
Optische Untersuchung der statischen und
dynamischen Eigenschaften von
Ladungsträgern in einzelnen
selbstorganisierten Quantenpunkten

Der Fakultät für Physik
der Universität Duisburg-Essen
zur Erlangung des akademischen Grades
eines Doktors der Naturwissenschaften
vorgelegte

- **Dissertation** -

von

Pia Lochner
geb. Eickelmann

aus
Hagen

Tag der Abgabe: 3. Februar 2021
Tag der Disputation: 27. Mai 2021

Mitglieder der Prüfungskommission:

1. Gutachter: PD Dr. Martin Geller
2. Gutachter: Prof. Dr. Klaus D. Jöns

Prüfer: Prof. Dr. Rolf Möller

Vorsitzender: Prof. Dr. Jürgen König

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden die statischen und dynamischen Eigenschaften von Ladungsträgern in einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkten in resonanten, zeitaufgelösten Messungen optisch untersucht. Durch die Einbettung der Quantenpunkte in eine maßgeschneiderte Diodenstruktur konnten diese elektrisch kontaktiert werden und mit einem Ladungsträgerreservoir wechselwirken. Die Kombination aus elektrischer Kontrolle und optischen Messungen ermöglichte es zu untersuchen, welche Folgen die Wechselwirkung der eingeschlossenen Ladungsträger mit deren Umgebung auf die Eigenschaften der Quantenpunkte hat. Diese sind insbesondere bei der Betrachtung von Quantenpunkten als potenzielle Bausteine für Qubits in Quantencomputern und -netzwerken von großer Bedeutung. Im Rahmen dieser Arbeit wurden Intensitätsverhältnisse zwischen dem Quantenpunktsignal und dem reflektierten Lasersignal in Rekordhöhe gemessen, erstmals einzelne Auger-Rekombinationen in Echtzeit beobachtet, die Emission von Ladungsträgern aus dem Quantenpunkt durch einen internen Photoeffekt nachgewiesen, eine Technik zur Verwendung eines Quantenpunkts als nanoskopisches Elektrometer eingeführt und zusätzliche Trionresonanzen bei hohen Anregungsintensitäten beobachtet.

Im Detail konnten an einer Probe, die für optische Messungen optimiert wurde, hohe Photonenzählraten in resonanter Fluoreszenz gemessen und Intensitätsverhältnisse zwischen Quantenpunkt- und reflektiertem Lasersignal erzielt werden, die je nach Messgeometrie bis zu zwei Größenordnungen über den typischen Werten aus der publizierten Literatur liegen. Als wesentlich konnte dabei die Verwendung eines Bragg-Spiegels und eines epitaktischen Gates sowie die genaue Positionierung der Quantenpunkte und der hochdotierten Schichten in der optischen Probenstruktur identifiziert werden.

Durch die hohen Photonenzählraten war es in Messungen des Telegraphenrauschens der resonanten Fluoreszenz erstmals möglich, einzelne Auger-Rekombinationsereignisse von negativ geladenen Elektron-Loch-Paaren (Trionen) in einem einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkt sowie das anschließende Beladen des Quantenpunkts mit einem Elektron aus dem Reservoir zu untersuchen. Durch die Analyse der Messungen mittels voller Zählstatistik wurden die Emissions- und Tunnelraten bestimmt. Diese lassen sich unabhängig voneinander manipulieren, sodass über sie die Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts eingestellt werden kann. Des Weiteren konnten die Kumulanten der Wahrscheinlichkeitsverteilung des Auger-Prozesses ermittelt und eine gute Übereinstimmung mit den Vorhersagen für ein 2-Zustands-System festgestellt werden, bei dem ein Zustand dem leeren und ein Zustand dem mit einem Elektron beladenen Quantenpunkt entspricht.

Befindet sich ein Elektron im Quantenpunkt, so kann dieses durch die Wechselwirkung mit einem nicht-resonanten Photon aus dem Quantenpunkt emittiert werden. Dieser sogenannte „interne Photoeffekt“ konnte hier erstmals an einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkten nachgewiesen und die beteiligten Prozesse durch ein Ratenmodell beschrieben werden. Die Emissionsrate stellte sich dabei als proportional zu der einfallenden Lichtintensität heraus. Dadurch lässt sie sich über mehrere Größenordnungen hinweg einstellen.

Gleichzeitig reagiert die Emission von Quantenpunkten sehr empfindlich auf Feldänderungen, sodass in dieser Arbeit ein einzelner Quantenpunkt als Quantensensor dazu verwendet werden konnte, Defekte in der nahen Quantenpunktumgebung zu charakterisieren. Bei dieser neuen Methode zur Defektcharakterisierung konnte in zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenzmessungen das Tunneln von Elektronen zwischen dem Reservoir und einzelnen Defektzuständen beobachtet werden. Durch die Anpassung eines Ratenmodells an die Daten konnten aus diesen Beobachtungen die Position der Defekte sowie die Aktivierungsenergien der Defektzustände bestimmt werden.

Schließlich konnten unerwartete weitere Resonanzen im Bereich der Trionresonanz beobachtet werden, welche bei hohen Anregungsintensitäten über einen weiten Gatespannungs- und Anregungsfrequenzbereich hinweg in resonanten Fluoreszenzmessungen sichtbar sind. Eine ausführliche Untersuchung dieser legt als Ursprung Übergänge des Trions nahe, jedoch sind zukünftig weitere Messungen für eine vollständige Erklärung notwendig.

Abstract

In this work, the static and dynamic properties of charge carriers in single self-assembled quantum dots were investigated in resonant, time-resolved optical spectroscopy. By embedding the quantum dots in a tailor-made diode structure, they could be electrically contacted and their interaction with a charge carrier reservoir monitored. The combination of electrical control and optical measurements made it possible to investigate how the interaction of the enclosed charge carriers with their environment affects the properties of the quantum dots. These interactions are particularly important when considering quantum dots as building blocks to host quantum bits for quantum computers and quantum networks. Record high contrast in the intensity between the quantum dot signal and the reflected laser signal were measured, single Auger recombinations were observed in real-time for the first time and the emission of charge carriers from the quantum dot by a non-resonant internal photo effect was detected. Furthermore, a technique for using a quantum dot as a nanoscopic electrometer was introduced and additional trion resonances at high excitation intensities were observed.

In detail, it was possible to measure high photon count rates in resonant fluorescence on a sample that was optimized for optical measurements and to achieve contrast in the intensity between the quantum dot and reflected laser signal that, depending on the measurement geometry, are up to two orders of magnitude higher than typical values in the published literature. A distributed Bragg reflector and an epitaxial gate as well as the exact positioning of the quantum dots and the highly doped layers in the optical sample structure were identified as essential optimizations of the sample structure.

Due to the high photon count rates, it was possible in measurements of the telegraph noise of the resonant fluorescence to investigate single Auger recombination events of trions in a single self-assembled quantum dot as well as the subsequent charging of the quantum dot with an electron from the reservoir. The emission and tunnel rates were determined by analyzing the measurements using full counting statistics. These can be manipulated independently of one another, so that the occupation probability of the quantum dot can be adjusted accordingly. Furthermore, the cumulants of the probability distribution of the Auger process could be determined and a good agreement was found with the predictions for a 2-state system, in which one state corresponds to the empty quantum dot and the other corresponds to the quantum dot charged with a single electron.

When there is an electron in the quantum dot, it can be emitted from the quantum dot by interacting with a non-resonant photon. This so-called „internal photo effect“ could be demonstrated here for the first time on single self-assembled quantum dots and the processes involved could be described by a rate model. The emission rate turned out to be proportional to the incident light intensity. This means that it can be tuned over several orders of magnitude.

Furthermore, the emission of quantum dots reacts very sensitively to field changes, so that in this work a single quantum dot could be used as a quantum sensor to characterize defects in the close vicinity of the quantum dot. With this new method for defect characterization, the tunneling of electrons between the reservoir and individual defect states could be observed in time-resolved resonant fluorescence measurements. By fitting a rate model to the data, the position of the defects and the activation energies of the defect states could be determined from these observations.

Finally, unexpected additional resonances in the area of the trion resonance were observed, which are visible in resonant fluorescence measurements at high excitation intensities in a wide range of gate voltage and excitation frequency. A detailed study of this suggests transitions of the trion as the origin, but further measurements will be necessary in the future for a complete explanation.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung und Motivation	1
2	Selbstorganisierte Quantenpunkte	3
2.1	Stranski-Krastanov-Wachstum	3
2.2	Energiestruktur	5
2.2.1	Einteilchenzustände	5
2.2.2	Exzitonen	6
2.3	Quantenpunkt in Diodenstruktur	8
2.3.1	Elektronentunneln	9
2.4	Quantenpunkt als Einzelphotonenemitter	11
2.5	Photoeffekt in eingeschränkten Systemen	12
2.6	Auger-Effekt	14
3	Optik an einzelnen Quantenpunkten	19
3.1	Probendesign	19
3.1.1	Probendesign mit metallischem Gate	19
3.1.2	Probendesign mit epitaktischem Gate und DBR	20
3.1.3	Festkörperimmersionslinse	22
3.1.4	Defekte	23
3.1.5	Lichtausbreitung in der Probe	23
3.2	Konfokales Mikroskop	26
3.2.1	Quantenpunkt im Laserfokus	29
3.2.2	Autokorrelationsmessungen	30
3.3	Nicht-resonante Messungen	30
3.3.1	Photolumineszenz	31
3.4	Resonante Messungen	32
3.4.1	Differenzielle Reflexion	35
3.4.2	Resonante Fluoreszenz	37
3.4.3	Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz	38
4	Hoher Kontrast in Reflexionsmessungen	41
4.1	Stark-Verschiebung der Exzitonresonanz	41
4.2	Resonante Fluoreszenz mit Polarisationsunterdrückung	42
4.3	Kontrastmessungen	43
4.4	Korrelationsmessungen	45
4.5	Simulation	46
4.6	Zusammenfassung	49
5	Quantenpunkt als Quantensensor	51
5.1	Diskontinuitäten der Exzitonresonanz	51
5.2	Besetzungskonfigurationen der Defekte	53
5.3	Modell der Defektbesetzung	55

5.4	Position und Aktivierungsenergie der Defekte	57
5.5	Zusammenfassung	60
6	Statistik der Auger-Emission	63
6.1	Sättigungskurve des Exzitons	63
6.2	Auger-Rekombination in dieser Probe	64
6.3	Gepulste Messung der Auger-Rekombination	65
6.4	Telegraphenrauschen und volle Zählstatistik	67
6.4.1	Telegraphenrauschen in der zwei-Farben-Messung	67
6.4.2	Analyse der Raten	69
6.4.3	Kumulanten	71
6.5	Zusammenfassung	73
7	Interne Photoemission	75
7.1	Exzitonemission im Bereich des Trions	75
7.2	Konzept des internen Photoeffekts	76
7.3	Zeitaufgelöste Messung	76
7.4	Ratenmodell	78
7.5	Anregungsintensitätsabhängigkeit	79
7.6	Gatespannungsabhängigkeit	80
7.7	Frequenzabhängigkeit	82
7.8	Zusammenfassung	83
8	Zusätzliche Trionresonanzen bei hoher Anregungsintensität	85
8.1	Anregungsintensitätsabhängigkeit	85
8.2	Anregungsfrequenzabhängigkeit	86
8.3	Überprüfung verschiedener Parameter auf Abhängigkeit	88
8.4	Korrelationsmessungen	90
8.5	Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz-Messungen	92
8.6	Vergleich verschiedener Quantenpunkte	95
8.7	Diskussion	96
8.8	Zusammenfassung	98
9	Zusammenfassung und Ausblick	99
10	Literaturverzeichnis	103

1 Einleitung und Motivation

Halbleiter finden unter anderem Anwendung in Computern, Handys und optoelektronischen Bauteilen und sind so fester Bestandteil unseres täglichen Lebens [Mutoh96, Abelein12, Yeap13, Xie16]. Von der Forschung über die Wirtschaft bis hin zur Freizeitgestaltung spielen sie eine große Rolle und bedingen wesentlich Kommunikation, Organisation, Globalisierung und Fortschritt. Gerade ohne Computer ist in unserer heutigen Welt kaum ein Lebensbereich vorstellbar. Somit überrascht es nicht, dass sich viele Forschungsfelder damit befassen, diese - auch für den kommerziellen Markt - kleiner, schneller und effizienter zu machen. Klassische Computer basieren dabei auf binärer Logik [Zhirnov03]. Für viele Anwendungsbereiche mag dies genügen, jedoch gelangen Berechnungen auf der Grundlage binärer Logik insbesondere bei der Lösung von Vielteilchenproblemen schnell an ihre Grenzen, da die Anzahl der Berechnungsschritte exponentiell mit der Anzahl der Elemente skaliert. Die Berechnungszeit übersteigt somit für viele Probleme ein Vielfaches eines Menschenlebens und macht diese Probleme quasi unlösbar.

Aus diesem Grund hat sich seit den 1980er Jahren das Forschungsfeld der Quanteninformatik etabliert [Feynman82, Deutsch85] und widmet sich einer der herausforderndsten und bekanntesten Visionen der Quantenmechanik: Der Entwicklung von Quantencomputern und Quantennetzwerken [Nielsen10, Kimble08]. In diesen werden quantenmechanische Effekte wie Verschränkung, Tunneln und Superposition zunutze gemacht, um die Speicherung und Übertragung von Informationen zu realisieren [DiVincenzo00]. Dadurch können letztendlich Prozesse parallelisiert und somit die Lösung vieler zuvor quasi unlösbaren Probleme stark beschleunigt werden. Die Basis solcher auf Quantenmechanik beruhenden Computer bilden die sogenannten Quantenbits (engl.: *quantum bits*, *qubits*) als Speichereinheiten. Zusätzlich müssen die Informationen der Qubits ausgelesen und unter Beibehaltung der Kohärenz übertragen werden können. Als Informationsträger werden aufgrund ihrer passenden Eigenschaften meist Photonen verwendet [Ekert91]. Ein großer Forschungsbereich konzentriert sich auf die Suche nach technologisch einsetzbaren Quantenbits.

Ein vielversprechender Kandidat dafür sind selbstorganisierte Quantenpunkte. Dabei handelt es sich um nanoskopisch ausgedehnte Halbleitermaterialien, die durch einen dreidimensionalen Einschluss eine diskrete Zustandsdichte ausbilden [Arakawa82, Warburton98]. Dadurch ergibt sich eine schalenartige Energiestruktur, weshalb selbstorganisierte Quantenpunkte bisweilen auch als „künstliche Atome“ bezeichnet werden. Durch die Veränderung ihrer Größe, Form und Komposition kann ihre Energiestruktur gezielt manipuliert und eingestellt werden [Wasilewski99]. Somit eignen sie sich perfekt als Modellsysteme zur Untersuchung von quantenmechanischen Effekten, Ladungsträgerdynamiken [Geller19] und -wechselwirkungen [Labud14] sowie Spin-Bahn-Eigenschaften [Vamivakas09]. Gleichzeitig können durch Ladungszustände in selbstorganisierten Quantenpunkten (wie beispielsweise Exzitonen) die benötigten Informationsspeicher für Quantencomputer realisiert werden.

Durch resonante Methoden wie der weit verbreiteten resonanten Fluoreszenz können Exzitonen in einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkten optisch erzeugt und die anschließend beim Zerfall dieser emittierten Photonen spektral hochaufgelöst ausgelesen werden [Muller07, Vamivakas09]. Eigenschaften wie hohe Photonenemissionsraten [Prechtel16], transformlimitierte Linienbreiten [Kuhl-

mann15], ununterscheidbare Photonen [Santori02], Photonenantibunching [Press07], Einzelphotonemission [Kuhn02, Zwiller02] sowie die Verschränkung von Photonen aus verschiedenen Quantenpunkten [Gao13, Delteil15] ließen sich somit bei Messungen an selbstorganisierten Quantenpunkten nachweisen und charakterisieren. Diese Eigenschaften identifizieren sie als vielversprechende Kandidaten für die Bildung von Qubits. Für die erfolgreiche Umsetzung eines Quantencomputers ist es jedoch nötig, die Qubits und ihre Wechselwirkung mit der Umgebung vollständig zu kennen, zu verstehen und so manipulieren zu können, dass eine zuverlässige Funktion des Computers gegeben ist. Dazu zählt auch, Effekte, die die Zuverlässigkeit beeinträchtigen könnten, zu identifizieren, um diese unterbinden zu können. Diese Arbeit widmet sich der weiteren Erforschung selbstorganisierter Quantenpunkte und untersucht, welche Folgen die Wechselwirkung der eingeschlossenen Ladungsträger mit deren Umgebung auf die Eigenschaften der Quantenpunkte hat. Sie stellt somit einen kleinen Beitrag zu der großen Aufgabe der Realisierung eines Quantencomputers dar.

Durch die Einbettung selbstorganisierter Quantenpunkte in eine Festkörpermatrix ist es neben den beschriebenen optischen Messungen möglich, diese elektrisch zu kontaktieren und durch das Anlegen einer Spannung sowohl ihren Beladungszustand zu kontrollieren [Drexler94] als auch die Übergangsenergie der Excitonen zu manipulieren [Li00]. Transporteigenschaften der Quantenpunkte unter der Wechselwirkung mit einem Ladungsträgerreservoir wie Tunnelprozesse [Geller10] und Besetzungssequenzen [Marquardt11] konnten jedoch lange Zeit nur an Quantenpunktensembles untersucht werden. Erst die Verbindung von optischen und Transportmessungen ermöglichte es, die Ladungsträgerdynamik in einzelnen, selbstorganisierten Quantenpunkten zu untersuchen [Kurzmann17, Kurzmann16c]. Dadurch konnten erstmals Auger-Rekombinationen in selbstorganisierten Quantenpunkten beobachtet [Kurzmann16a], ein Intensitätsabfall der Emission bei hohen Anregungsintensitäten mit einem photoneninduzierten Elektroneneinfang aus dem Ladungsträgerreservoir erklärt [Kurzmann16b] und aus Quantensprüngen durch das Tunneln eines einzelnen Elektrons in und aus dem Quantenpunkt Informationen über die Zählstatistik und die Korrelation dieses Prozesses erhalten werden [Kurzmann19].

Diese Arbeit macht sich die Kombination von optischen Messungen mit Transportmessungen an einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkten zunutze, um erstmals einzelne Auger-Rekombinationen in Echtzeit zu beobachten, um nachzuweisen, dass Ladungsträger durch einen internen Photoeffekt aus dem Quantenpunkt emittiert werden können, um Kontraste zwischen dem Quantenpunktsignal und dem reflektierten Lasersignal in Rekordhöhe zu messen und um eine Technik zur Verwendung eines Quantenpunkts als nansokopisches Elektrometer einzuführen. Dabei ist die Arbeit wie folgt gegliedert: Kapitel 2 gibt einen Überblick über selbstorganisierte Quantenpunkte, wichtige Eigenschaften dieser und für die Arbeit relevante Effekte, die an ihnen beobachtet wurden. In Kapitel 3 werden die verwendeten epitaktisch gewachsenen Proben vorgestellt, der Messaufbau eines konfokalen Mikroskops sowie die Messtechniken Photolumineszenz, differenzielle Reflexion und insbesondere resonante Fluoreszenz erklärt und in diesem Zusammenhang vertiefend auf den Quantenpunkt als 2-Niveau-System eingegangen. Anschließend folgen in Kapitel 4 bis Kapitel 8 die Ergebnisse dieser Arbeit: In Kapitel 4 wird gezeigt, dass durch ein optimiertes Probendesign sehr hohe Kontraste in Reflexionsmessungen und somit gleichzeitig zeit- und polarisationsaufgelöste Messungen möglich werden. In Kapitel 5 wird der Quantenpunkt als Quantensensor eingesetzt, um Defekte in der nahen Quantenpunktumgebung zu charakterisieren. In Messungen des Telegraphenrauschens und Auswertung nach der vollen Zählstatistik wird in Kapitel 6 die Statistik der Auger-Emission untersucht, während in Kapitel 7 zeitaufgelöste Messungen die nicht-resonante Emission von Elektronen aus dem Quantenpunkt als interne Photoemission identifizieren. Kapitel 8 zeigt die Untersuchungen zusätzlicher, nicht vollständig erklärbarer Trionresonanzen bei hoher Anregungsintensität. Zuletzt gibt Kapitel 9 eine Zusammenfassung der Arbeit sowie einen Ausblick, wie diese Arbeit weitergeführt werden könnte.

2 Selbstorganisierte Quantenpunkte

Quantenpunkte (QPe) sind nanoskopisch eingeschränkte Systeme [Warburton98] und werden aufgrund ihrer Energiestruktur auch künstliche Atome genannt [Petroff01]. Dabei unterscheidet man in kolloidale Quantenpunkte, auch Nanopartikel genannt [Dabbousi97], lithographisch definierte Quantenpunkte [Gustavsson09] und selbstorganisierte Quantenpunkte [Petroff01]. Kolloidale Quantenpunkte werden nasschemisch hergestellt und sind als Kern-Hüllen-Struktur in einer Flüssigkeit gelöst [Murray93] (siehe Abbildung 2.1(a)) oder werden in der Gasphase hergestellt [Kennedy03], während lithographische Quantenpunkte beispielsweise mittels Elektronenstrahlithographie in einer Festkörpermatrix definiert werden, wie man in Abbildung 2.1(b) sehen kann [Gustavsson06]. Selbstorganisierte Quantenpunkte werden, wie der Name schon sagt, durch selbstorganisiertes Wachstum mittels Molekularstrahlepitaxie hergestellt. Da dieses Verfahren kaum Fehlstellen in den Quantenpunkten und deren Umgebung erzeugt [Joyce85], zeichnen sich diese insbesondere durch sehr gute optische Eigenschaften aus, wie hohe Photonenemissionsraten [Prechtel16, Lochner19] und große Kohärenzlängen der emittierten Photonen [Warburton13]. Einen solchen Quantenpunkt kann man in Abbildung 2.1(c) sehen. In dieser Arbeit werden selbstorganisierte InAs/GaAs-Quantenpunkte näher untersucht. Dabei handelt es sich um InAs-Inseln auf der Nanometerskala, die von GaAs umschlossen sind. Da InAs mit 0,415 eV bei 0 K [Ioffe20] eine viel kleinere Bandlücke hat als GaAs mit 1,519 eV [Ioffe20], ergibt sich ein dreidimensionaler Potenzialtopf mit einer diskreten Energiestruktur.

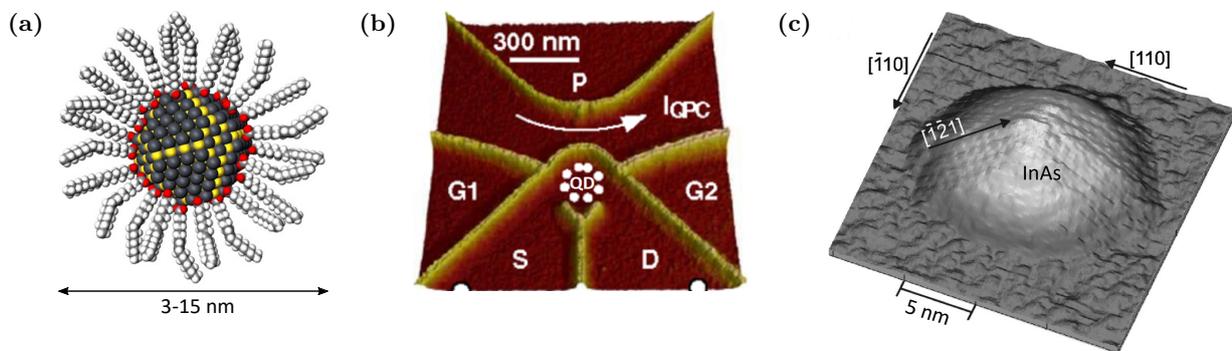


Abbildung 2.1: Verschiedene Arten von Quantenpunkten. (a) Schematische Darstellung eines kolloidalen Quantenpunkts mit Kern (gelb), Hülle (schwarz) und Liganden (weiß), nach [Liu16]. (b) Rasterkraftmikroskopbild eines lithographisch definierten Quantenpunkts nach [Gustavsson06]. (c) Rastertunnelmikroskopbild eines selbstorganisierten Quantenpunkts nach [Márquez01].

2.1 Stranski-Krastanov-Wachstum

Der selbstorganisierte Wachstumsmodus in der Molekularstrahlepitaxie nennt sich auch nach seinen Erfindern „Stranski-Krastanov-Wachstum“ [Stranski38]. Dabei wird im Ultrahochvakuum auf eine (100)-GaAs-Schicht InAs abgeschieden. Die Gitterkonstante von InAs ist mit 6,058 Å um 7 % größer als die von GaAs mit 5,653 Å [Ioffe20]. Deshalb wächst das InAs auf dem GaAs zunächst verspannt

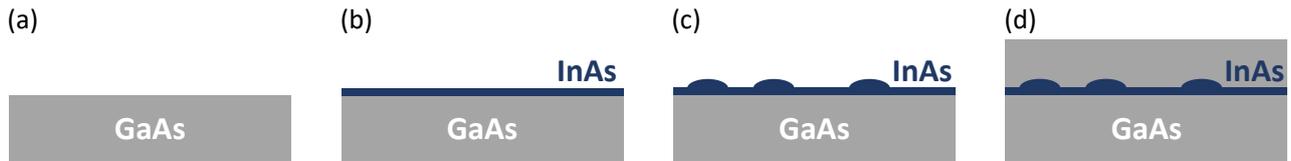


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung des Stranski-Krastanov-Wachstums. Auf eine ebene GaAs-Schicht (grau, (a)) wird InAs (blau) abgeschieden. Dieses wächst zunächst in einer verspannten Monolage auf das GaAs (b) und relaxiert ab einer Schichtdicke von 1,5 Monolagen zu InAs-Inseln, den Quantenpunkten (c). Anschließend werden die Quantenpunkte mit GaAs überwachsen (d).

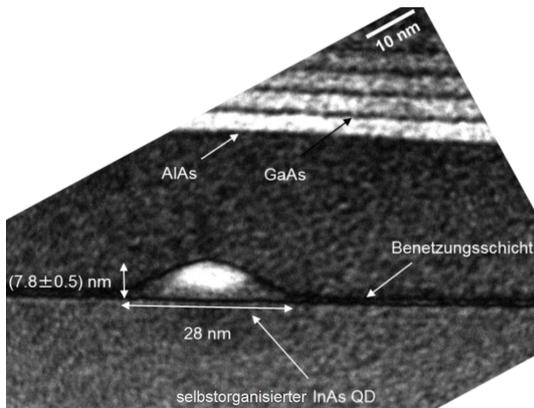


Abbildung 2.3: Transmissionselektronenmikroskop-Aufnahme eines selbstorganisierten InAs-Quantenpunkts mit Benetzungsschicht in einer GaAs-Matrix. Oberhalb des Quantenpunkts erkennt man weitere Schichten der Probenheterostruktur. [Ludwig11]

auf, bis sich nach circa 1,5 Monolagen linsenförmige InAs-Inseln bilden [Leonard94]. Die verbleibende Monolage InAs nennt man Benetzungsschicht (engl.: *wetting layer*, *WL*), während es sich bei den Inseln um Quantenpunkte handelt. Wird mehr InAs abgeschieden, erhöht sich die Quantenpunktdichte. Ab einer Schichtdicke von zwei Monolagen entstehen Versetzungen in den Quantenpunkten, sodass diese Schichtdicke nicht überschritten werden sollte. Um einen dreidimensionalen Einschluss zu erhalten, werden die InAs-Inseln abschließend mit GaAs überdeckt. Eine schematische Darstellung dieses Prozesses ist in Abbildung 2.2 zu sehen. Die typischen Dimensionen eines Quantenpunkts betragen einige Nanometer in Wachstumsrichtung und 20-30 nm in lateraler Ausdehnung [Leonard93]. Eine Mikroskopaufnahme eines solchen InAs/GaAs-Quantenpunkts ist in Abbildung 2.3 zu sehen. Hier ist der Quantenpunkt in eine Halbleiterheterostruktur eingebettet, um ihn elektrisch kontrollieren zu können.

Zusätzlich zum beschriebenen Wachstum selbst gibt es die Methode des „Indium-Ausspülens“ (engl.: *In-flush*) [Wasilewski99] und des „schnellen thermischen Temperns“ (engl.: *rapid thermal annealing*, *RTA*) [Malik97], um die quantisierten Energiezustände im Quantenpunkt zu verschieben. Beim In-flush wird dabei, nachdem die InAs-Inseln zum Teil mit GaAs bedeckt sind, eine Wachstumspause gemacht und die Substrattemperatur so stark erhöht, dass ein Teil des Indiumarsenids desorbiert und gleichzeitig Indium aus dem Quantenpunkt heraus und Gallium in den Quantenpunkt hinein diffundiert. Anschließend wird die Quantenpunktschicht ganz mit GaAs bedeckt und die Zustände im Quanten-

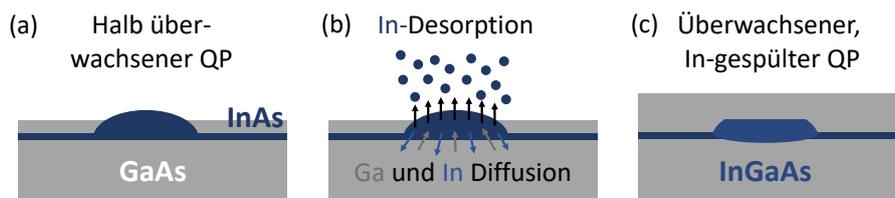


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung der In-flush-Technik. Die Probe mit dem unvollständig überwachsenen InAs-Quantenpunkt (QP) (a) wird erhitzt, sodass InAs desorbieren und Ga und In diffundieren kann (b). Anschließend wird der Quantenpunkt mit GaAs überwachsen (c).

punkt sind blauverschoben (vergleiche Abbildung 2.4). Beim RTA hingegen wird die Probe nach dem vollendeten Wachstum für eine kurze Zeit sehr stark erhitzt, sodass Indium und Gallium diffundieren, der Quantenpunkt dadurch größer wird und sich die Bandlücke des Quantenpunkts vergrößert. Auch mit dieser Methode verschieben die Energiezustände des Quantenpunkts zu höheren Werten.

2.2 Energiestruktur

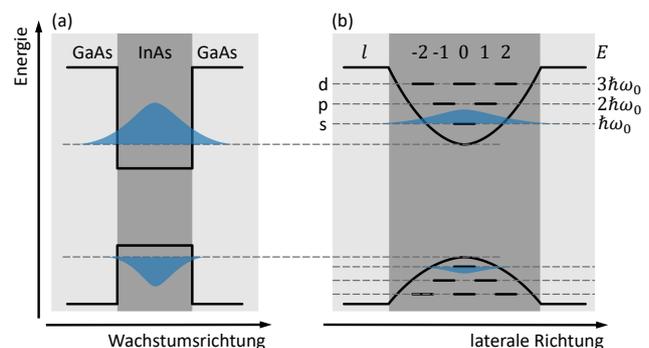
Der nanoskopische dreidimensionale Einschluss des Quantenpunkts bewirkt, dass sich in alle drei Raumrichtungen im Leitungsband und Valenzband Potenzialtöpfe für die Elektronen beziehungsweise Löcher bilden. Die Zustandsdichte wird deltaförmig und die diskrete Energiestruktur erinnert an die eines Atoms [Borovitskaya02]. Befindet sich nur ein Ladungsträger im Quantenpunkt, kann dessen Quantisierungsenergie näherungsweise im Einteilchenbild beschrieben werden. Sind mehrere Ladungsträger im Quantenpunkt gefangen, muss außerdem die Wechselwirkung der Ladungsträger untereinander berücksichtigt werden, um die Ladungskomplexe beschreiben zu können.

2.2.1 Einteilchenzustände

In beispielsweise der 8-Band- $k \cdot p$ -Theorie [Stier99] oder der Pseudopotential-Methode [Bester03] kann das Potenzial, welches sich in einem Quantenpunkt für ein Teilchen ausbildet, genau beschrieben werden. Im Folgenden wird jedoch vereinfacht das Modell eines harmonischen Oszillators zur Beschreibung der Potenziale verwendet, welches die exakte Bandstruktur und die genaue Form der Bloch-Wellen außer Acht lässt.

Da die selbstorganisierten Quantenpunkte eine sehr geringe Höhe aufweisen (siehe Kapitel 2.1), ist der Einschluss in Wachstumsrichtung (z) besonders stark. Bei niedrigen Temperaturen liegt deshalb nur der Grundzustand in z -Richtung vor (siehe Abbildung 2.5(a)). Gleichzeitig ist die laterale Ausdehnung (x, y) des Quantenpunkts viel größer, sodass hier auch Zustände oberhalb des Grundzustands erreicht werden können. Somit lässt sich das Potenzial $V(x, y, z)$, welches den Potenzialtopf beschreibt, in die Summanden $V(x, y)$ und $V(z)$ zerlegen [Hawrylak96]. Der Grundzustand in Wachstumsrichtung beschreibt dabei das Potenzialminimum in lateraler Richtung (vergleiche Abbildung 2.5(b)). Da der Quantenpunkt in Wachstumsrichtung rotationssymmetrisch zum Rand hin immer kleiner wird, wird der Quantentopf in z -Richtung immer schmaler und die Grundzustandsenergie wird immer größer. Somit ergibt sich in lateraler Richtung ein parabolisches Einschlusspotenzial, welches durch den zweidimensionalen harmonischen Oszillator $V(x, y) = \frac{1}{2}m^*\omega_0^2(x^2 + y^2)$ beschrieben werden kann (siehe Abbildung 2.5(b)) [Warburton98]. ω_0 ist dabei die Eigenfrequenz des harmonischen

Abbildung 2.5: Energiestruktur des Quantenpunkts. (a) In Wachstumsrichtung ist der Einschluss so stark, dass nur der Grundzustand existiert. (b) In lateraler Richtung ergibt sich ein parabolisches Einschlusspotenzial, die Energieniveaus sind äquidistant und werden äquivalent zum Atom als s-, p- und d-Niveau bezeichnet. [Kurzmann17, Kerski18].



Oszillators. Die Wellenfunktion kann nun in adiabatischer Näherung richtungsabhängig separiert werden, wodurch die Schrödingergleichung entkoppelt. Als Lösung ergibt sich für die Energieniveaus im Quantenpunkt [Fock28]

$$E_{n,l} = \hbar\omega_0(2n + |l| + 1), \quad n \in \mathbb{N}_0, \quad l \in \mathbb{Z}. \quad (2.1)$$

Dabei ist n die Hauptquantenzahl und l die Bahnquantenzahl. Wie in einem Atom bilden sich nun also die Energiezustände aus. Für $n = 0$ und $l = 0$ ergibt sich der zweifach spinentartete s-Zustand, für $n = 0$ und $l = \pm 1$ der jeweils zweifach spinentartete p₊- beziehungsweise p₋-Zustand und für $(n, l) = (0, \pm 2)$ und $(1, 0)$ die ebenfalls zweifach spinentarteten d₀₋, d₊- und d₋-Zustände.

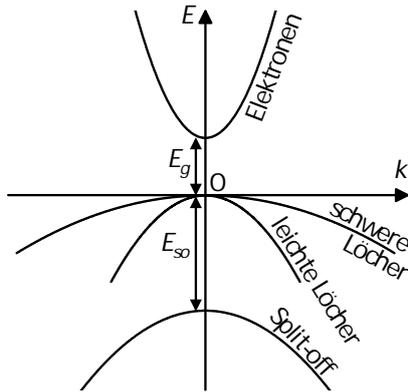


Abbildung 2.6: Bandstruktur eines ausgedehnten Halbleiters um den Γ -Punkt ($k = 0$). Die Bänder des schweren und leichten Lochs sind am Γ -Punkt entartet, das Split-off-Band ist um E_{so} verschoben.

Im Valenzband spielt für die Löcher zusätzlich noch die Spin-Bahn-Kopplung eine Rolle. Dies liegt daran, dass das Valenzband aus atomaren p-Zuständen hervorgeht, während das Leitungsband s-artig ist. Somit ergeben sich im Valenzband Zustände mit den Gesamtdrehimpulsquantenzahlen $j = l + s = 3/2$ und $j = l - s = 1/2$, wobei l die Bahnquantenzahl und s die Spinquantenzahl ist [Schubert06, Kapitel 15.3]. Aus $j = 3/2$ ergibt sich in Kombination mit der z-Komponente des Gesamtdrehimpulses $m_z = \pm 3/2$ beziehungsweise $m_z = \pm 1/2$. Dabei handelt es sich um „schwere“ beziehungsweise „leichte Löcher“. Im ausgedehnten Halbleiter sind diese beiden am Γ -Punkt entartet (siehe Abbildung 2.6). Im Quantenpunkt hingegen bewirkt die größere effektive Masse der schweren Löcher, dass die Zustände tiefer im Quantenpunkt liegen. Aus diesem Grund können die leichten Löcher in den meisten Fällen vernachlässigt werden. Neben dem schweren und leichten Loch-Band ergibt sich aus

$j = 1/2$ und $m_z = \pm 1/2$ ein weiteres, abgespaltenes Energieband (engl.: *split off*), welches um die Energie E_{so} verschoben ist [Schubert06, Kapitel 15.3]. Aus diesem Grund spielt es im Folgenden ebenfalls keine weitere Rolle.

2.2.2 Exzitonen

Wird beispielsweise durch optische Anregung (vgl. Kapitel 3) ein Elektron aus dem Valenzband ins Leitungsband angeregt, entsteht gleichzeitig ein Loch im Valenzband, welches elektrostatisch an das Elektron gebunden ist. Bei diesem Elektron-Loch-Paar spricht man von einem Exziton [Grundmann95, Gross14, Kapitel 11.6.4]. Hierbei unterscheidet man zwischen Frenkel-Exzitonen, die stark an einen Atomrumpf gekoppelt sind und Mott-Wannier-Exzitonen, die schwach gebunden sind und deren Ausdehnung somit wesentlich größer als die Kristallgitterkonstante ist. Im hier behandelten Materialsystem liegen Mott-Wannier-Exzitonen vor. Befindet sich so ein Exziton im Quantenpunkt, zerfällt es irgendwann und gibt seine Energie zum Beispiel in Form von Licht ab. Weil Photonen einen Drehimpuls von $\pm\hbar$ haben, können optische Übergänge nur von Zuständen im Leitungsband zu Zuständen im Valenzband stattfinden, bei denen die Drehimpulsdifferenz ebenfalls $\pm\hbar$ entspricht [Schubert06, Kapitel 11.3]. Da das Leitungsband s-artig ($m_z = \pm 1/2$) und das Valenzband p-artig ($m_z = \pm 3/2$) ist, trifft dies auf Übergänge von s zu s oder d₀, p₋ zu p₋, p₊ zu p₊, d₀ zu d₀ oder s, d₋ zu d₋ und d₊ zu d₊ zu. Diese abgestrahlte Photonenenergie ist charakteristisch für den Quantenpunkt und gibt somit Auskunft über Form, Ausdehnung und Material des Quantenpunkts [Marzin94]. Ein Anteil der Rekombinationsenergie sind die nach Formel 2.1 berechneten Quantisierungsenergien vom Elektron $E(e)$ und vom Loch $E(h)$, ein weiterer Anteil ergibt sich durch die Bandlücke des Quantenpunktmaterials

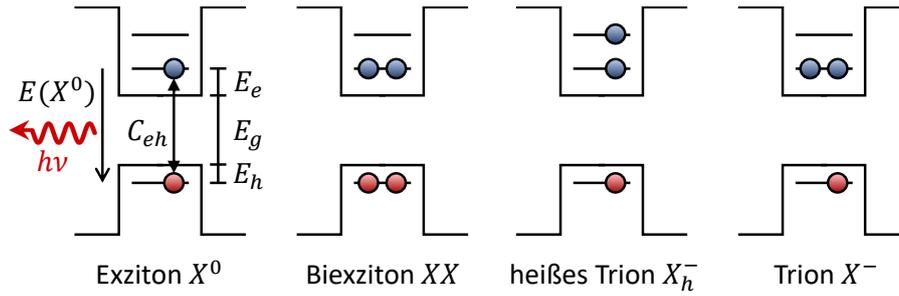


Abbildung 2.7: Exzitonkomplexe im Quantenpunkt. Das Exziton besteht aus einem Elektron und einem Loch, das Biexziton setzt sich aus zwei Elektronen und zwei Löchern zusammen, das Trion besteht aus zwei Elektronen und einem Loch und beim heißen Trion ist eines der Elektronen angeregt. Die Rekombinationsenergie des Exzitons $E(X^0)$ kann in Form von Licht mit einer Frequenz ν abgegeben werden und setzt sich aus der Bandlückenenergie E_g , den Quantisierungsenergien E_e und E_h und der Coulombwechselwirkung zwischen Loch und Elektron C_{eh} zusammen.

$E_g(QD)$. Zusätzlich spielt die Coulomb-Wechselwirkung zwischen dem negativ geladenen Elektron und dem positiv geladenen Loch eine Rolle. Diese lässt sich für zwei Ladungsträger i und j nach

$$C_{i,j} = \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \iint \frac{|\psi_i(r_i)|^2 |\psi_j(r_j)|^2}{|r_i - r_j|} dr_i dr_j \quad (2.2)$$

berechnen [Warburton98]. Dabei ist q die Ladung, ψ_i und ψ_j sind die Wellenfunktionen der Ladungsträger und $|r_i - r_j|$ ist der Abstand der Ladungsträger. Somit wird bei der Rekombination eines Exzitons im Quantenpunkt die Energie

$$E(X^0) = E_g(QD) + E(e) + E(h) + C_{eh} \quad (2.3)$$

frei (siehe Abbildung 2.7, links) [Dalgarno08]. Da das Elektron und das Loch eine attraktive Coulomb-Wechselwirkung aufeinander ausüben, ist die Energie des Exzitons geringer als die eines ungebundenen Elektrons und Lochs. Neben dem neutralen, einfachen Elektron-Loch-Paar X^0 , können auch geladene Exzitonen vorliegen. Sind zwei Elektronen und ein Loch im Quantenpunkt geladen, so spricht man vom einfach negativ geladenen Exziton X^- oder auch Trion (siehe Abbildung 2.7, rechts) mit der Energie [Dalgarno08]

$$E(X^-) = E_g(QD) + 2E(e) + E(h) + 2C_{eh} + C_{ee}. \quad (2.4)$$

Ob das Trion energetisch ober- oder unterhalb der Exzitonenergie liegt, hängt vom Überlapp der Wellenfunktionen in den Coulomb-Termen ab. Da in InAs-Quantenpunkten die effektive Masse der Löcher die der Elektronen übersteigt, dominiert C_{eh} und die Trionenergie ist geringer als die des Exzitons. Ist im Trion nur eines der Elektronen im s-Zustand und das andere angeregt im p-Zustand, so spricht man vom heißen Trion X_h^- (engl.: *hot trion*) [Jovanov11]. Sind zwei Elektronen und zwei Löcher im Quantenpunkt geladen, handelt es sich um ein Biexziton XX (siehe Abbildung 2.7, Mitte, [Stevenson06]). Auch höher geladene Exzitonen, sowohl negativ mit Elektronen, als auch positiv mit Löchern, können im Quantenpunkt vorliegen [Ediger07], sind in dieser Arbeit jedoch von keiner größeren Relevanz.

Feinstruktur

Bei genauerer Betrachtung des Exzitons X^0 mit dem s-artigen Elektron (Spin 1/2) und dem p-artigen Loch (Spin 3/2) wird klar, dass es eine Aufspaltung in vier verschiedene Zustände mit den Gesamtdrehimpulskonfigurationen ± 1 und ± 2 geben muss, da durch sich durch die Addition der Drehimpulse neue Zustände bilden. Dabei nennen sich die Zustände mit Gesamtdrehimpuls ± 1 helle Exzitonen, weil sie unter Aussendung eines Photons rekombinieren können, während die Exzitonen

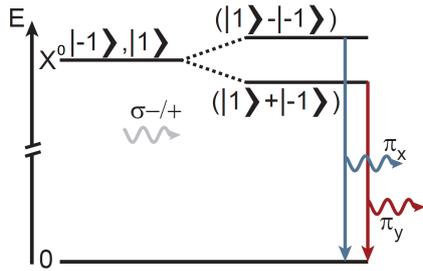


Abbildung 2.8: Feinstrukturaufspaltung der Exzitonemission. Durch die Asymmetrie des Quantenpunkts spaltet der entartete Zustand in zwei Linearkombinationen der hellen Zustände $|1\rangle$ und $|-1\rangle$ auf, bei deren Zerfall linear polarisiertes Licht π_x beziehungsweise π_y emittiert wird. [Kurzmann17]

risierte Photonen (π_x und π_y). Doch selbst in rotationsymmetrischen Quantenpunkten kann eine Feinstrukturaufspaltung beobachtet werden, da trotz alledem auf atomarer Ebene Asymmetrien des unterliegenden Gitters vorliegen können und die Spin-Bahn-Kopplung der Elektronen und Löcher zu berücksichtigen ist [Bester03].

mit ± 2 dunkle Exzitonen sind [Bayer02]. Die Energieartung der dunklen und hellen Exzitonen ist aufgrund der Austauschwechselwirkung zwischen dem Elektron und dem Loch aufgehoben. Des Weiteren kann eine Aufspaltung des hellen Exzitons in zwei Zustände beobachtet werden (Abbildung 2.8). Dies lässt sich durch die Symmetriebrechung der nicht perfekt rund gewachsenen Quantenpunkte erklären. Durch die Brechung der Rotationssymmetrie mischen die hellen Zustände $|1\rangle$ und $|-1\rangle$, welche beim Zerfall links (σ^+) beziehungsweise rechts zirkular polarisierte Photonen (σ^-) emittiert hätten, zu neuen Energiezuständen [Högele04]. Dies sind die Linearkombinationen $|1\rangle + |-1\rangle$ und $|1\rangle - |-1\rangle$ aus ihnen. Somit sind die emittierten Photonen linear polarisiert. Die Ausrichtung dieser ist senkrecht beziehungsweise parallel zur Anisotropieachse des Quantenpunkts. Somit emittieren die beiden neuen Eigenzustände senkrecht zueinander polarisierte Photonen (π_x und π_y).

Das Trion hingegen zeigt keine Feinstrukturaufspaltung, da das s-Niveau im Leitungsband zweifach besetzt ist. Somit gibt es keine Austauschwechselwirkung zwischen den Elektronen und dem Loch [Högele04]. Erst im Magnetfeld kann eine energetische Aufspaltung der Trionemission aufgrund des Zeeman-Effekts beobachtet werden [Zeeman97]. Dabei verschiebt wie beim Exziton ein Maximum zu größeren und ein Maximum zu niedrigeren Energien [Akimov02].

2.3 Quantenpunkt in Diodenstruktur

Um selbstorganisierte Quantenpunkte besser untersuchen zu können, werden sie für gewöhnlich in eine Halbleiterheterostruktur eingebettet, die einer Diodenstruktur entspricht (vergleiche Abbildung 2.9) [Drexler94]. Diese kann man sich wie einen Plattenkondensator vorstellen, in dessen Feld der Quantenpunkt liegt. Eine Platte wird von einer Schicht entartet negativ dotiertem GaAs gebildet, die sich auch Rückkontakt nennt. Über eine Tunnelbarriere aus GaAs und AlGaAs ist der Quantenpunkt an den Rückkontakt gekoppelt. Die Tunnelkopplung wird dabei schwächer, wenn die Tunnelbarriere dicker oder höher (zum Beispiel durch AlGaAs, welches eine größere Bandlücke hat

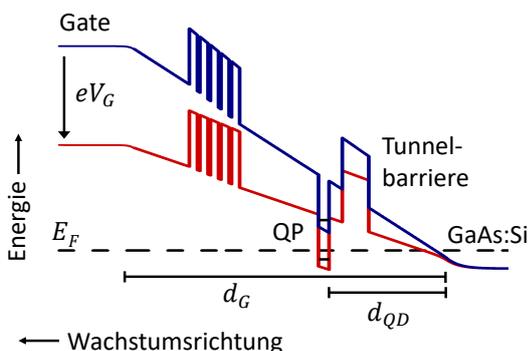


Abbildung 2.9: Schematische Darstellung der Leitungsbandkante eines in eine Diodenstruktur eingebetteten Quantenpunkts QP. Der Quantenpunkt ist durch eine Tunnelbarriere vom Silizium-dotierten GaAs-Rückkontakt getrennt. Durch Anlegen einer Gatespannung V_G lässt sich die Bandstruktur verkippen und Niveaus des Quantenpunkts in Resonanz mit der Fermi-Energie E_F des Rückkontakts bringen (rot). Erstellt mit 1D-Poisson Solver [Snider13].

als GaAs) wird [Schubert06, Kapitel 9]. Die zweite Platte des Plattenkondensators wird von einem Gate gebildet. Dieses kann entweder ein Metall auf der Oberfläche der Probe sein, an der sich demnach ein Schottky-Kontakt ausbildet [Schottky39], oder aber eine Schicht entartet positiv dotiertes GaAs [Ludwig17]. In diesem Fall würde es sich bei der Diodenstruktur um eine p-i-n-Diode handeln. Wie in Dioden üblich, sind die Energiebänder auch ohne eine angelegte Spannung durch die eingebaute Spannung U_S (engl.: *built-in*, im Fall der Schottky-Diode auch Schottky-Spannung genannt) nicht flach, sondern verkippt [Sze06, Kapitel 3], wie die blaue Bandstruktur in Abbildung 2.9 zeigt. Legt man eine Spannung U_G an das Gate der Diode an, verändert sich die Verkipfung (rote Bandstruktur in Abbildung 2.9). Bei positiver Spannung wird die Verkipfung flacher, während sie bei negativer Spannung noch stärker wird. Da das elektrische Feld zwischen den Kontakten näherungsweise linear abfällt, lässt sich die Energie durch das elektrische Feld am Quantenpunkt mithilfe des geometrischen Hebelarms

$$E_{QD} = \frac{e(U_G + U_S)}{\lambda}, \quad \lambda = \frac{d_G}{d_{QD}} \quad (2.5)$$

beschreiben [Medeiros-Ribeiro95]. Dabei ist λ als Hebelarm das Verhältnis aus dem Abstand zwischen Gate und Rückkontakt d_G und dem Abstand zwischen Quantenpunkt und Rückkontakt d_{QD} .

