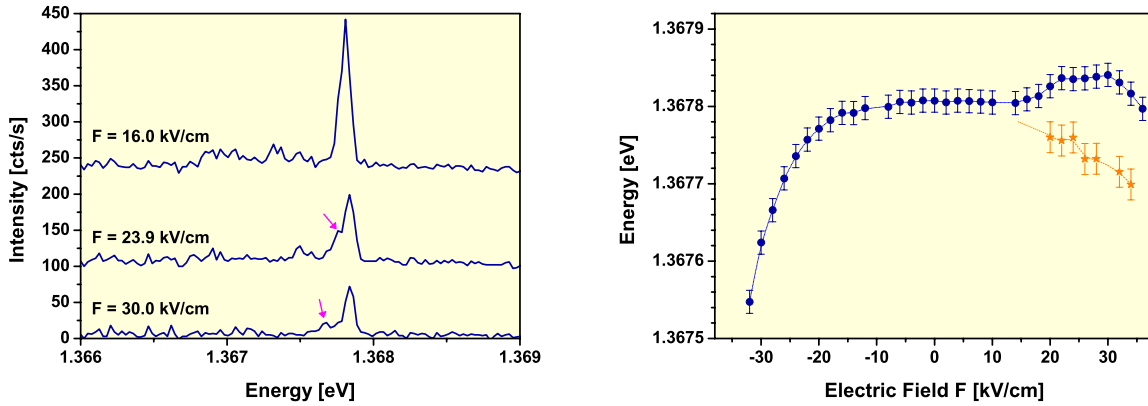
Abbildung 5.40: Autokorrelationen zweier Exzitonenrekombinationen verschiedener Quantenpunkte unter gepulster Anregung ($\lambda_{Laser} = 818$ nm).

In den Abbildungen 5.40(a) und 5.40(b) sind Autokorrelationsmessungen an exzitonen Übergängen zweier weiterer Quantenpunkte gezeigt. Während in 5.40(a) ein untergrundfreies Korrelationsverhalten zu sehen ist, zeigt die Abbildung 5.40(b) ein ähnliches Verhalten wie es bei den RTA-Proben aufgetreten ist. Auch zwischen den Laserpulsen treten hier Koinzidenzen auf. D.h., dass dieser Quantenpunkt Ladungsträger nachgeliefert bekommt, ohne dass unmittelbar zuvor ein Anregungspuls des Lasers erfolgte. Dieser Effekt ist jedoch nicht so stark ausgeprägt wie bei den RTA-Proben und betrifft auch nicht jeden Quantenpunkt. Zusammenfassend lässt sich sagen, dass sich Biexzitonen und Exzitonen leicht identifizieren

und spektral selektieren lassen. Sie zeigen ein deutliches Kaskadenverhalten 5.38(b) und als Zeichen für nicht-klassisches Licht ein deutliches Photonen-Antibunching.

5.4.2 Feldabhängige Messungen an der Insitu 64070-Probe

Nach den viel versprechenden ersten Messungen sollte an einer weiteren Probe auch der Einfluss eines elektrischen Feldes auf die optischen Eigenschaften der neuen Quantenpunkte untersucht werden. Die Insitu 64070-Probe besitzt unter der Quantenpunktschicht einen DBR-Spiegel, der aus 13 AlAs/GaAs-Paaren besteht (Dicke jeweils $\lambda/4$). Auf der Probe befinden sich Schottkykontakte mit Abständen zwischen 5 und 20 nm. Eine ganze Reihe von Quantenpunkten dieser Probe zeigen eine Aufspaltung der Exzitonenzustände mit zunehmendem elektrischem Feld.

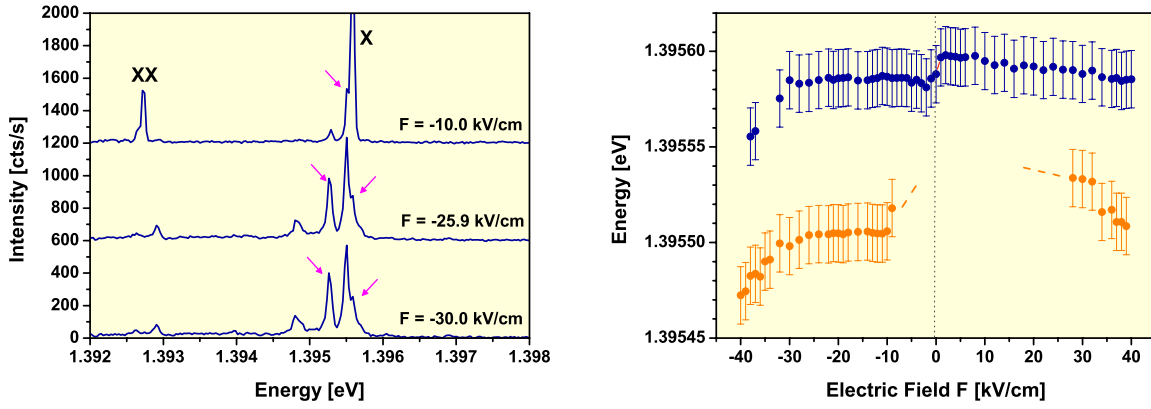


(a) Spektren in Abhängigkeit des elektrischen Feldes.

(b) Stark-Effekt mit Splitting auf dem Exziton.

Abbildung 5.41: Spektren und feldabhängige Lumineszenzenergie einer Exzitonenzustandsrekombination ($P_{ex} = 2.3$ W/cm², $\lambda_{Laser} = 794.9$ nm).

Die feldabhängige Energielage (5.41(b)), der in 5.41(a) gezeigten Exzitonlinie zeigt für negative Feldstärken ein Verhalten, wie es auch schon an den RTA-Proben beobachtet wurde. Bis $F = -10$ kV/cm zeigt sich keine Verschiebung, dann setzt ein parabolischer Stark-Effekt ein. Für positive Felder kommt es zu einer vermeintlichen Aufspaltung der Exzitonlinie. Ein Biexziton ist bei diesen Feldstärken im Spektrum nicht mehr vorhanden. Eine genauere Betrachtung und ein Vergleich mit weiteren Messungen legt den Schluss nahe, dass es sich bei der Aufspaltung nicht um die beiden Feinstrukturkomponenten handelt sondern um neue Zustände, die aus einer Mischung von dunklen und hellen Exzitonenzuständen resultierenden. Dieses Aufspalten konnte an vielen Quantenpunkten dieser Probe beobachtet werden. Da sich dieser Effekt aber nur an dieser einen Probe zeigt und an den folgenden, für die hochauflösende Spektroskopie konzipierten Proben nicht beobachtet werden konnte, muss während der Herstellung dieser Probe etwas unterschiedlich verlaufen sein. Deshalb soll hier nur noch eine weitere Messung gezeigt werden.



(a) Spektren in Abhängigkeit des elektrischen Feldes.

(b) Stark-Effekt mit Splitting auf dem Exziton.

Abbildung 5.42: Spektren und feldabhängige X-Lumineszenzenenergie eines weiteren Quantenpunktes ($P_{ex} = 2.3 \text{ W/cm}^2$, $\lambda_{Laser} = 794.9 \text{ nm}$).

Das Exzitonenniveau der in 5.42(a) dargestellten Spektren zeigt für beide Feldrichtungen eine Aufspaltung. In den dargestellten Spektren ist ab $F = -0.80 \text{ kV/cm}$ deutlich eine Abspaltung einer Linie von der Exzitonlinie X zu erkennen. Bei $F = -2.07 \text{ kV/cm}$ ist sogar eine weitere Abspaltung zu sehen, ein deutlicher Hinweis, dass es sich bei den verschiedenen Linien nicht um die Feinstrukturkomponenten handelt.

5.4.3 Die 1λ -Kavität

Durch die Optimierung der Feldamplitude am Ort der Quantenpunkte konnte die Intensität der Lumineszenz deutlich gesteigert werden (Spektren 5.43(a), 5.52(a)). Es ist auf den ersten Blick sogar unverständlich warum die Intensitätssteigerung so hoch ist, da sich die Exzitonen-Lebensdauer im Resonator nur unwesentlich von der ohne Einbettung in diesen Resonator ändern sollte. Eine Erklärung können die „Design-Regeln“ [60] für die DBR-Resonatoren von RCLEDs (Resonant-cavity light-emitting diodes) und von VCSELEN (Vertical-cavity surface-emitting lasers) liefern.

Das erste Kriterium besagt, dass für RCLEDs die Reflektivität R_1 der oberen lichtauskoppelnden DBR-Struktur viel kleiner sein muss als die der unteren (während bei den Laserstrukturen ähnliche Reflektivitäten verwendet werden).

$$R_1 \ll R_2 \quad (5.11)$$

Der Resonator entspricht im Prinzip dem des Fabry-Perot-Interferometers, nur muss die effektive Eindringtiefe des Photonenfeldes in die DBR-Struktur berücksichtigt werden. Die optische Modendichte in der Kavität wird in Abhängigkeit der Frequenz wieder durch eine Airyfunktion (siehe Kapitel 4.3.3) beschrieben. Daraus ergibt sich der integrierte Emissionsfaktor G_{int} für eine Wellenlänge λ [60]. Aus Platzgründen sei hier nur das Ergebnis genannt.

$$G_{int} = \frac{\xi}{2} \frac{2}{\pi} \frac{1 - R_1}{1 - \sqrt{R_1 R_2}} \sqrt{\pi \ln 2} \frac{\lambda}{\Delta \lambda_n} \frac{\lambda_{kav}}{L_{Kav}} \frac{\tau_{Kav}}{\tau} \quad (5.12)$$

Dabei bezeichnen λ_{kav} und λ die Wellenlängen, τ_{Kav} und τ die Lebensdauern des aktiven Mediums jeweils mit und ohne Kavität. $\Delta \lambda_n$ bezeichnet die Linienbreite des aktiven Mediums.

Der Faktor ξ gibt den Interferenzeffekt der stehenden Welle im Resonator an: ξ ist 2, wenn die aktive Schicht an einem Schwingungsbauch liegt und 0, wenn sie an einem Knoten des Feldes liegt.

G_{int} ist also proportional zu $1/L_{Kav}$; daraus ergibt sich das zweite Kriterium. Die Forderung nach der kleinsten möglichen Kavitätslänge L_{Kav} . Bei gleicher Finesse ist der Überlapp der optischen Mode und der Emission des aktiven Mediums für die kleinste Kavität am besten.

Das dritte Kriterium fordert die Minimierung der Absorption in der aktiven Schicht.

$$2\xi\alpha l < (1 - R_1) \quad (5.13)$$

Aufgrund der geringen Quantenpunktdichte ist die Absorption α sowie die Ausdehnung l der aktiven Schicht in unserem Fall klein. Die Reflektivität der GaAs-Vakuum-Grenzfläche wurde aus den Fresnelschen Formeln berechnet (nicht gezeigt) und beträgt bei senkrechtem Einfall $R_{GaAs-Vak} = 30.25\%$. Die Reflektivität des oberen DBR-Paares ergibt sich zu $R_{1DBR} = 17.55\%$. Die Gesamtreflektivität R_1 (oberes DBR-Paar plus Reflexion an der Grenzfläche zum Vakuum) wurde in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ (und unter Berücksichtigung von Absorption) mit Hilfe des Computer Programms T-Matrix berechnet. Demnach beträgt die Reflektivität im interessanten Spektralbereich $R_1 \geq 40\%$. Die Rechte Seite ist bei dieser niedrigen Reflektivität R_1 also vergleichsweise groß. Auch ohne genaue Rechnung steht fest, dass diese Bedingung mit Sicherheit für die 1λ -Kavität erfüllt ist.