Im Quantenpunkt selbst bildet sich beispielsweise durch die räumliche Trennung von Ladungen durch unterschiedliche effektive Massen und Asymmetrie des Quantenpunkts ein permanentes Dipolmoment aus [Warburton02]. Bei einer an die Diode angelegten Spannung wechselwirkt das elektrische Feld am Quantenpunkt mit dem Dipolmoment. Zusätzlich verschieben sich die Ladungen im Quantenpunkt und induzieren ein weiteres Dipolmoment, welches mit dem Feld wechselwirkt. Die Verschiebung der Ladungen bedeutet außerdem eine veränderte Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Zustände im Quantenpunkt. Bei einer größeren Verkipfung des Bands sinkt die Energie der Zustände weiter in den Potenzialtopf und die Rekombinationsenergie von einem Elektron mit einem Loch verringert sich, wie in Abbildung 2.10 dargestellt wird. Dies wird auch Stark-Effekt (engl.: *quantum confined Stark effect*) genannt [Li00]. Die Veränderung der Rekombinationsenergie eines Exzitonkomplexes ist parabelförmig und kann durch

$$E_X = E_0 - pF + \beta F^2 \quad (2.6)$$

beschrieben werden [Fry00, Warburton02]. Dabei ist F das angelegte elektrische Feld, E_0 die Energie des ungestörten Exzitons, p das permanente Dipolmoment des Zustands und β die Polarisation. Zusätzlich können auch Ladungen in der Umgebung des Quantenpunkts, wie zum Beispiel Störstellen, das effektive Feld am Quantenpunkt verändern und so zu einer Veränderung der Rekombinationsenergie führen [Kerski18].

2.3.1 Elektronentunneln

Durch das Verkippen der Bandstruktur kann außerdem der Beladungszustand des Quantenpunkts kontrolliert werden. Kommt ein Quantenpunktzustand in Resonanz mit der Fermi-Energie des Rück-

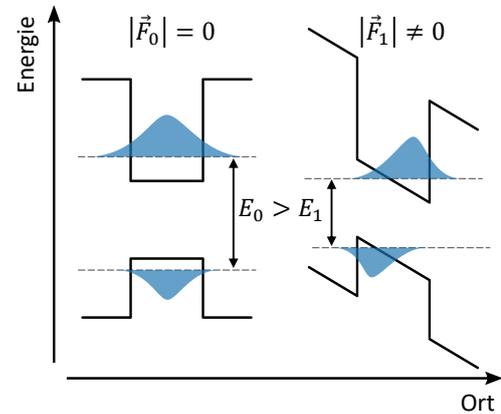


Abbildung 2.10: Auswirkung des Stark-Effekts auf die Elektron- und Lochzustände im Quantenpunkt. Durch ein elektrisches Feld $|\vec{F}|$ am Quantenpunkt verändert sich die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen und Löcher im Quantenpunkt und der energetische Abstand E zwischen Elektron und Loch verringert sich. Nach [Kerski18].

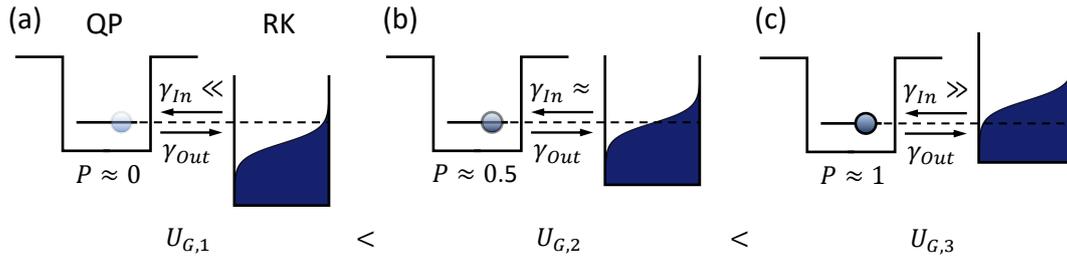


Abbildung 2.11: Verschiebung des Quantenpunktzustands gegen die Fermi-Verteilung im Rückkontakt mittels Gatespannung U_G . (a) Die Spannung $U_{G,1}$ bringt nur wenige Zustände des Rückkontakts RK in Resonanz mit dem Quantenpunktniveau, die Tunnelrate der Elektronen aus dem Quantenpunkt γ_{out} übersteigt also die Tunnelrate der Elektronen in den Quantenpunkt γ_{in} und der Quantenpunkt QP ist nahezu unbesetzt. (b), (c) Mit steigender Spannung kommen mehr Zustände des Rückkontakts in Resonanz und die Besetzungswahrscheinlichkeit P des Quantenpunkts steigt, bis nahezu immer ein Elektron im Quantenpunkt geladen ist.

kontakts, kann ein Elektron aus dem Rückkontakt in den Quantenpunkt tunneln [Luyken99], wie es in der roten Bandstruktur in Abbildung 2.9 der Fall ist. In den hier verwendeten Proben liegt die Tunnelspannung des ersten Elektrons in den s-Zustand oberhalb von 0 V. Soll ein zweites Elektron in den s-Zustand des Quantenpunkts geladen werden, muss eine Gatespannung angelegt werden, die das Band nach dem Hebelarmgesetz so weit nach unten zieht, dass die Coulomb-Blockade überwunden werden kann und das s_2 -Niveau in Resonanz mit der Fermi-Energie des Rückkontakts kommt. Genauso verhält es sich mit den p- und d-Zuständen, bis irgendwann eine Bandverkipfung erreicht ist, bei der die Benetzungsschicht des Quantenpunkts beladen würde [Eickelmann16]. Häufig jedoch legt man Spannungen die so hoch sind, dass die Benetzungsschicht beladen werden könnte, nicht an die Probe an, um einen Diodendurchbruch und die Zerstörung der Probe zu verhindern. Somit lässt sich die Ladungskonfiguration des Quantenpunkts genau durch die Gatespannung steuern [Luyken99].

Bei einer größeren Temperatur als 0 K verschmiert die Fermi-Energie im Rückkontakt thermisch [Dirac26] und es gibt keine diskrete Gatespannung, bei der der Quantenpunkt beladen wird. Liegt eine Gatespannung an, bei der durch die thermische Verteilung nur wenige Zustände des Rückkontakts in Resonanz mit dem Quantenpunktniveau sind, übersteigt die Tunnelrate der Elektronen aus dem Quantenpunkt γ_{out} die Tunnelrate der Elektronen in den Quantenpunkt γ_{in} und die Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts mit einem Elektron ist gering (Abbildung 2.11a). Bei höherer Gatespannung hingegen übersteigt die Tunnelrate der Elektronen in den Quantenpunkt die Tunnelrate der Elektronen aus dem Quantenpunkt und die Wahrscheinlichkeit der Besetzung des Quantenpunkts mit einem Elektron nimmt zu (Abbildung 2.11b,c). Dadurch kann die Fermi-Verteilung des Rückkontakts mit der Gatespannung abgetastet werden [Kurzmann16c].

Beim Tunneln in den s-Zustand des Quantenpunkts macht es jedoch einen Unterschied, ob der Quantenpunkt leer oder mit einem Exziton beladen ist. Die Differenz zwischen diesen beiden Zuständen liegt bei einigen 10 mV Gatespannung, wobei das Tunneln ins Exziton bei niedrigeren Gatespannungen möglich ist als das Tunneln in den leeren Quantenpunkt (vergleiche Abbildung 2.12(a)) [Seidl05]. Zusätzlich liegt aufgrund der Spinartung eine sogenannte optische Blockade vor, wenn der Quantenpunkt mit einem Exziton beladen ist, wie Abbildung 2.12(b) zeigt. Ist der Quantenpunkt leer, hat ein Elektron zwei mögliche Kanäle, um in den Quantenpunkt zu tunneln, da das s-Niveau spinentartet ist. Ist ein Exziton im Quantenpunkt geladen, ist schon ein s-Zustand besetzt und das Elektron kann nur noch einen Kanal nutzen, um in den Quantenpunkt zu gelangen. Wird also durch optische Anregung ein Exziton im Quantenpunkt erzeugt, verringert sich die Tunnelwahrscheinlichkeit eines Elektrons in den Quantenpunkt [Kurzmann16c].

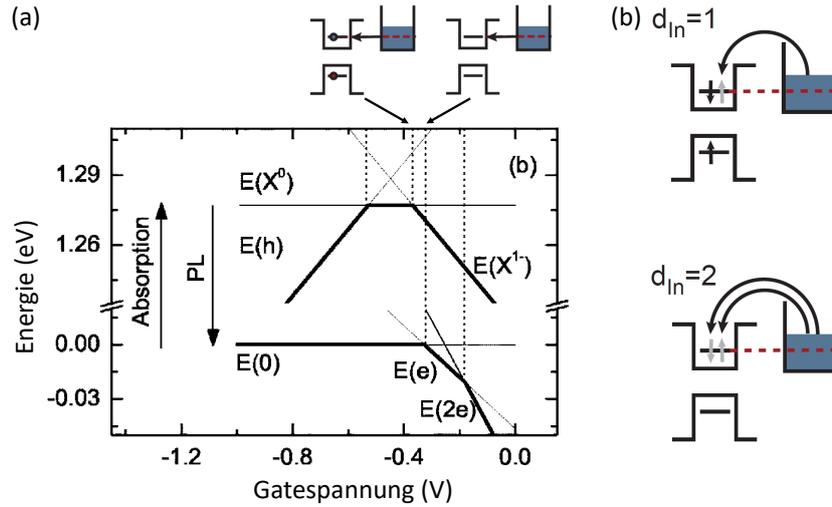


Abbildung 2.12: (a) Gatespannungsabhängige Energien der Quantenpunktzustände: Leerer Quantenpunkt ($E(0)$), ein Elektron ($E(e)$), zwei Elektronen ($E(2e)$), ein Loch ($E(h)$), ein Exziton ($E(X)$) und ein Trion ($E(X^-)$). Der Übergang X zu X^- liegt energetisch unterhalb des Übergangs 0 zu e . (b) Mögliche Tunnelkanäle d_{In} in einen Quantenpunkt. In den leeren Quantenpunkt kann ein Elektron mit Spin hoch oder Spin runter tunneln, in den mit einem Exziton besetzten Quantenpunkt ist nur eine Spinausrichtung beim Tunneln möglich. Nach [Seidl05] und [Kurzmann17].

2.4 Quantenpunkt als Einzelphotonenemitter

Einzelne Photonen sind von Interesse als Transmitter für Quanteninformationen [Kimble08]. In einzelnen Quantenpunkten können einzelne Photonen erzeugt werden, denn liegt nur ein einzelner exzitonischer Zustand im Quantenpunkt vor, so muss dieser zunächst (zum Beispiel unter Aussendung eines Photons) zerfallen, bevor er erneut erzeugt werden kann und das nächste Photon von ihm ausgehen kann. Zur Untersuchung von Lichtquellen auf ihre Emissionseigenschaft verwendet man die sogenannte Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung. Während die Funktion erster Ordnung ein Maß für die Fluktuationen des elektrischen Feldes der Strahlung ist, beschreibt die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung die Fluktuationen der emittierten Intensität [Fox06, Kapitel 6.3]. Allgemein lässt sich die Funktion über den Erzeugungs- und Vernichtungsoperator \hat{a}^\dagger und \hat{a} zur Zeit τ nach dem Zeitpunkt t beschreiben [Scully97, Kapitel 4.2]:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}^\dagger(t+\tau) \hat{a}(t+\tau) \hat{a}(t) \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}(t) \rangle^2}. \quad (2.7)$$

$\langle \dots \rangle$ ist dabei der Mittelwert über eine hinreichend lange Messzeit. Von besonderem Interesse ist das Verhalten der Funktion für $\tau \rightarrow 0$, da dies den Charakter des Lichts offenbart. Für eine klassische elektromagnetische Welle lässt sich die Funktion durch die klassische Intensität I ausdrücken [Lounis05, Fox06, Kapitel 6.3]:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t) I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2}. \quad (2.8)$$

Aus der Cauchy-Schwarz'schen-Ungleichung ergibt sich, dass immer $g^{(2)}(\tau) \leq g^{(2)}(0)$ und $g^{(2)}(0) \geq 1$ gelten muss [Thorn04]. Somit liegt bei klassischem Licht bei $\tau = 0$ immer ein Maximum vor. Das heißt, dass die Photonen immer in Bündeln auftreten, was auch „Bunching“ (engl. für Bündelung) genannt wird. Die beiden Extreme der klassischen Lichtquellen sind thermisches Licht, bei dem maximale Intensitätsfluktuationen vorliegen und $g^{(2)}(0) = 2$ ist und kohärentes Licht wie beispielsweise bei

einem Laser, bei dem $g^{(2)}(0) = 1$ ist.

In einer quantenmechanischen Betrachtung des Lichts muss die Intensität in die Anzahl von emittierten Photonen überführt werden und die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung gibt nun Auskunft darüber, mit welcher Wahrscheinlichkeit nach einer Zeit $t + \tau$ ein Photon emittiert wird, wenn zum Zeitpunkt t bereits ein Photon emittiert wurde. Dadurch wird $g^{(2)}(0) < 1$ möglich und man spricht von „Photon-Antibunching“, also ungebündelten Photonen, die zeitlich und räumlich separiert sind [Fox06, Kapitel 6.5]. Beschreibt man das Licht durch Fock-Zustände, so ergibt sich $g^{(2)}(0) = 1 - 1/n$, wobei n die Anzahl gleichzeitig emittierter Photonen beschreibt. Für den Fall einer idealen Einzelphotonenquelle, die immer nur ein Photon gleichzeitig emittiert, erhält man also $g^{(2)}(0) = 0$. Für $n = 2$ ergibt sich $g^{(2)}(0) = 0,5$, sodass man ab $g^{(2)}(0) < 0,5$ von einer Einzelphotonenquelle spricht [Heindel13, Kapitel 2.3]. Für ein 2-Niveau-System, wie den resonant getriebenen optischen Übergang in einem Quantenpunkt (vergleiche Kapitel 3.4), lässt sich die Autokorrelation zweiter Ordnung einer Einzelphotonenquelle durch

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - \left(\cos(\mu\tau) + \frac{3\Gamma}{4\mu} \sin(\mu\tau) \right) e^{-3\Gamma\tau/4}, \quad (2.9)$$

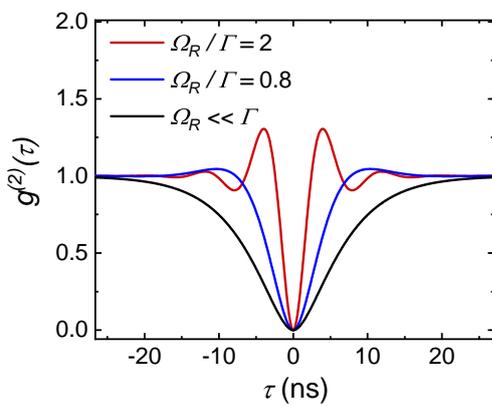


Abbildung 2.13: Autokorrelation zweiter Ordnung für ein 2-Niveau-System für verschiedene Anregungsleistungen beziehungsweise Verhältnisse Ω_R/Γ . Für die Zeichnung wurde $\Gamma = 0,4 \text{ GHz} \approx 1,6 \mu\text{eV}$ und $|\tau|$ verwendet.

mit $\mu = \sqrt{\Omega_R^2 - \Gamma^2/16}$ beschreiben [Scully97, Kapitel 10]. Dabei ist Γ die Halbwertsbreite des Übergangs und Ω_R die Rabi-Frequenz (vergleiche Kapitel 3.4), welche nach $\Omega_R^2 \propto p$ mit der Anregungsleistung p zusammenhängt. Der theoretische Kurvenverlauf der Autokorrelation zweiter Ordnung für einen perfekten Einzelphotonenemitter ist für verschiedene Anregungsleistungen in Abbildung 2.13 dargestellt. Bei hohen Leistungen kommt es zu Überschwingern in den Flanken und das Minimum bei $\tau = 0$ wird schmaler, da die Lebensdauer des Zustands kleiner wird. Bei niedrigen Leistungen ($\Omega_R \ll \Gamma$) verhält sich die Funktion wie $g^{(2)}(\tau) \approx (1 - \exp(-\Gamma\tau/2))^2$ [Gerry04].

Zusätzliche wichtige Eigenschaften von Einzelphotonenquellen sind eine lange Kohärenzzeit und die Ununterscheidbarkeit der ausgesandten Photonen [Nguyen11, Schöll19].

2.5 Photoeffekt in eingeschränkten Systemen

Beim Photoeffekt (oder auch lichtelektrischer Effekt) wird die Energie eines absorbierten Photons auf einen gebundenen Ladungsträger übertragen, sodass dieser angeregt und aus seiner Bindung gelöst wird (siehe Abbildung 2.14) [Meschede10, Kapitel 9.1.2]. Damit ein Photoeffekt stattfinden kann, muss die Photonenenergie mindestens der Bindungsenergie des Ladungsträgers entsprechen. Es handelt sich also um eine nicht-resonante optische Anregung von einem gebundenen Zustand in ein Kontinuum. Dabei unterscheidet man drei Formen des Photoeffekts: Der äußere photoelektrische Effekt, oder auch Photoemission genannt, beschreibt das Herauslösen eines Elektrons aus einer Halbleiter- oder Metalloberfläche. Diese Form des Photoeffekts ist historisch gesehen sehr wichtig, da sie als erstes entdeckt wurde und den Weg zur Quantenmechanik geebnet hat [Hertz87, Einstein05]. Beim inneren photoelek-

trischen Effekt wird ein Ladungsträger innerhalb eines Halbleiters angeregt, sodass dessen elektrische Leitfähigkeit zunimmt [Herrmann94]. Er wird beispielsweise in Photodetektoren genutzt, um an Defekte gebundene Ladungsträger ins Leitungs- beziehungsweise Valenzbandkontinuum anzuheben und über die so erhöhte Leitfähigkeit Photonen zu detektieren [Renker09]. Beim atomaren Photoeffekt, oder auch Photoionisation genannt, wird ein einzelnes Atom beziehungsweise Molekül ionisiert [Cooper62]. In der Einzel-Atom-Spektroskopie wird dieser Effekt als sehr nachteilig angesehen, da er ein einzelnes neutrales Atom durch die Ionisation aus seiner magneto-optischen Falle löst [Henkel10]. Im Folgenden werden diese drei Licht-Materie-Wechselwirkungen unter dem Begriff „Photoeffekt“ zusammengefasst und nicht weiter zwischen ihnen unterschieden. Da beim Photoeffekt die Energie eines Photons auf einen Ladungsträger übertragen wird, ist der Photoeffekt linear von der Lichtintensität abhängig: Es können idealerweise immer genauso viele Ladungsträger angeregt werden, wie Photonen vorhanden sind.

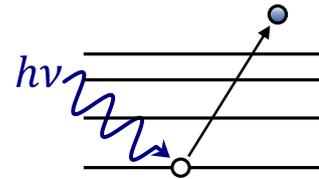


Abbildung 2.14: Schematische Darstellung des Photoeffekts: Die Energie eines Photons wird auf ein gebundenes Elektron übertragen, wodurch dieses aus seiner Bindung gelöst wird.

Auch in den hier verwendeten Probenstrukturen spielt der Photoeffekt eine Rolle [Kurzmann16b, Kurzmann17]. In resonanten Fluoreszenzmessungen (vergleiche Kapitel 3.4.2) an einer Probe mit schwacher Tunnelkopplung des Quantenpunkts an das Ladungsträgerreservoir konnte von Kurzmann et al. das Trion in Gatespannungsbereichen beobachtet werden, wo der Quantenpunkt im Gleichgewicht leer sein und somit die Anregung eines Trions eigentlich nicht möglich sein sollte. Zeitaufgelöste Messungen unter der Anregung eines resonanten und eines nicht-resonanten Lasers konnten zeigen, dass Elektronen aus dem Rückkontakt durch Laserphotonen angeregt und im Quantenpunkt wieder eingefangen werden können. Der Quantenpunkt ist somit mit einem (oder mehreren) Elektron(en) besetzt und das Trion kann angeregt werden, bis dieses wieder aus dem Quantenpunkt heraustunnelt (siehe Abbildung 2.15(a)). Die Einfangrate von Photonen aus dem Rückkontakt in den Quantenpunkt stellte sich dabei als linear abhängig von der anregenden Laserleistung heraus (siehe Abbildung 2.15(b)). Außerdem konnte beobachtet werden, dass sich das Maximum des resonant angeregten Übergangs im Quantenpunkt nach Einschalten der Photoemission aus dem Rückkontakt zu niedrigeren Gatespannungen hin verschiebt (siehe Abbildung 2.15(c)). Dies wurde auf die Ansammlung von photo-emittierten Ladungsträgern in der Umgebung des Quantenpunkts zurückgeführt. Die hier beschriebene Erzeugung von Photoelektronen aus dem Rückkontakt und der anschließende Einfang in den Quantenpunkt spielen insbesondere bei hohen anregenden Laserintensitäten eine große Rolle, da sie den Beladungszustand des Quantenpunkts verändern und somit die Anregung des Gleichgewichtszustands verhindern.

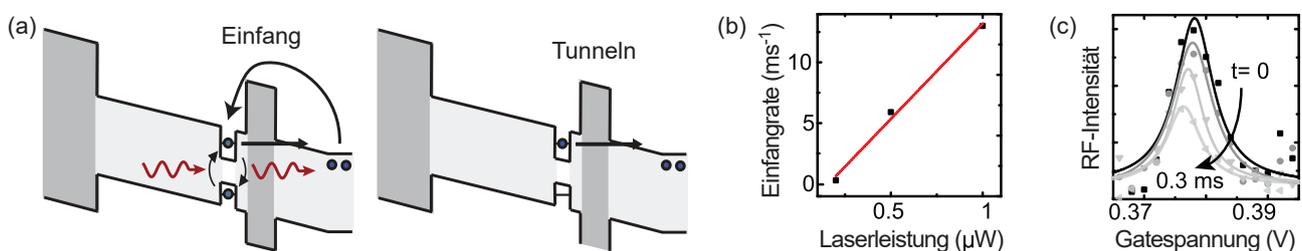


Abbildung 2.15: Einfang von Photoelektronen. (a) Schematische Darstellung: Durch Laserphotonen angeregte Elektronen aus dem Rückkontakt können in den Quantenpunkt relaxieren (links), die diesen besetzen und eine resonante Anregung des Exzitons verhindern, bis sie wieder in den Rückkontakt tunnelt (rechts). (b) Abhängigkeit der Einfangrate der Elektronen in den Quantenpunkt von der einfallenden Laserleistung. (c) Zeitliche Veränderung der resonanten Fluoreszenz (RF) des resonant angeregten Übergangs im Quantenpunkt nach dem Einschalten der Photoemission. [Kurzmann16b, Kurzmann17]

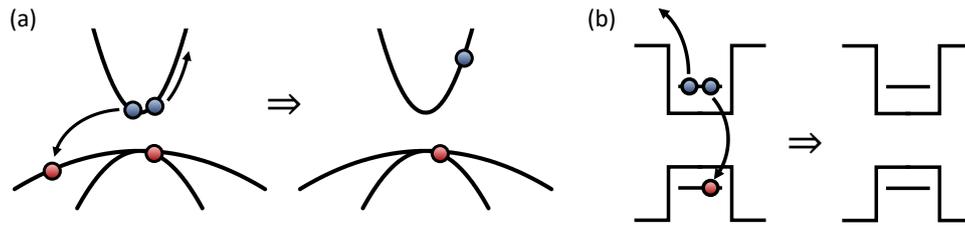


Abbildung 2.16: Schematische Darstellung des Auger-Effekts. (a) Im ausgedehnten Festkörper können bedingt durch die Impulserhaltung nur hoch-energetische Ladungsträger nach dem Auger-Prinzip rekombinieren. (b) Im Quantenpunkt kann durch die Impulsunschärfe und erhöhte Coulomb-Wechselwirkung die Rekombinationsenergie eines Elektron-Loch-Paars auf ein weiteres Elektron übertragen werden, welches daraufhin angeregt wird.

2.6 Auger-Effekt

Die Auger-Rekombination ist ein strahlungsloser Übergang, bei dem die Relaxationsenergie eines Ladungsträgers auf einen anderen übertragen wird. Dieser befindet sich daraufhin in einem angeregten Zustand [Meitner22]. Dabei muss der Impuls erhalten bleiben, sodass der Auger-Effekt im ausgedehnten Festkörper nur bei hoch-energetischen Ladungsträgern unter Übertragung des Translationsimpulses beobachtet werden kann (siehe Abbildung 2.16(a)) [Beattie59]. In stark eingeschränkten Systemen wie Quantenpunkten spielt der Auger-Effekt eine große Rolle, da der Impuls unscharf wird und die Ladungsträger besonders nah beieinander sind. Die somit erhöhte Coulomb-Wechselwirkung vergrößert bei einer Rekombination die Wahrscheinlichkeit der Energieübertragung auf einen weiteren Ladungsträger, statt die frei werdende Energie beispielsweise in Form eines Photons abzugeben [Robel09].

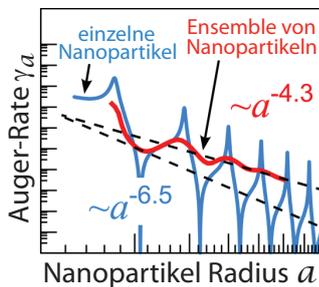


Abbildung 2.17: Abhängigkeit der Auger-Rate vom Radius der Nanopartikel. Die Rate nimmt mit zunehmendem Radius ab. Nach [Vaxenburg15].

In den meisten Fällen genügt die Rekombinationsenergie, um den dritten Ladungsträger aus dem Potentialtopf zu heben (vergleiche Abbildung 2.16(b)). In kolloidalen Quantenpunkten wurde dieser Effekt bereits intensiv untersucht [Efros97, Fisher05, Jha09], da er die optische Effizienz von Bauteilen mit kolloidalen Quantenpunkten stark verringert. Dabei wurde festgestellt, dass die Abhängigkeit der Auger-Rekombinationsrate γ_a vom Radius der Nanopartikel a im Mittel durch $\gamma_a \propto a^{-6,5}$ beschrieben werden kann (siehe Abbildung 2.17) [Vaxenburg15]. Die Auger-Raten in kolloidalen Quantenpunkten liegen somit in der Größenordnung von Nanosekunden [Klimov00]. Für selbstorganisierte Quantenpunkte mit einem mittleren Durchmesser von 5 nm lässt sich eine Rate von $1 \mu\text{s}^{-1}$ abschätzen. Jedoch wurde lange vermutet, dass der Auger-Effekt in diesen Systemen keine Rolle spielt.

In den nachfolgend dargestellten Untersuchungen von Kurzmann et al. einer Probe, in der der Quantenpunkt nur eine schwache Tunnelkopplung zum Rückkontakt hatte, konnte der Auger-Effekt allerdings mittels optischen Zwei-Farben- und zeitaufgelösten resonanten Messungen in selbstorganisierten Quantenpunkten nachgewiesen werden [Kurzmann16a, Kurzmann17]. Betrachtet man die resonante Fluoreszenz (vergleiche Kapitel 3.4) des Exzitons und Trions abhängig von der Gatespannung, so erkennt man, dass die Resonanzen aufgrund des Stark-Effekts (siehe Kapitel 2.3) zu höheren Anregungsfrequenzen verschieben (Abbildung 2.18(a)). Das Exziton ist nur bei Gatespannungen beobachtbar, bei denen der Quantenpunkt im Gleichgewicht ungeladen ist und das Trion kann nur bei Spannungen angeregt werden, bei denen im Gleichgewicht ein Elektron im Quantenpunkt geladen ist. Regt man jedoch bei einer solchen Gatespannung gleichzeitig das Trion und das Exziton an (blauer

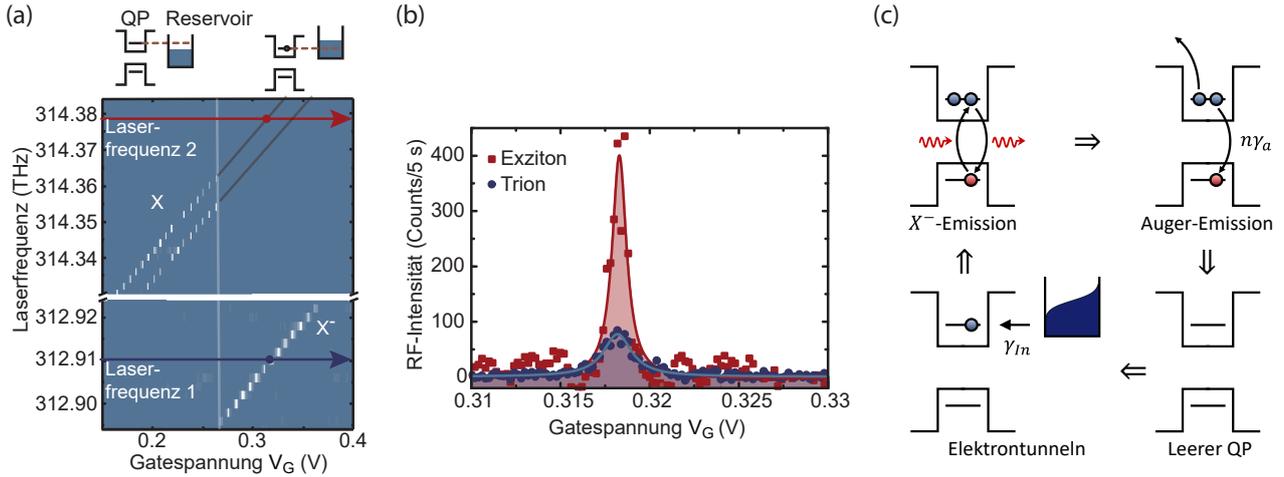


Abbildung 2.18: Auger-Emission in Quantenpunkten (QP). (a) Resonante Fluoreszenz (RF) des Exzitons X und Trions X^- abhängig von der Gatespannung und Laserfrequenz. Die vertikale Linie kennzeichnet die Spannung, ab der der Quantenpunkt im Gleichgewicht mit einem Elektron besetzt ist. Strahlt man zeitgleich zwei Laser mit den Frequenzen 1 und 2 ein (blauer (X^- -Resonanz) und roter Pfeil (X -Resonanz) in (a)), spaltet das von der Probe kommende Signal spektral auf und betrachtet die Frequenzen 1 beziehungsweise 2, so erhält man die blaue beziehungsweise rote Kurve in (b). Das Exziton (rot) kann bei Gatespannungen beobachtet werden, wo im Gleichgewicht ein Elektron den Quantenpunkt besetzt und der Exzitonübergang verboten ist. (c) erklärt dies schematisch: Im Gleichgewicht ist ein Elektron im Quantenpunkt geladen und das Trion (X^-) kann resonant angeregt werden (oben links). Durch eine Auger-Rekombination (oben rechts) kann der Quantenpunkt geleert werden (unten rechts), sodass Exzitonübergänge möglich sind und Trionemission ist erst wieder beobachtbar, wenn ein Elektron aus dem Rückkontakt in den Quantenpunkt getunnelt ist (unten links). [Kurzmann17, Kurzmann16a]

und roter Pfeil in Abbildung 2.18(a)) und löst das Messsignal spektral auf, so lässt sich zusätzlich zu der Trionresonanz außerdem ein Signal bei der Exzitonfrequenz beobachten (Abbildung 2.18(b)). Die Erklärung dafür gibt Abbildung 2.18(c): Bei einem Zerfall des Trions durch Auger-Rekombination wird die Energie auf das zweite Elektron im Quantenpunkt übertragen, sodass dieses aus dem Quantenpunkt emittiert wird. Der Quantenpunkt ist daraufhin leer und das Exziton kann resonant getrieben werden, bis ein Elektron in den Quantenpunkt tunnelt.

In zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenzmessungen konnte der Auger-Effekt genauer untersucht werden (Abbildung 2.19 und 2.20). Die Gatespannung wurde dabei so gewählt, dass im Quantenpunkt im Gleichgewicht ein Elektron geladen ist. Zum Zeitpunkt $t = 0$ wurde ein Laser eingeschaltet, der resonant das Trion bei dieser Gatespannung anregt. Abbildung 2.19(a) zeigt die entsprechenden Messungen für steigende Laserleistung und somit steigende Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts mit einem Trion n . Zum Zeitpunkt $t = 0$ ist der Quantenpunkt mit einem Elektron präpariert, sodass zu Beginn in jedem Fall das Trion angeregt werden kann. Anschließend nimmt das Signal der resonanten Fluoreszenz des Trions aufgrund von Auger-Rekombinationen ab. Diesen entgegen steht das Elektronentunneln aus dem Rückkontakt. Nach einiger Zeit wird ein Gleichgewicht zwischen Auger-Emission und Elektronentunneln erreicht und das resonante Fluoreszenzsignal bleibt konstant. Die Ratengleichung, welche die zeitliche Entwicklung der dargestellten Auger- und Tunnelprozesse beschreibt, konnte zu

$$P(t) = \frac{\gamma_{In} + n\gamma_a e^{-(\gamma_{In} + n\gamma_a)t}}{\gamma_{In} + n\gamma_a} \quad (2.10)$$

bestimmt werden. $P(t)$ ist dabei die Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts mit einem Elektron, γ_{In} die Tunnelrate in den Quantenpunkt und n die Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts mit einem Trion. Anpassungen dieser Gleichung sind in rot in Abbildung 2.19(a) zu sehen. Die

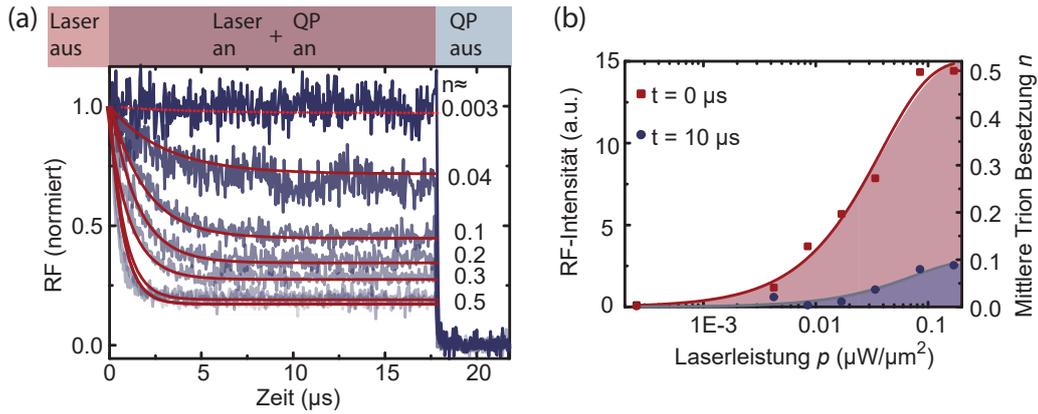


Abbildung 2.19: Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz (RF)-Messungen des Trionsignals bei verschiedenen anregenden Laserleistungen. (a) Das Trionsignal nimmt nach Einschalten des Lasers ($t = 0$) aufgrund von Auger-Emission ab, bis sich ein stationärer Zustand zwischen Auger-Emission und Elektrontunneln in den Quantenpunkt einstellt. Je heller das Blau der Messkurve, desto höher die Laserleistung und die entsprechende Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts mit einem Trion n . Die roten Kurven sind Anpassungen nach Gleichung (2.10). (b) RF-Intensität des Trions abhängig von der Laserleistung $0 \mu\text{s}$ (rot) und $10 \mu\text{s}$ (blau) nach Einschalten des Lasers. Für größere Zeiten ist die Intensität deutlich geringer. [Kurzmann17, Kurzmann16a]

Auger-Rate wurde somit zu $2,3 \mu\text{s}^{-1}$ bestimmt. Abbildung 2.19(b) zeigt die resonante Fluoreszenzintensität abhängig von der Laserleistung zum Zeitpunkt $t = 0$ und im Gleichgewicht ($t = 10 \mu\text{s}$). Die Intensität zu Beginn übersteigt die Intensität im Gleichgewicht um ein Vielfaches.

Zuletzt konnte der Einfluss der Auger-Emission auf die Linienbreite der Trionresonanz bestimmt werden. Dazu wurden die zeitabhängigen Messungen bei unterschiedlich starken Verstimmungen von der Resonanz durch eine Verstellung der Gatespannung wiederholt. Dabei konnte festgestellt werden, dass die Linienbreite sich mit zunehmender Zeit nach Einschalten des Lasers vergrößert (Abbildung 2.20(a)), die Auger-Emission also die Resonanz verbreitert. Messungen bei verschiedenen Laserleistungen bestätigten diese Beobachtungen und konnten eine Linienverbreiterung von $t = 0$ bis zum Gleichgewicht ($t \rightarrow \infty$) um einen Faktor von etwa zwei quantifizieren (Abbildung 2.20(b)). Für diese beiden Fälle können die Linienbreiten durch

$$w(t = 0) = \frac{2}{T_2} \sqrt{1 - \Omega_R^2 T_1 T_2} \quad (2.11)$$

beziehungsweise

$$w(t \rightarrow \infty) = \frac{1}{T_2} \sqrt{\frac{T_2^2 w(t = 0)^2 (\gamma_a + 2\gamma_{In}) - 4\gamma_a}{2\gamma_{In}}} \quad (2.12)$$

beschrieben werden (Linien in Abbildung 2.20(b)). Dabei charakterisieren T_1 und T_2 die spontane Emission und Dephasierung und Ω_R ist die leistungsabhängige Rabi-Frequenz (siehe Kapitel 3.4). Begründet liegt die Linienverbreiterung in der Veränderung der Relaxationsrate $\gamma_m = \gamma_{In} + n\gamma_a$ abhängig von der Verstimmung (siehe Abbildung 2.20(c)): Die mittlere Besetzung des Quantenpunkts mit einem Trion n und somit auch die Wahrscheinlichkeit für eine Auger-Rekombination wird kleiner, je größer die Verstimmung ist. Somit fällt die Verringerung der Intensität durch Auger-Rekombinationen in den Flanken geringer aus als in der Mitte der Resonanz und die Linie wird breiter.

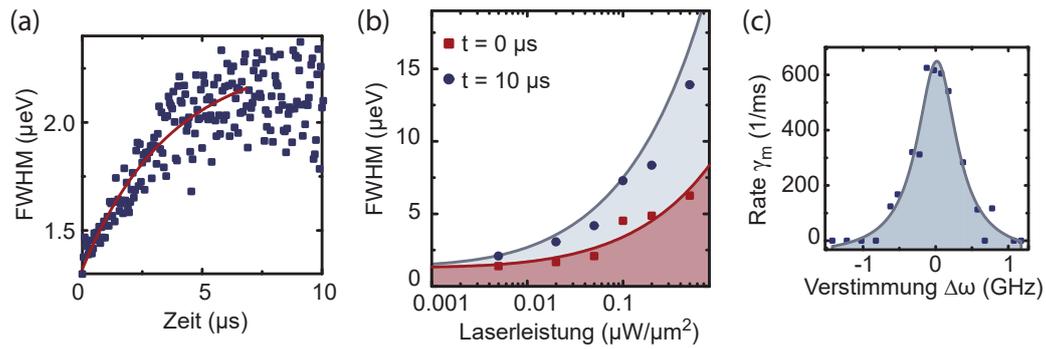


Abbildung 2.20: Einfluss der Auger-Emission auf Eigenschaften der Trionresonanz in resonanten Fluoreszenzmessungen. (a) Linienbreite (FWHM) der Trionresonanz bei einer bestimmten Laserleistung abhängig von der Zeit nach dem Einschalten des Lasers. Die rote Kurve ist die Anpassung mit einer Exponentialfunktion. (b) Linienbreite der Trionresonanz abhängig von der Laserleistung $0 \mu\text{s}$ (rot) und $10 \mu\text{s}$ (blau) nach Einschalten des Lasers. Die rote Kurve ist eine Anpassung nach Gleichung (2.11), die blaue Kurve wurde ohne Anpassungsparameter nach Gleichung (2.12) eingezeichnet. (c) Relaxationsrate $\gamma_m = \gamma_{In} + n\gamma_a$ abhängig von der Verstimmung vom Maximum der Trionresonanz. [Kurzmann17, Kurzmann16a]

3 Optik an einzelnen Quantenpunkten

Da selbstorganisierte Quantenpunkte in eine Festkörpermatrix eingebettet sind, können diese recht einfach elektrisch kontaktiert und entsprechend manipuliert werden [Drexler94]. Möchte man einzelne Quantenpunkte untersuchen, eignen sich dazu vor allem optische Messmethoden, da man bei einer ausreichend geringen Quantenpunktdichte und einer guten Fokussierung des Lichts einzelne Quantenpunkte in den Fokus nehmen kann [Vamivakas09]. Dadurch eröffnet sich die Möglichkeit, Quanteneffekte, Ladungsdynamiken und optische Eigenschaften von einzelnen künstlichen Atomen und nicht nur am Ensemble zu untersuchen [Yilmaz10, Kurzmann16c, Kuhlmann13a, Gazzano18]. Die dazu notwendigen Probendesigns, Messaufbauten und -techniken sowie einige physikalische Hintergründe werden im Folgenden genauer erläutert.

3.1 Probendesign

Die in dieser Arbeit untersuchten Proben wurden mittels Molekularstrahlepitaxiewachstums hergestellt und anschließend photolithographisch prozessiert, um sie elektrisch zu kontaktieren. Die zwei verschiedenen Probendesigns, die hier zur Untersuchung einzelner Quantenpunkte verwendet werden, werden im Folgenden vorgestellt.

3.1.1 Probendesign mit metallischem Gate

In der Molekularstrahlepitaxieanlage wird auf ein GaAs-Substrat zunächst 100 nm GaAs und dann ein kurzperiodisches Übergitter (engl.: *short periodic superlattice*, *SPS*) aus 30 Zyklen je 2 nm AlAs und 2 nm GaAs aufgewachsen. Diese Schichten dienen dazu, die Oberfläche zu glätten und mögliche Defekte einzufangen, sodass die wesentliche Probenstruktur möglichst glatt und defektfrei ist [Petroff84]. Nach weiteren 300 nm GaAs folgt eine 50 nm dicke Schicht GaAs, die entartet mit Silizium dotiert ist, sodass eine Ladungsträgerdichte von etwa $2 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ entsteht. Diese Schicht dient als Rückkontakt beziehungsweise Elektronenreservoir. Die daran anschließenden 15 nm GaAs, 10 nm $\text{Al}_{0,34}\text{Ga}_{0,66}\text{As}$ und 5 nm GaAs trennen die InAs-Quantenpunktanlage vom Rückkontakt und bilden somit die Tunnelbarriere. Die entsprechende Dicke und Höhe der Barriere resultiert in Tunnelraten in der Größenordnung von Millisekunden [Kurzmann16c]. Während die gesamte restliche Probenstruktur für eine möglichst hohe Homogenität unter Rotation des Substrats hergestellt wird, wird die Rotation für einen Teil des Quantenpunktwachstums angehalten. Dadurch entsteht ein Gradient in der Dichte der Quantenpunkte [Ma03]. Für optische Messungen am einzelnen Quantenpunkt wird eine Dichte von weniger als einem Quantenpunkt pro μm^2 benötigt, da nur so gewährleistet werden kann, dass sich nur ein Quantenpunkt im optischen Fokus befindet. Jedoch entspricht dies einer sehr geringen Dichte, die nur knapp über dem Punkt liegt, wo sich aus der verspannten Monolage InAs Quantenpunkte bilden [Leonard94]. Somit ist diese Situation sehr schwer zu erreichen. Durch das Gradientenwachstum ist sichergestellt, dass es eine Stelle auf der Probe gibt, an der die Quantenpunktdichte der benötigten Quantenpunktdichte entspricht. Die nach dem Stranski-Krastanov-Wachstum aufgebrauchten InAs-Quantenpunkte

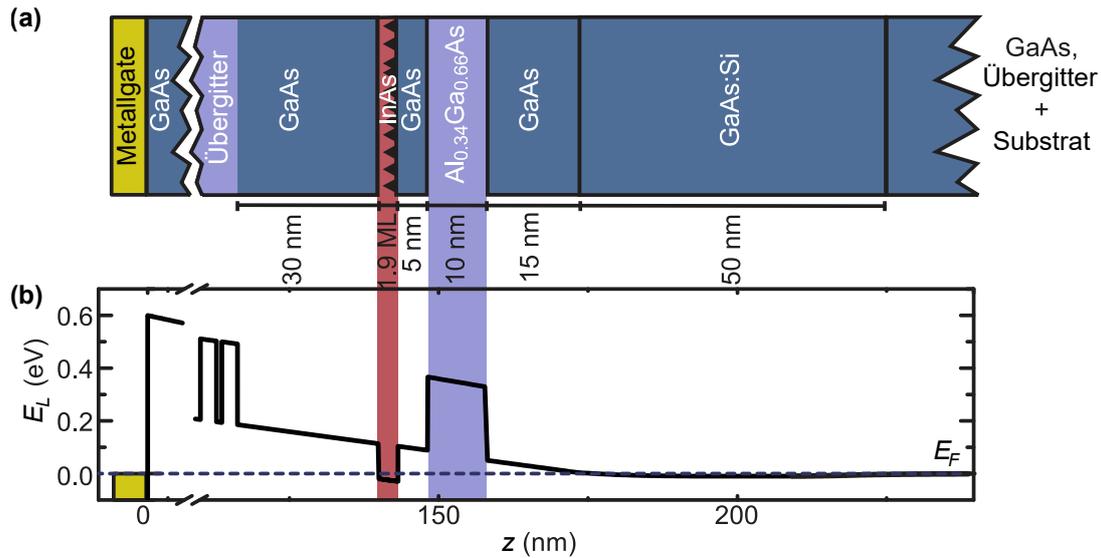


Abbildung 3.1: (a) Schematische Darstellung der Probenstruktur mit metallischem Gate in Wachstumsrichtung z mit InAs-Quantenpunkten (rot), Si-dotiertem Rückkontakt (GaAs:Si) und GaAs/AlGaAs-Tunnelbarriere (zwischen Rückkontakt und Quantenpunkten). Das Gate wird durch eine Metallschicht auf der Oberfläche gebildet (gelb). (b) Leitungsbandkante E_L der Probe. Nach [Kurzmann17].

(vergleiche Kapitel 2.1) werden während des Überwachsens mit 30 nm GaAs Indium-geflusst (vergleiche Abbildung 2.4), um die Energiezustände in den Quantenpunkten blau zu verschieben. Darauf folgt ein 25-faches Übergitter aus je 3 nm AlAs und 1 nm GaAs. Dieses Übergitter dient der Blockade eines möglichen Stroms durch die Probe, wenn das Band durch eine angelegte Spannung so verkippt wird, dass es flacher wird (vergleiche Kapitel 2.3). Zuletzt schließt eine 10 nm dicke GaAs-Schicht die Probe ab und schützt die Oberfläche vor Oxidation.

Nach dem Wachstum wird ein Probenstück mit der passenden Quantenpunktdichte photolithographisch prozessiert, um elektrische Kontakte zu definieren. Zur Kontaktierung des Rückkontaktes werden Ni, AuGe und Au aufgedampft und anschließend für 10 min bei 400 °C ausgeheizt. Dabei werden Germanium- und Gallium-Atome im Material ausgetauscht, wodurch eine leitende Verbindung zum Rückkontakt entsteht. Das Gate soll für die optischen Messungen transparent bleiben und besteht deshalb aus einer 7 nm Schicht NiCr. Jedoch wurde dieses noch mit 100 nm Au am Rand versehen, um es leichter kontaktieren zu können. Eine schematische Darstellung der Probenstruktur und der zugehörigen Leitungsbandkante ist in Abbildung 3.1 zu sehen.

Das Wachstum der Probe wurde am Lehrstuhl für Angewandte Festkörperphysik von Prof. Wieck in Bochum durchgeführt (Probennummer 14560), die Prozessierung wurde von Annika Kurzmann in Duisburg vorgenommen [Kurzmann17].

3.1.2 Probendesign mit epitaktischem Gate und DBR

In optischen Messungen soll für eine leichtere Detektion auch kleiner Signale eine möglichst hohe optische Effizienz der Probe erreicht werden. Dafür sollte das Dipolmoment des Quantenpunkts sehr gut an das anregende Lichtfeld gekoppelt sein, gleichzeitig sollten möglichst viele der vom Quantenpunkt emittierten Photonen die Probe wieder verlassen können. Deshalb wird hier ein optimiertes Probendesign für optische Messungen vorgestellt. Die vier wesentlichen Unterschiede sind dabei

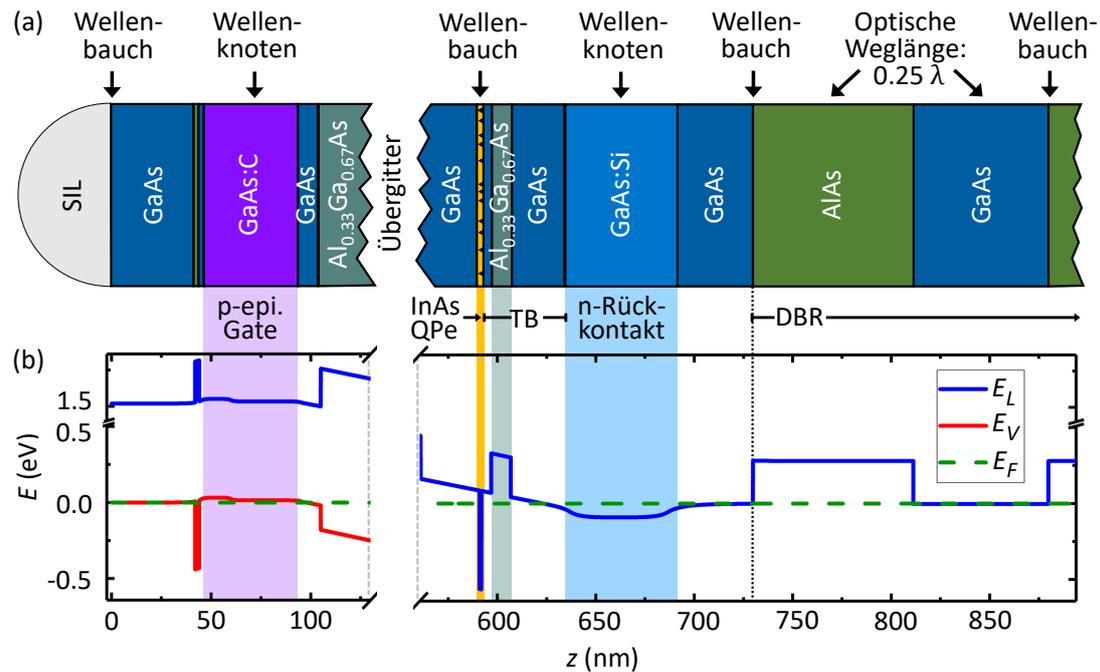


Abbildung 3.2: (a) Schematische Darstellung der optimierten Probenstruktur in Wachstumsrichtung z mit InAs-Quantenpunkten (orange), Si-dotiertem Rückkontakt (GaAs:Si) und GaAs/AlGaAs-Tunnelbarriere (TB). Das Gate wird epitaktisch durch eine C-dotierte GaAs-Schicht gebildet. Zusätzlich befindet sich unter dieser Probenstruktur ein Bragg-Spiegel (DBR) und auf die Probenoberfläche wurde eine SIL aufgebracht. Außerdem wurde beim Probendesign die Lage von Wellenbäuchen und -knoten beachtet. (b) Leitungs- und Valenzbandkante E_L und E_V der Probe, erstellt mit 1D-Poisson Solver [Snider13].

1. ein Bragg-Spiegel (engl.: *distributed Bragg reflector*, *DBR*) unterhalb des Rückkontakts zur Erhöhung der Reflektivität,
2. ein epitaktisches Gate statt eines metallischen Gates, welches für Licht im Infrarotbereich transparent ist und zudem durch seine einkristalline Struktur und geringe Rauigkeit sehr viel streuärmer ist,
3. die Berücksichtigung der optischen Schichtstruktur beim Probendesign, sodass der Quantenpunkt für eine bessere Kopplung ans Lichtfeld in einem Wellenbauch liegt, während das epitaktische Gate und der Rückkontakt mit den vielen lichtabsorbierenden freien Ladungsträgern in einem Wellenknoten liegen und
4. das Aufbringen einer Festkörperimmersionslinse (engl.: *solid immersion lens*, *SIL*, siehe Kapitel 3.1.3) zur Erhöhung der Einsammeleffizienz.

Konkret ergibt sich damit die folgende Schichtstruktur: Zur Glättung der Oberfläche und zum Einfang von Defekten werden auf das GaAs-Substrat 100 nm GaAs und ein 20-faches Übergitter mit je 2 nm AlAs und 2 nm GaAs abgeschieden [Petroff84]. Darauf wird der Bragg-Spiegel mit 16 Schichten von je 66,8 nm GaAs und 81,45 nm AlAs aufgewachsen. Diese Schichtdicken entsprechen abhängig vom Brechungsindex der Schicht jeweils einer optischen Weglänge von $0,25\lambda$ für eine Wellenlänge λ von 950 nm, welche typisch für InAs-Quantenpunkte ist. An jeder Zwischenfläche des Bragg-Spiegels wird ein Teil des Lichts reflektiert, welches auf den Spiegel trifft, jedoch kommt es aufgrund des größeren Brechungsindex von GaAs ($n = 3,51$, [Rakić96]) als von AlAs ($n = 2,96$, [Rakić96]) nur an der Grenzfläche von AlAs zu GaAs zu einem Phasensprung von 180° . Somit interferiert das reflektierte

Licht nur konstruktiv und mit einer sehr dünnen Schicht kann schon eine sehr hohe Reflektivität erreicht werden [Wang74]. Zusätzlich ermöglicht der Bragg-Spiegel, dass sich eine stehende optische Welle bei Lichteinfall in der Probenstruktur ausbilden kann. Auf den Bragg-Spiegel folgt eine 43 nm dicke GaAs-Schicht, die den Beginn des Bragg-Spiegels optisch in einen Wellenbauch schiebt. Danach kommt als Rückkontakt eine 50 nm dicke GaAs-Schicht, die entartet mit Silizium dotiert ist, sodass eine Ladungsträgerdichte von ungefähr $N_D = 2 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ vorliegt. Die Mitte dieser Schicht ist in einem Wellenknoten positioniert, sodass in dieser Schicht mit vielen freien Ladungsträgern weniger Licht absorbiert werden kann. Die Tunnelbarriere besteht aus 30 nm GaAs, 10 nm $\text{Al}_{0,33}\text{Ga}_{0,67}\text{As}$ und 5 nm GaAs. Die InAs-Quantenpunktschicht wurde wieder unter teilweise Stoppen der Substratrotation gewachsen, um auf einem Teil der Probe die gewünschte Quantenpunktdichte zu erhalten. Zusätzlich wurden diese Quantenpunkte Indium-geflusst (vgl. Kapitel 2.1), um die Wellenlänge etwas blau zu verschieben. Daraufhin wurden die Quantenpunkte mit 30 nm GaAs überwachsen. Das Übergitter zur Stromblockade besteht aus 41 Zyklen je 3 nm AlAs und 1 nm GaAs. Darüber werden 292 nm $\text{Al}_{0,33}\text{Ga}_{0,67}\text{As}$ gewachsen. Diese verlängern den Hebelarm und sorgen zusätzlich dafür, dass die Quantenpunkte in einem Wellenbauch liegen, sodass der Quantenpunktdipolübergang besser an das Laserlichtfeld koppeln kann. Nach 10 nm GaAs folgt das epitaktische Gate, welches aus 30 nm mit Kohlenstoff entartet dotiertem GaAs, sodass sich eine Ladungsträgerdichte von ungefähr $N_A = 2 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ergibt, und 15 nm sehr hoch mit Kohlenstoff dotiertem GaAs ($N_A = 1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) besteht. Zuletzt wird das epitaktische Gate mit 1 nm GaAs, 2 nm AlAs und 42 nm GaAs bedeckt, sodass das Gate in einem Wellenknoten liegt und die Oberfläche außerdem vor Oxidation geschützt ist. Die Positionierung in einem Wellenknoten dient auch hier der Minimierung der Lichtabsorption durch die freien Ladungsträger. Eine schematische Darstellung der Probenstruktur mit Positionen einiger Wellenknoten- und -bäuche und der zugehörigen Bandstruktur ist in Abbildung 3.2 zu sehen.

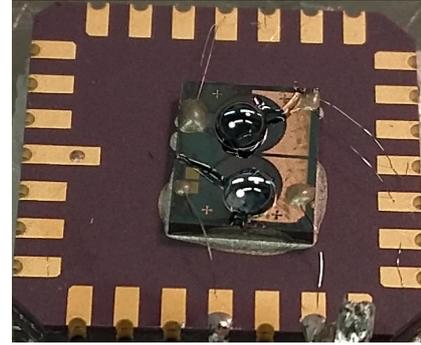
Die Prozessierung wird auch hier mittels Photolithographie vorgenommen. Zur Kontaktierung des Rückkontaktes wird ein Bereich eines Probenstücks mit der passenden Quantenpunktdichte nasschemisch bis zur GaAs-Lage unterhalb des p-Gates weggeätzt. Danach werden 10 nm Ni, 60 nm Ge, 120 nm Au, 10 nm Ni und 100 nm Au aufgedampft und in die Probe einlegiert. Zur Kontaktierung des Gates wird die Probe in einem Bereich, in dem nicht optisch gemessen werden soll, bis zum p-Gate heruntergeätzt. Dann werden an dieser Stelle 10 nm Au, 15 nm Cr und 200 nm Au aufgedampft. Auf das Gate wird anschließend eine Festkörperimmersionslinse (SIL, siehe Kapitel 3.1.3) aufgebracht. Zuletzt wird die Probe auf einen Probenträger (engl.: *chip carrier*) geklebt und elektrisch kontaktiert. Ein Foto der Probe mit SIL und elektrischer Kontaktierung auf dem Probenträger ist in Abbildung 3.3 zu sehen.

Das Probenwachstum und die Prozessierung wurden vom Lehrstuhl für Angewandte Festkörperphysik von Prof. Wieck in Bochum vorgenommen (Probennummer 14813), das Aufbringen der SIL und die elektrische Verbindung mit einem Probenträger wurden in Duisburg von Annika Kurzmann durchgeführt.

3.1.3 Festkörperimmersionslinse

Eine Festkörperimmersionslinse (engl.: *solid immersion lens, SIL*) kann man auf der Oberfläche einer Probe für optische Messungen aufbringen, um die Einsammeleffizienz des Lichts aus der Probe, besonders dem der Quantenpunkte, zu erhöhen [Mansfield90, Zwiller02]. Im Fall dieser Arbeit werden Halbkugeln aus Zirkonia (Brechungsindex $n_{\text{ZrO}_2} = 2$) [Wood82] mit einem Durchmesser von 1,5 mm als SIL verwendet. Der Grund für die Verwendung liegt im großen Brechungsindexunterschied zwischen GaAs ($n_{\text{GaAs}} = 3,51$, [Rakić96]) und Vakuum ($n_V = 1$). Dieser führt dazu, dass der Winkel der Totalreflexion [Meschede10, Kapitel 10.1.4] von GaAs zu Luft bei 17° liegt. Die Einsammeleffizienz

Abbildung 3.3: Foto der Probe mit epitaktischem Gate und DBR auf einem Probenträger. Bei den glänzenden Halbkugeln auf der Oberfläche handelt es sich um Festkörperimmersionslinsen, die haarfeinen Drähte, die von der Probe zu den Metallflächen am Rand des Probenträgers führen, sind die elektrischen Verbindungen vom Rückkontakt und vom Gate der Probe mit dem Probenträger.



von Licht aus der Probe liegt somit bei 1,2%, wenn wie hier ein Objektiv mit einer numerischen Apertur von 0,68 verwendet wird [Zwiller02]. Da der Brechungsindex von Zirkonia bei 2 liegt, vergrößert sich der Winkel der Totalreflexion von GaAs zu Zirkonia auf 35°. Zusätzlich tritt durch die Halbkugelform der SIL mehr Licht aus dem Zirkonia aus. Somit ergibt sich mit SIL eine in etwa fünf mal höhere Einsammeleffizienz von 5,8%. Eine solche SIL ist auf der Probe mit epitaktischem Gate und DBR vor den Messungen aufgebracht worden. Ein Foto der Probe mit SIL auf einem Probenträger ist in Abbildung 3.3 zu sehen. Die Messungen an der Probe mit metallischem Gate wurden ohne SIL auf der Probenoberfläche durchgeführt.

3.1.4 Defekte

In den verwendeten Proben werden Dotierungen genutzt, um den Rückkontakt und das Gate herzustellen. Für den Rückkontakt wird als negativer Donator Silizium verwendet. Die Aktivierungsenergie von Silizium in GaAs liegt dabei bei 6 meV [Ioffe20]. Für das Gate wird als positiver Akzeptor Kohlenstoff genutzt, welcher in GaAs eine Aktivierungsenergie von 20 meV hat (vergleiche Abbildung 3.4) [Ioffe20]. Die anderen Schichten der Probe sind undotiert. Doch trotz der sehr reinen Schichten, die beim Wachstum mittels Molekularstrahlepitaxie entstehen, können Defekte in der Gitterstruktur vorkommen. Dabei handelt es sich oftmals um Atome, welche durch Restgas in der Kammer beim Wachstum eingebaut werden oder aber um Atome, welche aus der dotierten Schicht segregiert sind [Mills00, Chung18]. Gerade in optischen Proben sind Defekte jedoch oftmals unerwünscht, da sie die optischen Eigenschaften verschlechtern können [Kuhlmann13b]. Zudem kann schon ein einziger Defekt in der Umgebung eines Quantenpunktes Veränderungen und Fluktuationen der Resonanzen bewirken [Houel12].

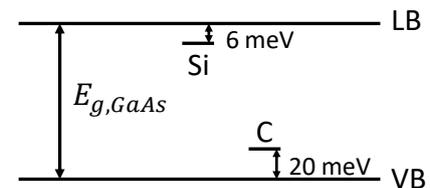
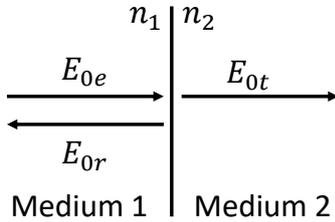


Abbildung 3.4: GaAs-Bandkanten mit Dotierniveaus von Silizium und Kohlenstoff (nicht skaliert).

3.1.5 Lichtausbreitung in der Probe

Bei den optischen Messungen, die in dieser Arbeit an der Probe vorgenommen werden, propagieren das anregende Laserlicht und das emittierte Quantenpunktlicht durch die vielen Schichten der Probe. Dabei gilt, dass an jeder Grenzschicht von einem optisch dünneren zu einem optisch dichteren Medium ein Phasensprung von 180° vorliegt, während von einer Schicht mit höherem Brechungsindex zu einer Schicht mit niedrigerem Brechungsindex kein Phasenunterschied zu beobachten ist [Meschede10, Kapitel 11]. Dies ist insbesondere für die Funktionalität von Bragg-Reflektoren von Bedeutung, da sie auf dieser Eigenschaft beruhen (siehe Kapitel 3.1.2). Propagiert das Licht durch ein metallisches Gate

an der Probenoberfläche, gilt außerdem, dass die Ladungen im Metall das elektrische Feld parallel zur Oberfläche näherungsweise kompensieren und somit gezwungenermaßen ein Wellenknoten am Metall entsteht [Meschede10, Kapitel 11]. Dieser Effekt ist wichtig für die Lichtausbreitung in der in Kapitel 3.1.1 beschriebenen Probe mit metallischem Gate und spielt später in Kapitel 4 eine Rolle beim Vergleich der Probe mit epitaktischem Gate mit einer Probe mit metallischem Gate.



Fresnel'sche Formeln

Die Fresnel'schen Formeln beschreiben die Reflexion und Transmission an einer einzelnen Grenzschicht zweier Medien [Born70, Kapitel 1.5]. Im idealen Dielektrikum und unter senkrechtem Lichteinfall ist der Reflexionsgrad oder auch Reflektivität $R = |r|^2$ mit dem Reflexionsfaktor r unabhängig davon, ob das Licht senkrecht (s) oder parallel (p) polarisiert ist, da gilt:

$$\left(\frac{E_{0r}}{E_{0e}}\right)_s = r_s = \frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2} = -r_p = -\left(\frac{E_{0r}}{E_{0e}}\right)_p \quad (3.1)$$

Abbildung 3.5: Verhalten einer elektromagnetischen Welle an der Grenzschicht zweier Medien mit den Brechungsindizes n_1 und n_2 . E_{0e} ist das einfallende elektrische Feld, E_{0r} und E_{0t} sind der reflektierte und transmittierte Anteil.

mit E_{0e} als dem einfallenden elektrischen Feld, E_{0r} als dem reflektierten elektrischen Feld und $n_{1,2}$ als den Brechungsindizes der beiden Medien an der Grenzschicht (vergleiche Abbildung 3.5). Für

den Transmissionsgrad oder auch Transmissivität $T = |t|^2$ mit dem Transmissionsfaktor t gilt

$$\left(\frac{E_{0t}}{E_{0e}}\right)_s = t_s = \frac{2n_1}{n_1 + n_2} = t_p = \left(\frac{E_{0t}}{E_{0e}}\right)_p, \quad (3.2)$$

wobei E_{0t} den transmittierten Anteil des elektrischen Felds beschreibt. Das heißt, auch die Transmittivität ist unabhängig von der Ausrichtung der Polarisierung. Außerdem gilt, da idealerweise keine Absorption im Medium angenommen wird, $T + R = 1$.

Transfermatrixalgorithmus

Soll nun die Ausbreitung einer elektromagnetischen Welle in einer ganzen Schichtstruktur analysiert werden, so hilft der Transfermatrixalgorithmus weiter [Ram-Mohan88]. Dieser berücksichtigt die teilweise Reflexion und Transmission an jeder einzelnen Grenzschicht sowie die Interferenz der einzelnen reflektierten und transmittierten Anteile. Dazu wird die Bedingung der Kontinuität des elektrischen Felds über die Grenzschichten hinweg genutzt. Jede Schicht kann somit durch eine Matrixoperation beschrieben werden, die die Propagation durch das Medium und die Transmission und Reflexion an der Grenzschicht ausdrückt. Die entsprechende Transfermatrix für eine Schicht i lautet bei senkrechtem Lichteinfall nach [Born70, Kapitel 1.6]

$$M_i = \begin{pmatrix} \cos(kn_i d_i) & \frac{1}{in_i} \sin(kn_i d_i) \\ -in_i \sin(kn_i d_i) & \cos(kn_i d_i) \end{pmatrix}. \quad (3.3)$$

Dabei ist k der Wellenvektor des Lichts im Vakuum, n_i der Brechungsindex und d_i die Dicke der Schicht i . Um die Matrix für die gesamte Probe zu erhalten, bildet man das Produkt der Matrizen aller Schichten $M = \prod_i M_i$. Der Reflexionsfaktor ergibt sich dann zu

$$r = \frac{(m_{11} + m_{12}n_e)n_a - (m_{21} + m_{22}n_e)}{(m_{11} + m_{12}n_e)n_a + (m_{21} + m_{22}n_e)}, \quad (3.4)$$

mit m_{kl} den Matrixelementen der Matrix M und n_a und n_e den Brechungsindizes des Materials ober-

und unterhalb der berechneten Schichtstruktur. Der Transmissionsfaktor wird nach

$$t = \frac{2n_a}{(m_{11} + m_{12}n_e)n_a + (m_{21} + m_{22}n_e)} \quad (3.5)$$

berechnet. Soll im Transfermatrixalgorithmus als eine Matrix der Quantenpunkt berücksichtigt werden, so kann die Quantenpunktmatrix berechnet werden, indem man den Grenzwert $M_{QD}(d_{QD} \rightarrow 0)$ bildet und den Quantenpunkt somit mit einer infinitesimal dünnen Schicht nähert. Die einzelnen Matrixelemente ergeben sich dabei wie folgt:

$$M_{QD,11} = M_{QD,22} = \lim_{d_{QD} \rightarrow 0} \cos(knd_{QD}) = 1 \quad (3.6)$$

$$\begin{aligned} M_{QD,12} &= \lim_{d_{QD} \rightarrow 0} \frac{1}{in} \sin(knd_{QD}) \approx \lim_{d_{QD} \rightarrow 0} \frac{1}{in} \left(knd_{QD} - \frac{(knd_{QD})^3}{6} \right) \\ &= \lim_{d_{QD} \rightarrow 0} \frac{1}{i} \left(kd_{QD} - \frac{k^3 n^2 d_{QD}^3}{6} \right) = 0 \end{aligned} \quad (3.7)$$

$$\begin{aligned} M_{QD,21} &= \lim_{d_{QD} \rightarrow 0} -in \sin(knd_{QD}) \approx \lim_{d_{QD} \rightarrow 0} -in \left(knd_{QD} - \frac{(knd_{QD})^3}{6} \right) \\ &= \lim_{d_{QD} \rightarrow 0} -i \left(kn^2 d_{QD} - \frac{k^3 n^4 d_{QD}^3}{6} \right) = -ikn^2 d_{QD}. \end{aligned} \quad (3.8)$$

Im letzten Term lässt sich das Quadrat des Brechungsindex der infinitesimal dünnen Schicht n^2 auch ausdrücken als $n^2 = \epsilon = \frac{i\sigma_{3D}}{\omega\epsilon_0}$ [Grimmes15, Kapitel 3]. Dabei ist ϵ die Permittivität, σ_{3D} die dreidimensionale Leitfähigkeit des Materials und ω die Frequenz des einfallenden Lichts, welche sich auch durch $\omega = kc_0$ ausdrücken lässt. Somit ergibt sich

$$M_{QD,21} = \frac{\sigma_{3D}d_{QD}}{\epsilon_0 c_0} = \frac{\sigma_{2D}}{\epsilon_0 c_0} \quad (3.9)$$

mit der zweidimensionalen Leitfähigkeit σ_{2D} . Berücksichtigt man zusätzlich die Feinstrukturaufspaltung des Exzitons mit der senkrecht zueinander stehenden Polarisation der beiden Emissionslinien, so erhält man für die Quantenpunktschicht im Transfermatrixalgorithmus näherungsweise

$$M_{QD} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ \frac{\sigma_{2D,1}}{\epsilon_0 c_0} & 1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ \frac{\sigma_{2D,2}}{\epsilon_0 c_0} & 1 \end{pmatrix}, \quad (3.10)$$

wobei jede Teilmatrix eine Linie der Feinstrukturaufspaltung beschreibt. Die zweidimensionale Leitfähigkeit lässt sich dabei nach

$$\sigma_{2D} = \frac{e^2 n_{2D} f}{m_0} \frac{-i\omega}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma}, \quad (3.11)$$

berechnen [Karrai03]. Hier ist ω_0 die Resonanzfrequenz des exzitonen Übergangs, Γ die Dephasierungsrate oder auch Halbwertsbreite und f die Oszillatorstärke (siehe Kapitel 3.4).

Purcell-Effekt

Zuletzt spielt bei einem Quantenpunkt als Emitter der Purcell-Effekt eine Rolle. Dieser beschreibt, dass die Wahrscheinlichkeit einer spontanen Emission ansteigt, wenn sich der Emitter in einem Resonator befindet (Abbildung 3.6). Verringert sich die strahlende Lebensdauer des Emitters, so steigt

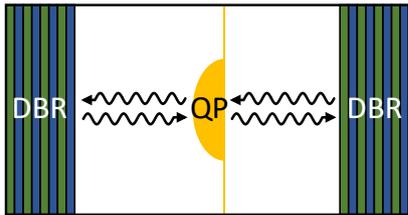


Abbildung 3.6: Selbstorganisierter Quantenpunkt (QP) in einem Resonator. Durch die Anordnung der Bragg-Spiegel (DBR) erhöht sich die spontane Emissionsrate des Quantenpunkts.

die spontane Emissionsrate an. Die Emissionsrate wird dabei um den Purcell-Faktor

$$F_P = \frac{3}{4\pi^2} \frac{Q}{V_M} \left(\frac{\lambda_C}{n} \right)^3 \quad (3.12)$$

erhöht, wenn der Emittor genau die Resonanz des Resonators trifft und ein perfekter räumlicher Überlapp vorliegt [Fox06, Kapitel 10.3.3]. Hier beschreibt Q die Güte, V_M das Modenvolumen des Resonators, λ_C die resonante Wellenlänge und n den Brechungsindex des Mediums. Der Purcell-Faktor kann also erhöht werden, indem die Güte und das Modenvolumen optimiert werden.

3.2 Konfokales Mikroskop

Alle optischen Messungen in dieser Arbeit werden mit einem konfokalen Mikroskopaufbau durchgeführt. Eine schematische Zeichnung des konfokalen Mikroskops ist in Abbildung 3.7 zu sehen. Um die einzelnen Elemente des experimentellen Aufbaus zu erklären, folgen wir hier dem Licht von der Quelle bis zum Detektor.

Als Quelle für das Licht stehen verschiedene Laser bereit: Für nicht-resonante Messungen gibt es einen Diodenlaser (Thorlabs LDM785) mit einer Wellenlänge von 785 nm und einer maximalen Leistung von 20 mW, für resonante Messungen stehen zwei schmalbandige (1 MHz), kontinuierlich durchstimmbare Diodenlaser (Toptica DL pro) mit einem Wellenlängenbereich von 915 nm bis 990 nm und einer maximalen Leistung von 80 mW auf einem optischen Tisch. Die Polarisation des kohärenten Laserlichts ist elliptisch. Zur Einstellung der richtigen Wellenlänge der durchstimmbaren Laser werden 2 % des Laserlichts in ein Wellenlängenmeter (High Finesse WS Ultimate 30) geleitet und dort analysiert. Dieses funktioniert nach dem Prinzip eines Fizeau-Interferometers [deGroot00] und hat eine Auflösung von 2 MHz. Mit PID-Reglern kann die Wellenlänge auf 5 MHz genau stabilisiert werden. Je nach gewünschter Intensität des Laserlichts wird es danach mithilfe von Graufiltern abgeschwächt. Dazu stehen zum einen Graufilter einer festen optischen Dichte (Thorlabs NE510A ($OD = 1$), Thorlabs NE520A ($OD = 2$) oder Thorlabs NE540A ($OD = 4$)) zur Verfügung, zum anderen ein Filterrad (Thorlabs NDC-50C-4M), welches bei kompletter Öffnung ganz durchlässig ist und bei kompletter Schließung die Intensität um vier Größenordnungen abschwächt. Soll das Laserlicht stabilisiert oder gepulst werden, wird das Licht durch einen akustooptischen Modulator (AA Opto Electronic MT80-A1.5-IR) geleitet [Gordon66]. Der Kristall, aus dem dieser besteht, lenkt, abhängig von der Amplitude der angelegten hohen akustischen Frequenz, einen Anteil des Laserlichts in höhere Beugungsordnungen ab. Zur Stabilisierung eignet sich besonders die nullte Beugungsordnung. Mithilfe eines PID-Reglers (SRS SIM960) kann die Amplitude so angepasst werden, dass Schwankungen in der Laserintensität durch entsprechendes Brechen des Lichts ausgeglichen werden. Zum instantanen Ein- und Ausschalten der Laserintensität ist es sinnvoll, die erste Beugungsordnung als Messsignal zu verwenden, da nur so eine vollständige Unterdrückung des Laserlichts gewährleistet ist. Das Laserlicht wird daraufhin aus dem Freistrahlauf auf dem optischen Tisch in eine optische Einzel-Moden-Glasfaser (Schäfter + Kirchhoff SMC-980-5.6-NA014-3-APC-0-500) eingekoppelt. Dazu wird mit einer Linse (Thorlabs C220TMD-B)

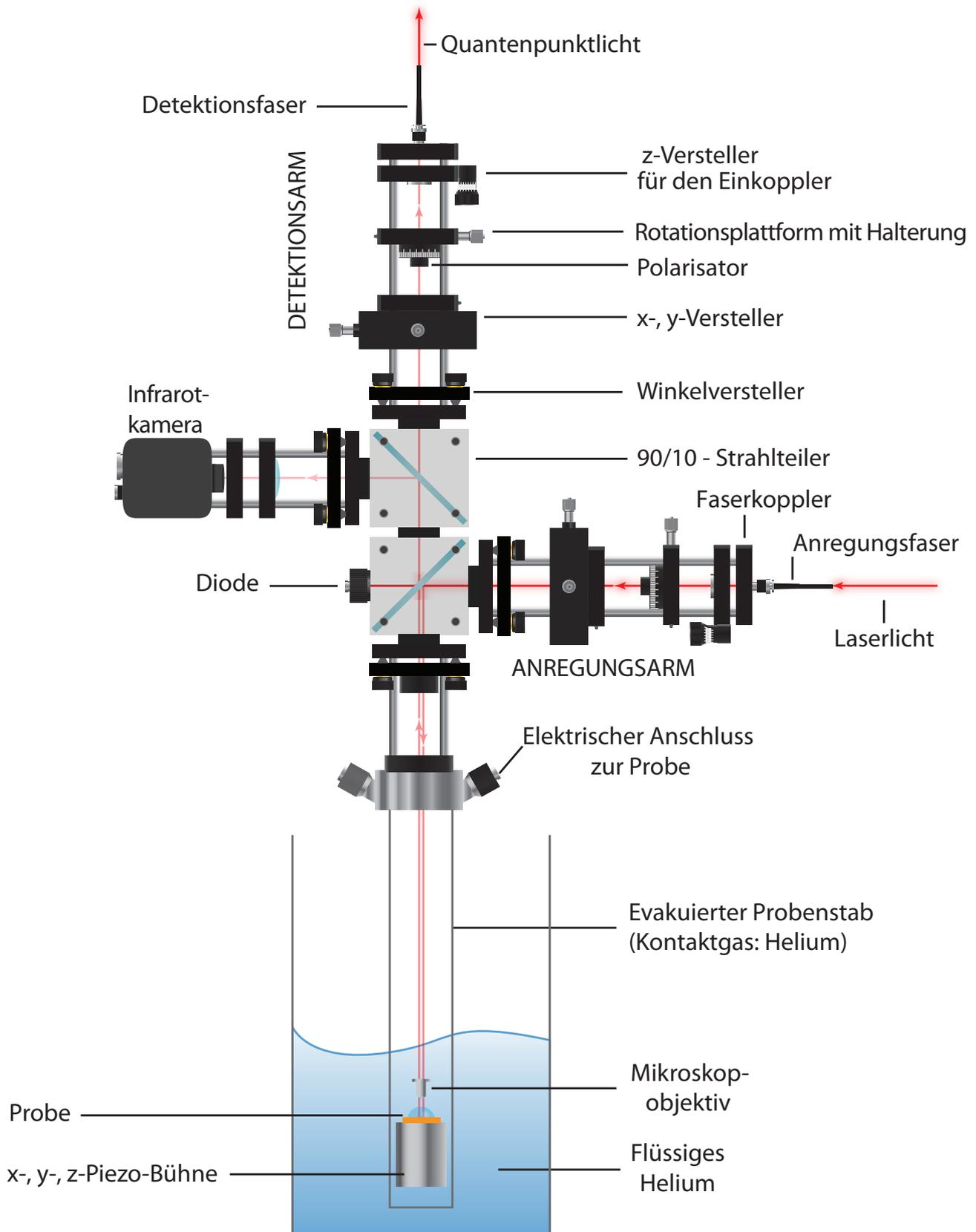


Abbildung 3.7: Schematische Darstellung des konfokalen Mikroskops. Der Lichtweg wird mit roten Pfeilen verdeutlicht und verläuft von der Anregungsfaser über einen Strahlteiler durch ein Mikroskopobjektiv bis zur Probe. Das Licht ist hier auf $1\ \mu\text{m}$ fokussiert. Das Licht von der Probe nimmt denselben Weg zurück, passiert den Strahlteiler und gelangt so zur Detektionsfaser. Die Probe ist in einem Probenstab befestigt, der in einen Badkryostaten mit flüssigem Helium auf $4,2\ \text{K}$ heruntergekühlt wird. Nach [Al-Ashouri17].

in einem z-Versteller das Laserlicht auf den Faserkern fokussiert. Beim Ein- und Auskoppeln in beziehungsweise aus einer Glasfaser wird das Licht um etwa 30 % abgeschwächt.

Das Laserlicht kann nun durch die Glasfaser zur Feinstrahloptik (attoCFM1), dem sogenannten optischen Kopf, geleitet werden. Die Faser wird an den Faserkoppler am Anregungsarm des optischen Kopfs angeschlossen, hinter welchem eine weitere Linse mit z-Versteller das Laserlicht parallelisiert. Der Anregungsarm ist durch einen x-y-Versteller und einen Winkelversteller mit dem Rest des optischen Kopfs verbunden. Somit kann der Laserstrahl in alle Richtungen ausgerichtet und angeglichen werden. Im Anregungsarm befindet sich außerdem eine Rotationsplattform mit Halterung für weitere optische Bauteile. Bei Bedarf kann hier beispielsweise ein linearer Polarisator (Thorlabs LPVIS050-MP oder -MP2) eingebaut werden, um das anregende Laserlicht linear zu polarisieren. Danach trifft das Laserlicht auf einen 90/10-Strahlteiler. 10 % des Lichts werden reflektiert, 90 % transmittiert. Das transmittierte Licht trifft auf eine Photodiode (Thorlabs SM1PD1A), dessen Signal mit einem Stromverstärker (Femto DLPCA-200) messbar gemacht wird. Somit lässt sich die Anregungsintensität des Lasers beobachten. Außerdem kann dieses Signal zur Stabilisierung der Laserintensität mit der PID-Regelung verwendet werden (siehe vorangegangener Abschnitt). Das am Strahlteiler reflektierte Licht tritt durch eine Glasfläche (Transmission circa 98 %) in den evakuierten und mit etwas Kontaktgas (Helium) gefluteten Probenstab ein, der in einem Badkryostaten mit flüssigem Helium auf 4,2 K gekühlt ist. Ein Mikroskopobjektiv mit einer numerischen Apertur von $NA = 0,68$ direkt über der Probe fokussiert das Licht auf die Probe. Da das Objektiv antireflexionsbeschichtet ist, können etwaige Verluste der Intensität des Lichts an dieser Stelle vernachlässigt werden. Der Fokuspunkt mit einem Durchmesser von $1 \mu\text{m}$ bestimmt das Auflösungsvermögen des Mikroskops. Um die Probe, beziehungsweise einen einzelnen Quantenpunkt in der Probe, optimal in den Fokus des Lichts bewegen zu können, ist die Probe auf drei Piezoverstellern (Attocube ANPx101 für die x- und y-Richtung, ANPz102 für die z-Richtung) befestigt. Diese können auch bei den tiefen Temperaturen des Kryostaten die Probe in 5 nm-Schritten um bis zu 5 mm verschieben. Das emittierte Licht der Probe und das an der Probe reflektierte Laserlicht wird von dem Mikroskopobjektiv wieder eingesammelt und parallelisiert und nimmt denselben Weg zurück zum optischen Kopf. 90 % des Lichts werden nun durch den ersten und auch durch den zweiten 90/10-Strahlteiler im Kopf transmittiert und am Ende des Detektionsarms mit einer Linse im z-Versteller auf eine weitere Einzel-Moden-Glasfaser fokussiert. Der Detektionsarm ist wie der Anregungsarm über einen x-y-Versteller und einen Winkelversteller mit dem restlichen optischen Kopf verbunden, sodass auch dieser Teil des Strahlengangs optimal auf die Probe ausgerichtet werden kann. Für die Ausrichtung der Strahlengänge ist eine Infrarotkamera (Watec WAT-120N⁺) hinter dem zweiten Strahlteiler hilfreich, durch welche die Probenoberfläche beobachtet werden kann. Somit können die Strahlengänge der Anregung und der Detektion senkrecht ausgerichtet (das Strahlprofil auf der Probenoberfläche sieht symmetrisch und rund aus) und aufeinander gelegt werden (beide Strahlprofile auf der Probenoberfläche liegen an derselben Stelle auf dem Bildschirm). Außerdem besteht auch im Detektionsarm die Möglichkeit, einen Polarisationsfilter in eine Rotationsplattform einzubauen. Das im Detektionsarm eingesammelte Licht kann nun durch eine Glasfaser zu beliebigen Detektionseinheiten geführt werden.

Zur Analyse des Lichts steht zum einen ein Spektrometer (Spectra Pro 2500i) bereit, welches drei Gitter mit verschiedenen Strichstärken (150 Striche/mm, 1200 Striche/mm und 1800 Striche/mm) enthält, zwischen denen getauscht werden kann. Am häufigsten wird das zweite Gitter verwendet, welches eine sogenannte Blaze-Wellenlänge von 750 nm und eine Auflösung von 0,06 nm (entspricht 80 μeV bei einer Wellenlänge von 950 nm) hat. Das so aufgespaltene Licht wird mit einem Silizium-CCD-Detektor (Pixies 256) detektiert, welche von einem Computerprogramm (WinSpec) ausgelesen werden kann. Um den CCD-Detektor nicht durch das intensive Laserlicht zu beschädigen, wird vor dem Eingang des Spektrometers ein Hochpasskantenfilter mit einer Wellenlänge von 850 nm im Strahlengang befestigt. Eine weitere Detektionsmöglichkeit des Lichts besteht in einer Photodiode mit eingebautem

Verstärker (Femto OE-200-SI). Die Spannung dieser Detektionseinheit kann mittels Analog-zu-Digital-Wandlerkarte zum Auslesen und Weiterverwerten an einen Messcomputer übertragen werden. Zuletzt stehen mehrere Lawinenphotodioden (engl.: *avalanche photodiode*, APD, Excelitas SPCM-AQRH-14-FC) zur Verfügung. Diese hochsensitiven Photodioden können einzelne Photonen detektieren. Mithilfe eines Zeit-in-Digital-Umwandlers (qutools quTAU) kann das gemessene Signal an den Messcomputer übermittelt werden. Die Zeitauflösung dieser Messmethode liegt bei 81 ps. Bei einer üblichen Wellenlänge der Quantenpunkte von 950 nm liegt die Effizienz der APD bei etwa 0,3. Außerdem muss bei sehr hohen Zählraten (mehrere Millionen Photonen pro Sekunde) ein Korrekturfaktor von bis zu 1,15 berücksichtigt werden, da aufgrund der Detektortotzeiten nicht alle Photonen gemessen werden können. Alle Messgeräte sind via GPIB oder USB mit dem Messcomputer verbunden und können somit angesteuert und ausgelesen werden. Dies wird bis auf für Messungen einzelner Spektren mit dem Spektrometer mit LabView-Programmen vorgenommen.

Zuletzt führen durch den Probenstab elektrische Leitungen bis hinunter zur Probe, welche dadurch elektrisch kontaktiert werden kann. Um an die Probe eine Spannung - konstant oder auch gepulst - anzulegen, stehen eine Quelle-Mess-Einheit (engl.: *source measurement unit*, SMU, Keithley 236) und Funktionsgeneratoren (Keysight33500B und Tektronix AFG3251 beziehungsweise AFG3022C) zur Verfügung. Je nach Messvorgehen wird außerdem ein Lock-In-Verstärker (Stanford Research SR830) verwendet.

Im Folgenden werden, wenn nicht anders beschrieben, sämtliche optische Intensitätsverluste durch optische Elemente oder Detektoren nicht berücksichtigt und das am jeweiligen Detektor gemessene Signal angegeben. Eine Ausnahme bildet die Angabe der Intensität des Anregungslasers. Hier wird die Intensität auf der Probe berechnet und angegeben.

3.2.1 Quantenpunkt im Laserfokus

Laserstrahlen können gemeinhin als Gauß'sche Strahlenbündel beschrieben werden, das heißt, der Querschnitt des Strahlprofils ist Gauß-förmig [Meschede08, Kapitel 2.3]. Dies gilt auch, wenn der Strahl fokussiert wird, wie es in dem hier beschriebenen Aufbau durch das Objektiv geschieht. Das heißt, es ist nicht möglich, den Strahl auf einen nulldimensionalen Punkt zu fokussieren, sondern in der sogenannten Taille im Fokuspunkt wird eine minimale aber endliche Ausdehnung erreicht. Somit ist die Gauß-Verteilung des Strahlprofils an dieser Stelle am schmalsten. Je weiter man sich von der Taille entfernt, umso breiter ist die Gaußverteilung. Das Maximum der Intensität nimmt dabei in Ausbreitungsrichtung Lorentz-förmig ab. Um den zu untersuchenden Quantenpunkt nun also möglichst homogen und mit einer maximalen Intensität anregen zu können, muss der Quantenpunkt durch die Piezoversteller so präzise wie möglich in der Mitte der bei uns 1 μm im Durchmesser großen Strahltaile positioniert werden (siehe Abbildung 3.8). Ist der Quantenpunkt zu weit oben oder unten positioniert, verringert sich die Anregungsintensität Lorentz-förmig, ist er in der Probenebene verschoben, verringert sich die Anregungsintensität entlang des Quantenpunkts Gauß-förmig.

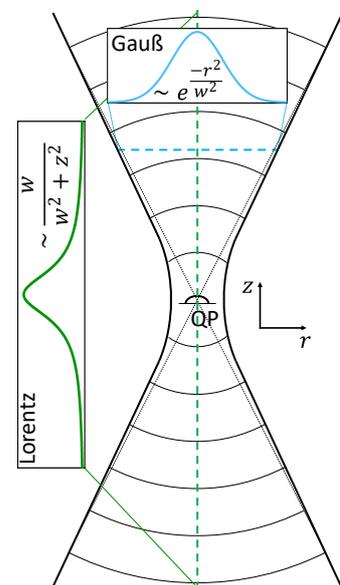


Abbildung 3.8: Quantenpunkt im Fokus eines Gauß-förmigen Laserstrahls. Die Intensität des Querschnitts des Strahlprofils entspricht einer Gaußkurve, in Ausbreitungsrichtung verändert sich die Intensität Lorentz-förmig.

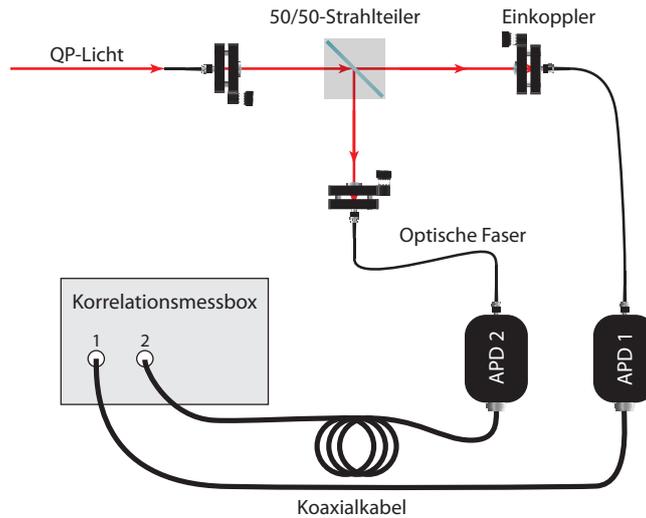


Abbildung 3.9: Schematische Darstellung des Autokorrelationsmessaufbaus (auch Hanbury-Brown-Twiss-Aufbau genannt). Das Quantenpunktlicht wird von einem 50/50-Strahlteiler in zwei Teile aufgespalten. Diese werden mittels Glasfasern auf zwei APDs geleitet und von der Korrelationsmessbox wieder korreliert. Dabei ist die Koaxialkabelverbindung zu Messeingang 1 wesentlich kürzer als die zu Messeingang 2. Nach [Al-Ashouri17].

3.2.2 Autokorrelationsmessungen

Zur Messung der Autokorrelation $g^{(2)}(\tau)$ (vergleiche Kapitel 2.4) wird der sogenannte Hanbury-Brown-Twiss-Aufbau (HBT) als weitere Detektionsmöglichkeit verwendet [Hanbury Brown56], welcher in Abbildung 3.9 dargestellt ist. Dazu wird das Quantenpunktlicht aus der Detektionsfaser über einen Faserkoppler mit z -verstellbarer Linse wieder parallelisiert in den Freistrahle gebracht. Das Licht wird von einem 50/50-Strahlteiler in zwei Teile aufgespalten und dann wieder in je eine Einzel-Moden-Glasfaser eingekoppelt. Jede der beiden Fasern leitet das Licht zu einer APD, welche durch je ein Koaxialkabel mit einem Eingang des Zeit-in-Digital-Umwandlers verbunden werden. In diesem Zusammenhang spricht man von dem Umwandler auch als Korrelationsbox. Misst der erste Eingang ein Photon, so wird intern die Zeit gemessen, bis der zweite Eingang ein Photon detektiert. Diese Zeit wird an den Messcomputer übermittelt und mit einer Zeitauflösung von 162 ps ausgewertet. Durch vielfaches Messen der Zeitdifferenz zwischen zwei Detektionsereignissen an Eingang 1 und 2 ergibt sich ein Histogramm, welches der $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion der Lichtquelle entspricht. Handelt es sich um eine Einzelphotonenquelle, so sollte sich also wie in Kapitel 2.4 beschrieben ein Minimum bei $\tau = 0$ ausbilden, da niemals zwei Photonen zur selben Zeit gemessen werden können und die Zeit τ bis zur Detektion eines Photons, nachdem zum Zeitpunkt t schon ein Photon detektiert wurde, immer größer als 0 sein muss. Um den gesamten relevanten Bereich der $g^{(2)}(\tau)$ -Funktion um den Wert $\tau = 0$ herum messen zu können, wird für den zweiten Kanal ein wesentlich längeres Kabel verwendet als für den ersten.

3.3 Nicht-resonante Messungen

Das Konzept optischer Messmethoden beruht darauf, Ladungsträger in der Probe optisch anzuregen und danach zu beobachten, welches Licht die Probe wieder emittiert [Klingshirn05, Kapitel 25]. Zur optischen Anregung können beispielsweise Laserphotonen verwendet werden. Bei optischen Untersuchungen von Quantenpunkten unterscheidet man dabei zwischen resonanten und nicht-resonanten Messmethoden. Von resonanten Messmethoden spricht man, wenn ein bestimmter optischer

Übergang im Quantenpunkt (zum Beispiel das Exziton X^0 im Grundzustand) resonant angeregt wird, wenn also etwa das Photon, mit welchem ein Elektron-Loch-Paar erzeugt wird, genau der Energie entspricht, die bei der Rekombination des Elektron-Loch-Paars wieder in Form eines Photons frei wird (siehe Abbildung 3.10, rot) [Vamvakas09]. Eine nicht-resonante Anregung liegt vor, wenn die Anregungsenergie nicht der Rekombinationsenergie entspricht (siehe Abbildung 3.10, blau) [Marzin94]. Ein Beispiel für eine nicht-resonante Messmethode ist die Photolumineszenz (PL).

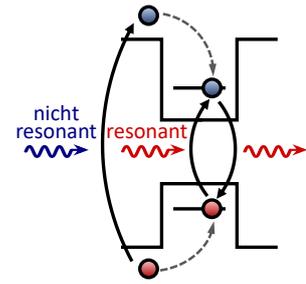


Abbildung 3.10: Resonante (rot) und nicht resonante (blau) Anregung des Exzitons X^0 im Quantenpunkt.

3.3.1 Photolumineszenz

In der Photolumineszenzspektroskopie [Pavesi94] werden durch optische Anregung oberhalb der Bandkante Elektron-Loch-Paare in der den Quantenpunkt umgebenden Kristallmatrix erzeugt. In dem hier verwendeten Materialsystem handelt es sich dabei um GaAs mit einer Bandlücke von $E_{G,GaAs}(0\text{ K}) = 1,519\text{ eV}$ [Ioffe20]. Der anregende Diodenlaser liegt mit einer Wellenlänge von 785 nm (was 1,58 eV entspricht) oberhalb der GaAs-Bandkante. Die Elektron-Loch-Paare propagieren daraufhin durch die Materialstruktur und relaxieren strahlungslos, zum Beispiel über Phononen- oder Elektron-Elektron-Streuung, in energetisch günstigere Zustände [Brunner92]. Dies können die Bandkante der umgebenden Kristallmatrix, die Quantenpunktbenetzungsschicht oder Quantenpunktniveaus sein. Dabei können sich, da die Relaxation ungeordnet geschieht, auch höhere oder angeregte Zustände im Quantenpunkt bilden. Aus diesen Zuständen rekombinieren die Elektron-Loch-Paare wieder und geben ihre Energie in Form von Photonen ab, die sogenannte Photolumineszenz [Marzin94]. Schematisch sind diese Prozesse in Abbildung 3.11(a) dargestellt. Das so erzeugte Licht ist nicht kohärent mit dem

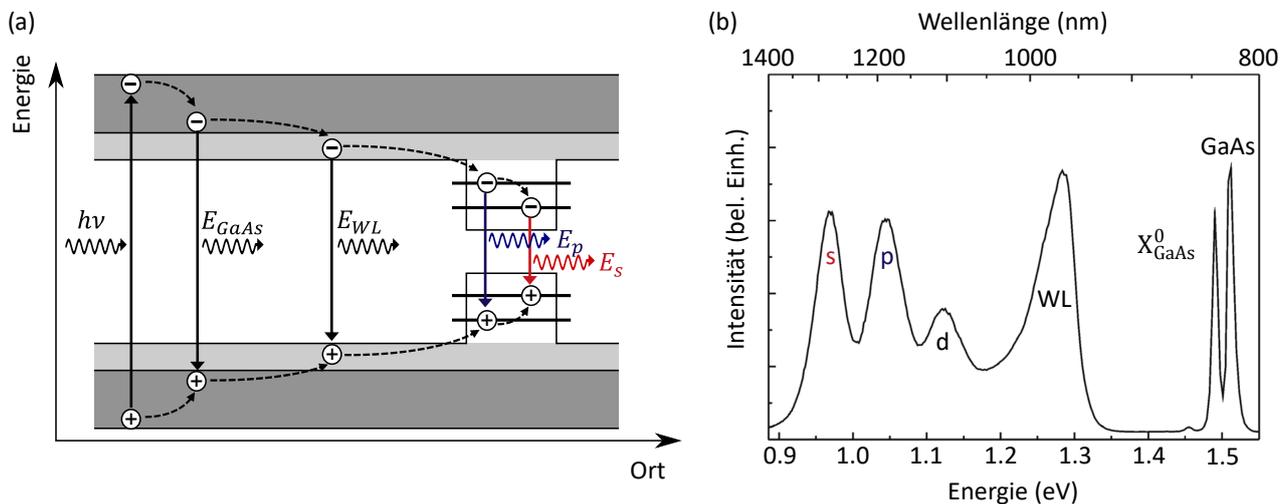


Abbildung 3.11: Photolumineszenz (PL)-Spektroskopie (a) Schematische Darstellung der Vorgänge bei der PL: Mit der Energie $h\nu$ wird ein Elektron-Loch-Paar erzeugt, das in verschiedene Zustände relaxieren kann, von denen aus es wieder rekombiniert und die Energie in Form von Licht abgibt. E_{GaAs} ist die Bandkantenenergie von GaAs, E_{WL} die Energie der Benetzungsschicht, E_p die Energie des angeregten p-Zustands im Quantenpunkt und E_s die Rekombinationsenergie eines Exzitons im Quantenpunkt. (b) Typisches PL-Spektrum eines Quantenpunktensembles: Von links nach rechts sieht man die PL von den Quantenpunktzuständen (Grundzustand s und angeregte Zustände p und d), der Benetzungsschicht (WL), dem Exziton im ausgedehnten GaAs (X^0_{GaAs}) und von ausgedehntem GaAs. Nach [Guffarth03].

anregenden Laserlicht, da die Relaxation stochastisch unabhängig ist. Die Photolumineszenz und das an der Probe reflektierte Laserlicht können nun im Spektrometer voneinander getrennt und spektral analysiert werden. In Abbildung 3.11(b) ist das Photolumineszenzspektrum eines Quantenpunktensembles zu sehen. Da in dieser Arbeit immer nur ein Quantenpunkt im Mikrometer-kleinen Fokus ist, sind die Linien nicht ensembleverbreitert, sodass die Lebenszeit des Zustands beziehungsweise die Auflösung des Spektrometers die Linienbreite bestimmt. Man spricht in diesem Zusammenhang auch von der μ -Photolumineszenz. Im Vergleich zu resonanten Messmethoden ist diese Messmethode durch die begrenzte Spektrometerraufösung ungenauer, dafür jedoch schneller und einfacher in ihrer Durchführung. In dieser Arbeit wird die μ -Photolumineszenz deshalb vor allem zur Suche von Quantenpunkten in der Probe und zur ersten Charakterisierung eines einzelnen Quantenpunkts verwendet.

3.4 Resonante Messungen

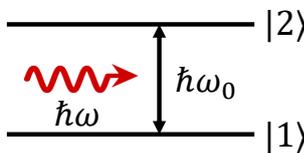


Abbildung 3.12: Kopplung eines Lichtfelds mit der Frequenz ω an das 2-Niveau-System mit den Zuständen $|1\rangle$ und $|2\rangle$.