Für RCLEDs ist diese Bedingung ebenfalls zu erfüllen. Es zeigt sich aber, dass VCSEL diese Bedingung nicht erfüllen können. Dort sieht die Ungleichung genau umgekehrt aus, da sonst Lasing ausgeschlossen ist. Aufgrund dessen ist, wie von Schubert et al. [47] gezeigt wurde, die Intensität des ausgekoppelten Lichts für eine RCLED im Vergleich mit einer (vergleichbaren) VCSEL-Struktur, die unter der Schwelle zum Lasing betrieben wird, um über einen Faktor 10 intensiver.

Qualitativ verstehen kann man dies, wenn man sich vorstellt, dass das Photon in einer Kavität hoher Finesse (d.h. insbesondere für ein hohes R_1) viel öfter die aktive Schicht durchquert und die Wahrscheinlichkeit für Absorption deshalb viel größer ist. Wird dann das Photon wieder emittiert, kann dies auch in der Ebene senkrecht zur Resonatorachse geschehen, oder es erfolgt eine strahlungslose Rekombination. In beiden Fällen geht das Photon verloren. Gute VCSEL-Strukturen besitzen zwar im innern eine hohe Feldamplitude, können aber die nach oben abgestrahlte Lumineszenz der aktiven Schicht sogar gegenüber dem Fall ohne Kavität verringern.

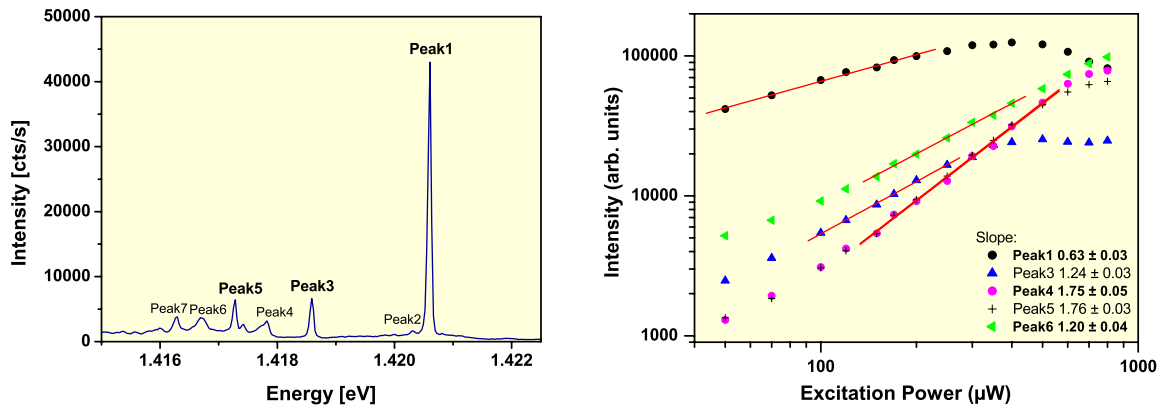
De Neve [8] hat mit großem theoretischen Aufwand gezeigt, dass die maximale Effizienz von RCLEDs erreicht wird, wenn die Reflektivität des oberen DBR-Spiegels lediglich bei $R_1 = 50\% - 60\%$ liegt (mit $R_2 \approx 1$). Ohne Kenntnis dessen wurden beim Entwurf des Proben-*designs* alle Kriterien der RCLEDs erfüllt, und auch die bewusst niedrig gewählte Reflektivität R_1 des oberen Spiegels ist nicht so weit vom Optimum entfernt. Man kann folglich die Formel 5.12 verwenden um die zu erwartende Intensität der Probe auszurechnen. Selbst wenn nur ein Quantenpunkt im Spektrum zu sehen ist, werden durch die Anregung über das Barrierenmaterial immer viele Quantenpunkte angeregt. Deren Lumineszenz wird aufgrund der endlichen numerischen Apertur des Mikroskops nicht detektiert. Sie koppeln jedoch in die Mode der Kavität ein, deshalb sollte für die Linienbreite des aktiven Mediums $\Delta\lambda_n$ die volle Breite der S-Schale eingesetzt werden. Als Abschätzung sei $\Delta\lambda_n = 9$ nm. Die Designwellenlänge λ der Kavität beträgt 900 nm.

$$G_{int} = \frac{\xi}{2} \frac{2}{\pi} \frac{1 - R_1}{1 - \sqrt{R_1 R_2}} \sqrt{\pi \ln 2} \frac{\lambda}{\Delta \lambda_n} \frac{\lambda_{kav}}{L_{Kav}} \frac{\tau_{Kav}}{\tau} \approx 2.5 \frac{\lambda}{\Delta \lambda_n} = 2.5 \frac{900 \text{ nm}}{9 \text{ nm}} = 250 \quad (5.14)$$

Unter idealen Bedingungen sollte die integrierte Intensität der Emission bei $900 \text{ nm} \pm 4.5 \text{ nm}$ um einen Faktor 250 größer sein als ohne einen entsprechenden Probenentwurf mit DBR-Spiegeln. Wie stark ein bestimmter Übergang verstärkt (oder abgeschwächt) wird, hängt davon ab, wie weit dieser von der Designwellenlänge entfernt ist. Tatsächlich liegen die maximalen integrierten Exziton-Photolumineszenz-Intensitäten dieser Probe bei ungefähr 130000 cts/s (siehe Abbildung 5.43(b)) während diese bei der Referenzprobe bei lediglich 2000 cts/s liegen. Dies entspricht einem Faktor 65.

Feldabhängige hochaufgelöste Spektrallinienmessungen

Abbildung 5.43(a) zeigt ein Spektrum eines Quantenpunktes in der 1λ -Kavität. Die sehr intensive Linie 1 wird einer Exzitonenrekombination zugeschrieben.



(a) Spektrum eines Quantenpunktes der 1λ -Kavität. (b) Leistungsabhängigkeit der Intensitäten in einem doppellogarithmischen Graphen.

Abbildung 5.43: Spektrum und Leistungsabhängigkeit unter kontinuierlicher Anregung bei $\lambda_{Laser} = 795 \text{ nm}$ mit $P_{ex} = 32 \text{ W/cm}^2$.

Diese wurde mit Hilfe des Fabry-Perot-Interferometers hochauflösend untersucht (Abb. 5.44). Dabei ist die maximale Variation des Spiegelabstandes so eingestellt worden, dass gerade zwei ganze Interferometerordnungen des Fabry-Perot-Interferometers abgebildet werden. Unter Berücksichtigung der eingesetzten Vielkanal-Zähltechnik wurde so eine maximale Auflösung erreicht.

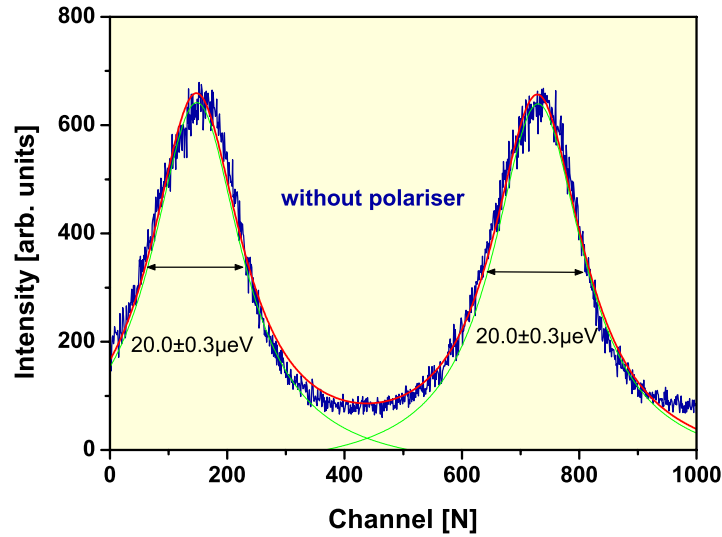


Abbildung 5.44: Hochauflösende Spektralanalyse ohne Polarisator. Die Leistungsdichte auf der Probe betrug $P_{ex} = 42 \text{ W/cm}^2$. Die Integrationszeit betrug $t_{int} = 500 \text{ s}$.

Die bestimmte Linienbreite beträgt $20.0 \pm 0.3 \mu\text{eV}$. Sie ist damit etwas größer als die der RTA-Proben. Es kann zunächst keine Feinstruktur direkt aufgelöst werden. Deshalb wurde wieder eine Polarisatoreinheit bestehend aus einem $\lambda/2$ und einem polarisierenden 50/50-Strahlteiler vor den Monochromator gestellt. In Abhängigkeit der Polarisierung wurde eine ganze Serie hochauflöster Messungen durchgeführt.

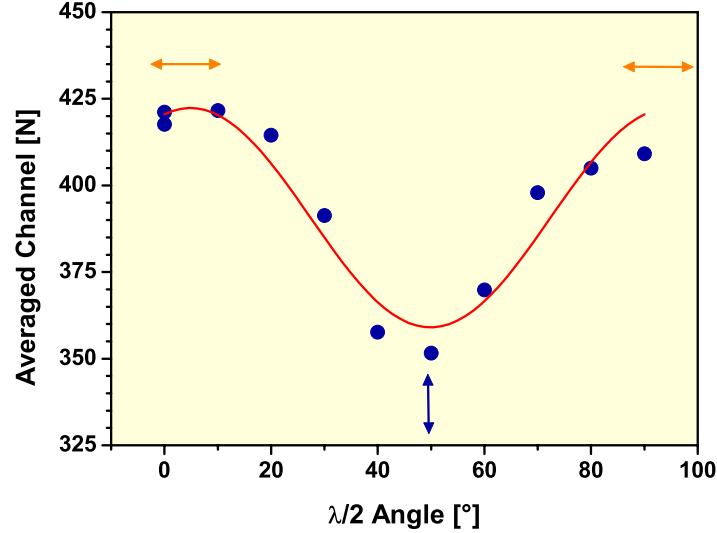


Abbildung 5.45: Peaklage der hochauflösten Exzitonlinie bei verschiedenen Polarisator Einstellungen. Die Leistungsdichte auf der Probe betrug $P_{ex} = 42 \text{ W/cm}^2$.

Das Ergebnis dieser Messungen ist in Abb. 5.45 gezeigt. In Abhängigkeit des Polarisationswinkels verändert sich die Lage der Linie auf der Ausgabe des Vielkanalanalysators. Da die beiden Feinstrukturkomponenten senkrecht zu einander polarisiert sind, wird je nach Polari-

satoreinstellung eine der beiden Komponenten unterdrückt und die andere durchgelassen. Da diese erwartungsgemäß eine etwas unterschiedliche Energie besitzen, äussert sich dies auch in einer Verschiebung der Peaklage auf der Ausgabe des Vielkanalanalysators. Aus den Extrema der angepassten Kurve lassen sich die Polarisationsrichtungen der Feinstrukturkomponenten ablesen. Da eine 45° -Änderung der $\lambda/2$ -Einstellung gleich bedeutend ist mit einer 90° -Änderung der Detektionsrichtung im Raum, zeigen die Messwerte genau die erwartete Periodizität für zwei senkrecht zueinander polarisierte Komponenten. Die Feinstruktur ist folglich indirekt nachgewiesen worden.

Nachdem somit die Feinstrukturkomponenten bestimmt sind, ist der Einfluss eines lateralen elektrischen Feldes auf die diese von großem Interesse. Dazu wurden in Abhängigkeit von der angelegten elektrischen Spannung jeweils zwei hochauflösende Messungen in den Polarisationsrichtungen der Feinstrukturkomponenten aufgenommen. Die Differenz der Peakpositionen der beiden Komponenten ist in Abbildung 5.46 dargestellt. Da sich Differenzen über den freien Spektralbereich $\delta\nu = 62.035 \mu\text{eV}$ des Interferometers in Energien umrechnen lassen, ist in Abbildung 5.46 direkt die Feinstrukturaufspaltung ΔE_{FS} in Abhängigkeit der angelegten Spannung aufgetragen.

Während die Feinstrukturaufspaltung bei 0 V etwa $4 \mu\text{eV}$ beträgt geht sie bei 0.9 V auf Null zurück. Zur Verdeutlichung dieser Messungen sind in 5.47(a) und 5.47(b) die hochauflösenden Feinstrukturmessungen selbst dargestellt. Die nacheinander durchgeführten polarisationsabhängigen Messungen der beiden Komponenten sind in je einem kombinierten Graphen für $U = 0 \text{ V}$ und $U = 0.9 \text{ V}$ dargestellt. Für $U = 0.9 \text{ V}$ liegen die Komponenten direkt aufeinander. Mit Hilfe des elektrischen Feldes ist es folglich gelungen die Feinstrukturaufspaltung zu beeinflussen. Möglicherweise konnten die piezoelektrischen Felder (Kapitel 2.3.3), die für die Aufspaltung verantwortlich sind, kompensiert werden.

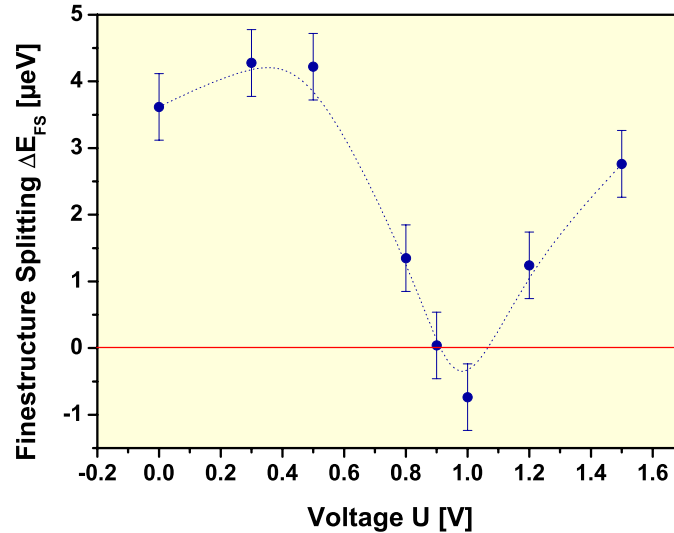
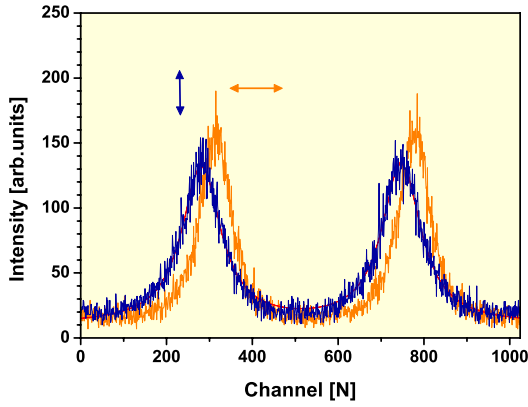
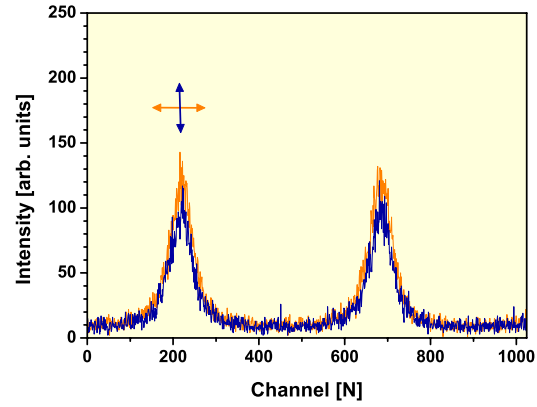


Abbildung 5.46: Feinstrukturaufspaltung in Abhängigkeit des elektrischen Feldes. Die Leistungsdichte auf der Probe betrug $P_{\text{ex}} = 42 \text{ W/cm}^2$ bei $\lambda_{\text{Laser}} = 818 \text{ nm}$. Die Gesamte Integrationszeit der Serie betrug $t_{\text{int}} = 5550 \text{ s}$.



(a) Feinstrukturanalyse bei einer Spannung von $U = 0.0$ V. Die Integrationszeit für jede der Komponenten betrug $t_{int} = 200$ s.



(b) Feinstrukturanalyse bei einer Spannung von $U = 0.9$ V. Die Integrationszeit für jede der Komponenten betrug $t_{int} = 355$ s.

Abbildung 5.47: Feinstrukturanalyse bei verschiedenen elektrischen Feldern. Angeregt wurde kontinuierlich bei $\lambda_{Laser} = 818$ nm. Die Leistungsdichte auf der Probe betrug $P_{ex} = 42$ W/cm².

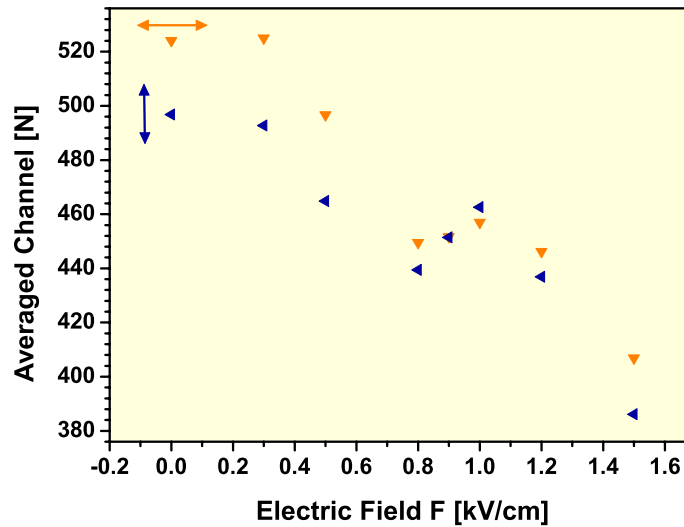


Abbildung 5.48: Feinstrukturkomponenten in Abhängigkeit des elektrischen Feldes. Beide Komponenten zeigen einen annähernd quadratischen Stark-Effekt ($\lambda_{Laser} = 818$ nm, cw, $P_{ex} = 42$ W/cm²).

Rekonstruktion des Zustandes

Nachdem sich die Feinstrukturaufspaltung nach den Abbildungen 5.46 und 5.47(b) zu Null regeln lässt, sollte eine Bestimmung eines möglichen quantenmechanischen Verschränkungsgrades durchgeführt werden. Da die Dichtematrix für einen 2-Photonenzustand aus 16 Komponenten besteht, sind dafür 16 Messungen notwendig. Um die experimentellen Einstellungen für diese Messungen herauszufinden, müssen ein paar Überlegungen angestellt werden. Wählt man für die Zustände $|H\rangle$ und $|V\rangle$ eine kartesische orthonormal Basis, so ergeben sich die diagonal-polarisierten Zustände und deren Normierung zu

$$|H\rangle = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}, |V\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}, |D\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix}, |\tilde{D}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \end{pmatrix} \quad (5.15)$$

sowie die rechts- und linkszirkular polarisierten Zustände zu

$$|L\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [|H\rangle + i|V\rangle] = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix}, |R\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} [|H\rangle - i|V\rangle] = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix}. \quad (5.16)$$

Will man nur eine bestimmte Polarisationskomponente herausfiltern, geschieht dieses experimentell durch einen Polarisator. Die mathematischen Operatoren für die Projektionen in horizontale, vertikale und diagonale Komponenten lassen sich leicht ermitteln:

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}, \hat{V} = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \hat{D} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ 1 & 1 \end{pmatrix}, \hat{\tilde{D}} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & -1 \\ -1 & 1 \end{pmatrix} \quad (5.17)$$

So lassen \hat{H} und \hat{V} nur Horizontal- bzw. Vertikalkomponenten passieren. Die Operatoren \hat{D} und $\hat{\tilde{D}}$ lassen die jeweiligen $\pm 45^\circ$ -Komponenten durch. Zur Untersuchung und Manipulation der Polarisation der Lumineszenz werden $\lambda/2$ und $\lambda/4$ -Plättchen eingesetzt.

Durch eine Doppelbrechung im Kristall wird das einfallende Licht in eine langsamere (ordentliche) und eine schnellere (außerordentliche) Komponente aufgeteilt. Durch einen Gangunterschied $\Delta d = (n_o - n_a) \cdot d$ (n_o : Brechungsindex parallel zur Hauptkristallachse, n_a : Brechungsindex senkrecht zur Hauptkristallachse, d : Schichtdicke) dieser Komponenten tritt eine Phasenverschiebung $\Delta\phi = 2\pi/\lambda \cdot \Delta d = 2\pi/\lambda(n_o - n_a) \cdot d$ auf. Beträgt dieser Gangunterschied nach dem Durchgang durch den Kristall gerade die Hälfte der Wellenlänge ($\lambda/2$), verändert sich die relative Phase der Komponenten um π , d.h. es findet eine Spiegelung der Schwingungsebene bezüglich der schnellen (außerordentlichen) Achse statt. Beträgt der Gangunterschied ein Viertel der Wellenlänge ($\lambda/4$) resultiert zirkular polarisiertes Licht mit $\Delta\phi = \pm\pi/2$.

$$\hat{\lambda}_2^{(D)} = e^{i\pi/4} \begin{pmatrix} i & 0 \\ 0 & -i \end{pmatrix}, \hat{\lambda}_2^{(\tilde{D})} = e^{i\pi/4} \begin{pmatrix} -i & 0 \\ 0 & -i \end{pmatrix} \quad (5.18)$$

$$\hat{\lambda}_4^{(D)} = e^{i\pi/4} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & i \end{pmatrix}, \hat{\lambda}_4^{(\tilde{D})} = e^{i\pi/4} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -i \end{pmatrix} \quad (5.19)$$

Die Operatoren $\hat{\lambda}_2^{(D)}$ und $\hat{\lambda}_2^{(\tilde{D})}$ beschreiben den Einfluss eines $\lambda/2$ -Plättchens, dessen schnelle Achse entlang der D bzw. \tilde{D} Richtung liegt. $\hat{\lambda}_4^{(D)}$ und $\hat{\lambda}_4^{(\tilde{D})}$ beschreiben entsprechend den Einfluss eines $\lambda/4$ -Plättchens. Daraus ergibt sich zum Beispiel für $\hat{\lambda}_4^{(D)} |L\rangle$:

$$\hat{\lambda}_4^{(D)} |L\rangle = e^{i\pi/4} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & i \end{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} = e^{i\pi/4} \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \end{pmatrix} = e^{i\pi/4} |\tilde{D}\rangle = |H\rangle \quad (5.20)$$

Die angegebenen Zustände und Matrizen sind als Jones-Zustände bzw. Jones-Matrizen bekannt [7]. Die Jones-Matrizen sind Projektionsoperatoren \hat{P} . Will man den Einfluss eines beliebig gedrehten Polarisators oder λ -Plättchens auf einen einfallenden Lichtstrahl bestimmen so kann man die Basis mit Hilfe der Rotationsoperatoren \hat{R} drehen. Der Operator eines Polarisators \hat{H} , der um den Winkel α gegen die ursprünglich definierte Horizontale verkippt ist ergibt sich damit zu

$$\hat{\alpha} = \hat{R}_{(\alpha)} \hat{H} \hat{R}_{(-\alpha)} = \begin{pmatrix} \cos(\alpha) & -\sin(\alpha) \\ \sin(\alpha) & \cos(\alpha) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos(\alpha) & \sin(\alpha) \\ -\sin(\alpha) & \cos(\alpha) \end{pmatrix} \quad (5.21)$$

$$= \begin{pmatrix} \cos(\alpha)^2 & \cos(\alpha) \sin(\alpha) \\ \cos(\alpha) \sin(\alpha) & \sin(\alpha)^2 \end{pmatrix} . \quad (5.22)$$

Passiert ein Lichtstrahl mit dem Polarisationszustand $|\vec{E}\rangle$ nacheinander verschiedene optische Komponenten $\hat{P}_1 \hat{P}_2 \dots \hat{P}_n$, so ergibt sich der Zustand der auslaufenden Welle nach

$$|\vec{E}\rangle^{nach} = \hat{P}_n \hat{P}_{n-1} \dots \hat{P}_2 \hat{P}_1 |\vec{E}\rangle \quad (5.23)$$

Damit lassen sich nun alle möglichen Messeinstellungen durchrechnen. Die Abbildung (2.5) der Photonenkaskade legt im Falle von verschwindender Feinstrukturaufspaltung folgenden polarisationsverschränkten Zustand nahe.

$$\frac{1}{2}(|RL\rangle + |LR\rangle) \quad (5.24)$$

Ein weiterer polarisationsverschränkter Zustand wäre $1/2(|RL\rangle + |RL\rangle)$. Wendet man nun die angegebenen Operation an, so lassen sich die Einflüsse verschiedener optischer Elemente auf einen Photonenzustand ausrechnen und so z.B. eine Abschätzung für die erwartete Intensität treffen oder die Messeinstellungen in denen ein Bunching bzw. Antibunching erwartet wird ermitteln.