Zur detaillierten Untersuchung eines einzelnen Quantenpunkts sind resonante Messmethoden von großem Nutzen. Dabei wird ein Zustand im Quantenpunkt mit der Energie angeregt, die beim Zerfall des Zustands wieder frei wird. Die Anregung und Emission sind somit direkt aneinander gekoppelt und es spielen nur zwei Zustände eine Rolle: Der Zustand, in dem sich der Quantenpunkt vor der Erzeugung des Exzitons und nach dem Zerfall dieses befindet ($|1\rangle$) und der angeregte Zustand mit dem erzeugten Exziton im Quantenpunkt ($|2\rangle$). Aus diesem Grund kann der Quantenpunkt auch als 2-Niveau-System betrachtet werden, welches mit dem Lichtfeld wechselwirkt (siehe Abbildung 3.12).

Die Beschreibung dieser Wechselwirkung kann durch ein semiklassisches Modell erfolgen, in dem das elektromagnetische Feld klassisch und das 2-Niveau-System quantenmechanisch betrachtet wird (im Folgenden verkürzt nach [Fox06, Kapitel 9] dargestellt). Dazu verwendet man die zeitliche Entwicklung der Schrödinger-Gleichung $i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(r, t) = \hat{H} \Psi(r, t)$ mit dem Hamilton-Operator $\hat{H} = \hat{H}_0(r) + \hat{V}(t)$. \hat{H}_0 ist dabei zeitunabhängig und beschreibt das 2-Niveau-System und \hat{V} beschreibt den Wechselwirkungsanteil. In der ersten Ordnung der Störungstheorie kann man den Ansatz

$$\Psi(r, t) = C_1(t)e^{-i\omega_1 t}\psi_1(r) + C_2(t)e^{-i\omega_2 t}\psi_2(r) \quad (3.13)$$

wählen, wobei ω_1 beziehungsweise ω_2 die Kreisfrequenzen der Niveaus $|1\rangle$ beziehungsweise $|2\rangle$ beschreiben und C_1 beziehungsweise C_2 die zeitabhängigen Amplituden der ungestörten Zustände ψ_1 beziehungsweise ψ_2 sind. Daraus ergibt sich letztendlich

$$\dot{C}_1(t) = \frac{i}{2}\Omega_R(e^{i(\omega-\omega_0)t} + e^{-i(\omega+\omega_0)t})C_2(t) \quad (3.14)$$

$$\dot{C}_2(t) = \frac{i}{2}\Omega_R(e^{-i(\omega-\omega_0)t} + e^{i(\omega+\omega_0)t})C_1(t) \quad (3.15)$$

als Gleichungssystem, dessen Lösungen das Verhalten eines 2-Niveau-Systems im elektromagnetischen Feld beschreiben. ω_0 ist dabei die Resonanzfrequenz des Übergangs und ω die Frequenz des eingestrahlten Lichtfelds. Ω_R definiert die sogenannte Rabi-Frequenz mit $\Omega_R = \mu_{12}E_0/\hbar$. E_0 ist die Amplitude des elektrischen Felds der Lichtwelle und μ_{12} ist das Dipolmatrixelement, welches die Kopplungsstärke zwischen dem 2-Niveau-System und dem Lichtfeld beim Übergang von Niveau $|1\rangle$ zu Niveau $|2\rangle$ angibt.

Im Grenzfall schwacher Felder ist der obere Zustand nur sehr selten besetzt, das heißt es gilt $C_1(t) \gg C_2(t)$ und $C_1(t) \approx 1$. Die Besetzungswahrscheinlichkeit des oberen Zustands ergibt sich für

den Fall exakter resonanter Anregung ($\omega = \omega_0$) durch die Drehwellennäherung (engl.: *rotating wave approximation*) zu $|C_2(t)|^2 = \left(\frac{\Omega_R}{2}\right)^2 t^2$. Sie ist also proportional zu t^2 .

Im Grenzfall starker Felder ergibt sich für die Besetzungswahrscheinlichkeiten der Zustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$

$$|C_1(t)|^2 = \cos^2\left(\frac{\Omega_R t}{2}\right) \quad (3.16)$$

$$|C_2(t)|^2 = \sin^2\left(\frac{\Omega_R t}{2}\right), \quad (3.17)$$

die Besetzung oszilliert also bei hohen Anregungsintensitäten zwischen den Zuständen hin und her, wie in Abbildung 3.13 ersichtlich wird. Diese Oszillation wird auch Rabi-Oszillation genannt. Da die Frequenz dieser Oszillation proportional zur Rabi-Frequenz ist, nimmt sie wie diese mit zunehmender Amplitude des elektrischen Felds E_0 zu.

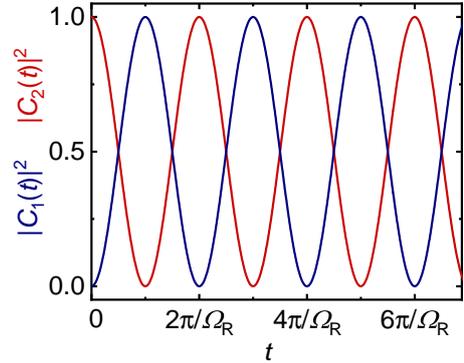


Abbildung 3.13: Besetzungswahrscheinlichkeiten der Zustände $|1\rangle$ (blau) und $|2\rangle$ (rot) abhängig von der Zeit t . Die Besetzung oszilliert zwischen den beiden Zuständen hin und her.

Wird das 2-Niveau-System mit einem elektromagnetischen Feld angeregt, dessen Frequenz um $\Delta\omega = \omega - \omega_0$ verstimmt ist, so ändert sich die Besetzungswahrscheinlichkeit des oberen Zustands zu

$$|C_2(t)|^2 = \frac{\Omega_R^2}{\Omega^2} \sin^2\left(\frac{\Omega t}{2}\right), \quad (3.18)$$

mit $\Omega^2 = \Omega_R^2 + \Delta\omega^2$. Die Frequenz der Oszillation erhöht sich also, während die Amplitude dieser abnimmt. Dies macht sich insbesondere bei Messungen der Autokorrelation wie in Kapitel 2.4 beschrieben bemerkbar, indem mit steigender Verstimmung das erste Maximum in der Oszillation näher zu $\tau = 0$ schiebt [Rezai19].

Gleichzeitig wird die Rabi-Oszillation durch spontane Emission und Dephasierung gedämpft. Die spontane Emission geht mit der Lebenszeit des oberen Niveaus einher und wird durch die Zeit T_1 beschrieben. Diese Zeit führt zur natürlichen Linienbreite und kann theoretisch bei einer Temperatur von 0 K mit sehr niedrigen Anregungsleistungen gemessen werden. In Quantenpunkten muss dazu eine sehr hohe Messfrequenz (> 50 kHz) gewählt werden, um gleichzeitige Desphasierungsprozesse zu unterdrücken. Die natürliche Linienbreite kann somit auf etwa $0,7 \mu\text{eV}$ bestimmt werden [Kuhlmann15]. Bei kleineren Messfrequenzen, wo Dephasierung die Linie zusätzlich verbreitert, erhält man Linienbreiten, die etwa doppelt so groß sind [Kuhlmann13b]. Die gesamte Dephasierung wird durch die Zeit T_2 beschrieben. Für T_2 gilt

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2^*} \quad (3.19)$$

mit der durch besetzungserhaltende Streuprozesse bestimmten reinen Dephasierungszeit T_2^* . Diese wird vor allem durch die Umgebung des Quantenpunkts hervorgerufen, wo Ladungsfluktuationen die Resonanzenergie des Übergangs durch den Stark-Effekt verschieben und Spinfuktuationen zu Wechselwirkungen zwischen dem Kernspinbad beziehungsweise dem effektiven Magnetfeld, welches sie hervorrufen (*Overhauser Feld*) und dem Elektron im Quantenpunkt führen [Kuhlmann13b]. Diese Effekte verbreitern die Emissionslinie des Übergangs des 2-Niveau-Systems.

Unter Berücksichtigung der beschriebenen Dämpfung lässt sich das System jedoch nicht mehr mittels Lösung der Schrödinger-Gleichung beschreiben, da dies nur für reine Zustände möglich ist. Der

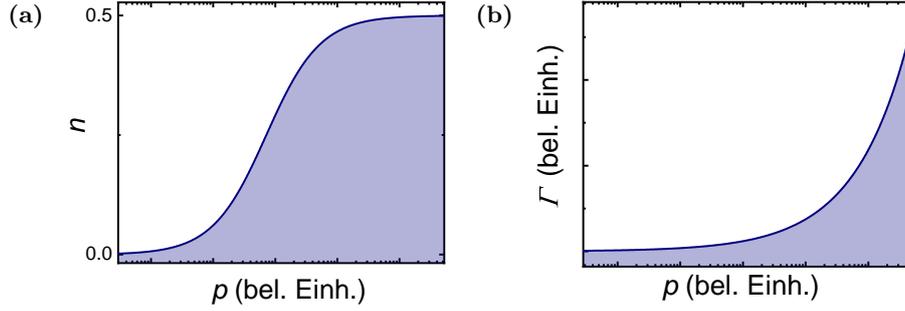


Abbildung 3.14: (a) Zusammenhang der Besetzungswahrscheinlichkeit n und (b) Halbwertsbreite Γ mit der Anregungsleistung des resonanten Lasers p , aufgetragen in logarithmischer Abhängigkeit. Die Besetzungswahrscheinlichkeit sättigt bei hohen Leistungen bei einer Besetzung von 50%, während die Halbwertsbreite durch die Leistungsverbreiterung zunimmt.

folgende Abschnitt fasst die hier relevanten Ergebnisse aus [Loudon00, Kapitel 2] zusammen, die genaue Herleitung kann dort nachgelesen werden. Zur Beschreibung der nun inkohärenten Überlagerungszustände kann die Dichtematrix

$$\rho = \begin{pmatrix} |C_1|^2 & C_1 C_2^* \\ C_2 C_1^* & |C_2|^2 \end{pmatrix} \quad (3.20)$$

verwendet werden. Die diagonalen Einträge beschreiben hier die Besetzungswahrscheinlichkeiten der Zustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$, die anderen beiden Einträge die Kohärenz der Zustände. Durch Ableiten, Betrachtungen des zeit- und wechselwirkungsabhängigen Hamiltonoperators und nachträglicher Beachtung der spontanen Emission und Dephasierungsprozesse, ergeben sich die optischen Bloch-Gleichungen

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{22}}{dt} &= -\frac{1}{2}i\Omega_R (\rho_{12} - \rho_{21}) - \frac{2}{T_1}\rho_{22} \\ \frac{d\rho_{12}}{dt} &= \frac{1}{2}i\Omega_R (\rho_{11} - \rho_{22}) + \left(i(\omega_0 - \omega) - \frac{1}{T_2} \right) \rho_{12}, \end{aligned} \quad (3.21)$$

welche durch $\rho_{11} + \rho_{22} = 1$ und $\rho_{21} = \rho_{12}^*$ zu einem vollständigen Gleichungssystem ergänzt werden. Im Gleichgewicht erhält man daraus die Besetzungswahrscheinlichkeit n des oberen Zustands des 2-Niveau-Systems

$$n = \rho_{22}(\infty) = \frac{\Omega_R^2}{2T_2} \frac{T_1}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{T_2^2} + \frac{T_1}{T_2}\Omega_R^2}. \quad (3.22)$$

Da Ω_R^2 proportional zur Leistung des eingestrahnten Lichtfelds p und die Besetzungswahrscheinlichkeit proportional zur Emission ist, lässt sich somit die Leistungsabhängigkeit der Emission beschreiben. In dieser Arbeit wird später immer die Abhängigkeit von der Anregungsintensität I gegeben. Da diese proportional zu p ist, verändert sich das beschriebene Verhalten nur um einen konstanten Faktor auf der x -Achse. Bei einem Wert von $n = 0,25$ spricht man von der „Sättigung“. Der Zusammenhang $n(p)$ ist in Abbildung 3.14(a) dargestellt. Für große Leistungen sättigt die Besetzungswahrscheinlichkeit bei einem Wert von 0,5. Der Quantenpunkt ist also die Hälfte der Zeit besetzt und die andere Hälfte der Zeit unbesetzt. In diesem Fall spricht man von stimulierter Emission und die Absorptionsrate ist gleich der Rekombinationsrate. Löst man n bezüglich der Verstimmung $\Delta\omega = \omega - \omega_0$, so ergibt sich eine Lorentzkurve um $\Delta\omega = 0$ mit der Halbwertsbreite

$$\Gamma = \frac{2}{T_2} \sqrt{1 + \Omega_R^2 T_1 T_2}, \quad (3.23)$$

vergleiche Abbildung 3.14(b). Diese Linienverbreiterung entsteht zum einen durch die Leistungsver-

breiterung in der Sättigung, weil die Flanken der Resonanz später sättigen als die Mitte der Resonanz. Zum anderen spielt insbesondere bei sehr niedrigen Leistungen die Dephasierung eine Rolle: $\Gamma(\Omega_R = 0) = 2/T_2$.

Im Zusammenhang eines 2-Niveau-Systems, welches an ein Lichtfeld koppelt, spielt außerdem die Oszillatorstärke f eine wichtige Rolle. Diese beschreibt die Kopplungsstärke zwischen dem 2-Niveau-System und dem Lichtfeld. Während die Oszillatorstärke für einen harmonischen Oszillator 1 ist, ergibt sie sich in stark eingeschränkten Systemen wie beispielsweise einem Quantenpunkt für den Übergang zwischen Niveau $|2\rangle$ und $|1\rangle$ zu [Fox06, Kapitel 4.2]

$$f = \frac{2m\omega_0}{3\hbar e^2} |\mu_{12}|^2. \quad (3.24)$$

Für ein 2-Niveau-System in GaAs erhält man einen theoretischen Wert von $f = 10,7$ [Warburton97]. Weitere Quellen berichten im Zusammenhang mit selbstorganisierten InAs/GaAs-Quantenpunkten Oszillatorstärken von 7,6 bis 11,8 [Karrai03, Reithmaier04, Andreani99, Birkedal00].

Um eine resonante Anregung bestimmter energetischer Zustände im Quantenpunkt zu ermöglichen, wird hier ein durchstimmbarer Diodenlaser für die Messungen verwendet. Dieser kann bis auf 5 MHz genau auf eine Frequenz eingestellt werden. Zwei sehr prominente resonante Messmethoden sind die differenzielle Reflexion und Transmission und die resonante Fluoreszenz.

3.4.1 Differenzielle Reflexion

Das Konzept der differentiellen Reflexion und Transmission (DR) beruht darauf, ein Quantenpunktniveau mit einer modulierten Spannung durch den Stark-Effekt in und aus der Resonanz mit der Laserenergie zu bringen [Alén03, Högele04]. Das Quantenpunktsignal, welches viel kleiner ist als die an der Probe reflektierte (beziehungsweise durch die Probe transmittierte) Laserintensität, kann nicht spektral von diesem getrennt werden, da es resonant exakt bei derselben Energie liegt. Deshalb wird das gesamte von der Probe kommende Licht von der Photodiode mit eingebautem Verstärker detektiert und an einen Lock-In-Verstärker weitergegeben. Gleichzeitig wird dem Lock-In-Verstärker die Modulationsfrequenz der Spannung übermittelt. Während das Lasersignal konstant ist, ist das Quantenpunktsignal durch die modulierte Spannung ebenfalls moduliert und kann mithilfe von Lock-In-Technik vom an der Probe reflektierten (beziehungsweise durch die Probe transmittierten) Lasersignal getrennt werden. Das Signal des Lock-In-Verstärkers wird zur Auswertung an den Messrechner weitergegeben. Bei dieser Messtechnik erhält man letztendlich als Messgröße den Kontrast. Dieser ist definiert als das Verhältnis aus gemessenem Quantenpunktsignal ΔR und an der Probe reflektiertem Lasersignal R beziehungsweise durch die Probe transmittiertem Lasersignal T [Karrai03]. Möchte man den gesamten Kontrast eines Exzitons erfassen, muss man die Summe der maximalen Kontraste beider durch die Feinstruktur aufgespaltenen Maxima betrachten, da die emittierten Photonen in beiden Polarisationsachsen des Quantenpunkts berücksichtigt werden. Da in dieser Arbeit aufgrund der Versuchsgeometrie und der rauen Unterseite der Proben ausschließlich in Reflexion gemessen wird, wird im Folgenden die differenzielle Reflexion betrachtet.

Im Detail wird die angelegte Gatespannung U_G mit einer Rechteckspannung der Amplitude ΔU moduliert. Somit bringt beim schrittweise Erhöhen der Gatespannung zunächst der obere Puls $U_{max} = U_G + \Delta U$ den Quantenpunktübergang in Resonanz mit dem Laserlicht. Bei der weiteren Erhöhung der Gatespannung bringt der untere Puls $U_{min} = U_G - \Delta U$ den Übergang in Resonanz, jedoch phasenverschoben um π , also mit umgekehrtem Vorzeichen. Aus diesem Grund können zwei Messsignale

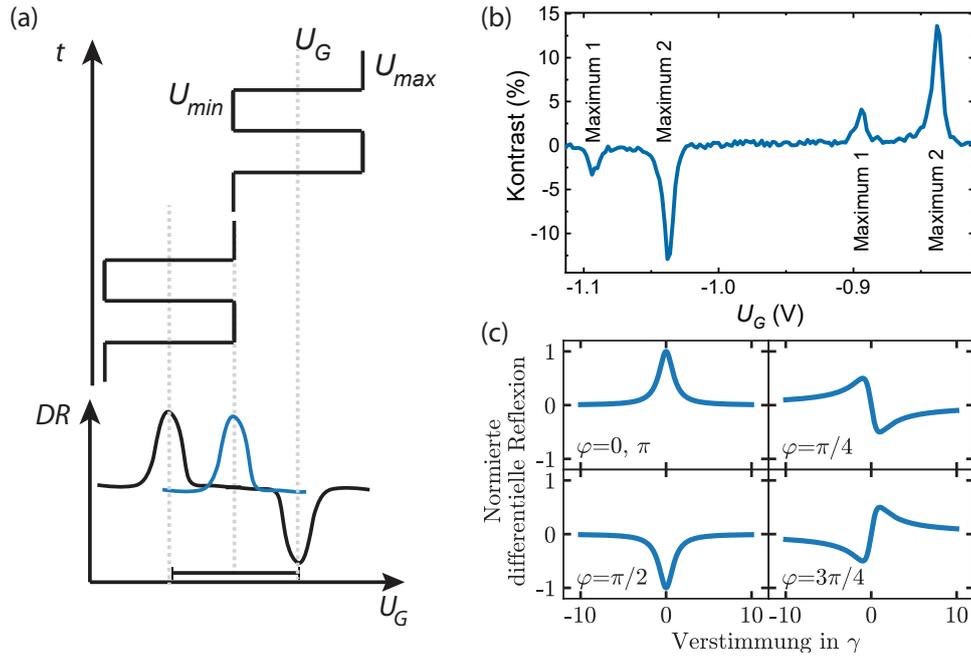


Abbildung 3.15: Differenzielle Reflexions-Messungen (DR) an einem einzelnen Quantenpunkt. (a) Der Rechteckpuls der Gatespannung (oben) tastet die Quantenpunktresonanz (blau) zunächst mit der oberen Gatespannung U_{max} und dann mit der unteren Gatespannung U_{min} ab, sodass die Resonanz einmal bei einer höheren und einmal bei einer niedrigeren Gatespannung U_G gemessen wird. Die tatsächliche Resonanz liegt mittig von diesen beiden (blau). Nach [Kurzmann17]. (b) Beispielmessung des DR-Signals eines durch die Feinstruktur aufgespaltenen Exzitons im Quantenpunkt. Die Gatespannung wurde mit einer Amplitude von $\Delta U = 0,1$ V variiert. (c) Berechnetes DR-Signal für verschiedene Phasenunterschiede φ zwischen Quantenpunktlicht und reflektiertem Laserlicht, abhängig von der Verstimmung zur Resonanz des Quantenpunkts in halben Halbwertsbreiten γ . [Kerski18]

desselben Übergangs beobachtet werden. Die Gatespannung, bei der das untersuchte Quantenpunktniveau tatsächlich in Resonanz mit dem Laser ist, befindet sich genau in der Mitte der beiden Messsignale (vergleiche Abbildung 3.15(a)). Somit lässt sich die Resonanzlinie eines Quantenpunktniveaus wie zum Beispiel das feinstrukturaufgespaltenes Exziton X^0 , wie in Abbildung 3.15(b), oder das Trion X^- , genau abtasten. Häufig weicht das Signal jedoch von der erwarteten Lorentzform der Resonanz ab. Dies lässt sich durch die Interferenz des reflektierten Laserlichts mit dem Quantenpunktlicht und der vom genauen Strahlengang abhängigen Phasenbeziehung zwischen diesen beiden erklären, wie in Abbildung 3.15(c) ersichtlich wird [Karrai03]. Die Linienform des Kontrasts lässt sich somit nach [Karrai03] mittels

$$\frac{\Delta R}{R} \approx \frac{4n}{n^2 - 1} \alpha_0 \frac{\gamma^2}{\Delta\omega^2 + \gamma^2} \left(\cos(2\varphi) - \frac{\Delta\omega}{\gamma} \sin(2\varphi) \right) \quad (3.25)$$

beschreiben. Dabei ist n der Brechungsindex des den Quantenpunkt umgebenden Materials, α_0 die Absorption bei der Resonanz, γ entspricht der halben Halbwertsbreite des Lorentzprofils ohne Interferenz, φ ist die Phasendifferenz zwischen reflektierten Laser- und Quantenpunktphotonen und $\Delta\omega$ nennt man auch Verstimmung. In der Messung sollte die Amplitude der Rechteckspannung für eine einfache Interpretation der Messergebnisse so gewählt werden, dass die Signale bei U_{max} und U_{min} sich nicht überlappen. Bei der Interpretation des Kontrasts sollte man außerdem darauf achten, wie der Lock-In-Verstärker das rechteckig modulierte Quantenpunktsignal verarbeitet [Sta11]. Ein Rechteckimpuls lässt sich mit der Fourierreihe

$$U_r(t) = \frac{4U_0}{\pi} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{\sin((2k-1)\omega t)}{2k-1} \quad (3.26)$$

darstellen, wobei U_0 die Amplitude des Rechtecks und ω die Frequenz der Modulation ist. Bei der Lock-In-Verstärkung wird jedoch nur die erste Komponente mit der einfachen Frequenz ω berücksichtigt, sodass die gemessene Amplitude $4/\pi \cdot U_0$ beträgt. Außerdem zeigt der Lock-In-Verstärker das quadratische Mittel an, welches bei einer Sinusfunktion zu einem gemessenen Wert von $1/\sqrt{2} \cdot 4/\pi \cdot U_0 = 2\sqrt{2}U_0/\pi$ führt. Da das Signal von Interesse außerdem der Maximum-zu-Maximum-Amplitude des Rechtecksignals entspricht, beträgt das vom Lock-In-Verstärker ausgegebene Signal letztendlich nur $2\sqrt{2}U_0/(\pi 2U_0) = 45\%$ des originalen Signals. In dieser Arbeit wird, wenn nicht anders angegeben, immer das vom Lock-In-Verstärker gemessene Signal gezeigt.

Der deutliche Vorteil dieser Messmethode liegt im guten Auflösungsvermögen, das lediglich von der Linienbreite und der Stabilität der Frequenz des Lasers abhängig ist. In dieser Arbeit beläuft es sich somit auf einige 10 neV. Zusätzlich sind hier polarisationsabhängige Messungen möglich. Diesen Vorteilen gegenüber steht die geringe Zeitauflösung. Diese liegt durch die Lock-In-Technik im Sekundenbereich. Als ein weiterer Nachteil sind die Quantenpunktphotonen de facto nicht ohne den Laserhintergrund zugänglich. Resonante Fluoreszenzmessungen, die diese Nachteile nicht aufweisen, sind allerdings wesentlich aufwändiger. Aus diesem Grund wird die differenzielle Reflexion insbesondere für längere Messungen über einen großen Messbereich ohne Zeitauflösung verwendet. Ist die Quantenpunktemission allerdings sehr groß, so kann der Kontrast auch direkt und ohne die Modulation und Lock-In-Technik gemessen werden, zum Beispiel auf dem CCD-Detektor des Spektrometers oder bei sehr niedrigen Intensitäten auf der APD.

3.4.2 Resonante Fluoreszenz

Die resonante Fluoreszenz (RF) [Muller07, Melet08, Astafiev10, Vamivakas10, Pinotsi11, Schulte15, Wüst16, Hansom14, Löbl20] ermöglicht die experimentelle Untersuchung der Quantenpunktzustände mit einer sehr hohen Zeitauflösung. Durch sie erlangt man Zugang zu zeitlichen Abläufen von Be- und Entladungsprozessen im Quantenpunkt und in dessen Umgebung sowie Ladungsträgerrekombinationen im Quantenpunkt [Al-Ashouri18, Kurzmann16c]. Da einzelne Quantenpunktphotonen direkt detektiert werden können, können auch Zählstatistiken und Korrelationsmessungen erstellt werden [Kurzmann19]. Deshalb wird in dieser Arbeit vor allem diese Messmethode Anwendung finden.

Im Falle der resonanten Fluoreszenz wird die Technik der Kreuzpolarisation verwendet, um das Lasersignal vom resonanten Quantenpunktsignal zu trennen [Vamivakas09, Yılmaz10]. Dazu wird das elliptisch polarisierte Laserlicht durch einen linearen Polarisator in der Rotationsplattform im Anregungsarm des optischen Kopfs (siehe Abbildung 3.7) linear polarisiert (blau in Abbildung 3.16(a)). Da der Quantenpunkt durch seine Asymmetrie feste Polarisationsachsen hat (vergleiche Kapitel 2.2.2), wird die Laserpolarisation darauf projiziert und die Polarisationsrichtung der Emission des Quantenpunkts ist im Vergleich zur Laserpolarisation gedreht (grau in Abbildung 3.16(a)). Die Reflexion des Laserlichts an der Probenoberfläche hingegen ist polarisationserhaltend. Um nun das reflektierte Laserlicht von der Quantenpunktemission zu trennen, wird in die Rotationsplattform des Detektionsarms ein weiterer linearer Polarisator genau senkrecht zur Polarisationsrichtung des Laserlichts eingebaut (rot in Abbildung 3.16(a)). Dieses wird dadurch herausgefiltert, während das Quantenpunktlicht den Polarisator anteilig passieren kann. Da der Quantenpunkt bezüglich der Polarisation zwei Emissionsrichtungen hat, die orthogonal zueinander ausgerichtet sind, wird das Quantenpunktsignal durch den linearen Polarisator im Detektionsarm unabhängig von der relativen Ausrichtung zueinander um die Hälfte verringert. Das Lasersignal hingegen wird um etwa sieben Größenordnungen unterdrückt. Jedoch muss die Unterdrückung mithilfe der Polarisatoren regelmäßig nachjustiert werden, da sich diese leicht durch minimale Vibrationen oder auch das Kriechen der Schrauben der Rotationsplatt-

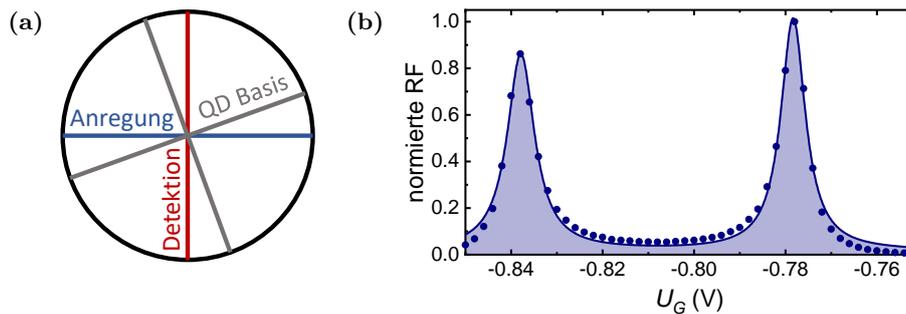


Abbildung 3.16: Resonante Fluoreszenz-Messungen (RF). (a) Lineare Polarisationsachsen des anregenden Laserlichts nach dem Passieren eines linearen Polarisators (blau), der Quantenpunktemission (grau) und des Polarisators in der Detektion (rot). Das Laserlicht wird durch die senkrechte Ausrichtung des Polarisators in der Detektion unterdrückt. (b) Mittels RF gemessenes Spektrum des Exzitons. Durch die Feinstrukturaufspaltung sind zwei Maxima zu sehen. Die blaue Kurve ist eine Anpassung mit zwei Lorentzfunktionen.

form verstellen und schon die kleinsten Verstellungen die Unterdrückung verschlechtert. Zur Detektion des Messsignals wird das Licht mit einer Glasfaser auf eine APD geleitet. Diese misst immer einen konstanten Untergrund (engl.: *dark counts*) von etwa 60 Photonen pro Sekunde. Das Signal zu Hintergrund-Verhältnis (engl.: *signal to background ratio, SBR*), wobei sich der Hintergrund aus den Untergrundphotonen der APD und den dennoch transmittierten Laserphotonen zusammensetzt, ist somit eine Größe, die die Qualität der Unterdrückung, aber auch die Emissionsstärke der Probe quantisiert [Matthiesen12]. Wenn nicht anders angegeben, wird bei jeder Messung in dieser Arbeit der Untergrund bestimmt und abgezogen, sodass nur Quantenpunktphotonen dargestellt werden. Eine beispielhafte Messung des Exzitons mittels resonanter Fluoreszenz ist in Abbildung 3.16(b) zu sehen. Wie aus Kapitel 3.2 folgt, wird an vielen Stellen im Versuchsaufbau die Lichtintensität verringert oder durch die Effizienz der APDs eingeschränkt. Die in dieser Arbeit angegebene maximale resonante Fluoreszenz-Intensität ist die an der APD direkt gemessene Intensität. Die Intensität des vom Objektiv direkt hinter der Probe eingesammelten Quantenpunktlichts wäre in etwa um einen Faktor 9 größer.

Um Zugang zu verschiedenen Eigenschaften des Quantenpunkts zu erlangen, können verschiedene Parameter in der Messung verändert werden. Durch die Variation der Laserleistung können Messungen abhängig von der Anregungsintensität gemacht werden und beispielsweise die Sättigung oder die Linienverbreiterung der Emission bestimmt werden (siehe Abbildung 3.14). Eine Veränderung der Gatespannung verschiebt die Resonanz eines Übergangs durch den Stark-Effekt, sodass sich Emissionslinien abtasten lassen oder die Gatespannung herausfinden lässt, bei der ein Elektron aus dem Rückkontakt in den Quantenpunkt tunneln kann (vergleiche Kapitel 2.3). Auch ist es möglich, die Laserfrequenz zu verändern, sodass die Quantenpunktresonanz bei einer veränderten Gatespannung beobachtbar wird. Aus einem Frequenzscan lässt sich mittels Stark-Verschiebung die Gatespannungsachse in eine Energieachse umrechnen. Die Leistung und die Gatespannung können aber auch instantan verändert werden, sodass zeitaufgelöste Messungen möglich werden.

3.4.3 Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz

Gepulste Gatespannung

Eine Möglichkeit für zeitaufgelöste resonante Fluoreszenzmessungen ist die instantane Veränderung der Gatespannung. Dazu wird zunächst eine Präparationsspannung $U_{Präp}$ an die Probe angelegt, die das System aus Quantenpunkt und Rückkontakt in einen Ausgangszustand bringt. Dann wird die

Spannung instantan verändert und das System somit aus dem Gleichgewicht gebracht (siehe Abbildung 3.17, oben). Die sogenannte Detektionsspannung U_{Det} wird so gewählt, dass sie einen exzitonischen Übergang in die Laserresonanz schiebt, sodass Lumineszenz auftritt. Die Relaxation ins neue Gleichgewicht kann daraufhin beobachtet werden, indem man detektiert, zu welcher Zeit nach der Spannungsänderung Photonen emittiert werden. Um die Statistik dieses Prozesses zu erhalten, wird dieser Vorgang n mal wiederholt (engl.: n -shot) und durch den Trigger der Spannungsquelle synchronisiert. Somit lässt sich zeitlich aufgelöst beobachten, wie die Lumineszenz zu- oder abnimmt weil beispielsweise ein Elektron in den oder aus dem Quantenpunkt tunnelt. Das Signal einer solchen Messung ist in Abbildung 3.17 unten zu sehen. Die Anstiegszeit der Spannungsquelle beträgt 8,4 ns, jedoch verlangsamt die RC -Konstante der Probe den Anstieg der Spannung am Quantenpunkt selbst zusätzlich. Die RC -Konstante bei den untersuchten Proben liegt in der Größenordnung von 10^{-1} (Probe mit metallischem Gate) bis $10^0 \mu\text{s}$ (Probe mit epitaktischem Gate und DBR), es kann also durch die instantane Veränderung der Gatespannung eine Auflösung im Mikrosekundenbereich erreicht werden. Bringt die Spannung beim Verändern von der Präparations- zur Detektionsspannung kurzfristig weitere Übergänge in Resonanz mit der Laserenergie, so sind diese als scharfe Maxima während der Anstiegszeit in der Messung zu sehen.

Gepulste Laserintensität

Unter Verwendung des AOMs kann, wie in Kapitel 3.2 beschrieben, der Laser instantan ein- und ausgeschaltet werden. Die Anstiegszeit der Laserintensität beträgt dabei in etwa 160 ns, sodass ebenfalls eine Zeitauflösung im Mikrosekundenbereich erreicht werden kann. Die instantane Veränderung der Anregungsintensität ermöglicht es, den Einfluss eines Elektron-Loch-Paars auf die resonante Fluoreszenz zu messen. Außerdem können durch das Einstrahlen und schnelle Ein- und Ausschalten eines nicht-resonanten Lasers nicht-resonante Effekte nachgewiesen und untersucht werden. Zusätzlich besteht die Möglichkeit, gepulste Laserintensität mit gepulster Gatespannung zu kombinieren. In allen Fällen wird über n Zyklen gemittelt.

Telegraphenrauschen

Zuletzt ist es möglich, mithilfe des Zeit-zu-Digital-Wandlers den Photonenstrom, der vom Quantenpunkt ausgeht, direkt zu messen. Dazu wird der Zeitstempel eines jeden Photons, welches detektiert wird, gespeichert (Abbildung 3.18). Daraus kann später die Statistik des Photonenstroms und der diesem zugrundeliegenden Effekte wie beispielsweise Einzel-Elektronentunneln bestimmt werden [Gustavsson09, Kurzmann19].

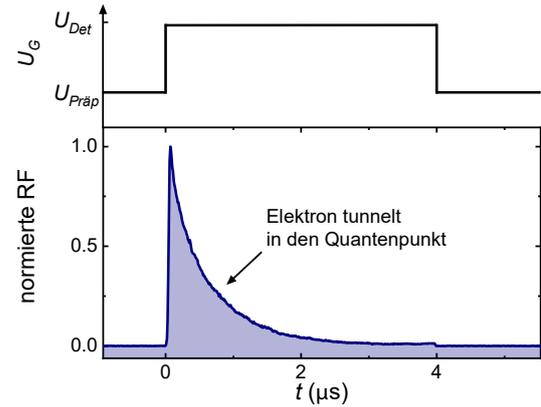


Abbildung 3.17: Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz mit gepulster Gatespannung U_G . Wird die Gatespannung von $U_{Präp}$ auf U_{Det} verändert und somit ein Quantenpunktübergang in Resonanz gebracht, kann man in einer n -fachen Messung eine Veränderung des Signals beobachten. Hier wird das Tunneln eines Elektrons in den Quantenpunkt beobachtet, welches den Exzitonübergang ausschaltet.

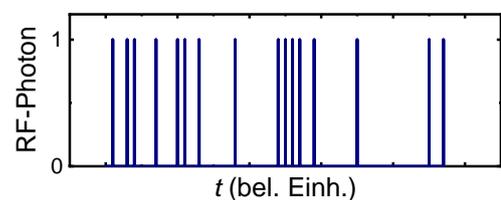


Abbildung 3.18: Zeitstempel eines jeden detektierten resonanten Fluoreszenz-Photons.

4 Hoher Kontrast in Reflexionsmessungen

Nachdem in den vorangegangenen Kapiteln die notwendigen physikalischen Grundlagen sowie die Messmethodik und die verwendeten Proben erklärt wurden, folgen nun fünf Kapitel, in denen die Ergebnisse dieser Arbeit präsentiert werden.

Möchte man den Exzitonübergang im Quantenpunkt in einer resonanten Messung beobachten, kann man entweder mittels differentieller Reflexion den Kontrast messen (vergleiche Kapitel 3.4.1) oder aber die resonante Fluoreszenz des Übergangs beobachten (vergleiche Kapitel 3.4.2). Beide Messmethoden beschränken jedoch die Informationen, da bei der differentiellen Reflexion durch die verwendete Lock-In-Technik nur eine geringe Zeitauflösung erreicht wird, während bei der resonanten Fluoreszenz durch die Kreuzpolarisation Informationen über die Polarisation der Quantenpunktemission verloren geht. In der differentiellen Reflexion an einem einzelnen Quantenpunkt wurden bisher maximale Werte für den Kontrast von 12 % erreicht [Vamivakas07], obwohl in der Theorie eine Reflektivität von 85 % des einfallenden Lichts von einem einzelnen, punktförmigen Dipol vorhergesagt wird [Zumofen08]. Durch ein optimiertes Probendesign (vergleiche Kapitel 3.1.2) wird hier ohne Kreuzpolarisation ein so großes Verhältnis zwischen detektierten Quantenpunktphotonen und an der Probe reflektierten Laserphotonen am Detektor erreicht, dass eine Messung dieses Verhältnisses (auch Kontrast genannt) ohne Lock-In-Technik möglich wird. Das heißt, durch dieses neue Probendesign kann nun auch gleichzeitig polarisations- und zeitaufgelöste optische Spektroskopie an einzelnen Quantenpunkten durchgeführt werden. Im Folgenden wird die Probe genauer charakterisiert, es werden Kontrastmessungen in verschiedenen Geometrien gezeigt und durch eine Simulation des Kontrasts mittels Transfermatrixalgorithmus die Ursache der guten optischen Eigenschaften genauer analysiert. Die Messungen werden an der in Kapitel 3.1.2 beschriebenen Probe vorgenommen. Teile der Ergebnisse dieses Kapitels wurden bereits in [Lochner19] veröffentlicht.

4.1 Stark-Verschiebung der Exzitonresonanz

Zur ersten Charakterisierung wird die Stark-Verschiebung der Exzitonresonanz des hier untersuchten Quantenpunkts gemessen. Dazu wird der Exzitonübergang resonant mit einer Laserintensität von $1,8 \cdot 10^{-4} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ angeregt. Die Messgeometrie ist hier vertikal, das heißt, das einfallende Laserlicht ist senkrecht zur Probenoberfläche. Da der Kontrast zwischen Quantenpunktphotonen und an der Probe reflektierten Laserphotonen so groß ist, wie später ausführlicher diskutiert wird, kann dieser ohne die Modulation der Spannung und Lock-In-Verstärkung direkt auf dem CCD-Detektor in der Bildebene des Spektrometers detektiert werden. Für steigende Anregungsfrequenzen wird jeweils die Gatespannung schrittweise verändert, sodass jeweils die Resonanz des linken Exzitonmaximums aufgenommen wird, bis die Resonanz durch den Stark-Effekt so weit verschoben wurde, dass ein Elektron bei einer Tunnelspannung von etwa 0,38 V in den Quantenpunkt tunneln kann und den Exzitonübergang verbietet. Somit ergibt sich die Darstellung der Stark-Verschiebung in Abbildung 4.1. Die rote Linie ist eine Anpassung nach Formel (2.6). Mit dieser lässt sich die Gatespannungsachse in den nachfolgenden Messungen der Exzitonresonanz in eine Energie umrechnen.

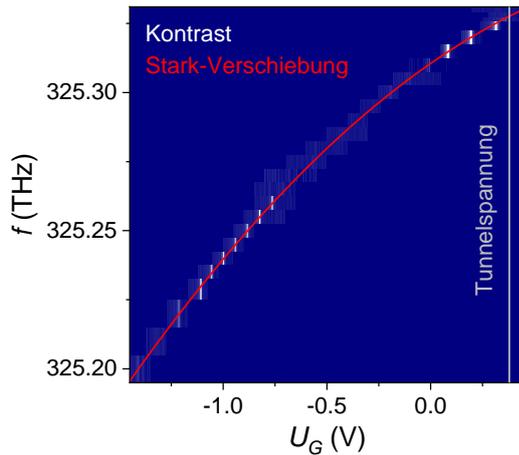


Abbildung 4.1: Stark-Verschiebung der Exziton-Resonanz. Mittels Kontrastmessung ohne Modulation wurde die linke Exzitonresonanz detektiert und durch Verändern der Anregungsfrequenz bis zur Tunnelspannung bei etwa 0,38 V verschoben.

4.2 Resonante Fluoreszenz mit Polarisationsunterdrückung

In klassischen resonanten Fluoreszenzmessungen mit Unterdrückung des Hintergrunds durch Kreuzpolarisation lässt sich zunächst zeigen, dass das optimierte Probendesign die Messung einer hohen Quantenpunkt-Photonenemissions- und Einsammeleffizienz ermöglicht.

Abbildung 4.2(a) zeigt die Abhängigkeit der maximalen RF-Zählrate von der Intensität des anregenden Laserlichts. Dabei entspricht die maximale RF-Zählrate für jede Laserintensität der Summe beider durch die Feinstruktur aufgespaltenen Exzitonresonanzen. Mit zunehmender Laserintensität steigt die maximale RF-Zählrate auf bis zu 4,5 Mcounts/s an. Dieser Wert übersteigt bisher typische maximale RF-Intensitäten von etwa 150 kcounts/s bei Messungen an einzelnen InAs/GaAs-Quantenpunkten im selben Aufbau [Kurzmann16a] um mehr als eine Größenordnung. Auch andere Forschergruppen erreichten üblicherweise Zählraten in der Größenordnung von maximal 10^2 kcounts/s [Munsch17, Hansom14]. Erst im Oktober 2019 zeigten Najer et al. einzelne InAs/GaAs-Quantenpunkte in Proben mit

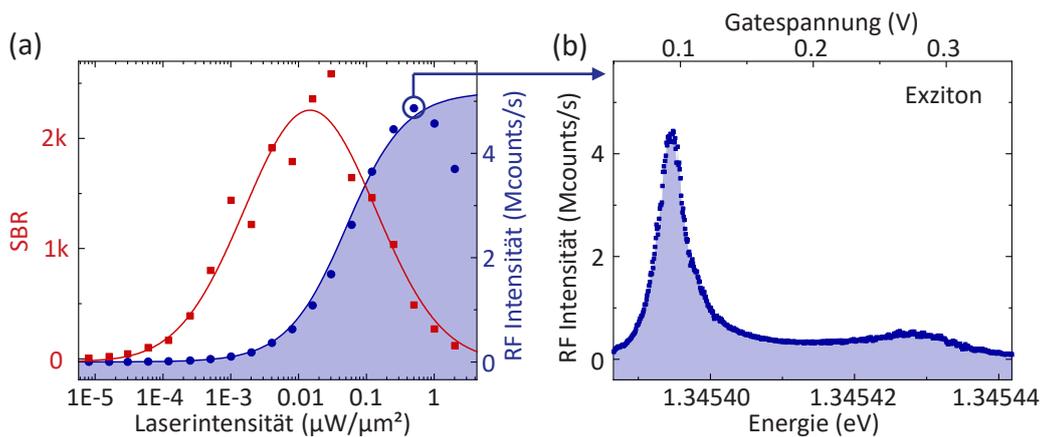


Abbildung 4.2: Resonante Fluoreszenz (RF) Messungen. (a) Maximale RF-Intensität (blau) und Signal-zu-Hintergrund-Verhältnis (SBR, rot) abhängig von der Laserintensität bei einer festen Laserfrequenz (325,315 THz). Die RF-Intensität ist dabei die Summe der maximalen Zählraten beider durch die Feinstruktur aufgespaltenen Exzitonresonanzen. Die Anpassung (blaue Linie) berücksichtigt keine Punkte oberhalb von $0,5 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$, da hier die gemessene Intensität stark von photoninduziertem Elektroneneinfang beeinflusst wird. Die rote Linie dient nur als Orientierungshilfe für die Messpunkte des SBRs. (b) Einzelnes Spektrum des Exzitons bei der höchsten Zählrate.

DBR, epitaktischem Gate und passivierter Oberfläche, die höhere Zählraten erreichten [Najer19]. Die blaue Linie in Abbildung 4.2(a) ist die Anpassung an ein resonant getriebenes 2-Niveau-System nach Formel (3.22). Dabei sind die Werte oberhalb von $0,5 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ nicht berücksichtigt worden, da dort aufgrund von photoninduziertem Elektroneneinfang in den Quantenpunkt (siehe Kapitel 2.5, [Kurzmann16b]) die RF-Intensität wieder sinkt.

Aufgrund der großen messbaren resonanten Fluoreszenz des Exzitonübergangs in einem einzelnen Quantenpunkt wird außerdem ein sehr gutes Signal-zu-Hintergrund-Verhältnis (SBR, rote Punkte in Abbildung 4.2(a)) von maximal 2500 bei einer Laserintensität von $0,03 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ erreicht. Bei Laserintensitäten oberhalb der Sättigung nimmt das SBR wieder ab, da der Laserhintergrund weiterhin linear mit der Laserintensität ansteigt während die Quantenpunktemission oberhalb der Sättigung ($n = 0,25$) immer langsamer bis zu einer Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts mit einem Exziton von $n = 0,5$ ansteigt [Loudon00, Matthiesen12].

Exemplarisch ist in Abbildung 4.2(b) das Exzitonspektrum bei der höchsten RF-Zählrate (Laserintensität $0,5 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$) dargestellt. Für jeden blauen Punkt in Abbildung 4.2(a) wurde ein solches RF-Spektrum durch die schrittweise Erhöhung der Gatespannung aufgenommen und entsprechend ausgewertet.

4.3 Kontrastmessungen

Die große RF-Zählrate lässt vermuten, dass ein sehr großer Kontrast an dieser Probe gemessen werden kann. Dazu werden zunächst klassische differenzielle Reflexionsmessungen mit gepulster Gatespannung und Lock-In-Detektion in vertikaler Geometrie durchgeführt. In Abbildung 4.3(a) ist eine einzelne Kontrastmessung bei einer Laseranregungsintensität von $2,6 \cdot 10^{-5} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ zu sehen. Die Laserfrequenz betrug $325,315 \text{ THz}$ und die Spannung wurde mit einer Maximum-zu-Maximum-Amplitude von 100 mV moduliert. Die Polarisation des Anregungslasers war bei dieser Messung zufällig so ausgerichtet, dass die rechte Exzitonresonanz, welche etwa 200 mV oberhalb der linken liegt (vergleiche dazu Abbildung 4.3(b)), nicht angeregt wurde. Der Laserintensitätsscan (Abbildung 4.3(d)), dem diese einzelne Messung angehört, zeigt einen maximalen Kontrast von 27% auf. Dieser Wert beträgt allerdings aufgrund der Lock-In-Verstärkung nur 45% des tatsächlichen Kontrasts (siehe Kapitel 3.4.1), sodass hier ein tatsächlicher maximaler Kontrast von 60% vorliegt, für 10 detektierte Laserphotonen werden also 6 Quantenpunktphotonen detektiert. Dieser Wert ist so hoch, dass man das Quantenpunktsignal auch ohne Lock-In-Technik oder die Kreuzpolarisation aus den resonanten Fluoreszenzmessungen detektieren und vom Hintergrund trennen können sollte.

Um dies zu zeigen, werden Kontrastmessungen auf dem CCD-Detektor in der Bildebene des Spektrometers bei einer anregenden Laserfrequenz von $325,315 \text{ THz}$ durchgeführt. Dafür wird immer abwechselnd ein Spektrum bei 0 V (also außerhalb der Resonanz) und bei der Detektionsgatespannung aufgenommen. Bei jedem aufgenommenen Spektrum wird der Untergrund abgezogen und dann das Maximum ausgewählt. Teilt man die Differenz der beiden Maxima aus den Spektren bei 0 V und bei der Detektionsspannung durch das Maximum bei 0 V , so erhält man den Kontrast, welcher letztendlich gegen die Detektionsspannung aufgetragen das Spektrum der Exzitonresonanzen ergibt. Ein Beispiel für ein solches Spektrum, aufgenommen in vertikaler Geometrie, ist in Abbildung 4.3(b) zu sehen. Beim Einstellen des optischen Kopfs zur Erreichung des maximalen Kontrasts kann sich die Phase zwischen den Quantenpunktphotonen und den reflektierten Laserphotonen verändern, sodass hier destruktive Interferenz, also ein negativer Kontrast vorliegt. Um den gesamten Kontrast der Messung zu erhalten, werden beide (in diesem Fall) Minima addiert, da der Kontrast (ebenso wie das maximale

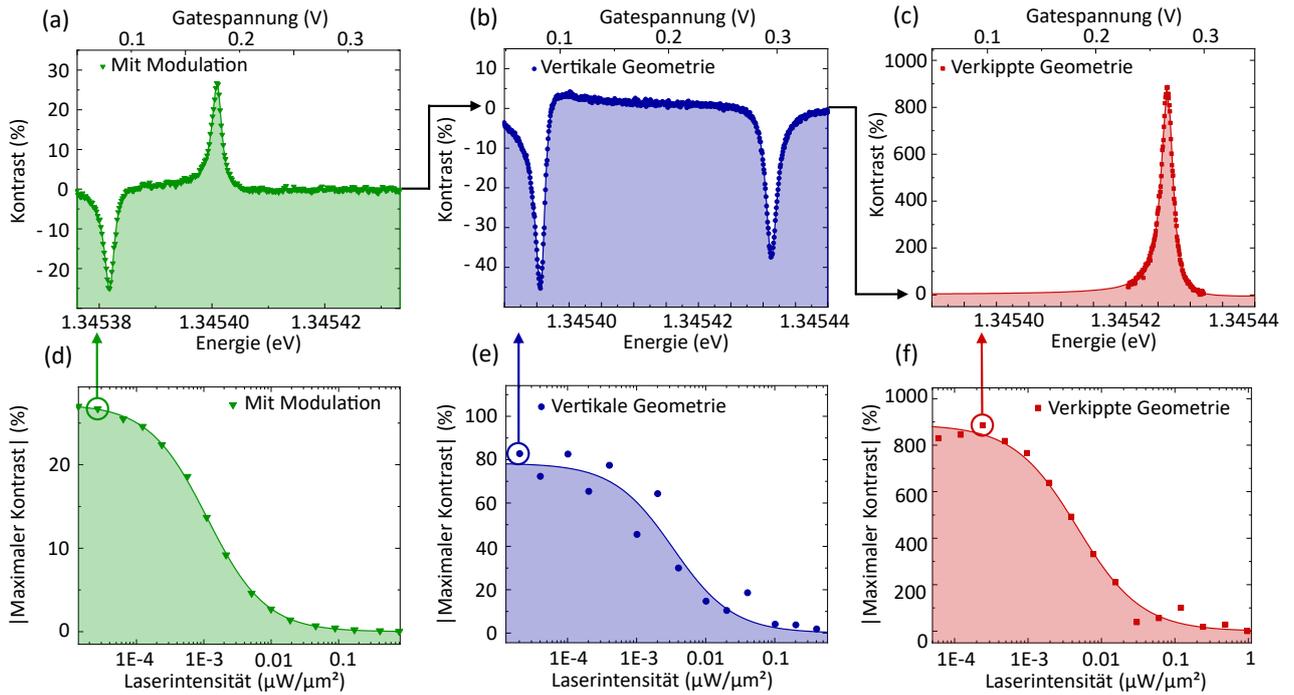


Abbildung 4.3: Kontrastmessungen am Exziton. (a)-(c) Einzelne Exziton-Spektren bei niedriger Anregungsintensität. In (a) wurde in vertikaler Geometrie mit differenzieller Reflexion (also Lock-In-Technik) gemessen, in (b) wurde der Kontrast ebenfalls in vertikaler Geometrie aber ohne Lock-In-Technik oder Kreuzpolarisation auf einem CCD-Detektor gemessen. In (c) wurde der Kontrast in verkippter Geometrie und ebenfalls ohne Lock-In-Technik oder Kreuzpolarisation auf einer APD gemessen. Alle Daten wurden nach Gleichung (3.25) angepasst. (d)-(f) Betrag des maximalen Kontrasts abhängig von der Laserintensität entsprechend der Messkonfigurationen in (a)-(c). Der maximale Kontrast ergibt sich aus der Summe beider Exzitonresonanzen.