Die in Tabelle 5.1 angegebenen Winkel für die λ -Plättchen sind von den Laborkoordinaten abhängig. Des Weiteren ist berücksichtigt, dass bei Reflexionen, insbesondere am polarisationsabhängigen Strahlteiler, die Polarisationsrichtung gespiegelt wird.

Nach dem Aufbau einer zweiten Polarisatoreinheit, die ebenfalls aus einem $\lambda/2$ und einem polarisationsabhängigen Strahlteiler besteht, wurden die Kreuzkorrelationsmessungen zwischen den Linien 1 und 3 zur Bestimmung des Zustandes begonnen. Leider erwies sich das Korrelationsverhalten der Zustände als sehr schlecht. Zwar ist in Abbildung 5.49 ein deutliches Antibunching zu sehen, die Überhöhung gegenüber dem Poissonlevel ist aber in den Fällen für ko- und kontra-lineare Polarisator-Einstellungen nahezu identisch. Das heißt, es lässt sich keine Korrelation feststellen. Auch Vergleichsmessungen ohne Feld (nicht gezeigt) erweisen sich als schwierig und legen sogar eine Kontrapolarisation der Kaskade nahe.

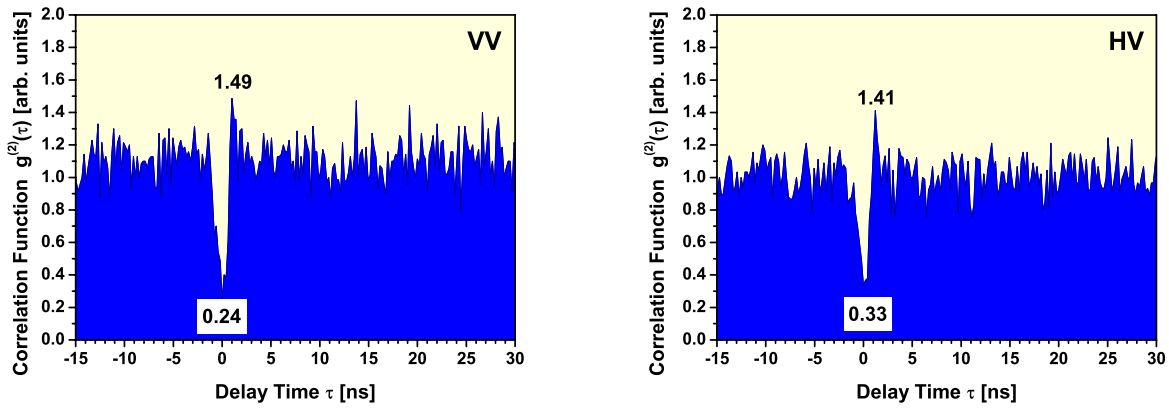


Abbildung 5.49: Kreuzkorrelationsmessungen bei einer Spannung von $U = 0.9$ V. Die Messungen in ko-linearer Basis VV (links) und kontra-linearer Basis HV (rechts) unterscheiden sich nur unwesentlich. Es ist daher keine Korrelation bezüglich der Polarisation festzustellen. Die Anregung erfolgte kontinuierlich bei $\lambda_{Laser} = 818$ nm mit $P_{ex} = 40.32$ W/cm².

Nachweis Polarisationen	$\lambda/4$ Position	$\lambda/2_{XX}$ Winkel	$\lambda/2_X$ Winkel
HH	-	5	85
HV	-	5	40
VH	-	50	85
VV	-	50	40
VD	-	50	62.5
HD	-	5	62.5
HL	vor X	5	22.5
VL	vor X	50	22.5
DR	vor X	27.5	22.5
DH	-	27.5	85
DD	-	27.5	62.5
DV	-	27.5	40
RV	vor XX	22.5	40
RD	vor XX	22.5	62.5
RH	vor XX	22.5	85
RL	vor XX,X	22.5	22.5

Tabelle 5.1: Messeinstellungen der λ -Plättchen für die Korrelationsmessungen zur Bestimmung der Zwei-Photonen-Dichtematrix.

Man hat sich mit diesem „Quantenpunkt“ ein ungewöhnliches System ausgesucht. So wurden Kreuzkorrelationmessungen zwischen der Linie 1 und allen andern im Spektrum 5.43(a) gezeigten Linien durchgeführt (nicht gezeigt). Alle Übergänge zeigen eine Antibuchung und

sind daher miteinander korreliert. Die Linien 3, 6 und 7 zeigen mit Linie 1 ein Kaskadenverhalten. Auch der Stark-Effekt zeigt ein ungewöhnliches Verhalten.

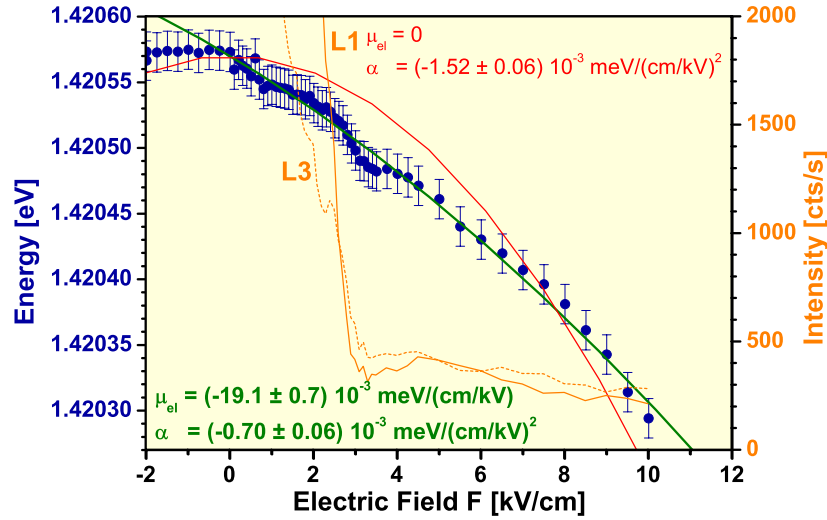


Abbildung 5.50: Feldabhängige Rekombinationsenergie der Linie 1 aus 5.43(a) (blaue Punkte), sowie feldabhängige Intensitäten (orange) der Linie 1 (durchgezogene Linie L1) und der Linie 3 (gestrichelte Linie L3). Bei einer Feldstärke von $F = 3$ kV/cm werden beide Linien gleich intensiv. Interessanterweise zeigt sich an dieser Stelle ein kleiner Knick in der Rekombinationsenergie. Die Leistungsdichte auf der Probe betrug $P_{ex} = 31.8 \text{ W}/\text{cm}^2$ ($\lambda_{Laser} = 818 \text{ nm}$).

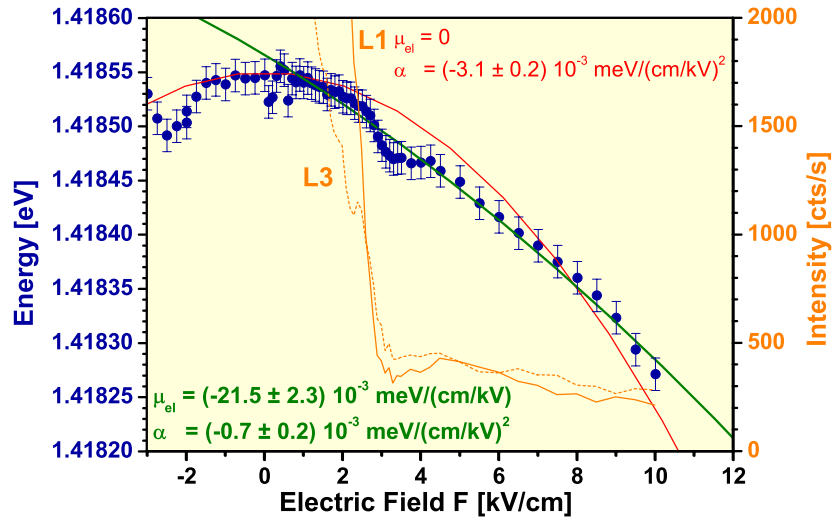
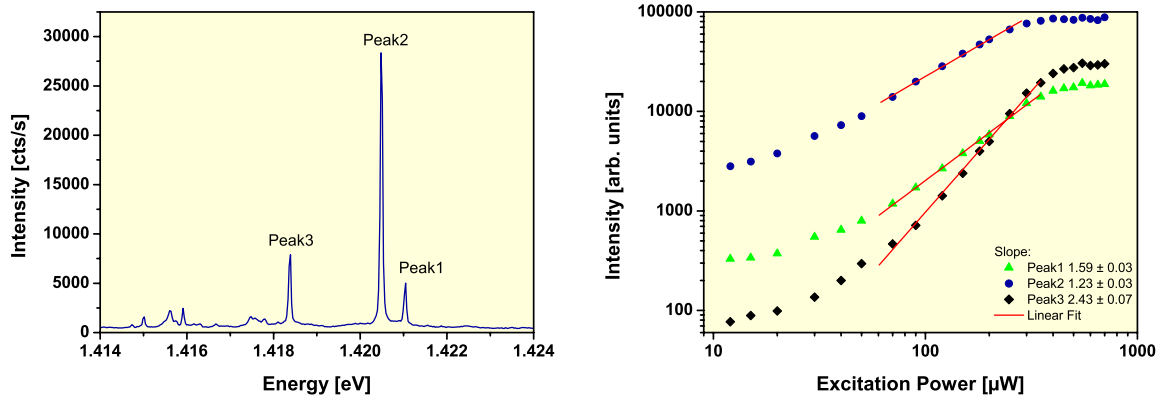


Abbildung 5.51: Feldabhängige Rekombinationsenergie der Linie 3 aus 5.43(a) (blaue Punkte), sowie feldabhängige Intensitäten (orange) der Linie 1 (durchgezogene Linie) und der Linie 3 (gestrichelte Linie). Bei einer Feldstärke von $F = 3$ kV/cm werden beide Linien gleich intensiv. Auch diese Linie zeigt bei dieser Feldstärke einen kleinen Knick in der Rekombinationsenergie. Die Leistungsdichte auf der Probe betrug $P_{ex} = 31.8 \text{ W}/\text{cm}^2$ ($\lambda_{Laser} = 818 \text{ nm}$).

Bei beiden Linien tritt schon bei kleinen Feldern eine deutliche Rotverschiebung auf, welches ein großes permanentes Dipolmoment μ_{el} nahe legt. Bei allen anderen untersuchten Quantenpunkten ist genau das gegenteilige Verhalten aufgetreten: eine Rotverschiebung trat erst verzögert auf, und ein permanentes Dipolmoment wurde nicht beobachtet. Interessant ist auch ein kleiner Einbruch in der Rekombinationsenergie, der in beiden feldabhängigen Serien aufgetreten ist. Bei der gleichen Feldstärke, bei der dieser Einbruch einsetzt, werden die ursprünglich stark unterschiedlichen Intensitäten 5.43(a) der Linien gleich groß. Dieses Verhalten ist höchst ungewöhnlich, möglicherweise handelt es sich bei dem System auch um ein gekoppeltes System aus mehreren Quantenpunkten, die zufälligerweise nahe beieinander liegen. Nach diesen Erkenntnissen wurden die Untersuchungen an diesem System zu Gunsten eines einfacheren aufgegeben.

Abbildung 5.52(a) zeigt das Spektrum eines weiteren Quantenpunktes der 1λ -Kavität. Die Leistungsabhängigkeit 5.52(b) und Korrelationsmessungen identifizieren Linie 2 als Exziton- und Line 3 als Biexzitonrekombination.



(a) Spektrum eines weiteren Quantenpunktes der 1λ -Kavität. (b) Intensität in Abhängigkeit von der Anregungsleistung in einem doppellogarithmischen Graphen.

Abbildung 5.52: Spektrum eines Quantenpunktes der 1λ -Kavität (links) und Leistungsabhängigkeit der Intensität unter kontinuierlicher Anregung (rechts) bei $\lambda_{Laser} = 818$ nm.

Auf der dem Exziton zugehörigen Linie (L2) wurde wieder eine hochauflösende Messung durchgeführt. In Abbildung 5.53 ist deutlich eine Aufspaltung, des mit Hilfe des Spektrometers als einzelne scharfe Linie aufgenommenen Zustandes zu sehen.

Um zu überprüfen, ob es sich bei dem Liniendublett wirklich um die Feinstruktur des Exzitonenniveaus handelt, wurde eine hochaufgelöste polarisationsabhängige Messserie durchgeführt. In Abbildung 5.54 ist das Ergebnis dieser Messungen dargestellt. Die Intensität beider Komponenten variiert mit einer Periode von 180° ($\Delta\lambda/2 = 90^\circ$). Sie sind 90° zueinander polarisiert. Es handelt sich folglich, wie für die Feinstrukturkomponenten erwartet, um zwei zueinander senkrecht linearpolarisierte Zustände.

Um diese Beobachtung weiter zu prüfen wurde eine kürzere Messserie, über eine Periode der Polarisation ($\lambda/2 = 0^\circ \dots 90^\circ$), auf dem biexzitonischen Übergang durchgeführt. Da dessen Intensität nicht so hoch wie die des Exzitonenzustandes und somit ein stärkerer Einfluss des Signaluntergrundes bemerkbar ist die Aufspaltung in Abb. 5.55 nicht so deutlich zu erkennen wie beim Exziton.

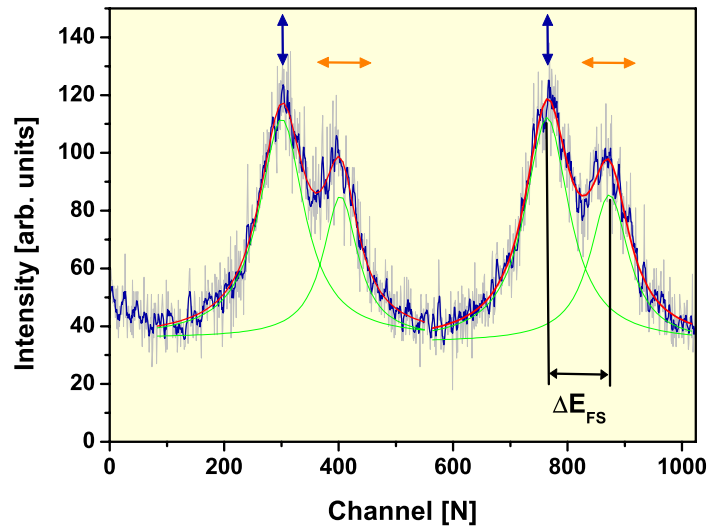


Abbildung 5.53: Die hochauflösende Messung des Exzitonüberganges zeigt deutlich ein Liniendublett ($\lambda_{\text{Laser}} = 818 \text{ nm}$, $P_{\text{ex}} = 31.5 \text{ W/cm}^2$). Die aufgenommenen Daten (grau) wurden geglättet (blau) und dann mit je einer Doppellorentzkurve approximiert (grün und rot). Das Feinstruktursplitting beträgt $\Delta E_{\text{FS}} = 15 \text{ } \mu\text{eV}$.

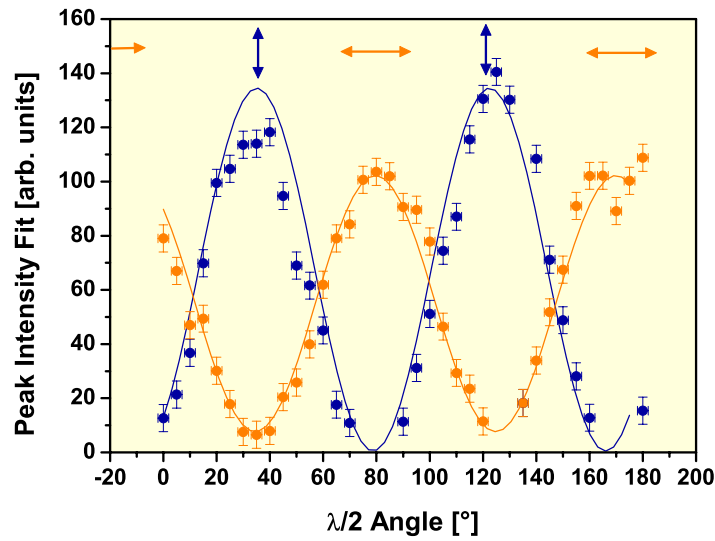


Abbildung 5.54: Intensität der beiden Exziton-Feinstrukturkomponenten bei verschiedenen Polarisator Einstellungen.

Wie sich anhand einer detaillierten Analyse zeigt, besitzt auch das Biexziton eine Aufspaltung, welche erwartungsgemäß dieselbe Aufspaltung ΔE_{FS} und Polarisations-Periodizität wie der Exzitonübergang aufweist.

Die polarisationsabhängige Messung bestätigt damit die am Exziton gewonnenen Erkenntnisse. Somit wurde erstmals die durch Asymmetrie induzierte Feinstruktur in (In,Ga)As/GaAs-Quantenpunkten durch eine direkte optische Messung nachgewiesen.

Die Kenntnis der Polarisationsachsen der beiden Feinstrukturkomponenten ermöglicht die

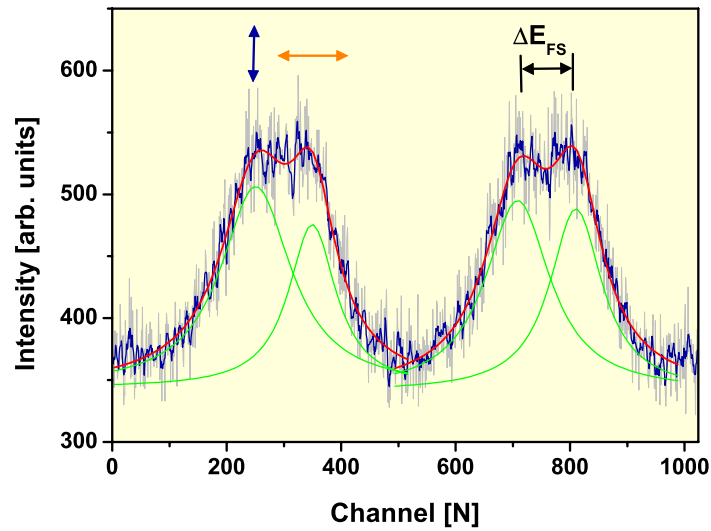


Abbildung 5.55: Auch die hochauflösende Messung des Biexzitonüberganges zeigt deutlich ein Liniendublett ($\lambda_{Laser} = 818$ nm, $P_{ex} = 70.5$ W/cm². Die dargestellte Messung fand mit einer $\lambda/2$ -Einstellung von 60° statt. Das gemittelte Feinstruktursplitting aller Messungen beträgt $\Delta E_{FS} = 14.6$ μ eV.

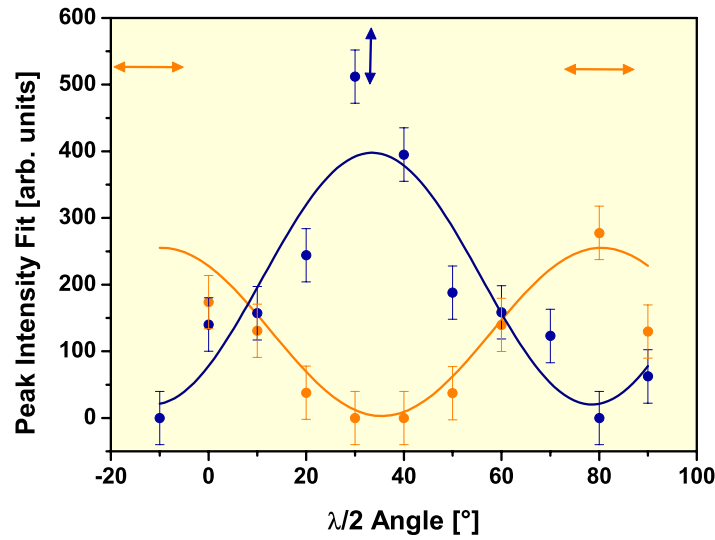


Abbildung 5.56: Intesität der Feinstrukturkomponenten des Biexzitons bei verschiedenen Polarisator-Einstellungen. Qualitativ zeigt sich das gleiche Verhalten wie beim Exziton.

Messung der klassischen Polarisationskorrelation im Hauptachsensystem des Quantenpunktes. Auch wenn sich damit keine abhörsichere Quantenkryptografie verwirklichen lässt können klassisch korrelierte Photonen nützlich für die Quantenkommunikationstechnik sein [50].

Die Korrelationsmessungen in Abbildung 5.57 zeigen für $\tau = 0$ ns ein sehr deutliches Bunching von 2.58 ± 0.02 , 2.91 ± 0.04 für ko-lineare Polarisator Einstellungen und ein deutliches Antibunching von 0.69 ± 0.02 , 0.68 ± 0.02 für kontra-lineare Einstellungen. Der Polarisationsgrad P ergibt sich aus

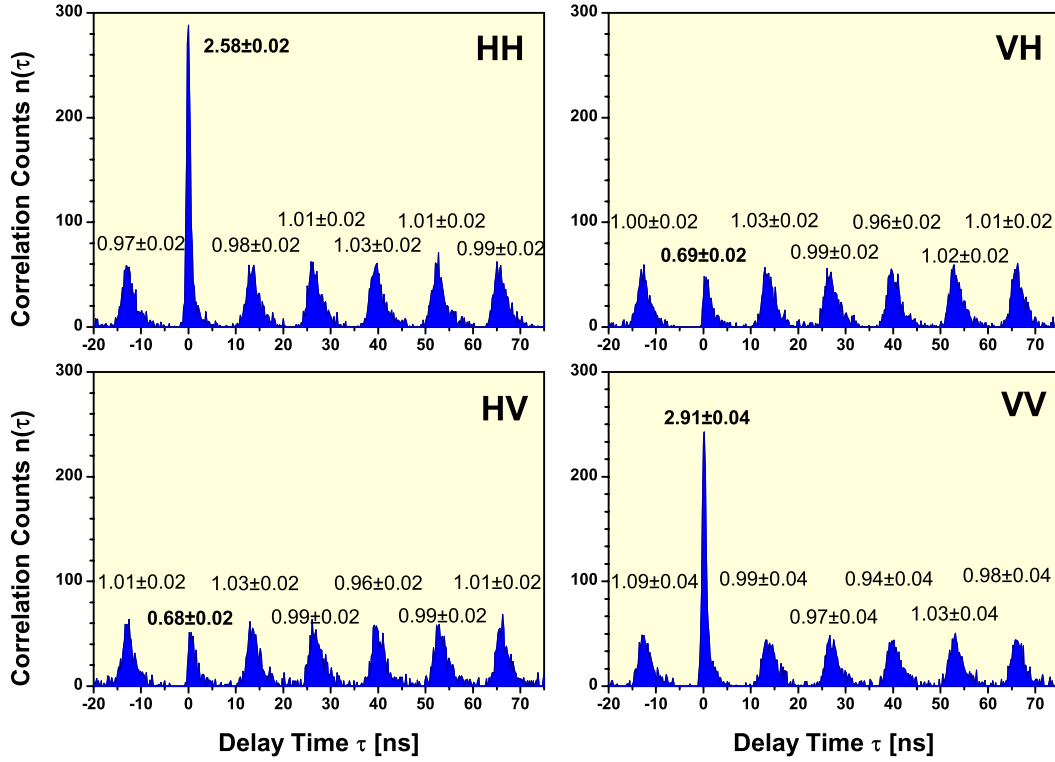


Abbildung 5.57: Kreuzkorrelationsmessungen der XX-X Kaskade in der Polarisationsrichtungen der Feinstrukturkomponenten. Für ko-lineare Polarisator Einstellungen ergibt sich ein deutliches Bunching. Im Gegensatz dazu ergibt sich ein Antibunching für kontra-lineare Einstellungen. Daraus ergibt sich ein Polarisationsgrad von 80%. Die Anregung erfolgte gepulst bei $\lambda_{Laser} = 818 \text{ nm}$ mit $P_{ex} = 31.8 \text{ W/cm}^2$.