RF-Signal) alle vom Quantenpunkt emittierten Photonen umfasst. Regte man den Quantenpunkt mit linear polarisiertem Laserlicht an, so könnte man die Polarisation des Laserlichts so einstellen, dass nur noch eine der beiden Exzitonresonanzen angeregt würde. Der Kontrast dieser Emission wäre dann genauso groß wie die Summe der beiden Resonanzen in anderen Polarisationskonfigurationen. Eine Messung in differenzieller Reflexion, in der die Stellung eines linearen Polarisators im Strahlengang des anregenden Lasers schrittweise verändert wird, zeigt dies deutlich: In Abbildung 4.4 beträgt die Modulationsspannung 500 mV, sodass nur die Resonanzen bei U_{max} in Abbildung 4.4(a) sichtbar sind und die tatsächliche Resonanz 250 mV niedriger läge. In Abbildung 4.4(b) ist der normierte Kontrast der Maxima der beiden Resonanzen sowie die Summe dieser gegen die Polarisatorstellung aufgetragen. Nimmt die Intensität der einen Resonanz ab, so nimmt die der anderen zu, sodass die Summe der beiden konstant bleibt. Abweichungen von diesem konstanten maximalen Wert können durch leichte Veränderungen der Justage des optischen Pfads beim Verstellen des Polarisators erklärt werden. Somit ergibt sich in der Kontrastmessung ohne Lock-In-Technik und Kreuzpolarisation in vertikaler Geometrie ein Rekordwert für den Kontrast von 83 %. In Abbildung 4.3(e) ist der zugehörige Intensitätsscan zu sehen. Wie schon bei der Messung in klassischer differenzieller Reflexion nimmt das Verhältnis zwischen Quantenpunkt- und Laserphotonen mit steigender Laserintensität ab.

Zuletzt wird durch kleine Veränderungen in der Justage des Anregungswegs im Mikroskopkopf die Laseranregung um maximal $0,1^\circ$ verkippt. Dies führt zwar zu einer verringerten Quantenpunktphotonen-Zählrate, jedoch können gleichzeitig verhältnismäßig viel mehr reflektierte Laserphotonen nicht mehr von der Detektionsfaser eingesammelt werden. Der Grund dafür liegt darin, dass bei der Reflexion der Laserphotonen der Einfallswinkel gleich dem Ausfallswinkel sein muss, während sich an

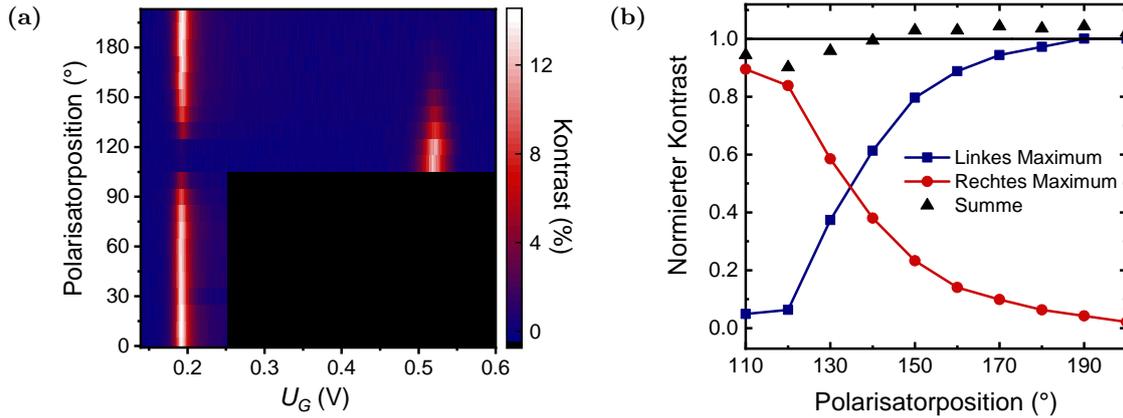


Abbildung 4.4: Kontrast der Exzitonresonanzen abhängig von der linearen Polarisationsrichtung des Anregungslasers, gemessen in differentieller Reflexion. Die Modulationsspannung beträgt 500 mV, sodass in (a) nur die beiden Exzitonresonanzen bei U_{max} zu sehen sind und die tatsächliche Resonanz 250 mV niedriger liegt. Für den schwarzen Bereich wurden keine Daten aufgenommen. (b) Die Summe der Kontraste beider Exzitonresonanzen ist unabhängig von der Polarisationsrichtung des Anregungslasers.

der Richtung der Quantenpunktmission nichts verändert. In dieser verkippten Geometrie wird das nun geringe Signal mithilfe einer APD, jedoch wiederum ohne Kreuzpolarisation detektiert. Lediglich im Strahlengang des anregenden Lasers ist ein linearer Polarisator so eingestellt, dass nur die linke Exzitonresonanz beobachtbar ist. Als anregende Laserfrequenz wurde hier 325,323 THz gewählt, was jedoch die Ergebnisse bis auf eine Verschiebung in der Gatespannung nicht verändert. Somit ergibt sich das Einzelspektrum in Abbildung 4.3(c) sowie der laserintensitätsabhängige maximale Kontrast in Abbildung 4.3(f). Der maximale Kontrast in dieser Messkonfiguration beträgt 885 %, es werden also knapp 9 Quantenpunktphotonen pro einem Hintergrundphoton detektiert. Diese Unterdrückung ist so gut, dass sich viele Messungen an einzelnen Quantenpunkten in dieser Messkonfiguration nun auch ohne Kreuzpolarisation oder Lock-In-Technik durchführen ließen und somit eine zeit- und gleichzeitig polarisationsaufgelöste Messung der Quantenpunktmission möglich wäre. Im folgenden Kapitel wird die Korrelation zweiter Ordnung unter Ausnutzung dieser Technik gemessen.

4.4 Korrelationsmessungen

Die Autokorrelation wird für gewöhnlich beispielsweise in resonanter Fluoreszenz gemessen, wo der Hintergrund durch Kreuzpolarisation so gut wie möglich unterdrückt wird. Eine entsprechende Messung an diesem Quantenpunkt bei einer Laserfrequenz von 325,315 THz, einer Laseranregungsintensität von $2,5 \cdot 10^{-4} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ und einer Gatespannung von 0,2965 V ist in Abbildung 4.5 zu sehen. Hier wurde in vertikaler Geometrie über etwa 4,2 h die Korrelation zweiter Ordnung $g^{(2)}$ der rechten Exzitonresonanz aufgenommen. Anschließend wurden die Daten in der 2. Ordnung über 8 Punkte nach Savitzky-Golay geglättet und dann mit einer Lorentzverteilung angepasst, ohne vorher den Hintergrund sowie die Detektorfunktion rechnerisch abzuziehen. Trotzdem ergibt sich bei $\tau = 0$ ein niedriger Wert von 8,9 %. Es handelt sich also um eine Einzelphotonenquelle, wenngleich diese nicht perfekt ist, da noch einige Hintergrundphotonen die $g^{(2)}$ -Verteilung beeinflussen.

Zum Vergleich sind in Abbildung 4.6 Korrelationsmessungen zweiter Ordnung in verkippter Geometrie ohne Unterdrückung des Hintergrunds durch Kreuzpolarisation zu sehen. Diese wurden bei einer Anregungslaserintensität von $0,005 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ und einer Anregungsfrequenz von 325,323 THz an ver-

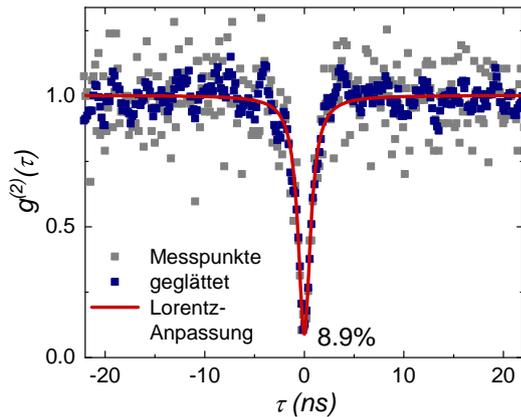


Abbildung 4.5: Korrelationsmessung zweiter Ordnung in resonanter Fluoreszenz in vertikaler Geometrie. Die Messung wurde bei einer geringen Laserintensität von $2,5 \cdot 10^{-4} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ durchgeführt. Die originalen Messdaten (grau) wurden mittels Savitzky-Golay (8 Punkte, 2. Ordnung) geglättet (blau) und anschließend mit einer Lorentzverteilung angepasst (rot). Das Minimum liegt bei 8,9%.

schiedenen Stellen der Exzitonresonanz (also verschiedenen Gatespannungen) für jeweils 17 bis 24 min aufgenommen. Abbildung 4.6(a) zeigt die Kontrastmessung der Exzitonresonanz bei $0,005 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ und $325,323 \text{ THz}$ in verkippter Geometrie. Die Korrelationsmessung im Maximum bei $0,268 \text{ V}$ in Abbildung 4.6(b) zeigt bei $\tau = 0$ ein Minimum. Dieses liegt aufgrund der vergleichsweise viel größeren Anzahl an Hintergrundphotonen deutlich höher als in der Messung in resonanter Fluoreszenz bei 72%. Jedoch ist es als Erfolg zu vermerken, dass dieses Minimum ohne die Verwendung von Kreuzpolarisation überhaupt messbar ist. Weiterhin zeigen Abbildungen 4.6(c)-(j) die $g^{(2)}(\tau)$ -Messungen auf den Flanken der Exzitonresonanz. Das Verhalten ändert sich symmetrisch auf beiden Flanken der Resonanz von einem Minimum über ein kleiner werdendes Minimum mit Überschwingern in den Flanken hin zu einem Maximum. Wie in Kapitel 3.4 mit Formel (3.18) erwähnt, lässt sich dies wahrscheinlich durch die steigende Rabi-Frequenz bei Verstimmung von der Resonanz erklären. Wenn gleichzeitig das Signal-zu-Hintergrund-Verhältnis schlechter wird, verringert sich die Ausprägung des Minimums bei $\tau = 0$ und das beobachtete Verhalten der verschmelzenden Maxima links und rechts von $\tau = 0$ zeigt sich. Bei sehr starker Verstimmung (j) ist kein autokorreliertes Signal mehr messbar und es ergibt sich eine Gerade wie man sie für kohärentes Laserlicht erwartet. Messungen dieser Art waren bisher nicht ohne die Unterdrückung des Hintergrunds durch Kreuzpolarisation oder ähnliche Verfahren möglich.

4.5 Simulation

Durch die Simulation des Kontrasts soll nun die Ursache der guten optischen Eigenschaften des optimierten Probedesigns genauer analysiert werden. Insbesondere wird hier der Einfluss des DBRs und des epitaktischen Gates auf den Kontrast untersucht. Dazu wird der Transfermatrixalgorithmus wie in Kapitel 3.1.5 beschrieben verwendet. Die Transfermatrix M wird erstellt. Dabei wird im Fall der resonanten Anregung der Quantenpunkt mit Formel (3.10) berücksichtigt. Das darin enthaltende σ_{2D} berücksichtigt mit f die Oszillatorstärke. Im Folgenden wird f jedoch als Parameter verwendet, der angepasst wird und neben der Oszillatorstärke außerdem weitere Effekte beinhaltet, die die Wechselwirkung zwischen dem Quantenpunkt-Dipolübergang und dem Laserlichtfeld beeinflussen, wie beispielsweise der Purcell-Effekt. Zur Vermeidung von Verwechslungen wird dieser Parameter deshalb im Folgenden als c bezeichnet. An dieser Stelle sei angemerkt, dass die detaillierte Analyse der Wechselwirkung zwischen dem anregenden Laserfeld und dem Quantenpunkt als 2-Niveau-System [vanEnk00, vanEnk04] kein Teil der Simulation sein wird. Aus der Transfermatrix kann nach Formel (3.4) der Reflexionsfaktor und somit die Reflektivität der Probe $R = |r|^2$ berechnet werden. Für den Brechungsindex des Materials oberhalb der Probe n_a wird der Brechungsindex von Zirkonia verwendet, da auf der Probenoberfläche eine SIL aus Zirkonia aufgebracht ist. Diese wird ansonsten nicht in der Schichtstruktur der Transfermatrix beachtet, da ihre Dicke wesentlich größer ist als die Laserwellen-

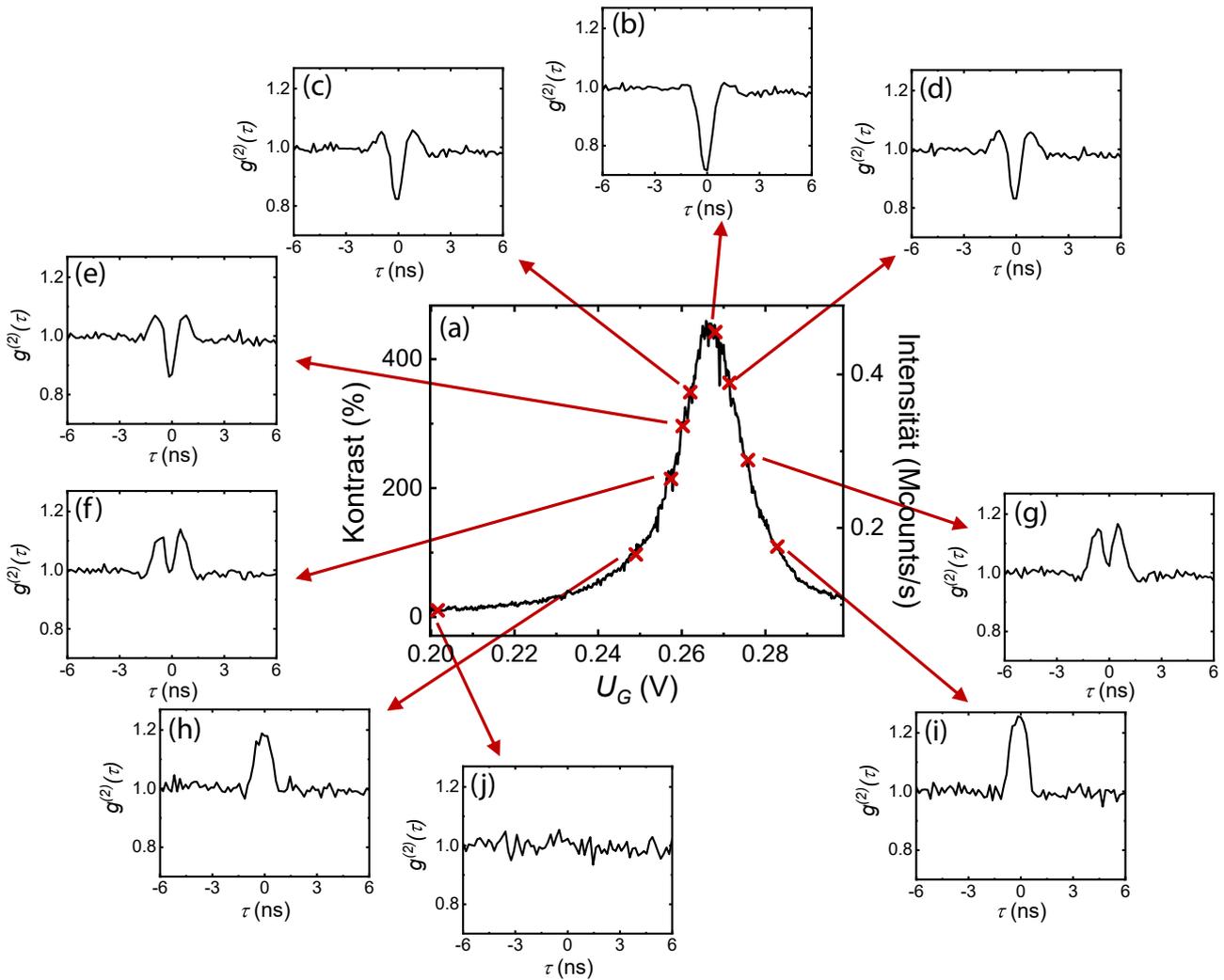


Abbildung 4.6: Korrelationsmessungen zweiter Ordnung in verkippter Geometrie ohne Kreuzpolarisation oder Lock-In-Technik. Die Korrelation wurde an verschiedenen Stellen der Exzitonresonanz (a) für mindestens 17 min bei einer Anregungslaserintensität von $0,005 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ gemessen. An den verschiedenen Stellen ergeben sich unterschiedliche Verläufe für $g^{(2)}(\tau)$. Das Minimum ist dabei niemals kleiner als 0,72, da der Hintergrund nur durch die Verkipfung abgeschwächt wird; im Gleichgewichtsspektrum (a) wird ein Hintergrund von 84 kcounts/s gemessen. Alle $g^{(2)}$ -Messungen wurden auf 1 normiert.

lenlänge und ihre Oberfläche nicht planparallel ist. Für den Brechungsindex des Materials unterhalb der Probe n_e wird der Brechungsindex von GaAs angenommen, da das Probensubstrat aus GaAs besteht. Der Kontrast kann nun errechnet werden, indem man den Quotienten aus der Reflektivität der Probe in Resonanz R_{res} und der Reflektivität der Probe aus der Resonanz R_{n-res} , also ohne die Quantenpunktemission, bildet. In der Simulation werden alle Winkel zwischen einfallendem Licht und der Probenoberfläche vernachlässigt, sodass die Simulation den Kontrastmessungen in vertikaler Geometrie entspricht.

Die Simulation wird für drei verschiedene Probenstrukturen vorgenommen:

1. Die Probenstruktur, wie sie der gewachsenen Probe entspricht.
2. Die Probenstruktur wie in (1.), nur ohne den Bragg-Spiegel.

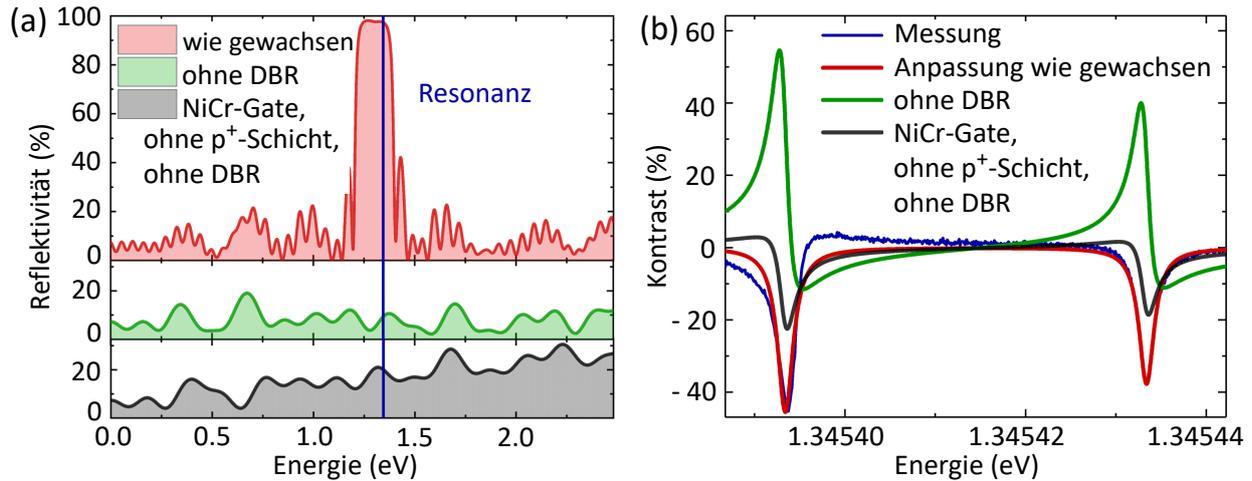


Abbildung 4.7: Simulation der Reflektivität und des Kontrasts. (a) Berechnete Reflektivität der Probe, wie sie gewachsen wurde (rot), der Probe ohne den DBR (grün) und der Probe ohne DBR und epitaktischem Gate, dafür mit einer 7 nm dicken NiCr-Schicht auf der Probenoberfläche (schwarz) in Abhängigkeit von der Photonenenergie. Bei der originalen Schichtstruktur wird eine Reflektivität von 98% bei der Resonanzenergie des Quantenpunkts (blau) erreicht. (b) Entsprechende Simulation des erwarteten Kontrasts. Für die originale Schichtstruktur wird der Kontrast (rot) an die Messung aus Abbildung 4.3(b) (blau) angepasst, für die veränderten Schichtstrukturen (grün und schwarz) werden dieselben Anpassungsparameter verwendet.

- Die Probenstruktur wie in (2.), jedoch wurde das epitaktische Gate entfernt und stattdessen eine 7 nm dicke NiCr-Schicht auf der Probenoberfläche angenommen, um das herkömmlich verwendete Metallgate zu simulieren.

Die Reflektivität der Probe ohne die Quantenpunktschicht für alle drei Fälle ist abhängig von der Lichtenergie in Abbildung 4.7(a) zu sehen. Für Fall (1.) wird bei der Exzitonresonanz (blaue Linie) eine sehr hohe Reflektivität von 98% erreicht. Entfernt man den Bragg-Spiegel (2.), fällt die simulierte Reflektivität viel geringer aus (grüne Linie), der Bragg-Spiegel ist also der Hauptgrund für die hohe Reflektivität der Probe und somit auch für die hohe Zählrate der Quantenpunktphotonen in resonanter Fluoreszenz in Kapitel 4.2. Durch das Metallgate (3.) steigt die Reflektivität wieder etwas (schwarze Linie). Dies liegt wahrscheinlich daran, dass das Metallgate mehr einfallende Laserphotonen reflektiert als das epitaktische Gate, noch bevor sie in die Probe eindringen und die Quantenpunktschicht erreichen können.

Im nächsten Schritt wird der Kontrast abhängig von der Anregungsenergie des Lasers ausgerechnet (siehe Abbildung 4.7(b)). Dafür wird die Kurve mithilfe der Parameter c_1 und c_2 für die beiden Exzitonresonanzen an die Messung des maximalen Kontrasts in vertikaler Geometrie ohne Modulation (entspricht der Messung in Abbildung 4.3(b), blaue Kurve in Abbildung 4.7(b)) angepasst. Für $c_1 = 311$ und $c_2 = 240$ ergibt sich eine gute Übereinstimmung (siehe rote Kurve). Beschrieben diese Anpassungsparameter nur die Oszillatorstärke, so wäre diese mehr als eine Größenordnung größer als die angegebenen Werte in vorangegangenen Veröffentlichungen, wo im Zusammenhang mit selbstorganisierten InAs/GaAs-Quantenpunkten Oszillatorstärken von 7,6 bis 11,8 angegeben werden [Karrai03, Reithmaier04, Andreani99, Birkedal00] (siehe auf S. 35). Jedoch berücksichtigt der Parameter wie oben erklärt außerdem die Wechselwirkung des Quantenpunktdipolübergangs mit dem Laserfeld, sodass der hohe Wert für c auf eine stark erhöhte Wechselwirkung hinweist.

Für die Simulation des Kontrasts in Fall (2.) und (3.) werden nun die in (1.) angepassten Werte für c_1 und c_2 verwendet und der Kontrast für die veränderten Schichtstrukturen ausgerechnet. So

mit ergeben sich die grüne und schwarze Kurve in Abbildung 4.7(b). Für Fall (2.) verändert sich die Linienform aufgrund einer veränderten Phase zwischen Quantenpunktphotonen und reflektierten Laserphotonen, jedoch sind keine signifikanten Veränderungen des maximalen Kontrasts zu verzeichnen. Das heißt, dass der Bragg-Spiegel selbst kaum Einfluss auf den Kontrast in resonanten Messungen hat. Dies erscheint logisch, wenn man bedenkt, dass der Bragg-Reflektor zur gleichen Zeit mit den Quantenpunktphotonen auch die Laserphotonen reflektiert. Eine untergeordnete Auswirkung des Bragg-Spiegels ist die Erhöhung der Wechselwirkung zwischen dem Quantenpunktdipolübergang und dem Lichtfeld durch den Purcell-Effekt. In Proben ähnlich zur hier verwendeten Struktur ist dieser Effekt jedoch vernachlässigbar klein mit einem Faktor von etwa 1,2 [Ma14]. Der Kontrast in Fall (3.) ist in etwa um einen Faktor 2 kleiner als in Fall (1.). Somit ist auch hier die Abnahme nicht so stark wie aufgrund von [Vamivakas07] erwartet werden könnte.

Die Simulation zeigt somit, dass der hohe beobachtete Kontrast höchstwahrscheinlich hauptsächlich durch die Position der Wellenknoten und -bäuche der stehenden Welle, welche sich durch den Bragg-Spiegel in der Probe ausbilden kann, verursacht wird. Zum einen wurde die Schichtstruktur so designt, dass die Quantenpunkte in einem Wellenbauch liegen. Somit wird die Wechselwirkung zwischen dem Laserlichtfeld und dem Quantenpunktdipolübergang erhöht, welches sich in den großen Werten für c_1 und c_2 in der Simulation widerspiegelt. Zum anderen hat das epitaktisch gewachsene Gate den Vorteil, dass es in der Probe vergraben werden kann, sodass seine Mitte in einem Wellenknoten positioniert werden kann. Dadurch werden weniger Photonen in diesem Bereich hoher Ladungsträgerdichte absorbiert. Ein Metallgate auf der Oberfläche würde den Wellenknoten an der Oberfläche anheften und außerdem schon einen Teil des Laserlichts reflektieren, bevor es überhaupt den Quantenpunkt erreichen kann. Unabhängig von der Simulation ist ein epitaktisch gewachsenes Gate viel glatter und sauberer als ein Metallgate, sodass es weniger Laser- und Quantenpunktphotonen streut und absorbiert. Aus den oben beschriebenen Gründen liegt nahe, dass das verwendete epitaktische Gate, positioniert in einem Wellenknoten, den größten Effekt auf den Kontrast hat.

Zuletzt sei erwähnt, dass Karrai und Warburton [Karrai03] für die zweidimensionale Leitfähigkeit nach Formel (3.11) wie angegeben die Elektronenmasse m_0 verwenden. Diese wurde auch in diesem Kapitel verwendet. Setzt man jedoch anstelle von m_0 die effektive Masse von InAs $m^* = 0,023m_0$ ein, so erhält man für c_1 und c_2 Werte von 7,2 und 5,5, was in derselben Größenordnung für die Oszillatorstärke läge, wie es auch in der Literatur zu finden ist (siehe S.35). In diesem Fall ließe sich der hohe Kontrast zutreffend durch die Probenstruktur mit dem Transfermatrixalgorithmus erklären.

4.6 Zusammenfassung

Das optimierte Probendesign mit SIL auf der Oberfläche, epitaktischem Gate, einem Bragg-Spiegel, durch den sich eine stehende Welle in der Probe ausbilden kann und die Positionierung des Quantenpunkts in einem Wellenbauch sowie des Gates und des Rückkontakts in einem Wellenknoten führt zur Messbarkeit eines sehr hohen Kontrasts zwischen Quantenpunkt- und reflektiertem Lasersignal (83 % in vertikaler und 885 % in verkippter Geometrie). Die Simulation des Kontrasts mit dem Transfermatrixalgorithmus identifiziert die starke Wechselwirkung des Laserfelds mit dem Quantenpunktdipolmoment und die verringerte Streuung von Photonen im epitaktischen Gate durch die geschickte Positionierung der Quantenpunkte und des Gates in der stehenden Welle als wahrscheinlichste Ursachen für den hohen Kontrast. Durch diese Erkenntnis ist die Herstellung von Proben, in denen einzelne Quantenpunkte zur gleichen Zeit polarisations- und zeitaufgelöst untersucht werden können, möglich.

5 Quantenpunkt als Quantensensor

Wie schon in Kapitel 3.1.4 aufgeführt, können trotz sehr reinen Probenwachstums mittels Molekularstrahlepitaxie unerwünschte Defekte in der Umgebung eines einzelnen Quantenpunkts lokalisiert sein. Standardmethoden zur Defektcharakterisierung in Halbleitern wie beispielsweise temperaturabhängige Kapazitätstransientenmessungen (engl.: *deep level transient spectroscopy*, *DLTS*) sind jedoch nur auf einer makroskopischen Skala sensitiv [Sah70, Lang74, Grimmeiss81, Khuchua03]. Im Folgenden wird ein einzelner Quantenpunkt als Sensor verwendet, um flache Defekte in der nahen Umgebung des Quantenpunktes zu charakterisieren. Kleinste Veränderungen des elektrischen Feldes in der Quantenpunktumgebung durch die Besetzung eines Defekts mit einem Ladungsträger aus dem Rückkontakt führen durch den Stark-Effekt zu Verschiebungen der Quantenpunktresonanzen. In zeitaufgelösten Messungen kann so der Quantenpunkt als nanoskaliges Elektrometer dazu verwendet werden, die Position in Wachstumsrichtung und die Aktivierungsenergie einzelner, verschiedener Defekte in der Quantenpunktumgebung auf der Nanoskala zu charakterisieren. Die Messungen werden an der in Kapitel 3.1.1 beschriebenen Probe vorgenommen. Die Messungen und Rechnungen in diesem Kapitel sind im Rahmen der von mir betreuten Masterarbeit von Jens Kerski [Kerski18] entstanden und wurden bereits in [Kerski21] veröffentlicht.

5.1 Diskontinuitäten der Exzitonresonanz

Betrachtet man die Abhängigkeit der Resonanzenergie eines Quantenpunktzustands von der Gatespannung, so lässt sich eine Verschiebung der Resonanzenergie durch den Stark-Effekt beobachten (vergleiche Kapitel 2.3). Die schnelle und unkomplizierte Durchführbarkeit von differentiellen Reflexionsmessungen macht es möglich, den Kontrast des Exzitonübergangs und somit ebendiese Stark-Verschiebung über einen Energiebereich von $700 \mu\text{eV}$ und einen Gatespannungsbereich von über 600 mV zu detektieren (siehe Abbildung 5.1(a)). Die Energieachse ist in Verstimmung ΔE von der absoluten Energie $E = 1,302962 \text{ eV}$ angegeben, welche in etwa der Energie entspricht, bei der das unterste Quantenpunktniveau mit dem Rückkontakt in Resonanz gelangt. Zu sehen sind die durch die Feinstruktur aufgespaltenen Exzitonübergänge von zwei Quantenpunkten, bezeichnet als QP 1 und QP 2. Dass es sich um zwei Quantenpunkte handelt, kann durch die unterschiedlich starke Stark-Verschiebung bestimmt werden. Der optische Aufbau ist auf QP 1 ausgerichtet, dieser Quantenpunkt liegt also optimal im Fokus, sodass die Resonanz dieses Quantenpunkts stärker zu sehen ist. Die Messungen wurden mit einer Gatespannungsamplitude von $\Delta U_G = 50 \text{ mV}$ durchgeführt, sodass die Resonanzen einmal 50 mV unterhalb und einmal 50 mV oberhalb der tatsächlichen Resonanz mit umgekehrtem Vorzeichen im Kontrast zu sehen sind. Dies lässt sich besonders gut in Abbildung 5.1(b) erkennen. Hier wird das einzelne Spektrum bei einer Verstimmung von $\Delta E = -562 \mu\text{eV}$ gezeigt (vergleiche schwarzer Kasten in Abbildung 5.1(a)).

In der Messung der Stark-Verschiebung der Exzitonresonanzen in Abbildung 5.1(a) können mehrere Diskontinuitäten beobachtet werden, die durch gestrichelte Linien gekennzeichnet sind. Bei etwa 100 mV (A) ist ein Versatz der Resonanz zu niedrigeren Gatespannungen, bei etwa -60 mV (B) ein Ver-

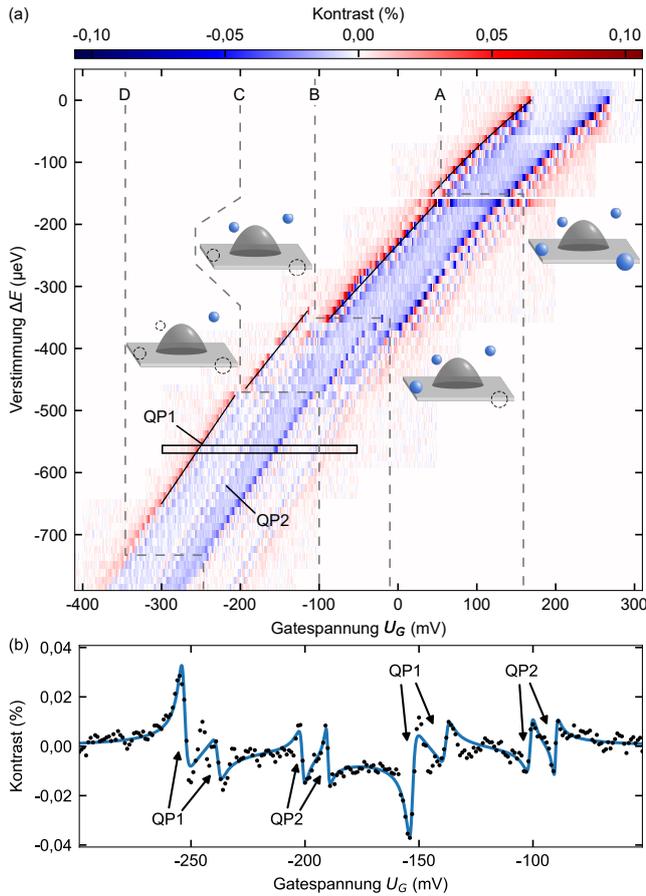


Abbildung 5.1: Differenzielle Reflexionsmessung der Exzitonübergänge zweier Quantenpunkte. Die Spannung wird mit $\Delta U_G = 50 \text{ mV}$ moduliert, die Resonanzen sind entsprechend um $\pm 50 \text{ mV}$ von der tatsächlichen Resonanz verschoben. (a) Der Stark-Effekt verschiebt die Resonanzen mit steigender Gatespannung zu höheren Energien (angegeben auf der y-Achse in Verstimmung, $\Delta E = 0$ entspricht absolut $1,302962 \text{ eV}$). An den Positionen A, B und C sind Diskontinuitäten der Verschiebung zu beobachten (gestrichelte Linien), die auf verschiedene Besetzungen von Defekten in der Umgebung hindeuten (vergleiche Skizzen in jeweiligem Bereich). (b) Einzelnes Spektrum bei $\Delta E = -562 \mu\text{eV}$, siehe Kasten in (a). Die feinstrukturaufgespaltenen Exzitonresonanzen von QP 1 und QP 2 sind entsprechend der Modulationsspannung doppelt, jedoch mit entgegengesetztem Vorzeichen im Kontrast, zu sehen. Nach [Kerski21].

satz zu höheren Spannungen und bei etwa -150 mV (C) ebenfalls ein Versatz zu höheren Spannungen zu sehen. Diese lassen sich durch die Besetzung einzelner Defektzustände in der nahen Quantenpunktumgebung erklären: Bei den jeweiligen Gatespannungen wird der jeweilige Defektzustand in Resonanz mit dem Rückkontakt gebracht, sodass dieser durch Elektrontunneln besetzt wird. Die zusätzliche Ladung in der Nähe des Quantenpunkts ändert das effektiv am Quantenpunkt anliegende elektrische Feld, sodass sich die Resonanz des detektierten Zustands durch den Stark-Effekt verschiebt [Houel12, Hauck14]. Mögliche Defektbesetzungszustände sind in den entsprechenden Gatespannungsbereichen in Abbildung 5.1(a) skizziert. Außerdem ist bei einer Gatespannung von etwa -300 mV eine weitere Defektbeladung (D) eingezeichnet, die in der limitierten Energie- und Zeitauflösung der differenziellen Reflexion nicht detektiert werden kann, jedoch später in zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenzmessungen sichtbar wird.

In feinerer Auflösung und klarerer Darstellung durch die Detektion ohne Lock-In-Technik wurde die Stark-Verschiebung im Bereich der Diskontinuität A noch einmal in resonanter Fluoreszenz im Gleichgewicht gemessen (Abbildung 5.2(a)). Auch hier ist eine klare Verschiebung der Exzitonresonanzen zu niedrigeren Gatespannungen zu beobachten. Abbildung 5.2(b) zeigt ein einzelnes resonantes Fluoreszenzspektrum der Exzitonresonanzen der beiden Quantenpunkte im Fokus bei einer Verstimmung von $\Delta E = -57,9 \mu\text{eV}$ (weißer Kasten in Abbildung 5.2(a)). Da auf QP 1 justiert wurde, ist dessen Emission in etwa doppelt so hoch wie die von QP 2. Die Feinstrukturaufspaltung (engl.: *fine structure splitting*, *FSS*) beträgt in etwa $20 \mu\text{eV}$ in der Energieskala (umgerechnet über die Stark-Verschiebung) beziehungsweise 17 mV in der Gatespannungsskala.

Die beobachteten Diskontinuitäten scheinen sehr unterschiedlich zu sein: Während die Verschiebung in der Gatespannung bei B sehr groß ist, ist die Verschiebung in der Gatespannung bei A sogar

entgegengesetzt zu geringeren Gatespannungen gerichtet. Die Erklärung für dieses unterschiedliche Verhalten bei der Vermutung desselben Effekts als Ursache für die Diskontinuitäten liefern die verschiedenen Komponenten des Feldvektors, der durch die Defektbesetzung hervorgerufen wird. Je nach Position des Defekts, kann er das elektrische Feld am Quantenpunkt verstärken oder kompensieren, auch können sich die Effekte der Besetzung zweier Defekte, die in entgegengesetzten Richtungen vom Quantenpunkt aus gesehen lokalisiert sind, gegenseitig kompensieren. Die Energieverschiebung durch das am Quantenpunkt anliegende elektrische Feld ist also nicht trivial und die präzise Erklärung dieser soll hier nicht vorgenommen werden. Jedoch kann aus den Gleichgewichtsmessungen grob die Besetzungsspannung der Defekte bestimmt werden (siehe S.51).

Bereits hier sei erwähnt, dass im Folgenden davon ausgegangen wird, dass es sich bei den Defekten um Donatoren handelt. Dies ergibt sich aus den später bestimmten Defektpositionen, dem nahe dem Quantenpunkt gelegenen, negativ dotierten Rückkontakt und der Zeitskala der Tunnelprozesse in den späteren Messungen. Somit sind die Defekte positiv geladen, wenn sie unbesetzt sind und werden neutral, wenn sie mit einem Elektron aus dem Rückkontakt besetzt werden. Das unbesetzte und besetzte Donatorniveau spiegeln somit zwei verschiedene Ladungszustände wider, in denen sich der Defekt befinden kann. Der Quantenpunkt, in dessen Umgebung sich die Defekte befinden, soll im Folgenden in zeitaufgelösten Messungen als nanoskaliges Elektrometer dienen [Vamivakas11], um den Wechsel zwischen den Ladungszuständen der Defekte zu detektieren und daraus Schlüsse über die Position und Aktivierungsenergie der Defekte ziehen zu können. Es sei angemerkt, dass die Methode und die Modelle auch für Akzeptoren gültig bleiben, solange durch die Besetzung der Niveaus eine Feldänderung am Quantenpunkt stattfindet.

5.2 Besetzungskonfigurationen der Defekte

Viele Informationen, die die differenzielle Reflexion und resonante Fluoreszenzmessungen im Gleichgewicht nicht liefern können, können zeitaufgelösten Messungen entnommen werden. Um zunächst mögliche Besetzungssequenzen der Defekte in der Quantenpunktumgebung zu bestimmen, werden zeitaufgelöste resonante Fluoreszenzmessungen nach dem Schema in Abbildung 5.3(a) vorgenommen: Zur Präparation eines Ausgangszustands, in dem alle Defekte unbesetzt sind, wird zunächst die niedrige Präparationsspannung $U_{Präp} = -680$ mV an die Diode angelegt. Zum Zeitpunkt $t = 0$ wird

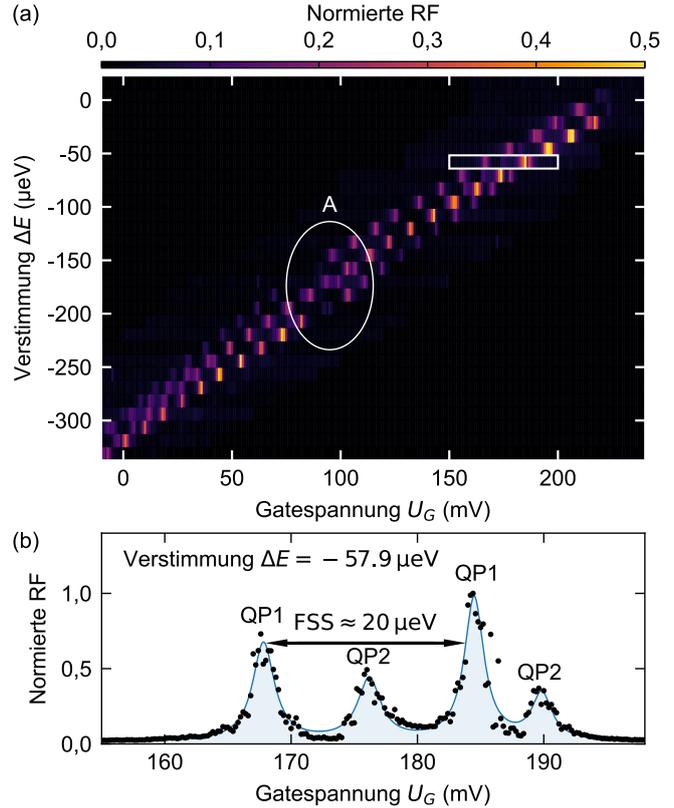


Abbildung 5.2: Resonante Fluoreszenz (RF) der Exzitonübergänge zweier Quantenpunkte. (a) Stark-Verschiebung zu höheren Energien mit zunehmender Gatespannung um die Diskontinuität A bei etwa 100 mV herum. Die Energieachse ist in Verstimmung ΔE von $E = 1,302962$ eV angegeben. (b) Einzelnes RF-Spektrum der Quantenpunkte 1 und 2 bei $\Delta E = -57,9$ μeV (weißer Kasten in (a)). Die Feinstrukturaufspaltung beträgt in etwa 20 μeV . Nach [Kerski21].

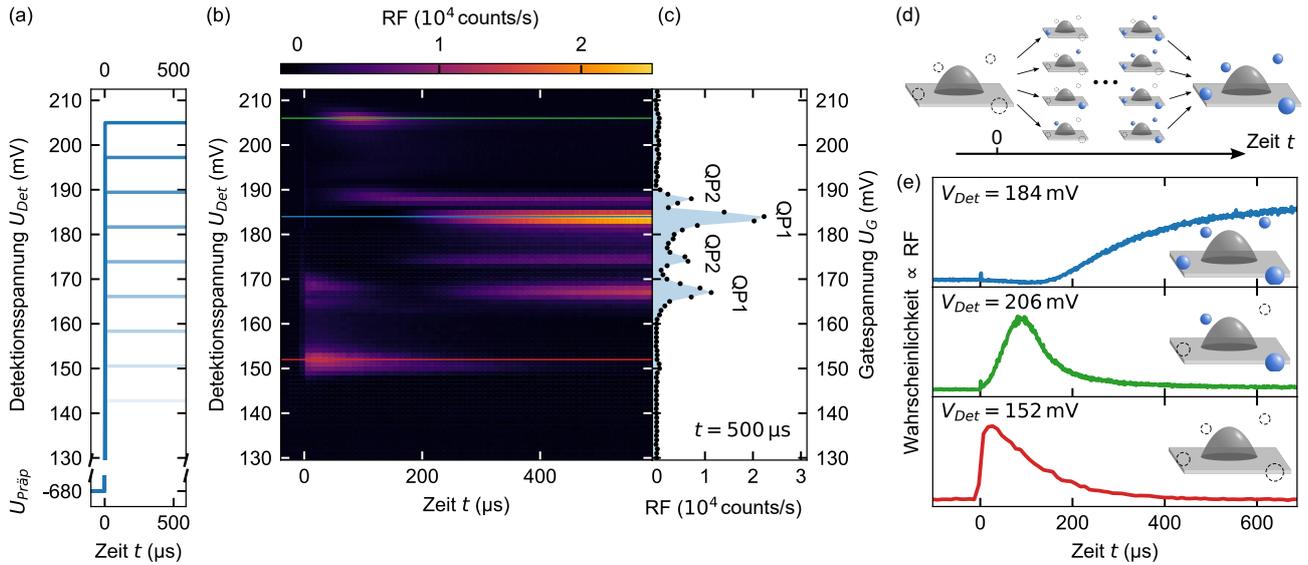


Abbildung 5.3: Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz (RF)-Messungen verschiedener Beladungskonfigurationen der Defekte bei fester Präparationsspannung. (a) Schematische Darstellung des Messschemas: In einer n-fachen Messung wird immer zum Zeitpunkt $t = 0$ die Gatespannung instantan von $U_{Pr\ddot{a}p} = -680$ mV auf die Detektionsspannung U_{Det} angehoben. Die Detektionsspannung wird für jede Messung schrittweise erhöht. (b) RF-Amplituden der zeitaufgelösten Messungen. Es ergeben sich abhängig von U_{Det} verschiedene Transienten. (c) Bei $t = 500$ μ s erhält man im Schnitt durch die Spannungen das Gleichgewichtsspektrum wie in Abbildung 5.2(b). (d) Schematische Darstellung möglicher Besetzungssequenzen der Defekte in der Quantenpunktumgebung. Zu $t = 0$ sind alle Defekte durch $U_{Pr\ddot{a}p}$ als unbesetzt präpariert, im Gleichgewicht bei großen Zeiten sind alle Defekte besetzt. (e) Schnitte in (b) zeigen einzelne Transienten bei $U_{Det} = 184$ mV (blau), 206 mV (grün) und 152 mV (rot). Die RF-Intensität spiegelt die Wahrscheinlichkeitsentwicklung der verschiedenen Ladungsträgerkonfigurationen der Defektzustände wider: Komplet (oben), teilweise (Mitte) und gar nicht besetzt (unten). Nach [Kerski21].

die Spannung auf die Detektionsspannung U_{Det} angehoben. Dies wird n-fach wiederholt, sodass sich Transienten ausbilden können. Die Detektionsspannung wird von 130 mV bis etwa 210 mV schrittweise erhöht. Somit ergibt sich die zeitabhängige resonante Fluoreszenzintensität in Abbildung 5.3(b). Je nach Detektionsspannung können unterschiedliche Transienten beobachtet werden. Dabei ergeben sich drei verschiedene Verhaltensweisen, die exemplarisch in Abbildung 5.3(e) dargestellt sind. Ganz unten in rot ist die Transiente bei $U_{Det} = 152$ mV gezeigt (entspricht der roten Linie in Abbildung 5.3(b)). Sie zeigt einen instantanen Anstieg der resonanten Fluoreszenz, sobald die Detektionsspannung angelegt wird und anschließend einen kontinuierlichen Abfall auf 0 mit einfachem exponentiellem Verhalten. Dies lässt sich so interpretieren, dass bei einer Spannung von 152 mV eine Quantenpunktresonanz angeregt werden kann, wenn keiner der Defekte besetzt ist. Wird auch nur ein Defekt besetzt, so verschiebt sich die Resonanz und die resonante Fluoreszenz bei dieser Gatespannung geht aus. Ein ähnliches Verhalten ist beispielsweise bei etwa $U_{Det} = 169$ mV zu beobachten. Dies könnte aufgrund der Spannungsdifferenz von 17 mV die zweite, durch die Feinstruktur aufgesplante Resonanz desselben Quantenpunkts in derselben Defektbesetzungskonfiguration sein. In grün ist in Abbildung 5.3(e) das Verhalten der resonanten Fluoreszenzintensität bei einer Detektionsspannung von 206 mV zu sehen. Diese steigt zunächst an, erreicht ein Maximum bei etwa 100 μ s und nimmt danach wieder auf 0 ab. Hier ist die Resonanz eines Exzitons zu beobachten, wenn nur manche der Defekte beladen sind: Die Exzitonenergie verschiebt sich durch die Besetzung einiger Defektzustände in Resonanz mit dem Laser, werden weitere Defektzustände besetzt, so schiebt die Exzitonenergie wieder aus der Resonanz. Ein ähnliches Verhalten ist zum Beispiel bei etwa $U_{Det} = 188$ mV zu beobachten. Auch hier legt der Abstand in der Spannung nahe, dass es sich um die zweite Exzitonresonanz desselben Quantenpunkts

handelt. Zuletzt ist in Abbildung 5.3(e) in blau entsprechend der blauen Linie in Abbildung 5.3(b) das Verhalten bei $U_{Det} = 184 \text{ mV}$ zu sehen. Die resonante Fluoreszenzintensität bleibt zunächst 0 und steigt nach gut $100 \mu\text{s}$ an, bis eine Gleichgewichtsintensität erreicht ist. Dieses Verhalten entspricht der Besetzung aller den Quantenpunkt umgebenden Defektzustände, da die Resonanz im Gleichgewicht beobachtet werden kann. Die lange Latenzzeit, bevor ein Signal zu beobachten ist, lässt sich jedoch nicht durch einfaches paralleles oder sequenzielles Besetzen der Defekte erklären, denn in diesem Fall müsste die resonante Fluoreszenz bereits bei $t = 0$ beginnen anzusteigen. Deshalb muss von einem komplizierteren An- und Umordnen der Ladungen in den Defekten vor Erreichen des Endzustands ausgegangen werden. Mögliche Besetzungssequenzen der Defekte in der Quantenpunktumgebung sind in Abbildung 5.3(d) skizziert. Betrachtet man einen Schnitt durch die Messungen in Abbildung 5.3(b) bei $t = 500 \mu\text{s}$, so erhält man das Spektrum in Abbildung 5.3(c). Dies entspricht einem Gleichgewichtsspektrum und ist vergleichbar mit den Spektren aus nicht zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenzmessungen wie in Abbildung 5.2.