$$\begin{aligned}
 P &= \frac{HH + VV}{HH + VV + HV + VH} \\
 &= \frac{(2.58 \pm 0.02) + (2.91 \pm 0.04)}{(2.58 \pm 0.02) + (2.91 \pm 0.04) + (0.69 \pm 0.02) + (0.68 \pm 0.02)} = \frac{5.49 \pm 0.06}{6.86 \pm 0.10} \\
 &= 0.80 \pm 0.02 .
 \end{aligned} \tag{5.25}$$

Um einen anschaulichen Vergleich zwischen klassisch korrelierten und quantenmechanisch verschränkten Photonen dazustellen, wurden in einer um 45° zu den Polarisationsachsen des Quantenpunktes gedrehten Nachweisbasis ($D = 45^\circ$, $\tilde{D} = -45^\circ$) Korrelationsmessungen durchgeführt.

Aus diesen Korrelationsmessungen ergibt sich der Korrelationskontrast K aus

$$K_H = \frac{HH - VH}{HH + VH} = 0.58 (+0.01 / - 0.03) = 58(+1 / - 3)\% \tag{5.26}$$

$$K_V = \frac{VV - HV}{HH + HV} = 0.62 (+0.03 / - 0.03) = 62(+3 / - 3)\% \tag{5.27}$$

$$K_D = \frac{DD - D\tilde{D}}{DD + D\tilde{D}} = 0.03 (+0.00 / - 0.03) = 3(+0 / - 3)\% \tag{5.28}$$

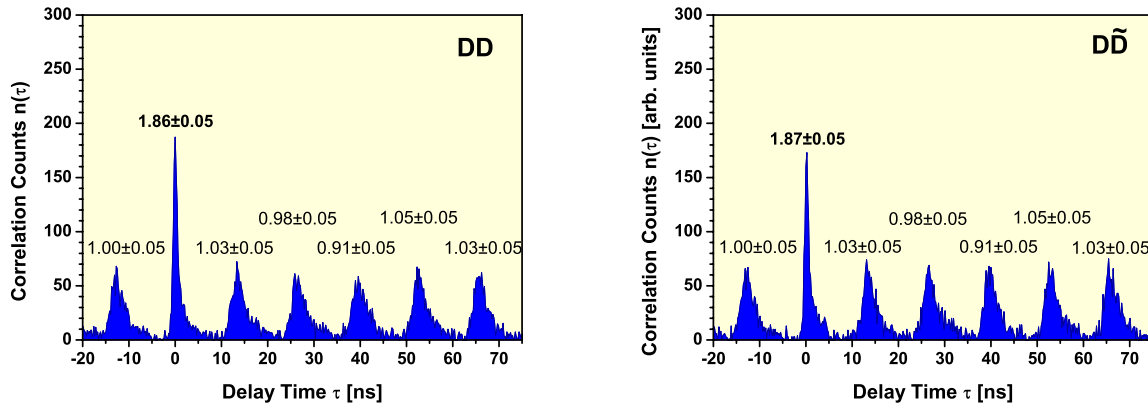


Abbildung 5.58: Kreuzkorrelationsmessungen der XX-X-Kaskade in der diagonal ko-linearen DD -Basis (links) und in der diagonal kontra-linearen $D\tilde{D}$ -Basis (rechts). Die Anregung erfolgte gepulst bei $\lambda_{Laser} = 818$ nm mit $P_{ex} = 31.8$ W/cm².

In Abbildung 5.59 ist der errechnete Korrelationskontrast aufgetragen. Des Weiteren sind ein idealer quantenmechanisch verschränkter (orange) und ein ideal klassisch polarisationskorrelierter Zustand (blau) eingetragen. Für quantenmechanisch verschränkte Photonenpaare erwartet man unabhängig vom Grundwinkel der Nachweisbasis, für Kreuzkorrelationsmessungen in ko-linearer Polarisations-einstellung, ein Bunchingsignal.

Laufende Messungen deuten an, dass sich mit Hilfe des elektrischen Feldes ein teilweise quantenmechanisch verschränkter Zustand graduell in einen klassisch korrelierten Zustand überführen lässt und sich der Grad der Korrelation mit dem elektrischen Feld verbessern lässt.

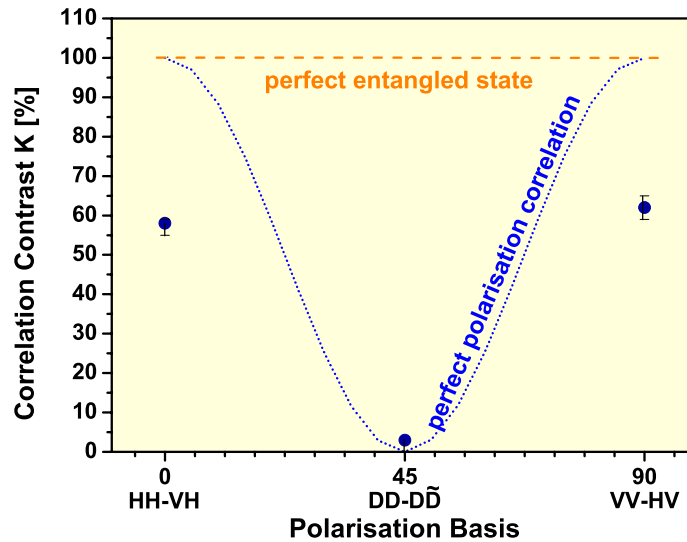


Abbildung 5.59: Korrelationskontrast K in verschiedenen Basen. Zum Vergleich sind ein ideal verschränkter Zustand (orange) und ein ideal klassisch korrelierter (blau) Zustand eingetragen. Der gemessene Zustand zeigt in an betracht experimenteller Möglichkeiten eine gute klassische Korrelation.

Kapitel 6

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Mikro-Photolumineszenz-Untersuchungen und Charakterisierungen im Rahmen von Tieftemperatur-Spektroskopie an insgesamt 15 verschiedenen Proben selbstorganisierter (In,Ga)As/GaAs-Einzelquantenpunkte durchgeführt. Obgleich in dieser Arbeit nur ein ausgewählter Teil der sehr umfangreichen Messungen dargestellt werden kann, wurde darauf Wert gelegt, dass die komplexe Vielfalt der beobachteten Effekte widerspiegelt wird.

In enger Zusammenarbeit mit der Gruppe von Dr. habil. O. G. Schmidt vom Max-Planck-Institut für Festkörperforschung wurden kontinuierlich Verbesserungen an den Quantenpunkt-Proben und deren elektrischer Kontaktierung vorgenommen. Als wichtiges Resultat der vorliegenden Arbeit ist es gelungen, stabile elektrische Felder zur gezielten Manipulation von individuellen Quantenpunkten einzusetzen.

Mit Hilfe der lateralen elektrischen Felder konnte eine große Kontrolle über die Emissionsenergien der (In,Ga)As/GaAs-Quantenpunkte erlangt werden. Die reproduzierbare Änderung der Emissionsenergie ist dabei groß im Vergleich zur Halbwertsbreite ($\Delta E \ll \Gamma_{FWHM}$) der (multi-) exzitonischen QD-Übergänge. Auch die Intensität der Photolumineszenz lässt sich deutlich beeinflussen. So lassen sich bestimmte geladene Zustände begünstigen oder die gesamte Lumineszenz eines QDs mit Hilfe des Feldes an und ausschalten. Aus detaillierten feldabhängigen Messungen konnten erstmals Polarisierbarkeiten von Exzitonen einzelner Quantenpunkte für dieses wichtige III-V-Materialsystem bestimmt werden. Ein permanentes Dipolmoment in der Wachstumsebene ist nicht feststellbar. Dies weist auf eine hohe Rotationssymmetrie der Quantenpunkte hin. Neben den Exzitonen wurden auch Biexzitonen und geladene Zustände untersucht. Alle beobachteten Zustände eines individuellen Quantenpunktes zeigen ein qualitativ vergleichbares Feldverhalten und besitzen in Folge dessen sehr ähnliche Werte für die Polarisierbarkeit.

Ein charakteristisches Plateau-Verhalten der Lumineszenzenergie konnte für eine Vielzahl einzelner (In,Ga)As-Quantenpunkte wiederholt beobachtet werden. In Einzelfällen zeigte sich auch eine Verschiebung der Lumineszenzenergie zu höheren Energien. Während dieser Einfluss alleine im Rahmen des „quadratischen Quantum Confined Stark-Effekts“ nicht mehr erklärt werden kann, zeigen die hier vorgestellten Ergebnisse hohe qualitative Übereinstimmung mit den Aussagen eines erweiterten Stark-Effekt-Modells nach G. W. Wen [59], welches auch höhere Ladungsträger-Feld-Korrelationen explizit berücksichtigt.

Neben diesen an einer großen Zahl von Quantenpunkten nachgewiesenen Effekten, konnten an einigen wenigen Quantenpunkten weitere Einflüsse durch das elektrische Feld beobachtet

werden. So traten neue optisch aktive Zustände in Abhängigkeit vom elektrischen Feld auf, die möglicherweise einer Mischung aus „dunklen“ und „hellen“ Zuständen zugeschrieben werden können. Des Weiteren wurde eine mit Hilfe des elektrischen Feldes kontrollierbare Aufspaltung der Exziton- und Biexzitonlinie im Spektrum beobachtet.

Neben diesen sehr erfolgreichen Untersuchungen basiert ein weiterer bedeutsamer Teil der Arbeit auf der Implementierung eines verbesserten Verfahrens zur hochauflösenden Fabry-Perot-Interferometrie. Linienbreitenmessungen zeigen, dass die RTA-Quantenpunkte eine Feinstrukturaufspaltung von nur wenigen μeV besitzen und damit gute Kandidaten für die Erzeugung verschränkter Photonenpaare sind. Die nachträgliche thermische Behandlung führt offenbar zu Einzelquantenpunkten höherer lateraler Symmetrie. Die Linienbreiten der mit 970°C behandelten Quantenpunkte sind noch etwas geringer als diejenigen der Quantenpunkte, die bei geringerer Temperatur ausgeheizt wurden.