Zusammenfassend lässt sich den zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenzmessungen mit fester Präparations- und variierter Detektionsspannung also entnehmen, dass die Besetzung der Defekte nicht rein parallel oder sequenziell verläuft, sodass unterschiedliche Positionen der Resonanzen in der zeitlichen Abfolge der Defektbesetzungen beobachtet werden können. Das resonante Fluoreszenzsignal spiegelt dabei die Wahrscheinlichkeit der unterschiedlichen Defektbesetzungskonfigurationen wider.

5.3 Modell der Defektbesetzung

Im Folgenden soll ein vereinfachtes Modell zur Beschreibung der Besetzung der Defekte durch Elektrontunneln aus dem Rückkontakt erstellt werden. Dazu wird zunächst die Besetzung eines einzelnen Defekts betrachtet. Ist $P_\alpha(t)$ die zeitabhängige Wahrscheinlichkeit, dass der Defekt A besetzt ist und $P_{-\alpha}(t)$ die zeitabhängige Wahrscheinlichkeit, dass der Defekt A nicht besetzt ist, so gilt

$$P_\alpha(t) + P_{-\alpha}(t) = 1. \quad (5.1)$$

Die Wahrscheinlichkeit, dass der Defekt unbesetzt ist, nimmt nach einer Erhöhung der Spannung über die Tunnelspannung nach

$$P_{-\alpha}(t) = P_0 \exp\left(-\frac{t}{\tau_\alpha}\right) \quad (5.2)$$

ab, wobei P_0 die Wahrscheinlichkeit beschreibt, dass der Defekte zu $t = 0$ unbesetzt ist und $1/\tau_\alpha = \gamma_\alpha$ die Tunnelrate eines Elektrons aus dem Rückkontakt in den Defekt ist.

Für zwei Defekte A und B, die nicht miteinander wechselwirken und gleichzeitig mit den Raten $1/\tau_\alpha$ und $1/\tau_\beta$ besetzt werden, gibt es die Besetzungswahrscheinlichkeiten, dass beide Defekte unbesetzt sind $P_{-\alpha\wedge-\beta}$, nur einer der Defekte besetzt ist $P_{\alpha\wedge-\beta}$ oder $P_{-\alpha\wedge\beta}$ und dass beide Defekte besetzt sind $P_{\alpha\wedge\beta}$. Die Besetzungswahrscheinlichkeiten lassen sich durch

$$P_{\alpha\wedge\beta} = P_\alpha \cdot P_\beta \quad (5.3)$$

und entsprechend beschreiben.

Wählt man die Präparationsspannung in einer zeitaufgelösten Messung so, dass bei $t = 0$ Defekt A immer unbesetzt ist und Defekt B abhängig von der Präparationsspannung teilweise besetzt sein kann, erhält man als Anfangsbedingungen $P_{0,\alpha} = 1$ und $P_{0,\beta} = P_{0,\beta}(U_{Präp})$. Wird die Detektionsspannung so

gewählt, dass für $t \rightarrow \infty$ beide Defekte besetzt sind, berechnet sich die Besetzungswahrscheinlichkeit beider Zustände nach

$$\begin{aligned}
 P_{\alpha\wedge\beta}(U_{Pr\ddot{a}p}, t) &= P_{\alpha}(t)P_{\beta}(U_{Pr\ddot{a}p}, t) \\
 &= P_{0,\beta}(U_{Pr\ddot{a}p}) \left[\exp\left(-t\left(\frac{1}{\tau_{\alpha}} + \frac{1}{\tau_{\beta}}\right)\right) - \exp\left(-\frac{t}{\tau_{\beta}}\right) \right] + 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_{\alpha}}\right) \\
 &= P_{0,\beta}(U_{Pr\ddot{a}p})c_1(t) + c_2(t).
 \end{aligned} \tag{5.4}$$

Sie ist also, wenn $c_1(t)$ und $c_2(t)$ zeitabhängige Konstanten sind, bei einer konstanten Zeit proportional zur Anfangsbedingung $P_{0,\beta}(U_{Pr\ddot{a}p})$. Diese gibt Aufschluss über die Besetzungswahrscheinlichkeit des Defekts B zum Zeitpunkt $t = 0$

$$n_{\beta}(U_{Pr\ddot{a}p}) = 1 - P_{0,\beta}(U_{Pr\ddot{a}p}), \tag{5.5}$$

wo der Defektzustand im thermischen Gleichgewicht mit dem Rückkontakt ist und die Besetzungswahrscheinlichkeit die Fermi-Verteilung des Rückkontakts widerspiegelt, weshalb sie auch durch

$$n_{\beta}(U_{Pr\ddot{a}p}) = \frac{1}{\exp\left(\frac{E_{\beta}(U_{Pr\ddot{a}p})}{k_B T}\right) + 1} \tag{5.6}$$

beschrieben werden kann [Kurzmann16c]. Die Energie des Defektzustands B lässt sich nach Formel (2.5) mittels

$$E_{\beta}(U_{Pr\ddot{a}p}) = E_{el,\beta} - E_{a,\beta} = e \frac{U_S - U_{Pr\ddot{a}p}}{\lambda_{\beta}} - E_{a,\beta} = \frac{e}{\lambda_{\beta}}(U_{T,\beta} - U_{Pr\ddot{a}p}) \tag{5.7}$$

berechnen. Dabei ist $E_{el,\beta}$ die elektrostatische Energie durch das angelegte Feld und abhängig von der Gatespannung $U_{Pr\ddot{a}p}$, der eingebauten Schottky-Spannung U_S und vom Hebelarm $\lambda_{\beta} = d_G/d_B$ mit dem Abstand vom Rückkontakt zum Gate d_G und zu Defekt B d_B . $E_{a,\beta}$ beschreibt die Aktivierungsenergie des Defekts B, also den Abstand der Zustandsenergie von der Bandkante. Zuletzt ist $U_{T,\beta} = U_S - \lambda_{\beta}E_{a,\beta}/e$ die Spannung, bei der bei einer Temperatur von 0 K ein Elektron aus dem Rückkontakt in den Defektzustand tunneln würde. Für die Besetzungswahrscheinlichkeit des Defektzustands B ergibt sich damit also

$$n_{\beta}(U_{Pr\ddot{a}p}) = \frac{1}{\exp\left(\frac{e}{\lambda_{\beta}k_B T}(U_{T,\beta} - U_{Pr\ddot{a}p})\right) + 1}, \tag{5.8}$$

somit ist sie vom Abstand des Defekts vom Rückkontakt (in λ_{β}) und der Aktivierungsenergie des Defektzustands (in $U_{T,\beta}$) abhängig.

Wie die Defektposition in der Diodenstruktur und die Aktivierungsenergie des Defektzustands die Besetzungswahrscheinlichkeit des Defekts beeinflusst, zeigt Abbildung 5.4. In Abbildung 5.4(a) werden zwei Defekte mit derselben Aktivierungsenergie, aber unterschiedlichen Positionen in der Diodenstruktur (siehe links in der Abbildung) verglichen. Befindet sich der Defekt näher am Rückkontakt (grün), so gelangt er bei einer niedrigeren Gatespannung $U_{G,1}$ in Resonanz mit dem Rückkontakt, jedoch wird er über einen größeren Gatespannungsbereich hinweg beladen, da der Defektzustand die Fermi-Verteilung des Rückkontakts langsamer abtastet (siehe Besetzungswahrscheinlichkeit rechts in der Abbildung). In Abbildung 5.4(b) liegen die Defekte im gleichen Abstand zum Rückkontakt, haben aber unterschiedliche Aktivierungsenergien (siehe links in der Abbildung). Liegt die Aktivierungsenergie näher an der GaAs-Bandkante (orange), gelangt der Defektzustand erst bei einer höheren Gatespannung in Resonanz mit dem Rückkontakt, die Tunnelspannung ist also größer, jedoch wird die Fermi-Verteilung des Rückkontakts von beiden Defektzuständen über den gleichen Spannungsbereich hinweg abgetastet, sodass die Besetzungswahrscheinlichkeit des Defekts nur zu höheren Gatespannungen verschoben ist

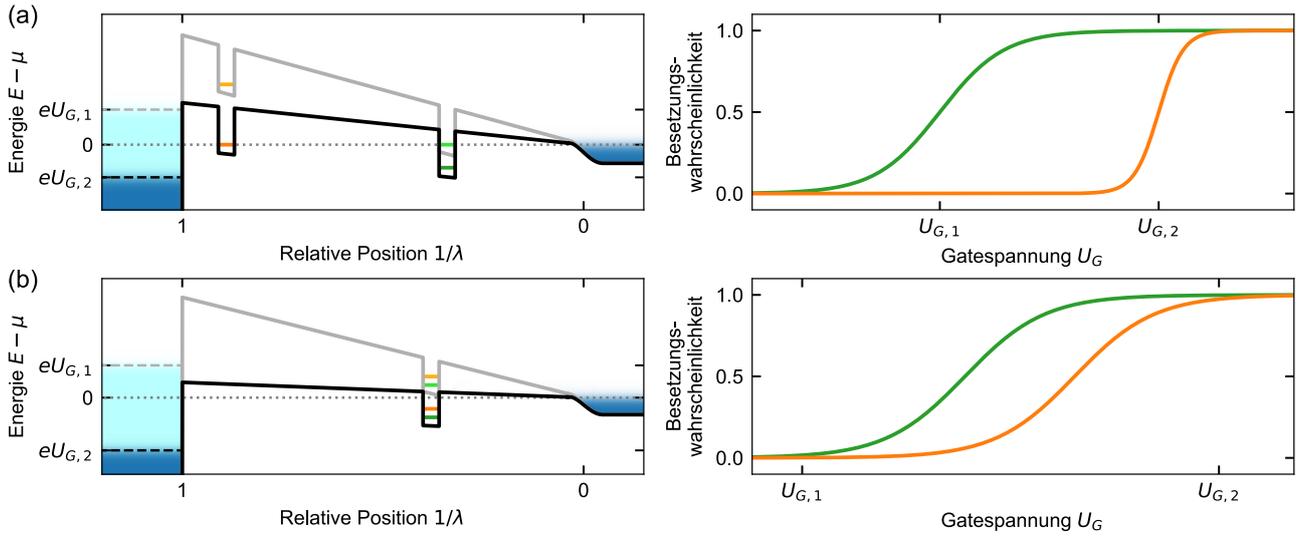


Abbildung 5.4: Einfluss der Defektposition und Aktivierungsenergie in der Diodenstruktur auf die Besetzungswahrscheinlichkeit des Defekts abhängig von der Gatespannung. Links: Leitungsbandkante der Diode für zwei unterschiedliche Gatespannungen, rechts: Besetzungswahrscheinlichkeit des Defektzustands abhängig von der Gatespannung. (a) Befindet sich der Defekt näher am Gate (orange), wird der Defektzustand bei einer höheren Tunnelspannung und über einen geringeren Spannungsbereich hinweg beladen. (b) Bei einer kleineren Aktivierungsenergie (orange) wird der Defektzustand bei einer höheren Tunnelspannung, jedoch über den gleichen Spannungsbereich hinweg beladen. Nach [Kerski21].

(siehe rechts in der Abbildung).

Setzt man die Besetzungswahrscheinlichkeit aus Formel (5.8) letztendlich mithilfe von Ausdruck (5.5) in Formel (5.4) ein, erhält man mit

$$\begin{aligned}
 P_{\alpha\beta}(U_{Pr\ddot{a}p}, t) &= (n_{\beta}(U_{Pr\ddot{a}p}) + 1)c_1(t) + c_2(t) \\
 &= n_{\beta}(U_{Pr\ddot{a}p})c_1(t) + c_3(t) \\
 &= \frac{c_1(t)}{\exp\left(\frac{e}{\lambda_{\beta}k_B T}(U_{T,\beta} - U_{Pr\ddot{a}p})\right) + 1} + c_3(t),
 \end{aligned} \tag{5.9}$$

mit $c_3(t) = c_1(t) + c_2(t)$ einen einfachen Ausdruck, den man für eine gegebene Zeit t an die Daten einer zeitaufgelösten Messung anpassen und somit die Position und Aktivierungsenergie des detektierten Defektzustands bestimmen kann. Dabei sind die Position und Aktivierungsenergie unabhängig von der gewählten Zeit, da diese nur die Konstanten c_1 und c_3 verändert.

Abschließend sei erwähnt, dass die in diesem Abschnitt gemachten Annahmen auch für mehr als zwei Defekte gelten und man durch das Aufstellen von Mastergleichungen dasselbe Ergebnis erhalten würde.

5.4 Position und Aktivierungsenergie der Defekte

Um nun tatsächlich die Position und Aktivierungsenergie der Defekte zu bestimmen, werden erneut zeitaufgelöste resonante Fluoreszenzmessungen durchgeführt, diesmal jedoch mit variabler Präparations- und fester Detektionsspannung. Das entsprechende Messschema ist in Abbildung 5.5 am Beispiel

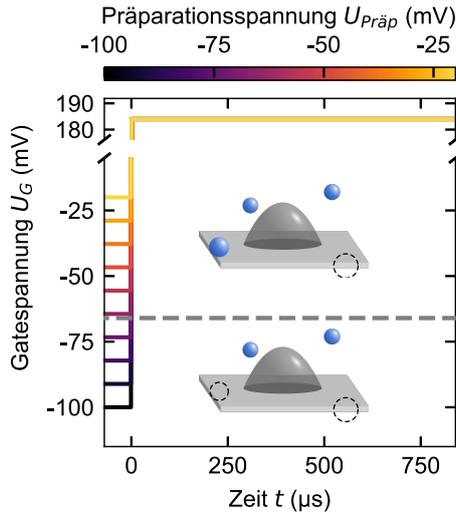


Abbildung 5.5: Schematische Darstellung des Messschemas zur Defektcharakterisierung durch zeitaufgelöste resonante Fluoreszenzmessungen am Beispiel des Defekts B: In einer n -fachen Messung wird immer zum Zeitpunkt $t = 0$ die Gatespannung instantan von $U_{Präp}$ auf die Detektionsspannung $U_{Det} = 184$ mV angehoben. Die Präparationsspannung wird dabei für jede Messung schrittweise von -100 mV auf -20 mV erhöht. Dies schließt die Besetzungsspannung ≈ -65 mV von Defekt B ein. Nach [Kerski21].

beladen ist, wird hier keine Veränderung der resonanten Fluoreszenzintensität gemessen, wenn die Gatespannung von $U_{Präp}$ auf U_{Det} geändert wird. Außerdem sei zu den Messungen über Defekt A hinweg angemerkt, dass die Detektionsspannung in diesem Fall bei 169 mV lag, da die Messung bei 184 mV ein zu schlechtes Signal-zu-Rausch-Verhältnis aufgewiesen hat. Die veränderte Detektionsspannung sollte die Ergebnisse der Messung jedoch nicht beeinflussen, da die Detektionsspannung weiterhin oberhalb der Besetzungsspannung von Defekt A liegt. Alle Transienten wurden auf den Sättigungswert normiert, da nach Gleichung (5.9) nur die relative Skalierung von Bedeutung für die hier interessanten Parameter ist.

Um aus diesen Transientenmessungen die Positionen der Defekte und Aktivierungsenergien der Defektzustände zu erhalten, kann die in der DLTS übliche Boxcar-Methode [Lang74] verwendet werden. Dazu wird für jeden Defektzustand bei einer Zeit t , bei der sich die Transienten möglichst stark unterscheiden, ein Schnitt vorgenommen (gestrichelte Linie in Abbildung 5.6, links) und anschließend Formel (5.9) angepasst. Aus den angepassten Werten für den Hebelarm und die Tunnelspannung lassen sich anschließend die Positionen und Aktivierungsenergie bestimmen. Die entsprechenden Transientenwerte zu der jeweiligen Zeit sind in Abbildung 5.6 rechts dargestellt und spiegeln die Besetzungswahrscheinlichkeit des jeweiligen Defekts abhängig von der Präparationsspannung wider. An diese Werte kann demnach jeweils Gleichung (5.9) angepasst werden (rote Kurve in Abbildung 5.6, rechts) und man erhält aus der Anpassung die Defektpositionen und die Aktivierungsenergien der Defektzustände. Hierzu wurde eine Proben temperatur von 4,2 K angenommen und der Abstand vom Gate zum Rückkontakt von 170 nm und die Schottky-Spannung 600 mV eingesetzt.

Die Ergebnisse diese Anpassungen sind in Abbildung 5.7 schematisch dargestellt. Abbildung 5.7(a)

von Defekt B zu sehen: Die Präparationsspannung wird über die Besetzungsspannung von Defekt B hinweg von -100 mV bis -20 mV schrittweise erhöht, die Detektionsspannung, welche bei $t = 0$ instantan angelegt wird, ist für alle Messungen fest auf der Exzitonresonanz im Gleichgewicht bei 184 mV. Bei $t = 0$ ist Defekt B also abhängig von der Präparationsspannung gar nicht, teilweise oder ganz besetzt, während bei $t \rightarrow \infty$ Defekt A und B besetzt sind. Defekte C und D sind in dem angegebenen Gatespannungsbereich immer besetzt.

Eine Auswahl der gemessenen Transienten im Spannungsbereich der Besetzung der Defektzustände A bis D sind in Abbildung 5.6(a) bis (d) links zu sehen. Wie nach der Transiente bei $U_{Det} = 184$ mV in Abbildung 5.3(e) zu erwarten, steigen alle Transienten in der Zeit an bis sie sättigen, jedoch ist bei der Erhöhung der Präparationsspannung über die Besetzungsspannung hinweg bei jedem Defekt eine Erhöhung der Transientenwerte im ansteigenden Bereich zu beobachten, da durch die (teilweise) Besetzung des jeweils untersuchten Defekts mit ansteigender Präparationsspannung eine Tunnelrate weniger den Relaxationsprozess ins Gleichgewicht beeinflusst. Eine Ausnahme stellen die Messungen bei hohen Gatespannungen über die Besetzungsspannung von Defekt A dar. Da Defekt A die höchste Besetzungsspannung aufweist und somit keine weitere Veränderung des effektiven elektrischen Felds am Quantenpunkt zu erwarten ist, nachdem Defekt A

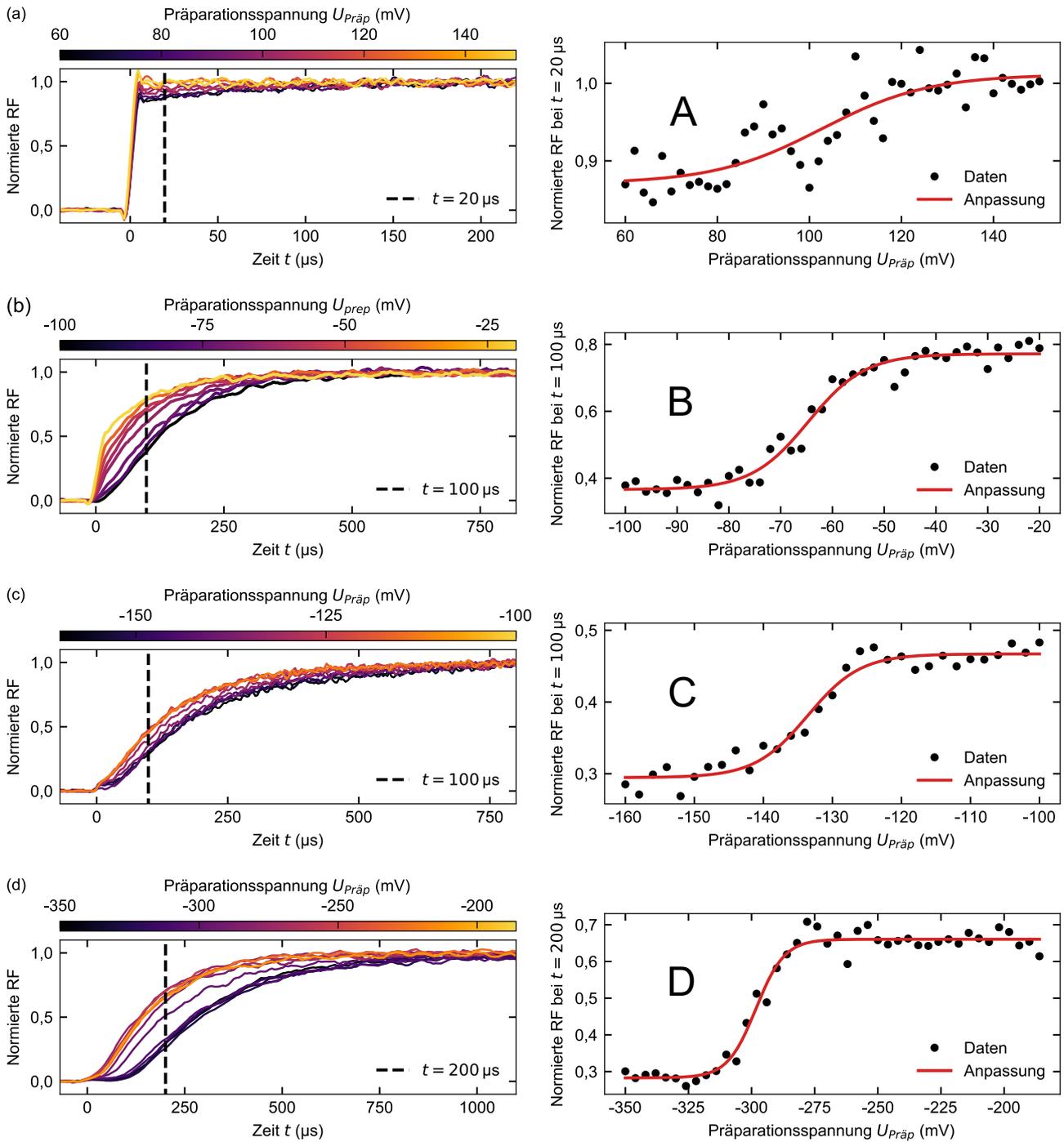


Abbildung 5.6: Defektcharakterisierung durch zeitaufgelöste resonante Fluoreszenzmessungen. Links: Darstellung einiger normierter RF-Transienten aus den Messungen nach dem Schema in Abbildung 5.5 jeweils über die Besetzungsspannung des Defekts hinweg ((a) Defekt A, (b) Defekt B und so weiter). Rechts: Schwarze Punkte sind die normierte RF-Intensität zum Zeitpunkt $t = 20 \mu\text{s}$ (a), $100 \mu\text{s}$ (b), (c) und $200 \mu\text{s}$ (d) (senkrechte gestrichelte Linien links) und die rote Linie jeweils die Anpassung nach Gleichung (5.9). Nach [Kerski21].

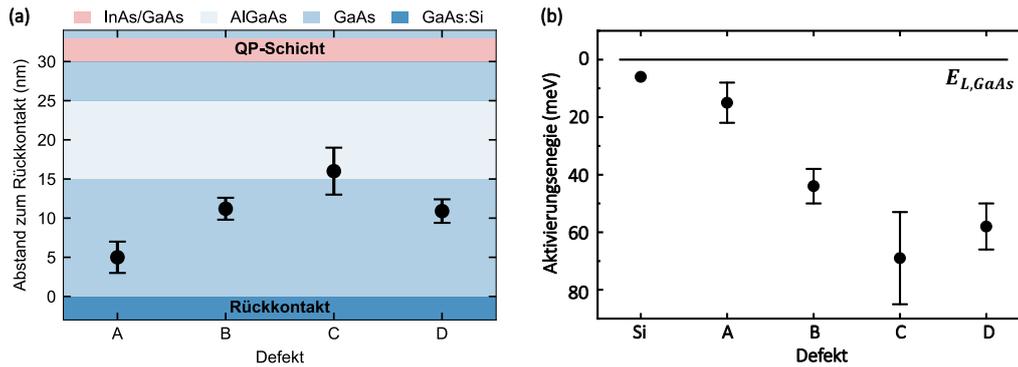


Abbildung 5.7: Schematische Darstellung der Ergebnisse der Defektcharakterisierung. (a) Position der Defekte in Wachstumsrichtung. Die Defekte sind in der an den Rückkontakt angrenzenden GaAs-Schicht der Tunnelbarriere lokalisiert. (b) Lage der Aktivierungsenergien der Defekte im Bezug auf die GaAs-Leitungsbandkante $E_{L,GaAs}$. Defekt A liegt energetisch am nächsten an der Aktivierungsenergie eines Silizium-Dotieratoms (Si). Nach [Kerski21].

zeigt die Positionen der Defekte in Wachstumsrichtung der Probenstruktur. Die Defekte A bis D haben einen Abstand von (5 ± 2) nm, $(11,2 \pm 1,4)$ nm, (16 ± 3) nm und $(10,9 \pm 1,5)$ nm vom Silizium-dotierten Rückkontakt der Probe und liegen somit alle in der Tunnelbarriere zwischen dem Rückkontakt und der Quantenpunktlage, um genau zu sein befinden sich die Defekte A, B und D in der GaAs-Schicht oberhalb des Rückkontakts und C an der Grenze zur darauffolgenden AlGaAs-Schicht. Die Aktivierungsenergien der Defektzustände im Bezug auf die Leitungsbandkante von GaAs sind in Abbildung 5.7(b) zu sehen und betragen für die Defekte A bis D (15 ± 7) meV, (44 ± 6) meV, (69 ± 16) meV und (58 ± 8) meV. Im Vergleich zu diesen Aktivierungsenergien ist in der Abbildung außerdem die Aktivierungsenergie von Silizium mit 6 meV eingetragen.

Die Positionen der Defekte lassen vermuten, dass es sich um vom Rückkontakt segregierte Silizium-Atome handelt. Diese Segregation ist beim Probenwachstum mittels Molekularstrahlepitaxie bekannt [Mills00] und begrenzt bis heute die Reinheit und somit die Qualität der entsprechend hergestellten Proben [Chung18], wenngleich die Probenherstellung durch Molekularstrahlepitaxie eines der reinsten Herstellungsverfahren ist. Die Aktivierungsenergien liegen jedoch weit über der Aktivierungsenergie von Silizium, lediglich der Wert zu Defekt A lässt sich eventuell mit Silizium assoziieren. In den gemessenen Energiebereichen sind keine üblichen Dotierstoffe für GaAs bekannt, sodass die Defekte bisher nicht bestimmbar sind. Allerdings könnte man vermuten, dass es sich bei Defekt B und D um zwei Zustände desselben Defekts handelt, da sie sich in Wachstumsrichtung an derselben Position in der Probe befinden und die Aktivierungsenergien um 14 meV voneinander abweichen, was durch Coulombabstoßung zweier Zustände im selben Defekt erklärt werden könnte. Jedoch gilt es gleichzeitig zu bedenken, dass sich in unmittelbarer Umgebung der Defekte der Quantenpunkt befindet. Diese große InAs-Insel kann für Verspannungen im umgebenen Material [Yang09] und somit Erhöhungen von Defektzuständen sorgen. Außerdem besteht die ebenfalls wahrscheinliche Möglichkeit, dass es sich um nicht donatorartige Defekte wie Fehlstellen handelt, die durchaus tiefer in der Bandstruktur liegen können [Skowronski90].

5.5 Zusammenfassung

Ein einzelner Quantenpunkt wurde als Quantensensor verwendet, um flache Defekte zu charakterisieren. Diskontinuitäten in der Stark-Verschiebung der Exzitonresonanzen des Quantenpunkts konn-

ten durch die Besetzung einzelner Defektzustände in der Quantenpunktumgebung erklärt werden. Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenzmessungen zeigen, dass das Tunneln einzelner Elektronen aus dem Rückkontakt in die Defekte das effektive elektrische Feld am Ort des Quantenpunkts verändert und somit die Resonanzen verschiebt. Dieser Effekt ermöglicht es, den Quantenpunkt als nanoskopisches Elektrometer zu nutzen, um Defektpositionen und Aktivierungsenergien der Defekte zu bestimmen. Ein Modell zur Zeitentwicklung der Besetzungswahrscheinlichkeit der Defektzustände wurde erstellt und durch die Anpassung an zeitaufgelöste resonante Fluoreszenzmessungen konnten die Defekte in der GaAs-Schicht oberhalb des Rückkontakts lokalisiert und die Aktivierungsenergien der Defekte bestimmt werden. Diese Methode kann zukünftig zur Defektcharakterisierung in Materialien mit Quantenemittern verwendet werden.

6 Statistik der Auger-Emission

Wenn ein Trion im Quantenpunkt geladen ist, kann dieser durch eine Auger-Rekombination komplett geleert werden, indem die Rekombinationsenergie des Elektron-Loch-Paars auf das verbliebene Elektron übertragen und dieses daraufhin aus dem Quantenpunkt emittiert wird. Durch Tunneln eines Elektrons aus dem Rückkontakt in den Quantenpunkt kann der ursprüngliche Beladungszustand wiederhergestellt werden (vergleiche Kapitel 2.6). Hier wird das Telegraphenrauschen der resonanten Fluoreszenz eines Quantenpunkts untersucht, welches durch die Auger-Emission und das Elektrontunneln bestimmt wird. Somit können einzelne Auger-Ereignisse in Echtzeit detektiert und der Auger-Effekt im selbstorganisierten Quantenpunkt mittels voller Zählstatistik (engl.: *full counting statistic*) analysiert werden [Levitov96, Flindt09, Fricke07, Gustavsson09]. Darüber ergibt sich ein Zugang zu den Raten dieses Prozesses, welche abhängig von der Laserintensität untersucht werden, sowie zu den Kumulanten. Die Messungen werden an der in Kapitel 3.1.2 beschriebenen Probe vorgenommen. Teile der Ergebnisse dieses Kapitels wurden bereits in [Lochner20] veröffentlicht.

6.1 Sättigungskurve des Exzitons

Zur späteren Einordnung der Anregungsintensität des Exzitonlasers wird hier zunächst die Sättigungskurve des Exzitons gemessen. Dazu werden für verschiedene Laserintensitäten Gleichgewichtsspektren bei einer Anregungsfrequenz von 325,710 THz aufgenommen. In Abbildung 6.1(a) ist ein einzelnes Spektrum bei einer Laserintensität von $1,6 \cdot 10^{-3} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ zu sehen. Die mittlere Linienbreite der Exzitonresonanzen beträgt bei dieser geringen Anregungsintensität $1,8 \mu\text{eV}$. Abbildung 6.1(b) zeigt die Abhängigkeit der RF-Intensität von der Laserintensität und eine Anpassung mit der Sättigungskurve aus Gleichung (3.22). Dabei wird die Summe der RF-Intensität beider Exzitonresonanzen für jeden

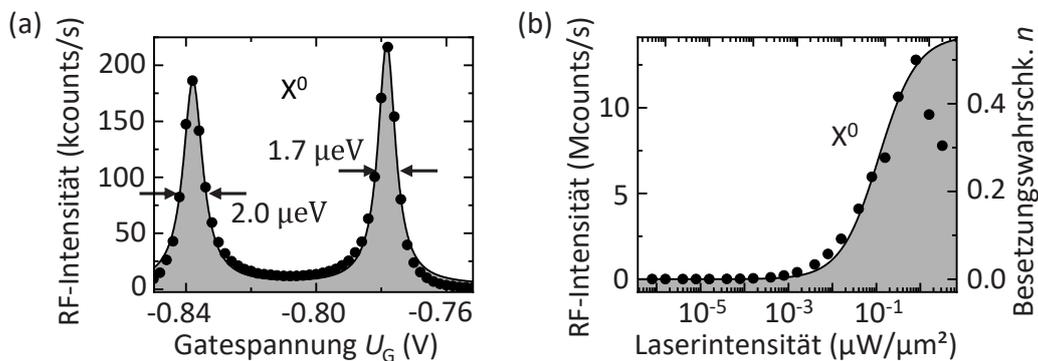


Abbildung 6.1: Resonante Fluoreszenz des Exzitons im Gleichgewicht bei 325,710 THz. (a) RF-Intensität abhängig von der Gatespannung bei einer Anregungsintensität von $1,6 \cdot 10^{-3} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$. Die Linienbreite beträgt im Mittel $1,8 \mu\text{eV}$. (b) Maximale RF-Intensität abhängig von der anregenden Laserintensität, angepasste Sättigungskurve und entsprechende Besetzungswahrschk. n . Die Datenpunkte entsprechen der Summe der beiden durch die Feinstruktur aufgespaltenen Exzitonmaxima.

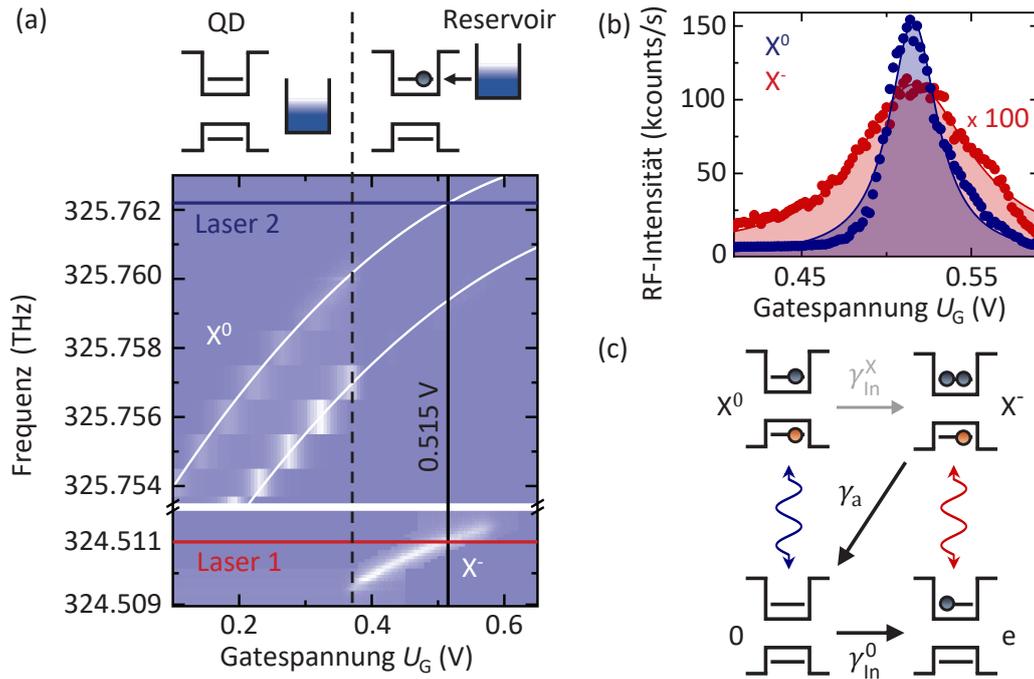


Abbildung 6.2: Exziton und Trion mit Auger-Rekombination. (a) Resonante Fluoreszenz (RF)-Intensität des Exzitons X^0 und Trions X^- abhängig von der Gatespannung und Frequenz. Ab etwa 0,38 V (vertikale gestrichelte Linie) besetzt ein Elektron den Quantenpunkt, der Exzitonübergang ist verboten, dafür kann der Trionübergang beobachtet werden. (b) Exziton- (blau) und Trionübergang (rot) in zwei-Laser-Anregung. Laser 1 und Laser 2 werden wie in (a) eingezeichnet eingestrahlt. Das Exziton ist in einem Gatespannungsbereich sichtbar, wo es normalerweise verboten ist. Die Trion-RF-Intensität ist in 100-facher Vergrößerung dargestellt. (c) Schematische Darstellung verschiedener Quantenpunktzustände (leer (0), ein Elektron (e), Exziton (X^0), Trion (X^-)) und deren Übergänge ineinander. Geschwungene Doppelpfeile stellen optische Übergänge dar, gerade Pfeile den Auger-Übergang mit der Rate γ_a und das Elektrontunneln in den leeren beziehungsweise mit einem Exziton beladenen Quantenpunkt mit den Raten γ_{In}^0 beziehungsweise γ_{In}^X .

Punkt gebildet. Bei hohen Laserintensitäten ($> 5 \cdot 10^{-1} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$) reduziert photoinduzierter Elektroneneinfang in den Quantenpunkt die RF-Intensität (vergleiche Kapitel 2.5, [Kurzmann16b]). Diese Werte werden bei der Anpassung der Sättigungskurve nicht beachtet. Aus der Messung lässt sich die laserintensitätsabhängige Besetzungswahrscheinlichkeit n des Quantenpunkts mit einem Exziton ableiten (rechte y-Achse in Abbildung 6.1(b)). Die maximale RF-Intensität des Exzitonübergang ist mit über 12 Mcounts/s sehr hoch.

6.2 Auger-Rekombination in dieser Probe

Um später die Messkonfigurationen besser verdeutlichen zu können, zeigt Abbildung 6.2(a) zunächst die frequenz- und gatespannungsabhängige resonante Fluoreszenz des Exzitons X^0 und Trions X^- . Der Stark-Effekt verschiebt die Resonanzen mit höheren Gatespannungen zu höheren Frequenzen. Für die beiden Exzitonresonanzen ist die Stark-Verschiebung durch weiße Linien angedeutet. Bei einer Gatespannung von etwa 0,38 V (vertikale, gestrichelte Linie in Abbildung 6.2(a)) gelangt der Grundzustand des Quantenpunkts in Resonanz mit der Fermi-Energie des Rückkontakts, sodass ein Elektron im Gleichgewicht den Quantenpunkt besetzt. Das Exziton kann nicht mehr angeregt werden, dafür ist das Trion bei geringeren Anregungsfrequenzen beobachtbar. Für die nachfolgenden Messungen der Auger-Rekombination wird die Spannung auf 0,515 V gesetzt (schwarze vertikale Linie in Abbildung 6.2(a)).

Die Trionresonanz liegt bei dieser Gatespannung bei einer Frequenz von 324,511 THz. Diese Frequenz ist in Abbildung 6.2(a) in rot als Laser 1-Linie eingezeichnet. Wäre der Quantenpunkt bei dieser Gatespannung unbesetzt, könnte die linke Exzitonresonanz bei 325,7622 THz angeregt werden (blaue Linie in Abbildung 6.2(a), Laser 2).

Strahlt man Laser 1 mit einer Intensität von $8 \cdot 10^{-6} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ ein, so ergibt sich als Signal in der resonanten Fluoreszenz die rote Messkurve in Abbildung 6.2(b). Da die RF-Intensität aufgrund der geringen Laser 1-Intensität sehr klein ist, ist sie hier in 100-facher Vergrößerung dargestellt. Strahlt man nun gleichzeitig Laser 2 mit einer Intensität von $1,6 \cdot 10^{-3} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ ein, so erhält man als RF-Signal abhängig von der Gatespannung die blaue Messkurve in Abbildung 6.2(b). Die Intensität der zwei-Farben-Messung übersteigt die der einfachen Messung der Trionresonanz um mehr als zwei Größenordnungen, obwohl der Exzitonübergang bei der angelegten Gatespannung verboten sein sollte. Diese Beobachtung kann durch den Auger-Effekt erklärt werden, wie es schematisch in Abbildung 6.2(c) dargestellt ist: Im Gleichgewicht befindet sich ein Elektron im Quantenpunkt (e) und durch resonante Anregung mit Laser 1 (roter geschwungener Doppelpfeil) kann das Trion (X^-) erzeugt werden. Dieses kann strahlend zerfallen, wodurch resonante Fluoreszenz gemessen werden kann und sich die rote Messkurve in Abbildung 6.2(b) ergibt. Es besteht allerdings auch die Möglichkeit, dass das Trion mit der Auger-Rate γ_a über eine Auger-Rekombination zerfällt. Daraufhin ist der Quantenpunkt leer (0) und das Exziton (X^0) kann durch Laser 2 (blauer geschwungener Doppelpfeil) getrieben werden, bis der Quantenpunkt mit der Tunnelrate γ_{In} wieder mit einem Elektron aus dem Rückkontakt besetzt wird. Dabei entspricht γ_{In} der Tunnelrate in den leeren Quantenpunkt γ_{In}^0 , da die Tunnelrate in den mit einem Exziton beladenen Quantenpunkt γ_{In}^X vernachlässigbar klein ist. Das Exziton kann also durch die Auger-Rekombination des Trions bei einer Gatespannung angeregt werden, bei der es normalerweise verboten wäre. Abhängig von der Laser 2-Intensität trägt die resonante Fluoreszenz des Exzitons somit mit verschieden starker Intensität zum RF-Signal bei. Da im Beispiel hier die Laser 2-Intensität die Laser 1-Intensität um mehrere Größenordnungen übersteigt und das Trion-RF-Signal zusätzlich durch die Auger-Rekombination verringert wird, ist die RF-Intensität in der zwei-Farben-Anregung in Abbildung 6.2(b) viel größer als die der einfachen Trionresonanz.

Dieser Effekt wurde bereits von Kurzmann et al. in [Kurzmann16a] erklärt (vergleiche Kapitel 2.6), sollte hier jedoch zur besseren Verständlichkeit der weiteren Messungen noch einmal explizit an dieser Probe und diesem Quantenpunkt gezeigt werden.

6.3 Gepulste Messung der Auger-Rekombination

Um später die Ergebnisse des Telegraphenrauschens und der vollen Zählstatistik mit Ergebnissen aus der bekannten Messmethode der gepulsten Messung der Auger-Rekombination (vergleiche Kapitel 2.6) vergleichen zu können, werden hier entsprechende Messungen durchgeführt. Außerdem ergibt sich aus den im Folgenden dargestellten gepulsten Messungen die von der Intensität des Lasers 1 abhängige Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts mit einem Trion.

Abbildung 6.3(a) zeigt das Messschema für die gepulste Messung des Auger-Effekts. Der Laser, resonant auf den Trionübergang eingestellt mit einer Frequenz von 324,511 THz, wird zum Zeitpunkt $t = 0$ eingeschaltet und nach 1,7 ms wieder für 2 ms ausgeschaltet (Abbildung 6.3(a), oben). Die Gatespannung U_G ist so gewählt, dass der Trionübergang bei der gewählten Laserfrequenz in Resonanz ist. Dies ist hier bei 0,492 V der Fall. Lediglich für die letzten 0,2 ms der Laser-an-Zeit wird die Gatespannung aus der Resonanz gebracht, indem sie auf -0,5 V verstellt wird, um das Hintergrundsignal zu bestimmen und später von den Messungen abziehen zu können (Abbildung 6.3(a), Mitte). Zum

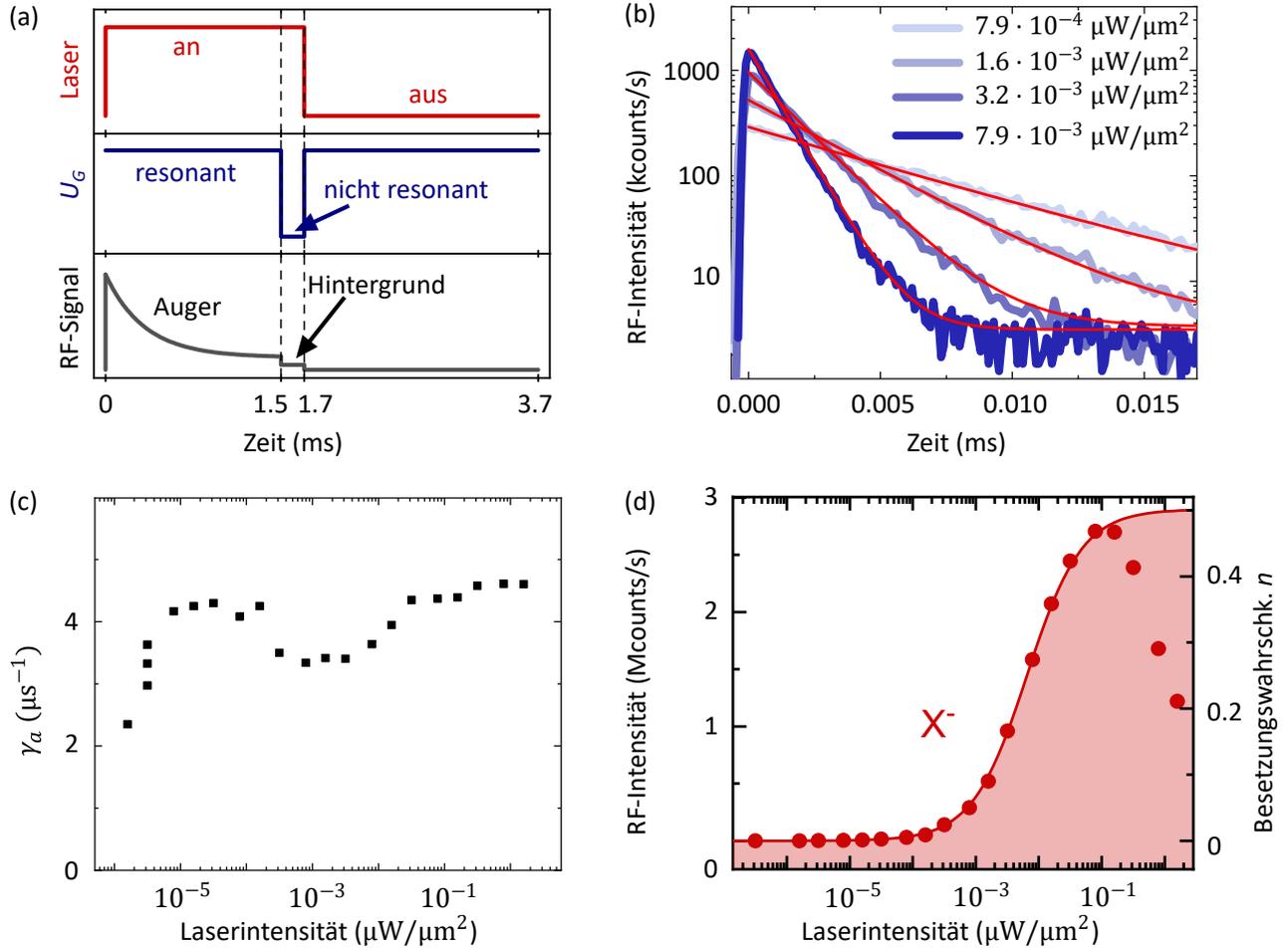


Abbildung 6.3: Gepulste resonante Fluoreszenzmessungen des Auger-Prozesses. (a) Messschema. Der Laser (rot, oben) ist resonant auf den Trionübergang eingestellt und wird für 1,7ms eingeschaltet, die Gatespannung (Mitte, blau) wird die letzten 0,2ms dieser Zeit aus der Resonanz gebracht, um den Laserhintergrund zu messen. Das erwartete resultierende RF-Signal ist in schwarz (unten) zu sehen. (b) Exemplarische Darstellung von Messkurven (blau) und Anpassungen der Ratengleichung an diese (rot) für vier Laserintensitäten. (c) Auger-Rate γ_a abhängig von der Laserintensität aus den Anpassungen mit der Ratengleichung. (d) Maximale RF-Intensitäten des Trions abhängig von der Laserintensität, angepasste Sättigungskurve und entsprechende Besetzungswahrscheinlichkeit n . Die Messpunkte entsprechen dem jeweiligen I_0 aus der Anpassung.

Zeitpunkt $t = 0$ befindet sich das System aus Quantenpunkt und Rückkontakt im Gleichgewicht, ein Elektron besetzt also den Quantenpunkt. Direkt nach dem Einschalten des Lasers wird somit immer zunächst das Trion angeregt, die Intensität zum Zeitpunkt $t = 0$ kann also genutzt werden, um die Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts mit einem Trion zu bestimmen. Danach nimmt das RF-Signal in der n -mal gepulsten Messung ab, bis sich ein Gleichgewicht zwischen Auger-Emission und Elektrontunneln eingestellt hat. In den letzten 2 ms der Messung ist die Gatespannung in Resonanz aber der Laser ausgeschaltet, sodass keine Fluoreszenz messbar ist und sich wieder der Ausgangszustand mit einem Elektron im Quantenpunkt herstellen kann. Das erwartete Verhalten des RF-Signals ist in Abbildung 6.3(a), unten, zu sehen.

Abbildung 6.3(b) zeigt vier beispielhafte Messungen bei unterschiedlichen Laserintensitäten (blau). In rot sind die Anpassungen an die Messungen nach Formel (2.10), multipliziert mit der RF-Intensität zum Zeitpunkt $t = 0$ I_0 zu sehen. Für γ_{In} wird mit $2,19 \text{ ms}^{-1}$ ein Wert eingesetzt, der sich in vorangegangenen gepulsten Messungen der Tunnelzeit an demselben Quantenpunkt ergeben hat. I_0 und γ_a

werden als Anpassungsparameter frei gelassen. In Abbildung 6.3(c) sind die Auger-Raten abhängig von der Laserintensität zu sehen. Sie schwanken zwischen $2,3 \mu\text{s}^{-1}$ und $4,6 \mu\text{s}^{-1}$. Im Mittel beträgt die Auger-Rate $(3,90 \pm 0,13) \mu\text{s}^{-1}$. Die Größenordnung stimmt mit der von Kurzmann et al. ermittelten Auger-Rate von $2,3 \mu\text{s}^{-1}$ gut überein [Kurzmann16a].