Mit Hilfe von Computersimulationen wurde das Probedesign hinsichtlich der optischen Detektionseffizienz weiter verbessert, wodurch es zum ersten Mal möglich wurde, die anisotropie-induzierte Feinstrukturaufspaltung eines (In,Ga)As-Quantenpunktes in einer direkten optischen Messung aufzulösen. Mit Hilfe der hochauflösenden Messungen gelang weiterhin die genaue Bestimmung der Hauptachsen des Quantenpunktes. Mittels polarisationsabhängiger Kreuzkorrelationsexperimente wurden so klassisch korrelierte Photonenpaare nachgewiesen. Mit polarisationsabhängigen hochaufgelösten Messungen lassen sich auch dann die Hauptachsen eines Quantenpunktes bestimmen, wenn aufgrund von spektraler Diffusion die Feinstrukturkomponenten nicht direkt sichtbar sind. Die dargelegten Messungen zeigen, dass die Verwendung der Fabry-Perot-Interferometrie als eine wichtige Erweiterung herkömmlicher μPL angesehen werden kann. Nach dem Wissensstand des Autors dieser Arbeit wurde bisher über hochauflösende spektroskopische Messungen dieses Typs an Einzelphotonenemittern in der Fachliteratur nicht berichtet.

6.1 Ausblick

Mit Hilfe der neu entwickelten Kontaktstrukturen, die eine Superposition zweier elektrischer Felder und damit große experimentelle Anpassungen ermöglichen, lassen sich auch Anisotropien des Feldverhaltens individueller Quantenpunkte untersuchen. Die Kontrolle der Lumineszenzenergie mit Hilfe elektrischer Felder könnte auch dazu benutzt werden, einzelne Übergänge in Resonanz mit einer Kavitätsmode von neuartigen Mikro-Resonatoren zu bringen und so gezielt die Licht-Materie-Kopplung zu beeinflussen.

Der Einfluss lateraler elektrischer Felder auf die Feinstruktur muss noch an weiteren Quantenpunkten bestätigt werden. So können möglicherweise in absehbarer Zeit verschränkte Photonen auf Bestellung in einer kompakten QD-Halbleiterstruktur erzeugt werden, welche sich leicht in vorhandene Technologien einbinden lässt und somit eine kommerzielle Nutzung dieser fundamentalen quantenmechanischen Eigenschaften erlauben sollte. Vorbereitungen zu einer Zustandstomografie, die zur Bestimmung des Verschränkungsgrades der Photonen notwendig ist, sind schon während der Diplomarbeit getroffen worden.

Unabhängig von den Einflüssen elektrischer Felder auf die Feinstruktur lässt sich das sehr erfolgreiche Meßverfahren mit dem Fabry-Perot-Interferometer auch dazu benutzen, gezielt nach Quantenpunkten mit intrinsisch geringer Linienbreite der Exzitonlumineszenz zu suchen. Durch die Adaption des spektralen Arbeitsbereiches des Interferometers sollte die Technik problemlos auch auf andere Materialsysteme übertragen werden können. Damit ist

das Potential der Methode aber noch nicht ausgeschöpft. Gelingt eine resonante Anregung, kann das Auflösungsvermögen des Geräts durch Unterdrückung von Störeffekten („spektrale Diffusion“) voll genutzt werden. Dann könnte man z.B. auch gekoppelte Quantenpunktsysteme untersuchen und möglicherweise komplexere Niveaustrukturen auflösen und so auch zum Verständnis dieser Systeme beitragen.

Abbildungsverzeichnis

2.1	Schematische Darstellung einer Halbleiter Heterostruktur	10
2.2	Zustandsdichten	15
2.3	Schematische Darstellung der Photonenkaskade	16
2.4	Schematische Darstellung der Feinstrukturaufspaltung des Exzitonenzustandes	17
2.5	Schematische Darstellung des Einflusses der Feinstrukturaufspaltung auf die Photonenkaskade	18
2.6	Bändermodell ohne und mit angelegtem elektrischen Feld	20
2.7	Korrelationsfunktion zweiter Ordnung	25
2.8	Veranschaulichung der Photonenstatistik	27
2.9	Schematische Korrelationsfunktionen zweiter Ordnung für die Lumineszenz ei- nes Quantenpunktes	28
3.1	Schematische Darstellung des Probenaufbaus und des Bänderdiagramms . . .	30
3.2	Mikroskopische Aufnahme einer kontaktierten RTA-Probe	31
3.3	Schematischer Feldverlauf	32
3.4	Probenmaske zur Superposition zweier elektrischer Felder	32
4.1	Schematische Darstellung des Mikrophotolumineszenzaufbaus	34
4.2	Schematische Darstellung des hochauflösenden Mikrophotolumineszenzaufbaus	37
4.3	Transmissionskurven für verschiedene Finessen F^* bei idealer Reflektivität R	39
5.1	Hochauflösende Linienuntersuchung des cw-Lasers	42
5.2	Ensemblelumineszenz der RTA 970-Probe	44
5.3	Leistungsabhängige Lumineszenzmessung an einem typischen einzelnen Quan- tenpunkt der RTA 970-Probe	45
5.4	Hochauflösende Linienbreitenmessung eines Exzitonenübergangs	46
5.5	Gemessene Linienbreiten der RTA 970- und RTA 955-Proben	47
5.6	Indiz für ein Feinstruktursplitting	48
5.7	Polarisationsabhängige Intensität einer hochauflösenden Spektrallinienuntersu- chung	48
5.8	Autokorrelationsmessung des Pulsasers	50
5.9	Autokorrelation eines Quantenpunktes der RTA 970-Probe	51
5.10	Autokorrelationen verschiedener Quantenpunkte der RTA 970-Probe	52
5.11	Autokorrelation bei gepulster Anregung über die Wettinglayer	54
5.12	Vergleich von Spektren eines Quantenpunktes unter Anregung des Barrieren- bzw. Wettinglayer Materials	54

5.13 Integrierte PL-Intensität der S-Schale unter Variation der Anregungswellenlänge des Lasers	55
5.14 Feldabhängige Energielage eines exzitonen Überganges	58
5.15 Feldabhängige Lumineszenzenergie	59
5.16 Feldabhängige Lumineszenzintensität und Energie	59
5.17 Feldabhängige Lumineszenzenergie	60
5.18 Feldabhängige Lumineszenzintensität und Energie	60
5.19 Symmetrischer Stark-Effekt eines exzitonen Überganges	61
5.20 Feldabhängige Lumineszenzenergie	61
5.21 Feldabhängige Intensitäten	62
5.22 Asymmetrischer Stark-Effekt eines exzitonen Überganges	64
5.23 Feldabhängige Energie	64
5.24 Feldabhängige Energie	65
5.25 Feldabhängige Energie	65
5.26 Aufspaltung der Exziton- und Biexzitonlinie bei angelegtem elektrischen Feld	66
5.27 Aufspaltung der Exziton- und Biexzitonlinie bei angelegtem elektrischen Feld	67
5.28 Anormaler Stark-Effekt	68
5.29 Stark-Effekt unter Quasi-resonanter Anregung	68
5.30 Schematische Darstellung des Überlapps der Wellenfunktionen von Elektron Ψ_e und Loch Ψ_h bei verschiedenen Feldern	69
5.31 Berechnung des QCSE für einen Kugelförmigen QD	70
5.32 Solid Immersion Lens SIL	72
5.33 Simulationen zur 1λ -Kavität: Transmission und Reflektivität	73
5.34 Simulationen zur 1λ -Kavität: Feldamplitude und Brechungsindex	74
5.35 Übersichtsspektrum einer Insitu-Probe	75
5.36 Spektrum und Leistungsabhängigkeit unter kontinuierlicher Anregung	76
5.37 Autokorrelation unter kontinuierlicher Anregung	76
5.38 Spektrum und XX-X-Kreuzkorrelation unter kontinuierlicher Anregung	77
5.39 Autokorrelationen unter kontinuierlicher und gepulster Anregung	78
5.40 Autokorrelationen unter kontinuierlicher Anregung	78
5.41 Spektren und feldabhängige Lumineszenzenergie eines Exzitons	79
5.42 Spektren und feldabhängige Lumineszenzenergie eines Exzitons	80
5.43 Spektrum und Leistungsabhängigkeit unter kontinuierlicher Anregung	82
5.44 Hochauflösende Spektralanalyse ohne Polarisator	83
5.45 Peaklage der hochaufgelösten Exzitonlinie bei verschiedenen Polarisator Einstellungen	83
5.46 Feinstrukturaufspaltung in Abhängigkeit des elektrischen Feldes	84
5.47 Feinstrukturanalyse bei verschiedenen elektrischen Feldern	85
5.48 Feinstrukturkomponenten in Abhängigkeit des elektrischen Feldes	85
5.49 Kreuzkorrelation unter elektrischem Feld	88
5.50 Feldabhängige Rekombinationsenergie, sowie feldabhängige Intensitäten	89
5.51 Feldabhängige Rekombinationsenergie des Biexzitons, sowie feldabhängige Intensitäten	89
5.52 Spektrum und Leistungsabhängigkeit unter kontinuierlicher Anregung	90
5.53 Hochaufgelöste Spektrallinienmessung eröffnet direkte Untersuchung der Feinstruktur	91

5.54	Intensität der Feinstrukturkomponenten bei verschiedenen Polarisator Einstellungen	91
5.55	Hochaufgelöste Spektrallinienmessung des Biexzitons	92
5.56	Intensität der Feinstrukturkomponenten des XX	92
5.57	Kreuzkorrelationsmessungen der XX-X Kaskade in der Polarisationsrichtungen der Feinstrukturkomponenten.	93
5.58	Kreuzkorrelationsmessungen der XX-X-Kaskade in diagonalen Basis	94
5.59	Korrelationskontrast K	94

Tabellenverzeichnis

2.1	Fano-Faktor f	26
5.1	Messeinstellungen zur Bestimmung der Zwei-Photonen-Dichtematrix	88

Literaturverzeichnis

- [1] T. AICHELE, V. ZWILLER, AND O. BENSON, *Visible single-photon generation from semiconductor quantum dots*, New J. of Phys., 6 (2004).
- [2] H.-A. BACHOR AND T. C. RALPH, *A Guide to Experiments in Quantum Optics*, Wiley-VCH, 2 ed., 2003.
- [3] G. BESTER, S. NAIR, AND A. ZUNGER, *Pseudopotential calculation of the fine structure of million-atom self-assembled $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}/\text{GaAs}$ quantum dots*, Phys. Rev. B, 67 (2003).
- [4] D. BIMBERG, M. GRUNDMANN, AND N. N. LEDENTSOV, *Quantum Dot Heterostructures*, JOHN WILEY & SONS, 1999.
- [5] K. BRUNNER, U. BOCKELMANN, G. ABSTEITER, M. WALTER, G. BÖHM, G. TRÄNKLE, AND G. WEINMANN, *Photoluminescence from a single $\text{GaAs}/\text{AlGaAs}$ quantum dot*, PRL, 69 (1992).
- [6] C. DELERUE AND M. LANNOO, *Nanostructures - Theory and Modelling*, Springer, 2004.
- [7] W. DEMTRÖDER, *Laserspektroskopie*, Springer Verlag, 2 ed., 1977.
- [8] H. DENÈVE, J. BLONDELLE, R. BAETS, P. DEMEETER, P. V. DAELE, AND G. BORGHIS, *High efficiency planar microcavity leds: Comparison of design and experiment*, IEEE Photonics Technol. Lett., 7 (1995), p. 287.
- [9] D. EAGLESHAM AND M. CERULLO, *Dislocation-free stranski-krastanow growth of Ge on $\text{Si}(110)$* , PRL, 64 (1990).
- [10] U. FANO, *Ionization yield of radiations*, Phys. Rev., (1947).
- [11] G. FASCHING, F. F. SCHREY, W. BREZNA, J. SMOLINER, G. STRASSER, AND K. UNTERRAINER, *Photocurrent spectroscopy of single InAs/GaAs quantum dots*, Phys. Stat. Sol. C, 2 (2005), pp. 3114–3117.
- [12] R. J. GLAUBER, *Quantum theory of optical coherence*, Physical Review, 130 (1963).
- [13] H. GOTOH, H. KAMADA, H. ANDO, AND J. TEMMYO, *Lateral electric-field effects on excitonic photoemissions in InGaAs quantum disks*, APL, 76 (2000).
- [14] H. GOTOH, H. KAMADA, AND T. SAITOH, *Electric-field-induced anisotropy of excitonic optical properties in semiconductor quantum dots*, Journal of Applied Physics, 94 (2003).

- [15] M. GRUNDMANN, O. STIER, AND D. BIMBERG, *InAs/GaAs pyramidal quantum dots: Strain distribution, optical phonons, and electronic structure*, Phys. Rev. B, 52 (1995).
- [16] M. GRUNDMANN, O. STIER, AND D. BIMBERG, *Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8 – band $k \cdot p$ theory*, Phys. Rev. B, 59 (1999).
- [17] R. HANBURY-BROWN AND R. Q. TWISS, *The intensity interferometer*, Nature, 177 (1956).
- [18] J. J. FINLEY ET AL., *Quantum-confined Stark shifts of charged exciton complexes in quantum dots*, Phys. Rev. B, 70 (2004).
- [19] J. W. ROBINSON ET AL., *Quantum-confined Stark effect in a single InGaN quantum dot under a lateral electric field*, APL, 86 (2005).
- [20] T. JENNEWEIN, C. SIMON, G. WEIHS, H. WEINFURTER, AND A. ZEILINGER, *Quantum cryptography with entangled photons*, PRL, 84 (2002).
- [21] K. KOWALIK ET AL., *Influence of an electric field on fine properties of III-V and II-VI quantum dots systems*, Acta Physica Polonica A, 106 (2004).
- [22] K. KOWALIK ET AL., *Influence of electric field on fine structure of exciton complexes in CdTe/ZnTe self-assembled quantum dots*, phys. stat. sol. (c), 4 (2006).
- [23] C. KITTEL, *Einführung in die Festkörperphysik*, Oldenbourg Wissenschaftsverlag GmbH, 1987.
- [24] E. KNILL, R. LAFLAMME, AND G. J. MILBURN, *A scheme for efficient quantum computing with linear optics*, Nature, 409 (2001).
- [25] L. LANDAU, *Oscillations in a fermi liquid*, Soviet Physics JETP, 10 (1957).
- [26] L. LANDAU, *Theory of a fermi liquid*, Soviet Physics JETP, 920 (1957).
- [27] LANDOLT-BÖRNSTEIN, Springer online.
- [28] M. LEUENBERGER, D. D. AWSCHALOM, AND M. E. FLATTE, *Teleportation of eletrconic many-qubit states encoded in the electron spin of quantum dots via single photons*, PRL, 94 (2005).
- [29] X. LI, Y. WU, D. STEEL, D. GAMMON, T. H. STIEVATER, D. S. KATZER, D. PARK, C. PIERMAROCCHI, AND L. J. SHAM, *An all-optical quantum gate in a semiconductor quantum dot*, Science, 301 (2003).
- [30] R. LOUDON, *The Quantum Theory of Light*, vol. 3, Oxford, 2000.
- [31] M. BAYER ET AL., *Finestructure of neutral and charged excitons in self-assembled In-GaAs/AlGaAs quantum dots*, Physical Review B, 65 (2002), p. 195315.
- [32] T. H. MAIMAN, *Stimulated optical radiation in ruby*, Nature, 4736 (1960).
- [33] P. MICHLER, A. IMAMOGLU, M. D. MASON, P. J. CARSON, G. F. STROUSE, AND K. BURATTO, *Quantum correlation among photons from a single quantum dot at room temperature*, Nature, 406 (2000), pp. 968–970.

- [34] P. MICHLER, A. KIRAZ, C. BECHER, W. V. SCHOENFELD, P. M. PETROFF, E. H. L. ZHANG, AND A. IMAMOGLU, *A quantum dot single-photon turnstile device*, Science, 290 (2000).
- [35] D. A. B. MILLER, D. S. CHEMLA, A. C. GOSSARD, W. WIEGMANN, T. H. WOOD, C. BURRUS, AND T. C. DAMEN, *Band-edge electroabsorption in quantum well structures: The quantum-confined Stark effect*, PRL, 53 (1984).
- [36] D. A. B. MILLER, D. S. CHEMLA, A. C. GOSSARD, W. WIEGMANN, T. H. WOOD, C. A. BURRUS, AND T. C. DAMEN, *Electric field dependance of optical absorption near the band gap of quantum-well structures*, Phys. Rev. B, 32 (1985).
- [37] E. MOREAU, I. ROBERT, L. MANIN, V. THIERRY-MIEG, J. GÉRARD, AND I. ABRAM, *Quantum cascade of photons in semiconductor quantum dots*, Physical Review Letters, 87 (2001).
- [38] M. OHMORI, K. TORII, AND H. SAKAKI, *Anisotropy of the quantum-confined Stark effect in a single InAs quantum dot*, Phys. Stat. Sol. (c), 3 (2006).
- [39] P. MICHLER (EDITOR), *Single Quantum Dots - Fundamentals, Applications and New Concepts*, vol. 1, Springer-Verlag, 2003.
- [40] P. W. FRY ET AL., *Quantum confined Stark effect and permanent dipole moment of InAs-GaAs self-assembled quantum dots*, phys. stat. sol. (a), 269 (2000).
- [41] A. RASTELLI, S. M. ULRICH, E. M. PAVELESCU, T. LEINONEN, M. PESSA, P. MICHLER, AND O. SCHMIDT, *Self-assembled quantum dots for single-dot optical investigations*, Superlattices and Microstructures, 181 (2004).
- [42] J. P. REITHMAIER, G. SEK, A. LÖFFLER, C. HOFMANN, S. KUHN, S. REIZENSTEIN, L. V. KULAKOVSKII, T. L. REINECKE, AND A. FORCHEL, *Strong coupling in a single quantum dot-semiconductor microcavity system*, Nature, 432 (2004), p. 197.
- [43] RICE ET AL., *Temporal variation in photoluminescence from single InGaN quantum dots*, APL, 20 (2004).
- [44] S. RAYMOND ET AL., *State filling and time-resolved photoluminescence of excited states in InGaAs/GaAs self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B, 54 (1996).
- [45] C. SATORI, D. FATTAL, M. PELTON, G. S. SOLOMAON, AND Y. YAMAMOTO, *Polarisation-correlated photon pairs from a single quantum dot*, Phys. Rev. B, 66 (2002).
- [46] C. SATORI, D. FATTAL, J. VUCKOVIC, G. S. SOLOMAON, AND Y. YAMAMOTO, *Indistinguishable photons from a single-photon device*, Nature, 419 (2002).
- [47] E. SCHUBERT, N. HUNT, R. MALIK, M. MICOVIC, AND D. MILLER, *Temperatur and modulation characteristics of resonant-cavity light-emitting diodes*, IEEE J. Lightwave Commu., 14 (1996), p. 1721.
- [48] R. SEGUIN, A. SCHILWA, S. RODT, K. PÖTSCHKE, U. POHL, AND D. BIMBERG, *Quantum-size dependence of exciton fine-structure splitting*, Physica E, (preprint).

- [49] J. SEUFERT, M. OBERT, M. SCHEIBNER, N. A. GIPPIUS, G. BACHER, AND A. FORCHEL, *Stark effect and polarisability in a single CdSe/ZnSe quantum dot*, APL, 79 (2001).
- [50] R. M. STEVENSON, R. M. THOMPSON, A. J. SHIELDS, I. FARRER, B. E. KARDYNAL, D. A. RITCHIE, AND M. PEPPER, *Quantum dots as a photon source for passive quantum key encoding*, Phys. Rev. B, 66 (2002).
- [51] R. M. STEVENSON, R. J. YOUNG, P. ATKINSON, K. COOPER, D. A. RITCHIE, AND A. J. SHIELDS, *A semiconductor source of triggered entangled photon pairs*, Nature, 439 (2006).
- [52] R. M. STEVENSON, R. J. YOUNG, P. SEE, D. G. GEVAUX, K. COOPER, P. ATKINSON, I. FARRER, D. A. RITCHIE, AND A. J. SHIELDS, *Cancellation of fine-structure splitting in quantum dots by a magnetic field*, Physica E, preprint.
- [53] A. I. TARTAKOVSKII, M. MAKHOIN, I. SELLERS, J. CAHILL, A. ANDREEV, D. M. WHITTAKER, J.-P. R. WELLS, A. M. FOX, D. J. MOWBRAY, M. S. SKOLNICK, K. M. GROOM, M. J. STEER, H. Y. LIU, AND M. HOPKINSON, *Effect of thermal annealing and strain engineering on the fine structure of quantum dot excitons*, Physical Review B, 70 (2004), p. 193303.
- [54] S. M. ULRICH, *unknown*, Dissertation, (not published).
- [55] S. M. ULRICH, S. STRAUF, P. MICHLER, G. BACHER, AND A. FORCHEL, *Triggered polarization-correlated photon pairs from a single CdSe quantum dot*, APL, 83 (2003), pp. 1848–1850.
- [56] K. J. VAHALA, *Optical microcavities*, Nature, 424 (2003), p. 893.
- [57] H. WALTHER, *Atome im nichtklassischen licht*, Physikalische Blätter, 47 (1991).
- [58] C. WEISBUCH AND B. VINTER, *Quantum Semiconductor Structures, Fundamentals and Applications*, Academic Press, 1991.
- [59] G. W. WEN, J. Y. LIN, Z. CHEN, AND H. X. JIANG, *Quantum-confined Stark effects in semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. B, 52 (1995), p. 5913(10).
- [60] C. WILMSEN, H. TEMKIN, AND L. COLDREN, *Vertical-Cavity Surface-Emitting Lasers*, Cambridge, 1999.
- [61] O. WOLST, M. SCHARDT, M. KAHL, S. MALZER, AND G. DÖHLER, *A combined investigation of lateral and vertical Stark effect in InAs self-assembled quantum dots in waveguide structures*, Physica E, 13 (2002), pp. 283–288.
- [62] Z. YUAN, B. E. KARDYNAL, R. M. STEVENSON, A. J. SHIELDS, C. J. LOBO, K. COOPER, N. S. BEATTIE, D. A. RITCHIE, AND M. PEPPER, *Electrically driven single-photon source*, Science, 295 (2002).

Danksagung

Ich möchte mich besonders bei Herrn Prof. Dr. Michler für die ausgezeichnete Betreuung der Diplomarbeit bedanken. Der Enthusiasmus den er für diese Arbeit zeigt hat mich immer wieder von neuem motiviert.

Herrn Prof. Dr. Harald Giessen danke ich für seine Unterstützung und die Übernahme des Mitberichts.

Lijuan Wang, Dr. Armando Rastelli und Dr. habil. Oliver G. Schmidt vom Max-Planck-Institut für Festkörperforschung danke ich für die gute Kooperation und die große Mühe bei der Herstellung der vielen hochwertigen Proben.

Ich danke der ganzen Arbeitsgruppe für eine sehr gute Arbeitsatmosphäre.

Sven M. Ulrich hat mir nicht nur die Laborarbeit beigebracht sondern unterstützte mich auch während der ganzen Arbeit. Ihm kann ich gar nicht genug danken.

Ich danke Robert Roßbach für die Einführung in das Programm T-Matrix und die Diskussionen über DBRs.

Ich möchte mich auch bei meiner Familie und meinen Freunden, die mich während der Diplomarbeit vielleicht nicht oft genug gesehen haben, für deren Zuspruch und Unterstützung bedanken. Meinem alten Freund Sven Tammeler danke ich für seine Unterstützung mit dem Spannungsverstärker und Steffen Sonntag für seine Hilfe bei verschiedenen LaTeX Problemen.

Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig und nur mit den angegebenen Hilfsmitteln angefertigt habe und dass alle Stellen, die im Wortlaut oder dem Sinne nach anderen Werken entnommen sind, durch Angabe der Quellen als Entlehnung kenntlich gemacht worden sind.

Stuttgart, Feb. 2006

Moritz Vogel