In Kapitel 7 wird gezeigt, dass der Quantenpunkt auch durch interne Photoemission geleert werden kann. Diese spielt jedoch erst bei höheren Laserintensitäten eine Rolle und erfolgt mit einer Rate, die der Emissionsrate durch Auger-Rekombination um zwei Größenordnungen unterliegt. Somit kann dieser Effekt bei der Betrachtung des Auger-Effekts im Quantenpunkt vernachlässigt werden.

Zuletzt ist in Abbildung 6.3(d) der Anpassungsparameter I_0 als RF-Intensität des Trions gegen die Intensität des anregenden Lasers aufgetragen (Punkte). Die Werte wurden mit einer Sättigungskurve nach Formel (3.22) angepasst, aus der man die Besetzungswahrscheinlichkeit n des Quantenpunkts mit einem Trion erhält. Bei der Anpassung der Sättigungskurve wurden die Punkte bei hohen Intensitäten außer Acht gelassen, da diese bereits vom photoinduzierten Elektroneneinfang beeinflusst werden. Der Erhalt der Sättigungskurve ist für die weitere Analyse des Auger-Effekts in diesem Quantenpunkt von großer Bedeutung, um die eingestrahlten Laserintensitäten mit einer Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts mit einem Trion in Verbindung bringen zu können.

6.4 Telegraphenrauschen und volle Zählstatistik

Wie im vorangegangenen Kapitel nachgewiesen werden konnte, spielt auch in diesem Quantenpunkt der Auger-Effekt eine große Rolle bei der Anregung und Beobachtung geladener Exzitonen. Beobachtbar ist dieser Effekt insbesondere wegen der schwachen Tunnelkopplung des Quantenpunkts an den Rückkontakt, sodass der Quantenpunkt im Mittel nach jedem Auger-Ereignis eine Zeit lang leer verbleibt, bis er wieder von einem Elektron besetzt wird. Ein einzelner Auger-Prozess kann hierbei als Quantenereignis angesehen werden und ist somit unvorhersehbar. Deshalb kann nur durch eine statistische Auswertung vieler Ereignisse eine Erkenntnis über die Physik hinter diesen Prozessen gewonnen werden. Eine Möglichkeit der statistischen Auswertung ist die gepulste Messung, wie sie im vorangegangenen Kapitel durchgeführt wurde. Eine viel tiefgehendere Auswertung bietet jedoch die volle Zählstatistik [Levitov96, Blanter00, Stegmann15, Gustavsson06, Gustavsson09, Flindt09, Kleinherbers18]. Dazu muss zunächst jedes einzelne Quantenereignis über eine gewisse Zeitspanne aufgenommen werden, das sogenannte Telegraphenrauschen (siehe Kapitel 3.4.3). Dieses ermöglicht es, in Echtzeit jede Auger-Emission und jedes Elektrontunneln zu detektieren.

6.4.1 Telegraphenrauschen in der zwei-Farben-Messung

Eine Herangehensweise wäre es, mit Laser 1 resonant das Trion anzuregen und zu detektieren, wann die resonante Fluoreszenz des Trions an beziehungsweise aus geht. Jedoch ist die RF-Intensität des Trions gerade bei niedrigen Anregungsintensitäten, die hier auch von Interesse sind, so gering, dass sich der „an“-Zustand nur schwer bis gar nicht von den Hintergrundphotonen des „aus“-Zustands unterscheiden ließe. Aus diesem Grund wird hier in einer zwei-Farben-Anregung gemessen. Laser 1 regt weiterhin resonant das Trion an. Gleichzeitig wird mit Laser 2 resonant das Exziton angeregt, sobald der Quantenpunkt leer ist. Als Anregungsintensität der Exzitonresonanz wird dabei konstant $1,6 \cdot 10^{-3} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ gewählt. Aus Abbildung 6.1 geht hervor, dass die RF-Intensität des Exzitons bei dieser Laserintensität in etwa 200 kcounts/s beträgt, jedoch weit unterhalb der Sättigung liegt, sodass

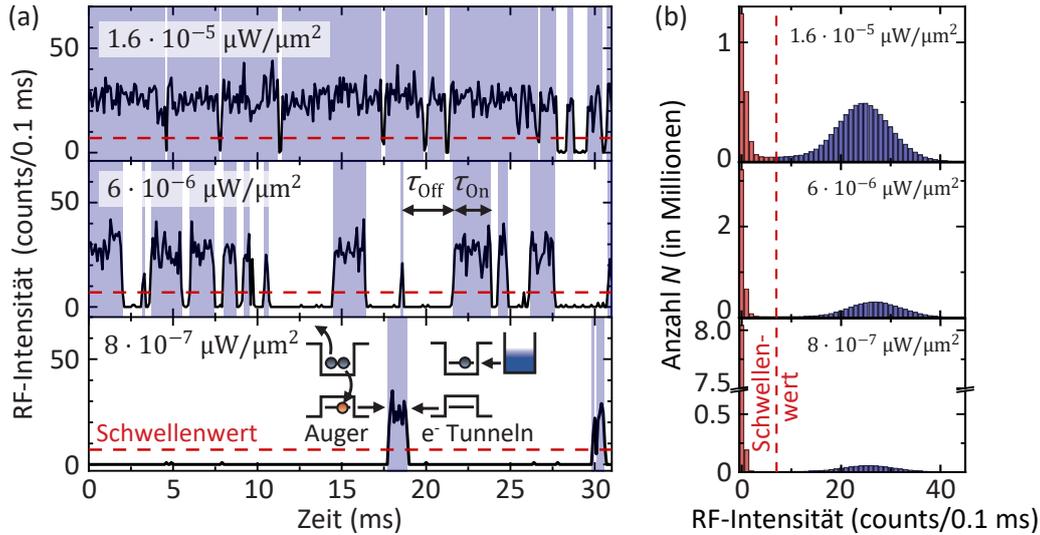


Abbildung 6.4: (a) Zeitaufgelöstes Telegraphenrauschen des resonanten Fluoreszenzsignals beeinflusst von den Prozessen der Auger-Rekombination und des Elektrontunnels bei verschiedenen Laser 1-Intensitäten (oben links in jeder Messreihe vermerkt). Eine Gatespannung von 0,515 V ist an die Probe angelegt, zwei Laser regen resonant den Trion- und Exzitonübergang an (vergleiche Abbildung 6.2). Die Laser 2-Intensität beträgt $1,6 \cdot 10^{-3} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$. Nach jedem Auger-Prozess ist der Quantenpunkt leer und resonante Fluoreszenz des Exzitons kann beobachtet werden, bis nach einer Zeit τ_{On} der Quantenpunkt durch Elektrontunneln wieder besetzt wird. Alle RF-Intensitäten größer als der Schwellenwert (7 counts/0,1 ms, rote gestrichelte Linie) werden als „an“ gezählt (blau), alle darunter als „aus“ (weiß). (b) Zur Bestimmung des Schwellenwerts wird die jeweilige Anzahl N einer bestimmten RF-Intensität als Histogramm aufgetragen. Die Hintergrundintensitäten (rot) werden durch den Schwellenwert (rote gestrichelte Linie) von den Exzitonphotonen (blau) getrennt.

keine weiteren störenden Effekte wie der photoinduzierte Elektroneneinfang zu erwarten sind. Die resonante Fluoreszenz des Exzitons kann also als optischer Detektor für den leeren Quantenpunkt genutzt werden. Kann man Exziton-RF beobachten, ist das Trion also „aus“ und andersherum, sodass man die Trionstatistik aus dem inversen Exzitonensignal bestimmen kann.

In dieser Messkonfiguration wird bei Laser 1-Intensitäten von $1,6 \cdot 10^{-7} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ bis $1,6 \cdot 10^{-5} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ für je 15 min das Telegraphenrauschen aufgenommen. Um dieses nach [Gustavsson06, Gustavsson09] mittels voller Zählstatistik auswerten zu können, wird jeweils die Anzahl der Photonen pro Zeiteinheit gezählt. In der hier vorliegenden Auswertung wird als Zeiteinheit 0,1 ms gewählt. Zeitausschnitte der somit resultierenden RF-Intensität abhängig von der Zeit sind für drei verschiedene Laser 1-Intensitäten in Abbildung 6.4(a) zu sehen. Als nächsten Schritt muss ein Wert in der RF-Intensität festgelegt werden, der den „ X^0 an“-Zustand vom „ X^0 aus“-Zustand trennt. Dazu werden Histogramme über die pro Zeiteinheit vorkommenden RF-Intensitäten erstellt. Die Histogramme entsprechend der Laser 1-Intensitäten aus Abbildung 6.4(a) sind in Abbildung 6.4(b) zu sehen. Hier ist eine klare Trennung zwischen den niedrigen RF-Intensitäten (rote Balken), welche der Hintergrundzählrate inklusive einiger Trionphotonen entsprechen, und den hohen RF-Intensitäten (blaue Balken), welche den Zählraten der Exziton-RF (verteilt um etwa 25 counts/0,1 ms) entsprechen, zu erkennen. Zwischen diesen beiden Bereichen wird nun ein Schwellenwert von 7 counts/0,1 ms gewählt. Alle RF-Intensitäten darüber werden nun als „ X^0 an“ gewertet, alle RF-Intensitäten darunter als „ X^0 aus“. Mit dieser Maßgabe werden die Daten des Telegraphenrauschens für die verschiedenen Laser 1-Intensitäten in „ X^0 an“ und „ X^0 aus“ unterteilt. Die in Abbildung 6.4(a) blau gekennzeichneten Bereiche entsprechen „ X^0 an“, der Quantenpunkt ist also leer. Dazu kann es nur durch die Auger-Emission kommen, jedes Mal, wenn die Exzitonemission an geht, hat also eine Auger-Emission stattgefunden. Das heißt, jedes einzelne Auger-Ereignis in der aufgenommenen Zeit kann detektiert werden. Die in

Abbildung 6.4(a) weiß gekennzeichneten Bereiche entsprechen „ X^0 aus“, der Quantenpunkt ist also nicht leer, sodass keine Exzitonresonanz angeregt werden kann. Der Übergang in diese Bereiche geschieht durch das Tunneln eines einzelnen Elektrons aus dem Rückkontakt in den Quantenpunkt, es kann also auch jedes einzelne Tunnelereignis in der aufgenommenen Zeit beobachtet werden. Wie in Abbildung 6.4(a) ersichtlich wird, kommt der „ X^0 an“-Zustand umso häufiger vor, je höher die Laser 1-Intensität ist. Dies lässt sich damit begründen, dass bei einer höheren Anregungsintensität des Trions die Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts mit einem Trion steigt (vergleiche Abbildung 6.3(d)) und somit auch die Wahrscheinlichkeit einer Auger-Rekombination. Laut [Kurzmann16a] besteht ein linearer Zusammenhang zwischen der Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts mit einem Trion und der Emissionsrate durch Auger-Rekombination, wobei der Proportionalitätsfaktor die Auger-Rate ist.

6.4.2 Analyse der Raten

Für die weitere Analyse werden als nächstes die Länge und Häufigkeit der „an“- und „aus“-Zeiten τ_{On} und τ_{Off} betrachtet [Gustavsson09]. Dazu werden für jede Laser 1-Intensität die Länge der „an“- und „aus“-Zeiten und deren jeweilige Anzahl in den jeweils 15 min Messzeit gezählt. Daraus ergeben sich Histogramme für τ_{On} und τ_{Off} , die einer exponentiell abfallenden Verteilung folgen. Als Beispiel ist die Verteilung der „an“- und „aus“-Zeiten bei einer Laser 1-Intensität von $8 \cdot 10^{-7} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ in Abbildung 6.5(a) zu sehen. Eine exponentielle Anpassung ergibt für τ_{On} die Tunnelrate, da diese Zeitspanne jedes Mal vom Tunneln eines Elektrons in den Quantenpunkt beendet wird und für τ_{Off} die Emissionsrate bei der entsprechenden Laser 1-Intensität, weil diese Zeitspanne jedes Mal von der Auger-Emission beendet wird. Bei der dargestellten Laserintensität ergeben sich eine Tunnelrate von $0,80 \text{ ms}^{-1}$ und eine Emissionsrate von $0,074 \text{ ms}^{-1}$.

Trägt man alle Tunnel- und Emissionsraten gegen die Laser 1-Intensität beziehungsweise Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts mit einem Trion n auf, so erhält man die Graphik in Abbildung 6.5(b). Die Tunnelrate γ_{In} ist unabhängig von der Laser 1-Intensität und lässt sich auf einen Wert von $0,74 \text{ ms}^{-1}$ mitteln. Die Tunnelrate verhält sich konstant, weil der unbesetzte Quan-

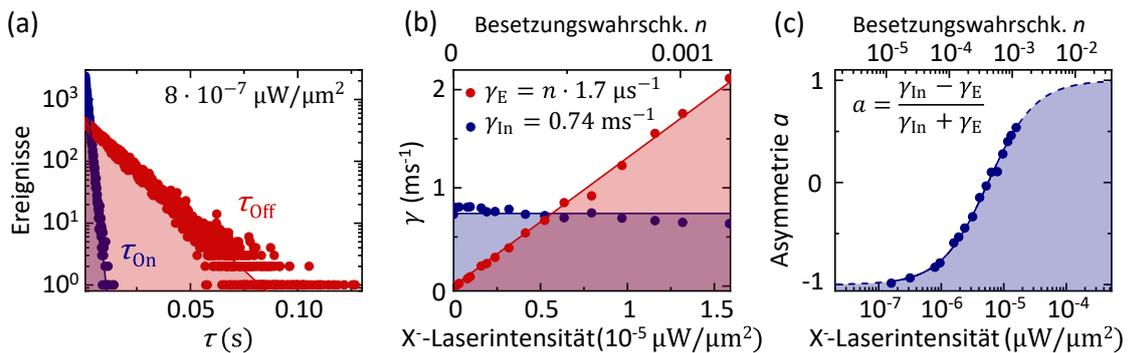


Abbildung 6.5: Raten und Asymmetrie aus dem Telegraphenrauschen des resonanten Fluoreszenzsignals. (a) Wahrscheinlichkeitsverteilung der „an“- (blau) und „aus“-Zeiten (rot) bei einer Laser 1-Intensität von $8 \cdot 10^{-7} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$. Eine exponentielle Anpassung an die Datenpunkte ergibt die Tunnel- und Emissionsrate γ_{In} und $\gamma_E = n\gamma_a$. (b) Tunnel- (blau) und Emissionsrate (rot) abhängig von der Laser 1-Intensität beziehungsweise Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts mit einem Trion. (c) Asymmetrie, errechnet aus der Tunnel- und Emissionsrate, abhängig von der Laser 1-Intensität beziehungsweise Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts mit einem Trion.

tenpunkt für die Trionwellenlänge von Laser 1 transparent ist und eine Veränderung der Intensität dieser Lasereinstrahlung demnach irrelevant für die Tunnelrate in den leeren beziehungsweise mit einem Exziton besetzten Quantenpunkt ist. Gleichzeitig wird die Intensität von Laser 2, der auf die Exzitonresonanz eingestellt ist, nicht verändert. Die so ermittelte Tunnelrate weicht von der in Kapitel 6.3 angenommenen Tunnelrate ab, liegt jedoch in derselben Größenordnung. Ein Grund dafür kann sein, dass die Messungen mit einem größeren zeitlichen Abstand vorgenommen wurden und somit aufgrund von Ladungen in der Umgebung die effektiv am Quantenpunkt anliegende Spannung verändert sein könnte. Wie Abbildung 7.4(d) in Kapitel 7.6 zeigt, ist die Tunnelrate stark abhängig von der Gatespannung.

Die Emissionsrate (rot in Abbildung 6.5(b)) zeigt eine lineare Abhängigkeit von der Besetzungswahrscheinlichkeit auf, sodass sich die Emissionsrate in der hier gezeigten Messung stufenlos von 0 bis etwa 2 ms^{-1} durch die eingestrahlte Laser 1-Intensität einstellen lässt. Wie zuvor erklärt liegt dies daran, dass nur dann Auger-Emission vorkommen kann, wenn auch ein Trion im Quantenpunkt geladen ist. Besetzt jedoch ein Trion den Quantenpunkt, so ist die Wahrscheinlichkeit für eine Auger-Rekombination immer gleich groß. Die entsprechende Rate ist die intrinsische Auger-Rate γ_a und gleichzeitig der Proportionalitätsfaktor zwischen der Emissionsrate und der Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts mit einem Trion n . Aus den Messungen in Abbildung 6.5(b) ergibt sich für die Emissionsrate $\gamma_E = n\gamma_a = n \cdot 1,7\mu\text{s}^{-1}$. Der so ermittelte Wert für die Auger-Rate weicht etwas von dem ab, der durch die gepulsten Messungen bestimmt wurde, liegt jedoch in derselben Größenordnung. Die Abweichung könnte unter anderem auch durch die Abweichungen in der Tunnelrate erklärt werden, die bei den gepulsten Messungen als fester Parameter verwendet wurde. Jedoch sind die hier erlangten Werte durch die Auswertung des Telegraphenrauschens als verlässlicher einzustufen, da hier unabhängig voneinander die Auger- und Tunnelrate durch die Betrachtung jedes einzelnen Auger- und Tunnelereignisses bestimmt werden konnten.

Die Auger-Rekombination ermöglicht es somit, unabhängig voneinander die Elektronenemissions- und -einfangrate einzustellen. Die Elektronenemission kann über den Auger-Effekt mittels Trionlaserintensität geregelt werden, unabhängig davon kann die Elektroneneinfangrate durch die angelegte Gatespannung verstellt werden. Dies war bisher für Quantenpunkte, die an ein einzelnes Ladungsträgerreservoir gekoppelt sind, nicht möglich, da sich die Tunnelrate der Elektronen in den Quantenpunkt und die Tunnelrate der Elektronen aus dem Quantenpunkt grundsätzlich nur gleichzeitig über die Gatespannung verändern ließen. Über die beiden Mechanismen des Tunnelns in den Quantenpunkt und der Auger-Emission lässt sich somit die Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts sehr genau über zwei Kanäle steuern.

Aus der Tunnelrate der Elektronen in den Quantenpunkt und der Emissionsrate lässt sich nun nach

$$a = \frac{\gamma_{In} - \gamma_E}{\gamma_{In} + \gamma_E} \quad (6.1)$$

die Asymmetrie a für die jeweilige Laser 1-Intensität bestimmen. Die entsprechenden Ergebnisse sind in Abbildung 6.5(c) zu sehen. Die gestrichelte Linie stellt den theoretischen Verlauf dar. Durch die Laser 1-Intensität kann die Asymmetrie also von -1 bis 0,55 eingestellt werden. Für Asymmetriewerte über 0,55, also für Laser 1-Intensitäten größer als $1,6 \cdot 10^{-5} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$, können die Telegraphenmessungen des Quantenpunktsignals nicht mehr zuverlässig ausgewertet werden. Dies liegt daran, dass die Auger-Emission bei größeren Anregungsintensitäten viel schneller stattfindet als das Zeitintervall von 0,1 ms, in dem die Photonen gezählt werden. Somit fällt die RF-Intensität in diesem Zeitintervall nicht unter den Schwellenwert und es kann nicht detektiert werden, dass die Exzitonemission zwischenzeitlich „aus“ war. Das Auger-Ereignis und das nachfolgende Elektrontunneln wird also in der Auswertung übersehen. Kürzere Zeitintervalle in der Auswertung könnten dies verhindern, jedoch kann dann der

Schwellenwert nicht mehr eindeutig gewählt werden und der Hintergrund lässt sich schwerer vom „an“-Zustand unterscheiden. Bei der gewählten Laser 2-Intensität und der entsprechenden RF-Intensität ist die Bandbreite also auf 10 kHz beschränkt, schnellere Ereignisse können nicht detektiert werden. Ereignisse darunter können dezidiert und in Echtzeit beobachtet werden. Eine Erhöhung der Laser 2-Intensität würde eine Erhöhung der RF-Intensität des Exzitons bewirken und somit die Bandbreite erhöhen. Dabei muss jedoch darauf geachtet werden, dass durch die erhöhte Laser 2-Intensität keine Effekte wie der photoneninduzierte Elektroneneinfang aus dem Rückkontakt die Beobachtung stören. Durch diese ist die Bandbreite der Messung nach oben begrenzt.

6.4.3 Kumulanten

Durch die volle Zählstatistik können letztendlich die Wahrscheinlichkeitsverteilungen der beobachteten Ereignisse und die daraus resultierenden Kumulanten der Verteilungen bestimmt werden. Gleicht man diese mit theoretisch auf der Grundlage verschiedener Systeme bestimmten Kumulanten ab, lässt dies Rückschlüsse auf das hier vorliegende System, an dem die Messungen vorgenommen werden, zu.

Zunächst wird dafür das über 15 min aufgenommene RF-Signal in Abschnitte der Länge t_0 unterteilt und dann die Anzahl N der Auger-Ereignisse innerhalb der jeweiligen Abschnitte gezählt [Gustavsson09, Gorman17, Fricke07]. Das Histogramm über die Auger-Ereignisse in t_0 ergibt dann die Wahrscheinlichkeitsverteilung $P(N)$ der Auger-Ereignisse. Dazu sei erwähnt, dass es keinen Unterschied macht, ob die Anzahl der Auger-Ereignisse, also der Übergänge von „aus“ zu „an“, oder die Anzahl der Tunnelereignisse, also der Übergänge von „an“ zu „aus“ gezählt werden, da auf jedes Auger-Ereignis ein Tunnelereignis folgen muss, damit es wieder zu einer Auger-Emission kommen kann. Um die Wahrscheinlichkeitsverteilung der Auger-Ereignisse zu bestimmen, betrachtet man das Langzeitlimit, also die Verteilung für große t_0 . In Abbildung 6.6(a) und (b) sind als blaue Balken die entsprechenden Wahrscheinlichkeitsverteilungen der Auger-Ereignisse im Langzeitlimit von $t_0 = 2$ s für Laser 1-Intensitäten von $3 \cdot 10^{-7} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ (entspricht einer Asymmetrie von ungefähr -1) und $6 \cdot 10^{-6} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ (entspricht einer Asymmetrie von ungefähr 0) zu sehen. Als rote Kurven sind jeweils die Poissonverteilungen entsprechend dem Mittelwert der Wahrscheinlichkeitsverteilung eingezeichnet. Für eine Asymmetrie von -1 (Abbildung 6.6(a)) entspricht die Verteilung ziemlich genau der Poisson-

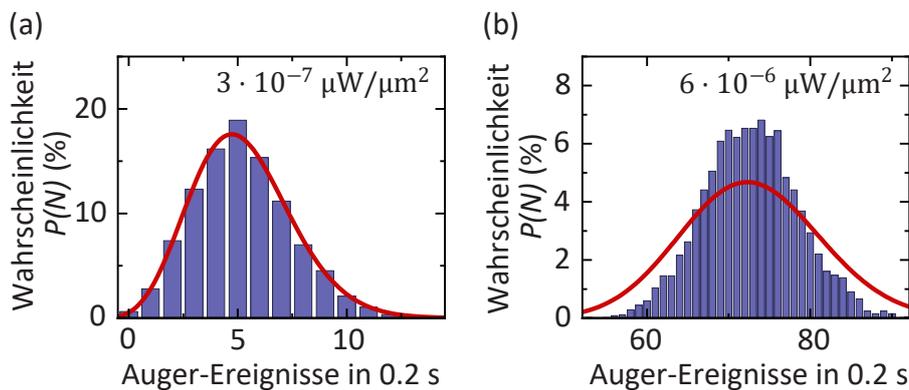


Abbildung 6.6: Wahrscheinlichkeit $P(N)$ für N Auger-Ereignisse in einem Zeitintervall von $t_0 = 0,2$ s für verschiedene Laser 1-Intensitäten (blaue Balken) und Poissonverteilung, die dem Mittelwert der Wahrscheinlichkeitsverteilung entspricht (rote Kurve). (a) Bei einer Laser 1-Intensität von $3 \cdot 10^{-7} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ (entspricht einer Asymmetrie von ungefähr -1) entspricht die Verteilung einer Poissonverteilung. (b) Bei einer Laser 1-Intensität von $6 \cdot 10^{-6} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ (entspricht einer Asymmetrie von ungefähr 0) ist die Verteilung schmäler als eine Poissonverteilung.

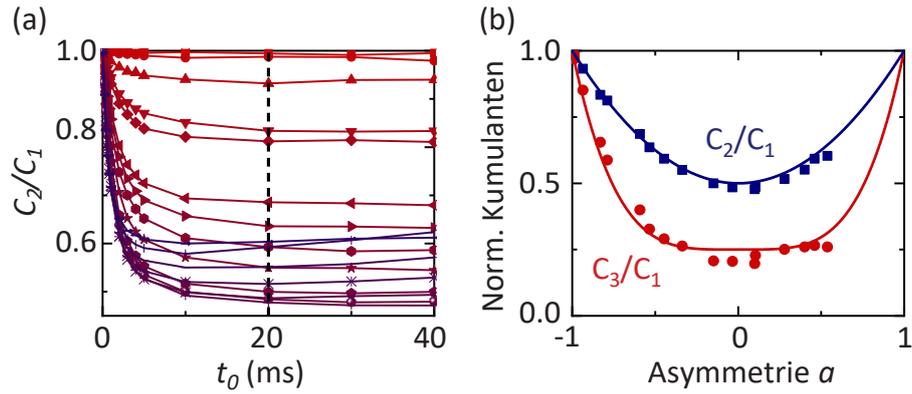


Abbildung 6.7: Normierte Kumulanten in Abhängigkeit von der Länge der Zeitintervalle t_0 , in die das RF-Signal aufgeteilt wird (a) und von der Asymmetrie (b). (a) Der Fanofaktor C_1/C_2 für Asymmetrien von -1 bis 0,55 (rot bis blau) sättigt für große Zeiten t_0 . Im Querschnitt durch die Asymmetrien bei 20 ms (gestrichelte Linie) ergeben sich die blauen Messpunkte in (b). Für C_3/C_1 ergeben sich entsprechend bei $t_0 = 5$ ms die roten Messpunkte. Die Linien in (b) entsprechen den theoretischen Vorhersagen für die zweite und dritte normierte Kumulante eines 2-Zustands-Systems.

verteilung. Bei einer Asymmetrie von ungefähr 0 (Abbildung 6.6(b)) weicht die Verteilung von der Poissonverteilung ab und gestaltet sich schmäler als diese. Dies zeigt an, dass Korrelation zwischen dem Auger- und dem Tunnelprozess vorliegt, denn die Auger-Rekombination kann nur stattfinden, wenn vorher ein Elektron in den Quantenpunkt getunnelt ist und andersherum. Da die Raten bei der vorliegenden Asymmetrie ungefähr dieselbe Größe haben, ist die Korrelation sehr groß.

Aus den Wahrscheinlichkeitsverteilungen lassen sich nun abhängig von t_0 die Kumulanten für jede Asymmetrie beziehungsweise Laser 1-Intensität herleiten. Die m -te Kumulante berechnet sich nach

$$C_m(t_0) = \partial_z^m \ln \mathcal{M}(z, t_0)|_{z=0} \quad (6.2)$$

mit der momenterzeugenden Funktion

$$\mathcal{M}(z, t_0) = \sum_N e^{zN} P(N) \quad (6.3)$$

[Cornish38, Bagrets06, Gustavsson09]. Die erste Kumulante entspricht dabei dem Mittelwert der Verteilung, die zweite Kumulante der Varianz (also der Breite der Verteilung) und die dritte Kumulante der Asymmetrie der Verteilung. Zur besseren Vergleichbarkeit werden häufig die normierten Kumulanten angegeben, das heißt, sie werden durch die erste Kumulante, also den Mittelwert, geteilt. Abbildung 6.7(a) zeigt die zweite, normierte Kumulante (auch Fano-Faktor genannt) abhängig von der Wahl der Zeitintervalle t_0 für Asymmetrien von -1 bis 0,55 (rot bis blau). Beträgt der Fano-Faktor 1, so entspricht die Wahrscheinlichkeitsverteilung einer Poisson-Verteilung, die Varianz ist also gleich dem Mittelwert. Wird der Fano-Faktor kleiner als 1, so ist die Wahrscheinlichkeitsverteilung schmäler als eine Poisson-Verteilung, die betrachteten Prozesse verlaufen also regelmäßiger, während ein Fano-Faktor größer als 1 einem unregelmäßigeren Verlauf entspräche. Zum Zeitpunkt $t_0 = 0$ scheint der Fano-Faktor für alle Asymmetrien 1 zu sein. Mit größer werdendem t_0 verändert sich das Verhalten des Fano-Faktors jedoch abhängig von der Asymmetrie, bis bei ungefähr 20 ms der Fano-Faktor für alle Asymmetrien einen konstanten Wert zu erreichen scheint. Betrachtet man den Fano-Faktor abhängig von der Asymmetrie bei diesen großen Zeiten, so erhält man die blauen Messpunkte in Abbildung 6.7(b). Theoretisch wird für den Fano-Faktor in einem 2-Zustands-System für große t_0 die

Abhängigkeit von der Asymmetrie

$$\frac{C_2}{C_1} = \frac{1 + a^2}{2} \quad (6.4)$$

vorhergesagt [Bagrets03,Gustavsson06]. Diese theoretische Kurve ist als blaue Linie in Abbildung 6.7(b) eingezeichnet.

Nach demselben Verfahren werden die Werte der normierten dritten Kumulante C_3/C_1 abhängig von der Asymmetrie für große t_0 (hier: 5 ms) ermittelt. Diese sind als rote Messpunkte in Abbildung 6.7(b) zu sehen, gemeinsam mit der theoretischen Vorhersage für ein 2-Zustands-System von

$$\frac{C_3}{C_1} = \frac{1 + 3a^4}{4} \quad (6.5)$$

als rote Linie [Bagrets03,Gustavsson06]. Sowohl die theoretische Vorhersage für den Fano-Faktor als auch für die dritte normierte Kumulante stimmen gut mit den Messergebnissen überein, der Quantenpunkt verhält sich also wie ein 2-Zustands-System. Den einen Zustand bildet dabei der mit einem Elektron oder Trion beladene Quantenpunkt, den anderen Zustand der leere oder mit einem Exziton beladene Quantenpunkt. Die Zusammenfassung des Quantenpunkts beladen mit einem Elektron oder Trion beziehungsweise des leeren oder mit einem Exziton beladenen Quantenpunkts zu jeweils einem Zustand ist möglich, weil der jeweils optisch getriebene Übergang viel schneller (Größenordnung von Nanosekunden) als der Übergang von einem Zustand in den anderen vonstatten geht [Zrenner02].

Die statistische Analyse des Telegraphenrauschens durch die volle Zählstatistik zeigt demnach ganz klar den Einfluss der Auger-Rekombination auf die Kumulanten der Wahrscheinlichkeitsverteilung. Dabei können die Kumulanten durch die Laser 1-Intensität auf einen bestimmten Wert eingestellt werden, der Fano-Faktor kann beispielsweise von 1 bis 0,5 verändert werden.

6.5 Zusammenfassung

In Messungen des Telegraphenrauschens des resonanten Fluoreszenz-Signals konnte durch zwei-Farben-Anregung in Echtzeit jede Auger-Rekombination eines Trions in einem einzelnen Quantenpunkt und jedes anschließende Elektrontunneln aus dem Rückkontakt beobachtet werden. Die Quantensprünge vom geladenen zum ungeladenen Quantenpunkt konnten mittels voller Zählstatistik analysiert werden. Die Emissionsrate ergab sich zu $\gamma_E = n \cdot 1,7 \mu\text{s}^{-1}$, die Tunnelrate konnte konstant zu $\gamma_{In} = 0,74 \text{ms}^{-1}$ bestimmt werden. Die Raten können somit unabhängig voneinander manipuliert werden, indem man entweder die Laserintensität (Emissionsrate) oder die Gatespannung (Tunnelrate der Elektronen in den Quantenpunkt) ändert. Eine entsprechende Einstellung der Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts ist dadurch ebenfalls möglich. Des weiteren ermöglichte die volle Zählstatistik Zugang zu den Kumulanten der Wahrscheinlichkeitsverteilung des Auger-Prozesses. Der Fano-Faktor lässt sich demnach durch die Laserintensität von Poisson-verteilt zu schmaler als Poisson-verteilt einstellen. Ein Vergleich mit theoretischen Vorhersagen für die Dynamik in einem 2-Zustands-System ergab gute Übereinstimmungen für die Dynamik der Auger-Rekombination und des Elektrontunnelns mit dem leeren beziehungsweise einfach beladenen Quantenpunkt als die zwei Zustände.

7 Interne Photoemission

Wie in Kapitel 2.5 beschrieben, ist der Photoeffekt in Photodetektoren [Renker09] und auch einzelnen Atomen bekannt [Henkel10], jedoch wurde er noch nicht in einzelnen beschränkten Festkörpersystem wie beispielsweise einem Quantenpunkt beobachtet. In zeitaufgelösten zwei-Farben-Messungen wird hier im Folgenden nachgewiesen, dass auch in diesen Strukturen der Photoeffekt eine Rolle spielt und somit die Kohärenz beziehungsweise Lebenszeit eines Zustands darin verringern kann. Dieser interne Photoeffekt wird daraufhin abhängig von der Anregungslaserintensität, der Gatespannung und der Frequenz des anregenden Lasers genauer charakterisiert. Durch ein Ratenmodell wird eine lineare Abhängigkeit der Emissionsrate durch den Photoeffekt von der Laserintensität über mehrere Größenordnungen herausgestellt. Die Messungen werden an der in Kapitel 3.1.2 beschriebenen Probe am selben Quantenpunkt wie im vorangegangenen Kapitel vorgenommen. Teile der Ergebnisse dieses Kapitels wurden bereits in [Lochner21] veröffentlicht.

7.1 Exzitonemission im Bereich des Trions

In Abbildung 7.1 ist die Intensität der resonanten Fluoreszenz eines Quantenpunkts abhängig von der angelegten Gatespannung und der anregenden Laserfrequenz zu sehen. Im Frequenzbereich größer als 325,755 THz lässt sich die durch die Feinstruktur aufgespaltene Exzitonresonanz X^0 beobachten (gemessen bei einer Laserintensität von $4 \cdot 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$), im Frequenzbereich von 324,509 THz bis 324,512 THz sieht man die Trionresonanz X^- (gemessen bei einer Laserintensität von $7,9 \cdot 10^{-6} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$). Wie üblich erkennt man die Stark-Verschiebung der Resonanzen mit der angelegten Gatespannung. Bei einer Gatespannung von etwa 0,38 V (gestrichelte Linie 1) kann durch die Bandverkipfung ein Elektron in den Quantenpunkt tunneln, die Anregung des Trions wird dadurch möglich. Bei einer Gatespannung von etwa 0,58 V (gestrichelte Linie 2) besetzt ein zweites Elektron den Quantenpunkt und der Trionübergang ist verboten. Die dargestellten Daten entsprechen den Daten in Abbildung 6.2(a). Durch die veränderte Darstellung (logarithmische statt lineare Darstellung der Intensität, anderes Farbschema) zeigt sich nun jedoch überraschenderweise sowohl im Gatespannungsbereich des Trions (Bereich B) als auch im Bereich darüber (Bereich C) in dieser Messung, bei der nur mit einem Laser angeregt wird, weiterhin die Resonanz des Exzitons (bei verringerter Intensität), obwohl diese aufgrund der Besetzung des Quantenpunkts mit Elektronen gar nicht möglich sein sollte. Eine mögliche Erklärung dieser Be-

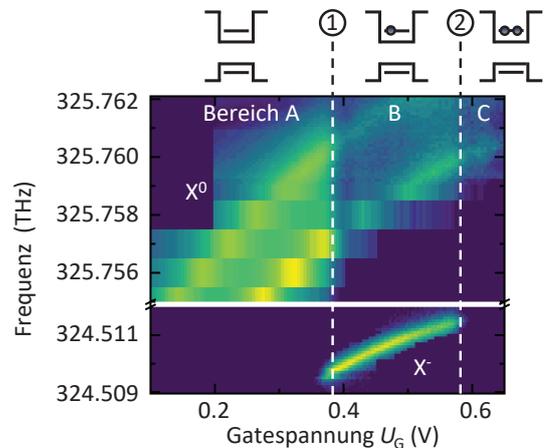


Abbildung 7.1: Gatespannungs- und laserfrequenzabhängige resonante Fluoreszenzintensität des Exziton- (X^0) und Trionübergangs (X^-). Die gestrichelten Linien bei etwa 0,38 V (1) und etwa 0,58 V (2) kennzeichnen die Gatespannungen, bei denen das erste beziehungsweise zweite Elektron in den Quantenpunkt tunneln. Oberhalb von (1) sollte deshalb keine resonante Fluoreszenz des Exzitons möglich sein.

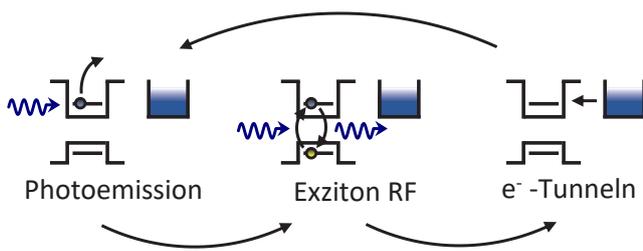


Abbildung 7.2: Schematische Darstellung der internen Photoemission im Gatespannungsbereich B. Die Photoemission hebt das Elektron aus dem Quantenpunkt (links). Daraufhin kann resonant der Exzitonübergang bei Frequenzen zwischen 325.7575 THz und 325.762 THz (abhängig von der genauen Gatespannung) getrieben werden (mitte), bis ein Elektron aus dem Rückkontakt den Quantenpunkt wieder besetzt (rechts).

obachtung ist die Leerung des Quantenpunkts durch einen internen Photoeffekt.

7.2 Konzept des internen Photoeffekts

Das Schema in Abbildung 7.2 erklärt die Vorgänge im Quantenpunkt, die es erlauben, die Exzitonresonanz im Gatespannungsbereich B zu beobachten. Ein Photon des anregenden Lasers wechselwirkt mit dem Elektron, welches im Quantenpunkt geladen ist. Die Energie des Photons wird somit auf das Elektron übertragen und dieses wird aus dem Quantenpunkt emittiert. Dieser Prozess kann als Photoeffekt bezeichnet werden, da ein Ladungsträger durch ein Lichtquant aus seinem gebundenen Zustand angehoben wird. Daraufhin ist der Quantenpunkt leer und der Exzitonübergang kann resonant getrieben werden, resonante Fluoreszenz wird beobachtbar. Durch das Tunneln eines Elektrons aus dem Rückkontakt der Probe in den Quantenpunkt wird der Quantenpunkt wieder in den Ausgangszustand gebracht, sodass der Exzitonübergang verboten ist, bis das Elektron wieder durch Photoemission aus dem Quantenpunkt gehoben wird.

7.3 Zeitaufgelöste Messung

Um dieses Modell zu überprüfen, werden zeitaufgelöste resonante Fluoreszenzmessungen mit zwei-Farben-Anregung durchgeführt. Dazu wird eine feste Gatespannung von 0,53 V, also im Bereich B des Trionübergangs, gewählt. Ein Laser (im Folgenden Laser 1) wird resonant auf die Exzitonresonanz bei dieser Gatespannung eingestellt (325,7592 THz beziehungsweise $E_{X^0} = 1,347$ eV) und konstant bei einer geringen Intensität von $1,6 \cdot 10^{-3} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ eingestrahlt, sodass durch Laser 1 kaum Photoemission hervorgerufen wird (hellblau in Abbildung 7.3(a)). Ein zweiter Laser (im Folgenden Laser 2) wird auf eine Frequenz unterhalb aller exzitonischen Resonanzen eingestellt (324 THz beziehungsweise 1,340 eV), sodass keine Band-zu-Band-Übergänge durch ihn getrieben werden können. Da der energetische Abstand zwischen dem gebundenen Zustand des Elektrons im Quantenpunkt und der Leitungsbandkante des umgebenden Kontinuums, also des GaAs ($E_{\text{GaAs}} = 1,519$ eV [Ioffe20]), kleiner als $E_{\text{GaAs}} - E_{X^0} = 0,172$ eV ist, genügt die Photonenenergie von Laser 2, um das Elektron aus dem Quantenpunkt weit über die Leitungsbandkante des GaAs zu heben. Laser 2 wird wie in Kapitel 3.4.3 beschrieben gepulst, dabei ist die Laserintensität größer als die von Laser 1 (dunkelblau in Abbildung 7.3(a)). Die Idee dieses Messkonzepts ist es nun, dass der nicht-resonante Laser den Quantenpunkt durch den internen Photoeffekt leert, sodass der resonante Laser den Exzitonübergang bei einer konstanten Intensität treiben und resonante Fluoreszenz beobachtet werden kann. Diesem Effekt entgegen wirkt das Elektrontunneln in den Quantenpunkt. Nach dem Einschalten von Laser 2 sollte sich in einer n-fachen Messung also eine ansteigende Transiente ausbilden, die bei einer Intensität der resonanten Fluoreszenz sättigt. Diese Intensität wird durch einen stationären Zustand zwischen

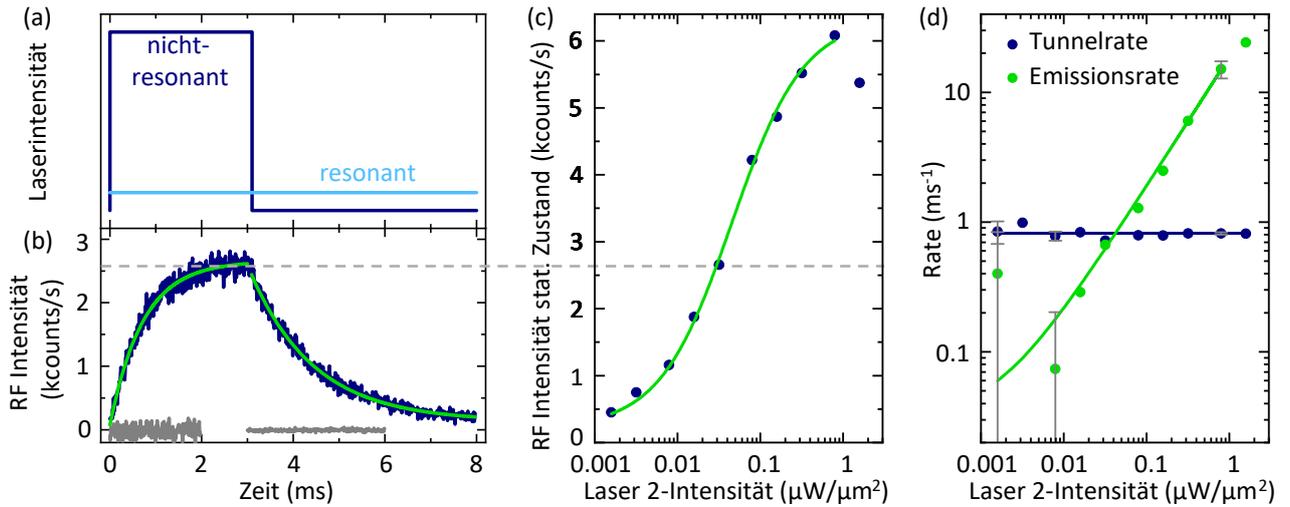


Abbildung 7.3: Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz-Messungen des internen Photoeffekts. (a) Messschema: Während ein resonant auf den Exzitonübergang bei 325,7592 THz eingestellter Laser 1 konstant bei einer niedrigen Intensität eingeschaltet ist (hellblau), wird Laser 2 bei einer Frequenz von 324 THz (unterhalb aller Interbandübergänge) für 3 ms bei höherer Intensität eingeschaltet (dunkelblau). (b) Messung der Transienten durch Elektronenemission und -tunneln bei einer Laser 2-Intensität von $3,2 \cdot 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$. Wird Laser 2 eingeschaltet, steigt die RF-Emission des Exzitonübergangs, wird er ausgeschaltet, fällt sie wieder ab (dunkelblaue Linie). Die grüne Linie ist die Anpassung an die Daten mithilfe der aufgestellten Ratengleichung (7.10) (< 3 ms) und einer einfachen abfallenden Exponentialfunktion (> 3 ms). Die graue Linie zeigt, dass kein RF-Signal messbar ist, wenn Laser 2 eingeschaltet wird, ohne dass der resonante Laser eingeschaltet ist. (c) Die RF-Intensität des stationären Zustands, wenn der nicht-resonante Laser eingeschaltet ist, nimmt mit steigender Laserintensität zu. Die grüne Linie ist eine Anpassung an die Daten mit der Ratengleichung (7.10) für $t \rightarrow \infty$. (d) Tunnel- und Emissionsrate abhängig von der Laser 2-Intensität. Die Tunnelrate wird nicht von der Laserintensität beeinflusst (blau), die Emissionsrate steigt linear zu ihr (grün). Das Verhalten der Emissionsrate sieht nur aufgrund der doppellogarithmischen Darstellung nicht linear aus.

Photoemission und Elektrontunneln bestimmt. Wird Laser 2 wieder ausgeschaltet, so verbleibt nur das Elektrontunneln und die Exzitonemission sollte mit der Tunnelrate γ_{In} abnehmen. Da der Exzitonübergang durch Laser 1 viel schneller getrieben wird (Größenordnung 100 ps bis 1 ns) als sich der Besetzungszustand des Quantenpunkts ändert [Zrenner02], tritt immer, solange der Quantenpunkt leer ist, sofort das RF-Signal mit der Intensität I_0 auf und verschwindet wieder, sobald der Quantenpunkt beladen wird. Das stark zeitaufgelöste RF-Signal spiegelt also den Besetzungszustand des Quantenpunkts wider. In der n-fachen Messung kann aus der gemittelten RF-Intensität zu einer Zeit t nach dem Ein- beziehungsweise Ausschalten des nicht-resonanten Lasers die Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts zu diesem Zeitpunkt ermittelt werden.

In Abbildung 7.3(b) ist eine beispielhafte Messung nach dem beschriebenen Schema in Abbildung 7.3(a) für eine Laser 2-Intensität von $3,2 \cdot 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ zu sehen. Wie erwartet ergibt sich beim Einschalten von Laser 2 eine ansteigende und nach dem Ausschalten des Lasers eine abfallende Transiente.

Um auszuschließen, dass die beobachtete resonante Fluoreszenz nur durch den nicht-resonanten Laser 2 verursacht wird, wird eine Messung ohne den resonanten Laser 1 durchgeführt, während Laser 2 wie gehabt gepulst wird. Die grauen Daten in Abbildung 7.3(b), die dieser Messung entsprechen, zeigen keine resonante Fluoreszenz, die beobachtete Transiente in der vorausgegangen Messung spiegelt also tatsächlich die Besetzungswahrscheinlichkeit des leeren Quantenpunkt wider, wenn dieser durch

Photoemission entladen wurde.

7.4 Ratenmodell

Zur Modellierung der vorangegangenen zeitaufgelösten Messung der Photoemission kann eine Ratengleichung aufgestellt werden. Zunächst wird dabei der durch Laser 1 hervorgerufene kleine Anteil an der Photoemission vernachlässigt.

$P_0(t)$ und $P_1(t)$ beschreiben im Folgenden die zeitabhängigen Besetzungswahrscheinlichkeiten des leeren Quantenpunkts und des mit einem Elektron beladenen Quantenpunkts. Da die Gatespannung im Bereich B liegt, können keine weiteren Ladungskonfigurationen (außer der angeregten Zustände des Exzitons oder Trions, die jedoch zu P_0 und P_1 gezählt werden) vorkommen und es gilt

$$P_0(t) + P_1(t) = 1. \quad (7.1)$$

Des Weiteren wird hier davon ausgegangen, dass der Quantenpunkt vor dem Einschalten von Laser 2 im Gleichgewicht immer mit einem Elektron beladen ist, somit ist

$$P_0(t = 0) = 0. \quad (7.2)$$

Die Wahrscheinlichkeit, dass der Quantenpunkt unbesetzt ist, ändert sich nun mit

$$\dot{P}_0(t) = -\gamma_{In}P_0(t) + \gamma_E P_1(t) \stackrel{(7.1)}{=} -(\gamma_{In} + \gamma_E)P_0(t) + \gamma_E. \quad (7.3)$$

Bei der partikulären Lösung dieser Differenzialgleichung ergibt sich mit dem Ansatz

$$P_0(t) = Ae^{-\gamma t} \quad (7.4)$$

für den homogenen Teil

$$P_{0,h}(t) = Ae^{-(\gamma_{In} + \gamma_E)t} \quad (7.5)$$

und für den partikulären Teil

$$P_{0,p} = \frac{\gamma_E}{\gamma_{In} + \gamma_E}. \quad (7.6)$$

Die Summe dieser beiden Anteile führt mit der Anfangsbedingung in Formel (7.2) zur zeitabhängigen Besetzungswahrscheinlichkeit eines leeren Quantenpunkts von

$$P_0(t) = \frac{\gamma_E}{\gamma_{In} + \gamma_E} \left(1 - e^{-(\gamma_{In} + \gamma_E)t} \right). \quad (7.7)$$

Nun soll die Photoemission, die durch Laser 1 hervorgerufen wird, mit berücksichtigt werden. Da dieser konstant eingeschaltet ist, gilt für die Wahrscheinlichkeit eines leeren Quantenpunkts aufgrund des Lasers 1

$$P_{0,L2}(t = 0) = P_{0,L1}(t \rightarrow \infty) = \frac{\gamma_E}{\gamma_{In} + \gamma_E}. \quad (7.8)$$

Wie sich später zeigen wird, ist die Emissionsrate von der eingestrahlenen Laserintensität abhängig. In diesem Fall gilt also $\gamma_E = \gamma_E(I_{L1})$, wobei I_{L1} die Laserintensität von Laser 1 ist. $P_{0,L1}(t \rightarrow \infty)$ ist die neue Anfangsbedingung beim Lösen der Differenzialgleichung, wenn Laser 2 eingeschaltet wird. Somit

ergibt sich bei Berücksichtigung der Intensität von Laser 1

$$P_{0,L2}(t) = \left(\frac{\gamma_E(I_{L1} + I_{L2})}{\gamma_{In} + \gamma_E(I_{L1} + I_{L2})} - \frac{\gamma_E(I_{L1})}{\gamma_{In} + \gamma_E(I_{L1})} \right) \left(1 - e^{-(\gamma_{In} + \gamma_E(I_{L1} + I_{L2}))t} \right) + \frac{\gamma_E(I_{L1} + I_{L2})}{\gamma_{In} + \gamma_E(I_{L1} + I_{L2})} \quad (7.9)$$

für die Wahrscheinlichkeit, den Quantenpunkt zum Zeitpunkt t nach dem Einschalten von Laser 2 bei der Intensität I_{L2} unbesetzt vorzufinden.

Gemessen wird jedoch die RF-Intensität zum Zeitpunkt t nach dem Einschalten von Laser 2. Ist der Quantenpunkt unbesetzt, beträgt die RF-Intensität I_0 , die gemessene RF-Intensität kann also durch

$$I(t) = I_0 P_{0,L2}(t) \quad (7.10)$$

beschrieben werden. Die Rate, mit welcher sich die Transiente verändert, ist also die Summe der Tunnelrate und der Emissionsrate.

In Abbildung 7.3(b) sind als grüne Linien die Anpassungen an die ansteigende und abfallende Transiente zu sehen. Da die abfallende Transiente nur von Elektrontunneln in den Quantenpunkt geprägt ist, wird hier eine einfache exponentielle Funktion zur Anpassung verwendet. Aus dieser lässt sich als Rate die Tunnelrate ablesen. Die ansteigende Transiente wird mit Gleichung (7.10) angepasst, wobei die ermittelte Tunnelrate vorab für γ_{In} eingesetzt wird. Die gute Übereinstimmung zeigt, dass das erstellte Ratenmodell das Verhalten der Transiente sehr gut beschreibt und legt somit nahe, dass es sich bei der Ursache für die Beobachtung tatsächlich um den internen Photoeffekt handelt.

7.5 Anregungsintensitätsabhängigkeit

Die beschriebene zeitaufgelöste Messung aus Abbildung 7.3(a) und (b) wird inklusive der Anpassung mit dem Ratenmodell für Laser 2-Intensitäten von $1,6 \cdot 10^{-3} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ bis $1,6 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ wiederholt. Dabei zeigt sich, dass die Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{In} unabhängig von der Laser 2-Intensität konstant bei einem Wert von $(0,82 \pm 0,02) \text{ms}^{-1}$ liegt (vergleiche blaue Punkte und Gerade in Abbildung 7.3(d)). Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit der Tunnelrate, die an demselben Quantenpunkt in Kapitel 6 gemessen wurde und entspricht einer verhältnismäßig schwachen Kopplung des Quantenpunkts an den Rückkontakt die in der großen Tunnelbarriere begründet liegt.

Die Emissionsrate γ_E hingegen (grüne Punkte in Abbildung 7.3(d)) zeigt eine lineare Abhängigkeit von der Intensität des nicht-resonanten Lasers auf. Die grüne Kurve ist eine lineare Anpassung an die Messpunkte mit

$$\gamma_E = c \cdot (I_{L1} + I_{L2}), \quad (7.11)$$

wobei c die konstante Steigung der Geraden ist. Da die Laserintensität von Laser 1 konstant ist, ergibt sich durch sie nur ein Versatz in y-Richtung, c bleibt davon unbeeinflusst. Durch diesen Versatz erscheint die lineare Anpassung in der doppellogarithmischen Darstellung in Abbildung 7.3(d) nicht gerade. Für die Konstante c ergibt sich aus der Anpassung ein Wert von $(18,8 \pm 0,3) \frac{\text{ms}^{-1}}{\mu\text{W}/\mu\text{m}^2}$. Bei der Anpassung wurde der Wert bei der höchsten Laser 2-Intensität ausgeschlossen, da hier bereits der photoinduzierte Elektroneneinfang in den Quantenpunkt einen wesentlichen Einfluss auf die Messung hat (vergleiche Kapitel 2.5, [Kurzmann16b]). Der Messwert bei $3,2 \cdot 10^{-3} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ ist negativ und kann deshalb in der logarithmischen Achse nicht dargestellt werden, wurde aber, ebenso wie die Messpunkte darunter und darüber, bei der Anpassung beachtet. Die größeren Abweichungen hier lassen sich durch ein schlechteres Signal-zu-Rausch-Verhältnis in der Messung durch ein kleineres Signal erklären.

Die Emissionsrate ist also durch die Laserintensität über mehrere Größenordnungen einstellbar und der vorliegende lineare Zusammenhang steht im Einklang mit der linearen Abhängigkeit des Photoeffekts von der eingestrahlten Lichtintensität. Der interne Photoeffekt kann dabei nur so gut in dieser Probe beobachtet werden, weil die Tunnelkopplung an den Rückkontakt so klein ist. Der Quantenpunkt ist somit nach der Photoemission im Verhältnis nur Emissionsrate lange leer, sodass in dieser Zeit resonante Fluoreszenz des Exzitons beobachtet werden kann.

Zuletzt wird die RF-Intensität des stationären Zustands nach Einschalten des nicht-resonanten Lasers abhängig von dessen Intensität untersucht. Abbildung 7.3(c) zeigt, dass die RF-Intensität in der Sättigung mit steigender Laser 2-Intensität zunimmt. Dies erscheint logisch, wenn man bedenkt, dass bei einer höheren Lichteinstrahlung häufiger ein Elektron aus dem Quantenpunkt emittiert wird, der Quantenpunkt also häufiger leer ist, somit der Exzitonübergang häufiger getrieben werden kann und insgesamt also die Intensität der resonanten Fluoreszenz zunimmt. Die grüne Linie in Abbildung 7.3(c) ist eine Anpassung an die Messpunkte (blau) mit der Ratengleichung (7.10) im Langzeitlimites

$$I(t \rightarrow \infty) = I_0 P_{0,L2}(t \rightarrow \infty) = I_0 \frac{\gamma_E(I_{L1} + I_{L2})}{\gamma_{In} + \gamma_E(I_{L1} + I_{L2})}, \quad (7.12)$$

wobei γ_E nach Formel (7.11) mit dem angepassten c verwendet wird. Auch hier wird aus den oben genannten Gründen der Messpunkt bei der höchsten Laser 2-Intensität außer Acht gelassen. Wieder spricht eine gute Übereinstimmung bei der Anpassung für die Richtigkeit des aufgestellten Ratenmodells und somit für den Photoeffekt als Ursache des beobachteten Verhaltens.

7.6 Gatespannungsabhängigkeit

Die durch den Photoeffekt aus dem Quantenpunkt emittierten Elektronen können sich anschließend weiterhin in der Umgebung des Quantenpunkts aufhalten. Um dies zu überprüfen und deren Effekt auf die Quantenpunktmission auf den Grund zu gehen, werden gatespannungsabhängige zeitaufgelöste Messungen durchgeführt. Das Messschema bleibt, ebenso wie die Wahl der Laserfrequenzen, wie in Kapitel 7.3 bestehen. Verändert wird lediglich die Gatespannung von 0,47 V bis 0,59 V in 5 mV-Schritten, sodass mit den zeitaufgelösten Messungen das Lorentzprofil der Exzitonresonanz abgetastet wird. Die Messungen werden bei einer Laser 1-Intensität von $1,6 \cdot 10^{-3} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ und einer Laser 2-Intensität von $1,6 \cdot 10^{-1} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ durchgeführt. In Abbildung 7.4(a) sind exemplarisch einige der zeitaufgelösten Messungen inklusive Anpassungen nach Gleichung (7.10) (schwarz) für verschiedene Gatespannungen zu sehen.

Um die Auswirkung der Ladungen zu sehen, die sich nach dem Einschalten des nicht-resonanten Lasers in der Quantenpunktumgebung ansammeln, werden Querschnitte durch die ansteigenden Transienten nach Zeiten t gebildet, wie die rote Gerade bei $t = 0,14 \text{ ms}$ in Abbildung 7.4(a) exemplarisch andeutet. Für einige Zeiten von 0 bis 2 ms sind die Punkte der Querschnitte inklusive angepassten Kurvenprofilen in Abbildung 7.4(b) zu sehen. In rot sind die Messpunkte beim Querschnitt $t = 0,14 \text{ ms}$ gekennzeichnet. Mit der Zeit steigt die RF-Intensität für alle Gatespannungen bis zur Sättigung an, die Lorentzform der Exzitonresonanz bleibt jedoch für alle Zeiten erhalten. Gleichzeitig schiebt das Maximum der Resonanz mit der Zeit zu niedrigeren Gatespannungen, wie der Pfeil in Abbildung 7.4(b) andeutet und in Abbildung 7.4(c) anhand der aufgetragenen Gatespannung im Maximum gegen die Zeit deutlich wird. Die Verschiebung beträgt in etwa 7 mV. Daraus lässt sich schließen, dass photoemittierte Elektronen tatsächlich in der Quantenpunktumgebung, beispielsweise an Grenzflächen der Probenstruktur, gefangen werden und durch den Stark-Effekt die Exzitonresonanz verschieben [Mer-

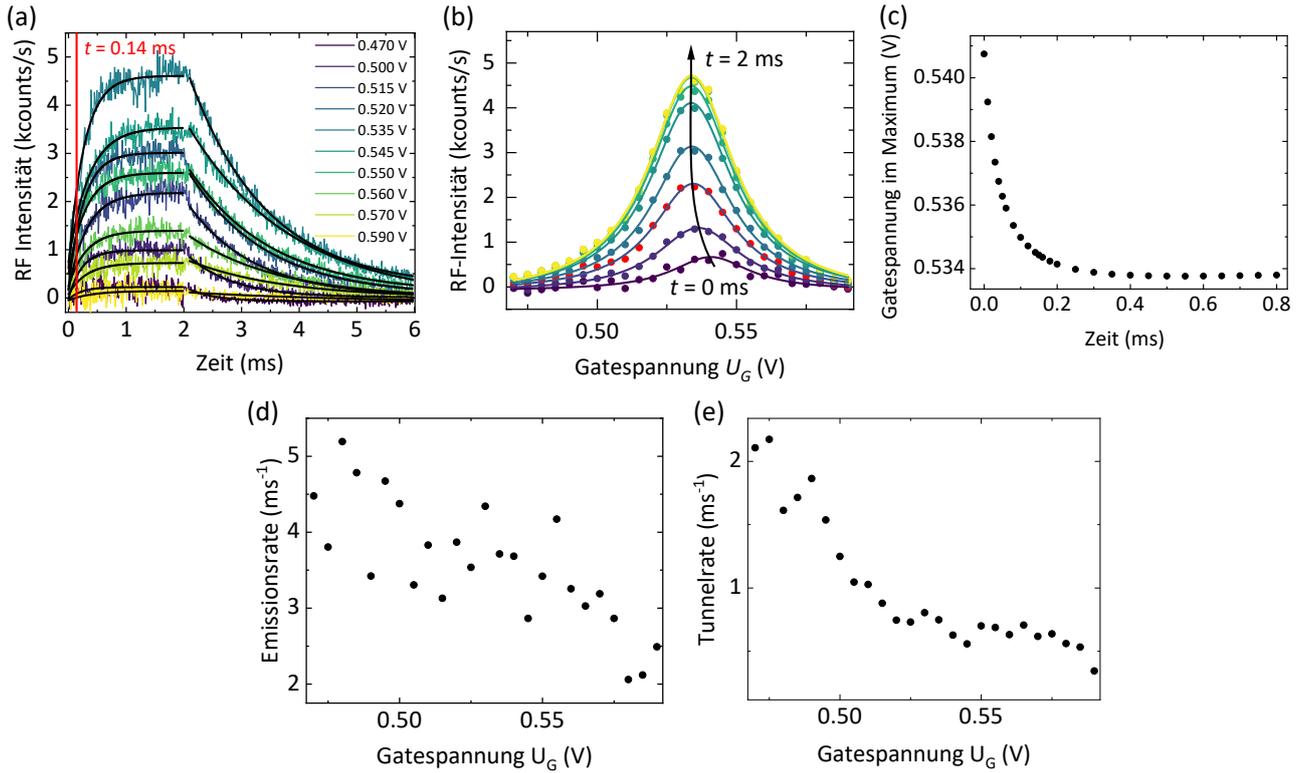


Abbildung 7.4: Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz-Messungen des internen Photoeffekts bei festen Laserfrequenzen und verschiedenen Gatespannungen. (a) Messungen und entsprechende Anpassungen (schwarz) wie in Abbildung 7.3(b) für Gatespannungen von 0,47 V bis 0,59 V. Die Gatespannung wurde in 5 mV-Schritten variiert, hier sind zur besseren Übersicht nur einige der Messungen dargestellt. Die Frequenz des resonanten Lasers beträgt 325,7592 THz, die des nicht-resonanten Lasers 324 THz. (b) Schnitte durch die Messungen in (a) für verschiedene Zeiten abhängig von der Gatespannung (Punkte) und Lorentz-Anpassungen an diese (Linien). Die roten Datenpunkte entsprechen dem Schnitt durch die Messungen bei $t = 0,14$ ms (rote Linie in (a)). (c) Das Maximum in der Gatespannung verschiebt mit der Zeit zu niedrigeren Gatespannungen. Die Emissionsrate (d) und die Tunnelrate (e) nehmen mit steigender Gatespannung ab.

kel17, Al-Ashouri18]. Diese Beobachtung ist im Einklang mit der Veröffentlichung von Kurzmann et al. im Bezug auf photogenerierte Elektronen aus dem Rückkontakt einer Quantenpunktprobe [Kurzmann16b].

Abbildungen 7.4(d) und (e) zeigen zusätzlich die Abhängigkeit der Emissions- und Tunnelrate von der Gatespannung. Wie nach [Kurzmann16b] erwartet, nimmt die Tunnelrate mit zunehmender Gatespannung aufgrund der verringerten Tunnelkopplung ab. Die Emissionsrate streut etwas mehr als die Tunnelrate, zeigt jedoch auch einen abfallenden Trend mit zunehmender Gatespannung. Dies lässt sich damit erklären, dass sich die Bandstruktur mit steigender Gatespannung dem Flachbandfall nähert. Wird das Elektron aus dem Quantenpunkt emittiert, befindet es sich zunächst zwar bei höherer Energie, jedoch immer noch an derselben Position in der Bandstruktur. Ist das Band nun flacher, so erhöht sich die Wahrscheinlichkeit, dass das Elektron direkt wieder in den Quantenpunkt relaxiert statt beispielsweise in den Rückkontakt abzufließen. Ein so direkt wieder eingefangenes Elektron verringert die gemessene Emissionsrate, sodass die Emissionsrate mit steigender Gatespannung abnimmt.

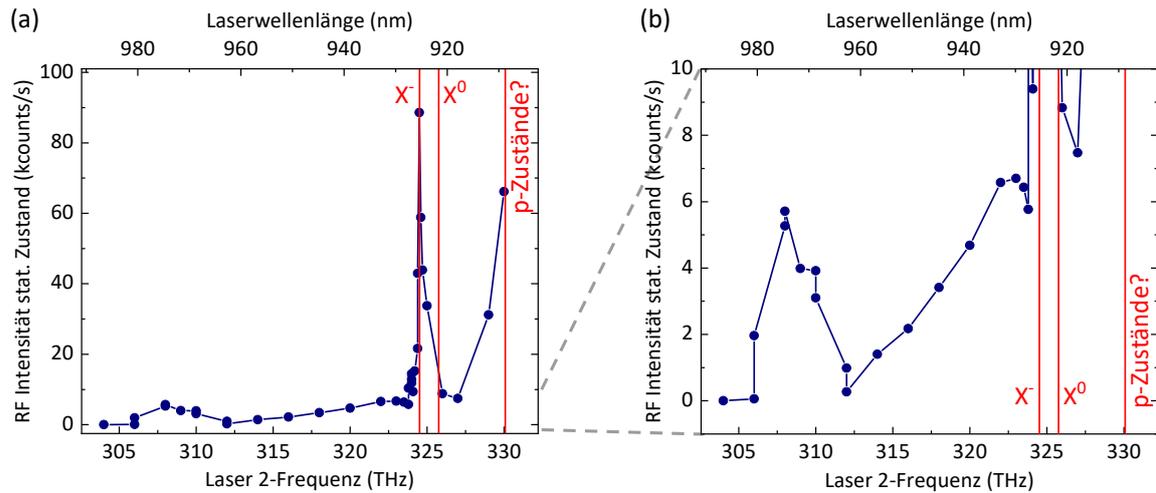


Abbildung 7.5: Sättigungsintensität der zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenz nach Einschalten des nicht-resonanten Lasers, abhängig von dessen Frequenz. Die Intensität des nicht-resonanten Lasers ($0,16 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$) übersteigt die des resonanten Lasers ($1,6 \cdot 10^{-3} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$) um zwei Größenordnungen. Rote Linien kennzeichnen die Exziton- (X^0) und Trionresonanz (X^-) sowie eine Vermutung über die Lage der p-Zustände. (b) ist eine Vergrößerung in der y-Achse von (a).

7.7 Frequenzabhängigkeit

Abschließend wird hier die Abhängigkeit der Intensität der resonanten Fluoreszenz in der Sättigung nach Einschalten des nicht-resonanten Lasers abhängig von der Anregungsfrequenz dieses Lasers betrachtet. Auch hier werden die Messungen wie in Kapitel 7.3 durchgeführt. Die Gatespannung ist fest bei $0,53 \text{ V}$, die Intensitäten von Laser 1 beziehungsweise 2 betragen $1,6 \cdot 10^{-3} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ beziehungsweise $1,6 \cdot 10^{-1} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ und die Frequenz von Laser 1 liegt resonant auf dem Exziton bei $325,7592 \text{ THz}$. Die Frequenz von Laser 2 wird von 304 THz bis 330 THz durchgeföhren. Dies entspricht dem gesamten Frequenzbereich des Lasers. Die Ergebnisse dieser Messung sind in Abbildung 7.5 zu sehen, wobei (b) eine Vergrößerung in der y-Achse von (a) zeigt. Der Abbildung ist zu entnehmen, dass die RF-Intensität in der Sättigung stark mit der Frequenz des nicht-resonanten Lasers variiert.

Bei $324,519 \text{ THz}$ liegt bei der angelegten Gatespannung die Trionresonanz. Um diese Frequenz herum bildet sich ein starkes Maximum heraus. Dies lässt sich folgendermaßen erklären: Erstens wird das Trion angeregt und die resonante Fluoreszenz ebendieses erhöht die vom Detektor gemessenen Photonen. Zweitens kommt es bei der hohen Intensität des Lasers sehr häufig zu Auger-Rekombinationen des Trions (vergleiche Kapitel 2.6, Kapitel 6, [Kurzmann16a]), sodass der Quantenpunkt aufgrund dessen und nicht aufgrund von interner Photoemission sehr häufig unbesetzt ist und der resonante Laser das Exziton anregen kann. In Kapitel 8 werden außerdem zusätzliche Resonanzen im Bereich des Trions bei hoher Anregungsintensität beschrieben, welche hier ebenfalls und in einem etwas breiteren Frequenzbereich eine Rolle spielen.

Bei $325,7592 \text{ THz}$ liegt die Exzitonresonanz bei der angelegten Spannung. Da der nicht-resonante Laser jedoch nie exakt auf die Resonanz eingestellt wurde, sondern um mindestens 240 GHz verstellt war, ist wie zu erwarten keine Besonderheit in der Frequenzumgebung der Exzitonresonanz zu beobachten. Erst bei höheren Frequenzen steigt das Signal wieder stark an. Dies könnte eventuell auf die p-Zustände des Quantenpunkts zurückzuführen sein, die bei diesen Energien (etwa 20 meV oberhalb der Exzitonresonanz) in Resonanz gelangen könnten. Ein Elektron wird dann von Laser 2 aus der p-Schale des Valenzbands in die p-Schale des Leitungsbands angeregt und es sind mehrere Möglichkeiten

denkbar, wie dies die RF-Intensität erhöhen könnte: Erstens könnte das Elektron unter Emission eines Photons wieder ins Valenzband relaxieren, zweitens könnte das Elektron durch einen Auger-Prozess, bei dem die Energie auf das Elektron aus der s-Schale des Leitungsbandes übertragen wird, wieder ins Valenzband relaxieren, sodass der Quantenpunkt leer ist und Laser 1 den Exzitonübergang anregen kann oder drittens könnten das Elektron im Leitungs- und das Loch im Valenzband zunächst strahlungslos in die s-Schale relaxieren und anschließend durch einen Auger-Prozess rekombinieren, sodass ebenfalls anschließend der Quantenpunkt leer ist, bis wieder ein Elektron in den Quantenpunkt tunnelt.

Des Weiteren ist in der Vergrößerung ein linearer Anstieg der RF-Intensität von etwa 312 THz bis 323 THz um etwa 6 kcount/s zu beobachten. Wäre dieses Verhalten konstant bei allen Frequenzen beobachtbar, wäre eine mögliche Erklärung, dass sich bei steigender Energie die Anzahl der Zustände, auf die das Quantenpunktelektron angeregt werden kann, erhöhen, sodass es häufiger möglich ist, durch interne Photoemission den Quantenpunkt zu leeren. Da die Intensität bei 312 THz beinahe 0 ist, hieße es dann, dass unterhalb dieser Energie keine Zustände zur Verfügung ständen, auf die das Elektron angehoben werden könnte. Jedoch spricht gegen diese Vermutung das Verhalten bei Frequenzen von 304 THz bis 312 THz, wo die RF-Intensität zunächst ansteigt und dann wieder abfällt. Dieses Verhalten ist bisher nicht erklärbar und muss weiter untersucht werden.

7.8 Zusammenfassung

Der interne Photoeffekt in einzelnen Halbleiterquantenpunkten konnte nachgewiesen und charakterisiert werden. Die Elektronenemissionsrate ist über mehrere Größenordnungen einstellbar und linear abhängig von der einfallenden Laserintensität. Ein Ratenmodell, das diese Erkenntnis stützt, wurde aufgestellt. Die emittierten Ladungsträger verbleiben zum Teil in der Quantenpunktumgebung und verschieben dessen Resonanzen durch den Stark-Effekt. Die Abhängigkeit der internen Photoemission von der Frequenz des einfallenden Lichts muss noch weiter erforscht werden. Die Möglichkeit der nicht-resonanten Anregung von Ladungsträgern aus einem beschränkten System im Festkörper spielt eine große Rolle für etliche optische Bausteine der Quanteninformationstechnologie, da sie die Lebenszeit eines Quantenzustands und somit die Kohärenz beschränken.

8 Zusätzliche Trionresonanzen bei hoher Anregungsintensität

Abbildung 6.2(a) und Abbildung 7.1 in den beiden vorangegangenen Kapiteln zeigen unter anderem die Trionresonanz bei sehr geringer Anregungsintensität ($3 \cdot 10^{-6} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$) im Gatespannungsbereich zwischen den Beladungsspannungen des Quantenpunkts mit einem (etwa 0,38 V) beziehungsweise zwei Elektronen (etwa 0,58 V). Die Resonanz ist sichtbar in einem Frequenzbereich von maximal 2 GHz und verschiebt durch den Stark-Effekt mit zunehmender Gatespannung zu höheren Frequenzen. Erhöht man jedoch die Anregungsintensität, so lassen sich zusätzliche Resonanzen in einem sehr großen Gatespannungsbereich beobachten, die teils über einen sehr großen Frequenzbereich (mindestens 180 GHz) sichtbar sind. Im Folgenden werden diese Resonanzen mittels resonanter Fluoreszenz genauer untersucht. Vorab sei an dieser Stelle bereits erwähnt, dass die Ursache dieser Beobachtungen noch nicht vollends geklärt werden konnte. Die nachfolgenden Ausführungen dienen daher dazu, alle bisherigen Erkenntnisse als Ausgangsposition für zukünftige Erforschungen zusammengefasst darzustellen. Die Messungen werden an der in Kapitel 3.1.2 beschriebenen Probe am selben Quantenpunkt wie in den beiden vorangegangenen Kapiteln vorgenommen.

8.1 Anregungsintensitätsabhängigkeit

Zunächst soll die Abhängigkeit der zusätzlichen Resonanzen von der Anregungsintensität untersucht werden. In Abbildung 8.1 sind resonante Fluoreszenzmessungen bei einer Anregungsfrequenz von 324,5110 THz zu sehen. In der Vergrößerung in Abbildung 8.1(b) ist bei der niedrigsten Laserintensität von $8 \cdot 10^{-6} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ die bekannte Trionresonanz bei etwa 0,5 V sichtbar. Erhöht man die Laserintensität schrittweise um jeweils eine Größenordnung bis zu einem Wert von $8 \cdot 10^{-1} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$, so lassen sich nach und nach immer mehr Resonanzen unterschiedlicher Form und bei unterschiedlicher Spannung beobachten. Als erstes scheint die ursprüngliche Trionresonanz intensiver und breiter zu werden ($8 \cdot 10^{-5} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$), beschränkt sich jedoch weiterhin auf den Gatespannungsbereich, in dem der Quantenpunkt mit einem Elektron besetzt ist. Bei $8 \cdot 10^{-4} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ Laserintensität nimmt die resonante Fluoreszenz weiter zu und bildet im Spannungsbereich von 0,38 V bis 0,5 V drei kleine, gleich intensive Maxima aus. Bei höheren Spannungen bleibt die resonante Fluoreszenzintensität unverändert. Eine Größenordnung mehr in der Intensität verändert die RF-Intensität der drei Maxima (grüne Linie): Das erste Maximum bei 0,39 V wird am intensivsten, das zweite Maximum bei 0,45 V nimmt nur schwach zu und das dritte Maximum bei 0,48 V bleibt nahezu unverändert. Zusätzlich bilden sich bei dieser Anregungsintensität zwei weitere Gatespannungsbereiche aus, die resonante Fluoreszenz aufweisen: Im Bereich von 0,6 V bis 0,76 V sind zwei Maxima zu sehen, wobei das kleinere bei etwa 0,65 V in der RF-Intensität mit dem Maximum bei 0,45 V und das höhere bei etwa 0,71 V in der RF-Intensität mit dem Maximum bei 0,39 V vergleichbar ist. Im zweiten Bereich von 0,76 V bis 0,87 V ist die RF-Intensität geringer. Das ändert sich bei einer Anregungsintensität von $8 \cdot 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$. Die beiden eben beschriebenen Bereiche erhöhen sich stark. Im Bereich von 0,6 V bis 0,76 V steigt die RF-Intensität um etwas mehr als einen Faktor 3 an. Zusätzlich verändert sich die Form von zwei

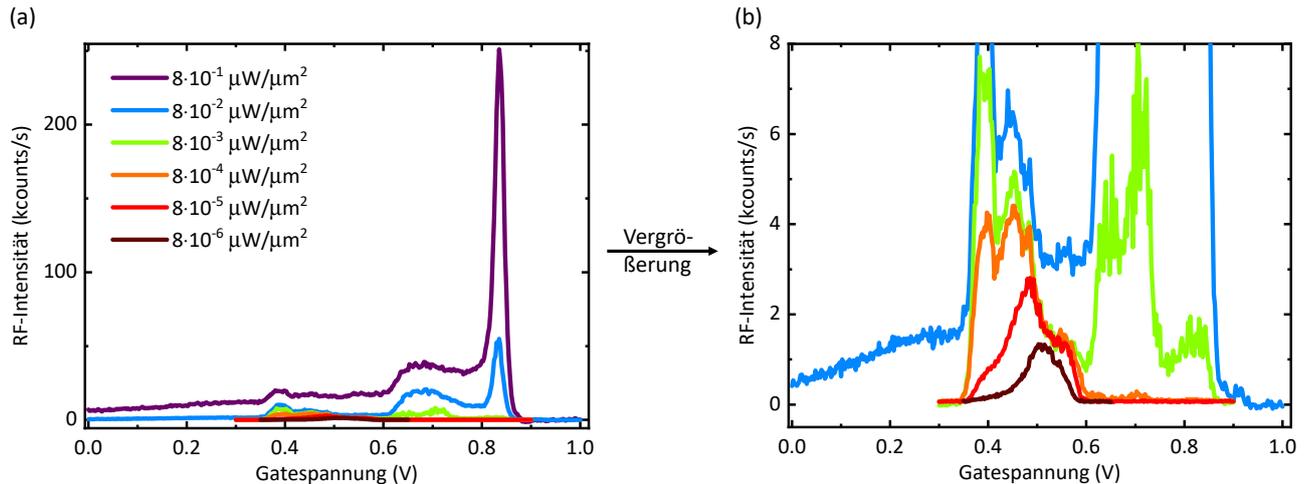


Abbildung 8.1: Resonante Fluoreszenz (RF) der Trionresonanz bei verschiedenen Laserintensitäten. Der Laser ist mit 324,5110 THz auf die Trionresonanz eingestellt. Die Laserintensität wird von $8 \cdot 10^{-6} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ bis $8 \cdot 10^{-1} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ jeweils um eine Größenordnung erhöht. (b) zeigt die Vergrößerung der Messungen bei den niedrigsten fünf Laserintensitäten in (a).

Maxima zu einem durchgängigen Bereich mit leichten Variationen, die für Rauschen gehalten werden könnten. Stärker ist der RF-Intensitätsanstieg im Bereich von 0,76 V bis 0,87 V. Hier bildet sich ein starkes Maximum aus. Im Bereich von 0,38 V bis 0,5 V erhöht sich die RF-Intensität nur geringfügig. Allerdings ist bei Gatespannungen kleiner als 0,38 V, bei denen der Quantenpunkt unbesetzt sein sollte, nun auch ein geringes RF-Signal zu beobachten. Bei der höchsten gemessenen Anregungsintensität ($8 \cdot 10^{-1} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$) ist ein Anstieg der RF-Intensität im gesamten Spannungsbereich von unter 0 V bis etwa 0,9 V zu sehen. Die Form des Signals verändert sich nicht mehr nennenswert, jedoch erhöht sich die RF-Intensität des Maximums bei 0,84 V überproportional stark um einen Faktor 5. Zusätzlich sind erneut Variationen im Gatespannungsbereich von 0,6 V bis 0,76 V erkennbar, die bei denselben Gatespannungen liegen wie zuvor bei der nächstniedrigen Intensität beobachtet. Somit handelt es sich dabei um reproduzierbare Modulationen, die einem Effekt zugeordnet werden können sollten und nicht um Rauschen.

Dieses Verhalten wurde bisher noch nicht beobachtet und ist sehr erstaunlich, da auch außerhalb des Gatespannungsbereichs, in dem im Gleichgewicht ein Elektron im Quantenpunkt geladen ist, teils sehr hohe resonante Fluoreszenz beobachtet werden kann, wenn die Laserfrequenz auf die Trionresonanz in ebendiesem Bereich eingestellt ist. Besonders verwunderlich ist, dass sämtliche resonante Fluoreszenzsignale bei unterschiedlichsten Gatespannungen, jedoch bei derselben Anregungsfrequenz gemessen werden können, wohingegen bei sehr geringen Laserintensitäten das RF-Signal nur durch eine Veränderung der Anregungsfrequenz durch den Stark-Effekt zu anderen Gatespannungen verschoben werden kann. Deshalb wird im nächsten Kapitel die resonante Fluoreszenz abhängig von der Laserfrequenz gemessen.

8.2 Anregungsfrequenzabhängigkeit

Abbildung 8.2 zeigt die resonante Fluoreszenz im Trionbereich abhängig von der Laserfrequenz. Diese wird für verschiedene Laseranregungsintensitäten ((a) bis (f)) über einen breiten Bereich von 324,47 THz bis 324,65 THz schrittweise verändert.

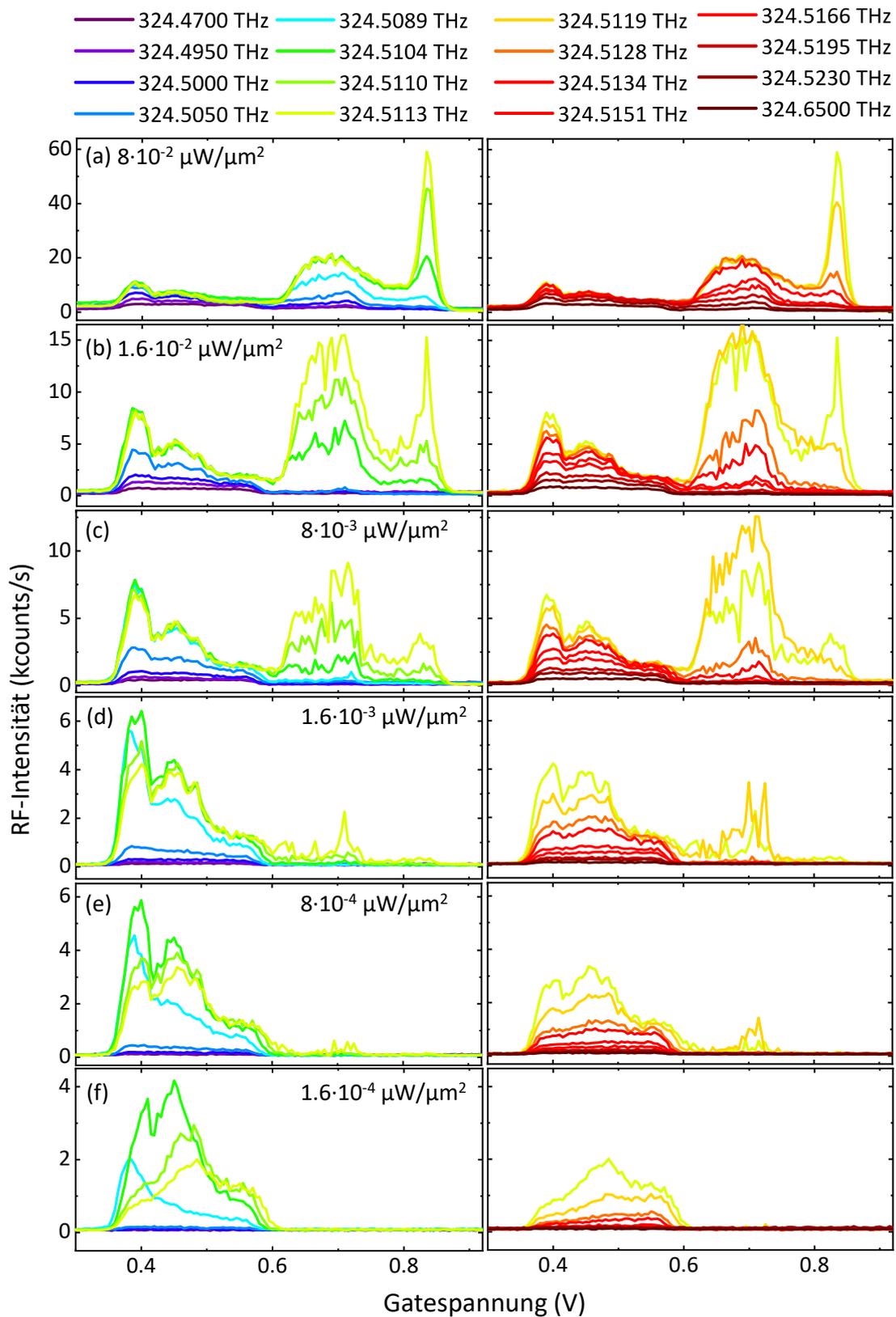


Abbildung 8.2: Frequenzabhängige resonante Fluoreszenz (RF) im Frequenzbereich des Trions bei verschiedenen Anregungsintensitäten. Die Laserfrequenz wird von 324,47 THz bis 324,65 THz schrittweise verändert. Links sind jeweils die RF-Messungen bei 324,47 THz bis 324,5113 THz, rechts die RF-Messungen bei 324,5113 THz bis 324,65 THz zu sehen. Die Laserintensität wird von (a) bis (f) von $8 \cdot 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ auf $1,6 \cdot 10^{-4} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ schrittweise verringert.

Bei der höchsten Laserintensität ($8 \cdot 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$, Abbildung 8.2(a)) ist bei einer Frequenz von 324,5113 THz die höchste resonante Fluoreszenz zu beobachten. Bei dieser Frequenz liegt die eigentliche Trionresonanz in dem Gatespannungsbereich, in dem im Gleichgewicht ein Elektron den Quantenpunkt besetzt. Das beobachtete RF-Signal stimmt mit dem in Abbildung 8.1 bei der entsprechenden Laserintensität überein. Verstimmt man nun die Frequenz, so nimmt zunächst das intensivste Maximum bei 0,84 V ab. Bei einer Verstimmung von mehr als $\pm 2,5$ GHz ist das Maximum nicht mehr zu messen. Als nächstes verringert sich die RF-Intensität im Bereich zwischen 0,6 V und 0,76 V, sobald die Verstimmung stärker als -1 GHz beziehungsweise $+2,1$ GHz ist. Ab einer Verstimmung von $-6,3$ GHz beziehungsweise $+3,8$ GHz nimmt die resonante Fluoreszenz im Spannungsbereich von 0,36 V bis 0,42 V ab. Eine deutliche Abnahme des RF-Signals ist zuletzt im Gatespannungsbereich zwischen 0,42 V und 0,6 V ab einer Verstimmung von $-11,3$ GHz beziehungsweise $+11,7$ GHz zu sehen. Jedoch ist selbst bei einer Verstimmung von $-41,3$ GHz beziehungsweise $+138,7$ GHz noch ein geringes RF-Signal von etwa 3 kcounts/s im Gatespannungsbereich von 0,36 V bis 0,6 V und noch etwas geringer bis 0,76 V messbar. Das heißt, das RF-Signal der zusätzlichen Resonanzen bei großen Anregungsintensitäten ist zum Teil über einen Frequenzbereich von mehr als 180 GHz messbar. Dies ist ein erstaunlich großer Bereich im Vergleich zu dem Frequenzbereich von knapp 2 GHz, in dem das eigentliche Trion bei sehr geringer Anregungsintensität beobachtbar ist (vergleiche Abbildung 6.2 und Abbildung 7.1). Jedoch werden die größten Intensitäten im Bereich von 324,5090 THz bis 325,512 THz gemessen, was wiederum gut mit dem Frequenzbereich übereinstimmt, in dem das Trion angeregt werden kann. Dies spricht dafür, dass die beobachteten zusätzlichen Resonanzen ebenfalls mit dem Trion zusammenhängen.

Bei abnehmenden Anregungsintensitäten verhält sich die resonante Fluoreszenz bei 324,5113 THz zunächst wie es nach den Beobachtungen in Kapitel 8.1 zu erwarten ist. Entsprechend ist schon bei einer Anregungsintensität von $8 \cdot 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ (Abbildung 8.2(c)) kaum noch ein Signal des Maximums bei 0,84 V zu beobachten. Soweit die jeweiligen Bereiche bei der Anregungsintensität noch sichtbar sind, nehmen sie jedoch in der Reihenfolge ab, wie sie für die höchste Intensität in Abbildung 8.2(a) beschrieben wurde. Allerdings beginnt die jeweils beschriebene Abnahme des RF-Signals bei geringerer Laserintensität teilweise bereits bei einer geringeren Verstimmung der Frequenz. Ab einer Anregungsintensität von $8 \cdot 10^{-4} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ (Abbildung 8.2(e)) ist zudem bei großen Verstimmungen keine resonante Fluoreszenz mehr messbar. Als einzige Abweichung des hier beschriebenen Verhaltens ergibt sich die Frequenzabhängigkeit im Bereich von 0,38 V bis 0,6 V. Bei kleinen Anregungsintensitäten ab $1,6 \cdot 10^{-3} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ ist bei Verstimmungen zu geringeren Frequenzen, nachdem das Maximum bei etwa 0,39 V bereits etwas abgenommen hat, wieder ein Anstieg der resonanten Fluoreszenz im Bereich dieses Maximums zu beobachten, wenn das RF-Signal im Spannungsbereich von 0,42 V bis 0,6 V beginnt abzunehmen.

Die zusätzlichen Resonanzen, die bei hohen Anregungsintensitäten im Frequenzbereich des Trions beobachtet werden, sind also teilweise über einen sehr großen Frequenzbereich von über 180 GHz messbar. Bei der Verstimmung der Frequenz nimmt als erstes das Maximum bei 0,84 V ab, danach die resonante Fluoreszenz der Resonanzen im Gatespannungsbereich von 0,6 V bis 0,76 V, dann das Maximum bei etwa 0,39 V und zuletzt die RF-Intensität im Bereich von 0,42 V bis 0,6 V. Eine Verschiebung der Resonanzen in der Gatespannung bei Verändern der Anregungsfrequenz ist, anders als durch den Stark-Effekt zu erwarten wäre, nicht zu beobachten.

8.3 Überprüfung verschiedener Parameter auf Abhängigkeit

Als nächstes werden in diesem Kapitel verschiedene Parameter bei der Messung der resonanten Fluoreszenz verändert, um herauszufinden, welchen Einfluss diese auf die zusätzlichen Trionresonanzen

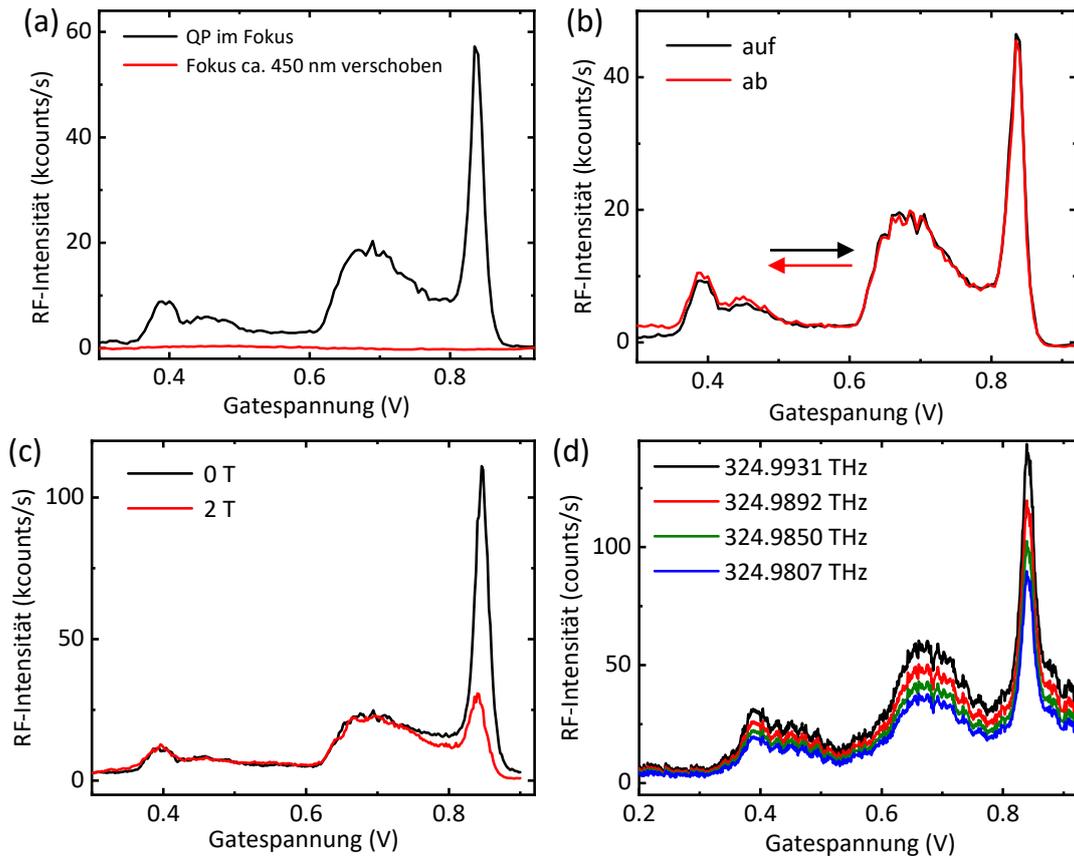


Abbildung 8.3: Verhalten der zusätzlichen Trionresonanzen abhängig von verschiedenen Parametern. Die Laserfrequenz beträgt in allen Messungen $324,5110\text{ THz}$, die Laserintensität beträgt in (a), (b) und (d) $8 \cdot 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$, in (c) $1,6 \cdot 10^{-1} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$. (a) Vergleich des resonante Fluoreszenz (RF)-Signals abhängig von der Position des Laserfokus. Wird der Quantenpunkt aus dem Laserfokus bewegt, ist keine RF mehr messbar. (b) Vergleich des RF-Spektrums, wenn die Gatespannung schrittweise erhöht (schwarz) oder verringert (rot) wird. Die Abweichung der Messungen voneinander bei niedrigen Spannungen liegt an einer während der Messung veränderten Hintergrundintensität. (c) Vergleich der RF-Spektren bei 0 T und 2 T angelegtem Magnetfeld. Bei 2 T ist die Intensität der Resonanz bei $0,84\text{ V}$ verringert. (d) Lage der Resonanz im Spektrometer. Das RF-Signal wurde im Spektrometer frequenzabhängig aufgespalten und mittels CCD-Detektor gemessen. Die vier benachbarten Frequenzen des CCD-Chips mit den höchsten RF-Intensitäten sind hier zu sehen. Das gesamte RF-Spektrum scheint bei derselben Frequenz zu liegen.

haben.

Als erstes wird der Quantenpunkt um etwa 450 nm (40 Schritte mit dem x-Piezo) aus dem Laserfokus des konfokalen Mikroskops bewegt und ein Spektrum bei einer Anregungsfrequenz von $324,5110\text{ THz}$ und einer Anregungsintensität von $8 \cdot 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ aufgenommen (rote Linie in Abbildung 8.3(a)). Vergleicht man diese Messung mit der Messung unter denselben Bedingungen und dem Quantenpunkt im Fokus (schwarze Linie in Abbildung 8.3(a)), so sieht man, dass keine resonante Fluoreszenz zu messen ist, wenn der Quantenpunkt sich nicht im Laserfokus befindet. Der Ursprung der zuvor beschriebenen Resonanzen bei hohen Anregungsintensitäten ist also der Quantenpunkt und kein Effekt der den Quantenpunkt umgebenden Schichtstruktur.

Um auszuschließen, dass es sich bei den gemessenen Resonanzen um Effekte durch beispielsweise die Ladung eines Lochgases in der Quantenpunktumgebung handelt [Al-Ashouri18], wird das resonante Fluoreszenzspektrum bei $324,5110\text{ THz}$ und $1,6 \cdot 10^{-1} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ erst mit ansteigender und dann mit

abfallender Spannung aufgenommen (siehe Abbildung 8.3(b)). Bis auf einen Anstieg des Hintergrunds am Ende der Messung bei abfallender Gatespannung sind die Spektren identisch, sodass nicht davon auszugehen ist, dass sich durch die Veränderung der Gatespannung in eine bestimmte Richtung dauerhaft ein Lochgas oder Ähnliches in der Quantenpunktumgebung aufbaut und für die Beobachtung verschobener und erhöhter Resonanzen sorgt.

Danach wird das Spektrum bei einer Anregungsfrequenz von 324,5110 THz und einer Anregungsintensität von $8 \cdot 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ bei 0 T mit einer Messung unter denselben Messparametern im Magnetfeld bei 2 T verglichen (Abbildung 8.3(c)). Als einzige Veränderung ist die Verringerung des Maximums bei 0,84 V um einen Faktor von 3,6 zu beobachten. Dies ist mit einer Frequenzveränderung von etwa 0,9 GHz vergleichbar (siehe Abbildung 8.2(a)). Das angelegte Magnetfeld verschiebt die Resonanz also höchstwahrscheinlich um etwa 0,9 GHz. Diese Verschiebung geht wie schon im vorangegangenen Kapitel nicht mit der Verschiebung der beobachteten Resonanz in der Gatespannung einher. Weitere durch das Magnetfeld hervorgerufene Effekte sind in der vorgenommenen Gleichgewichtsmessung nicht beobachtbar.

Zuletzt wird das Spektrum der resonanten Fluoreszenz bei 324,5110 THz und $8 \cdot 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ im Spektrometer gemessen. Dazu wird bei jeder Gatespannung ein frequenzabhängiges Spektrum mit dem CCD-Detektor am Ausgang des Spektrometers aufgenommen. Abbildung 8.3(d) zeigt Schnitte durch die so entstandenen Spektren bei den benachbarten Frequenzen mit der höchsten Intensität. In anderen Frequenzbereichen konnte kein Signal beobachtet werden. Das Signal ist in einem recht breiten Frequenzbereich sichtbar, was jedoch auf die Auflösung des Spektrometers zurückzuführen ist. Die Abweichung der gemessenen Frequenz von der Anregungsfrequenz ist darin begründet, dass sowohl das Spektrometer als auch das Wellenlängenmeter, welches die Laserfrequenz bestimmt, nicht ausreichend gut kalibriert sind. Aus dieser Messung kann also geschlossen werden, dass die Frequenz des emittierten Fluoreszenzlichts sehr genau der Anregungsfrequenz entspricht. Es liegt also nur elastische Streuung vor und es ist wahrscheinlich, dass es sich bei dem beobachteten Signal um Emission aus dem Trion-Zustand handelt.

8.4 Korrelationsmessungen

Um weitere Aussagen über die Natur der Resonanzen treffen zu können, werden Autokorrelationsmessungen bei verschiedenen Gatespannungen vorgenommen. Die Anregungsintensität beträgt dabei $8 \cdot 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ und die Anregungsfrequenz 324,5113 THz. In Abbildung 8.4 ist oben das Spektrum der zusätzlichen Trionresonanzen zu sehen. In rot sind die Gatespannungen gekennzeichnet, bei denen eine Autokorrelationsmessung durchgeführt wurde. Darunter sind die entsprechenden auf eins normierten Autokorrelationsmessungen zu sehen. Die roten Zahlen links oben in jedem Diagramm korrespondieren zu den oben markierten Gatespannungen. Bei den Gatespannungen 1 und 2 (0,39 V und 0,4 V) ergibt sich ein Maximum bei $\tau = 0$ von etwa 1,6. Bei den Gatespannungen 3, 4 und 5 (0,445 V, 0,48 V und 0,495 V) verändert sich das $g^{(2)}(\tau)$ -Verhalten von zwei Maxima links und rechts neben $\tau = 0$, wobei bei $\tau = 0$ die Autokorrelation 1 beträgt, zu einem Minimum bei $\tau = 0$ mit einem Wert von etwa 0,5 mit Überschwingern an beiden Flanken. Bei der Gatespannung, wo bei niedrigen Laserintensitäten die eigentliche Trionresonanz X^- beobachtet werden kann (0,56 V), wird ein klares Minimum bei $\tau = 0$ mit einem Wert von etwa 0,34 gemessen, bei der Trionresonanz liegt also auch bei hohen Laserintensitäten eine Einzelphotonenquelle vor. Vergleicht man die bisher beschriebenen Messungen mit den Korrelationsmessungen in Kapitel 4.4 und bedenkt dabei, dass der Quantenpunkt im Gleichgewicht in diesem Gatespannungsbereich mit einem Elektron beladen ist, sodass hier das Trion angeregt werden kann, so erkennt man ein Verhalten der Autokorrelation wie auf den Flan-

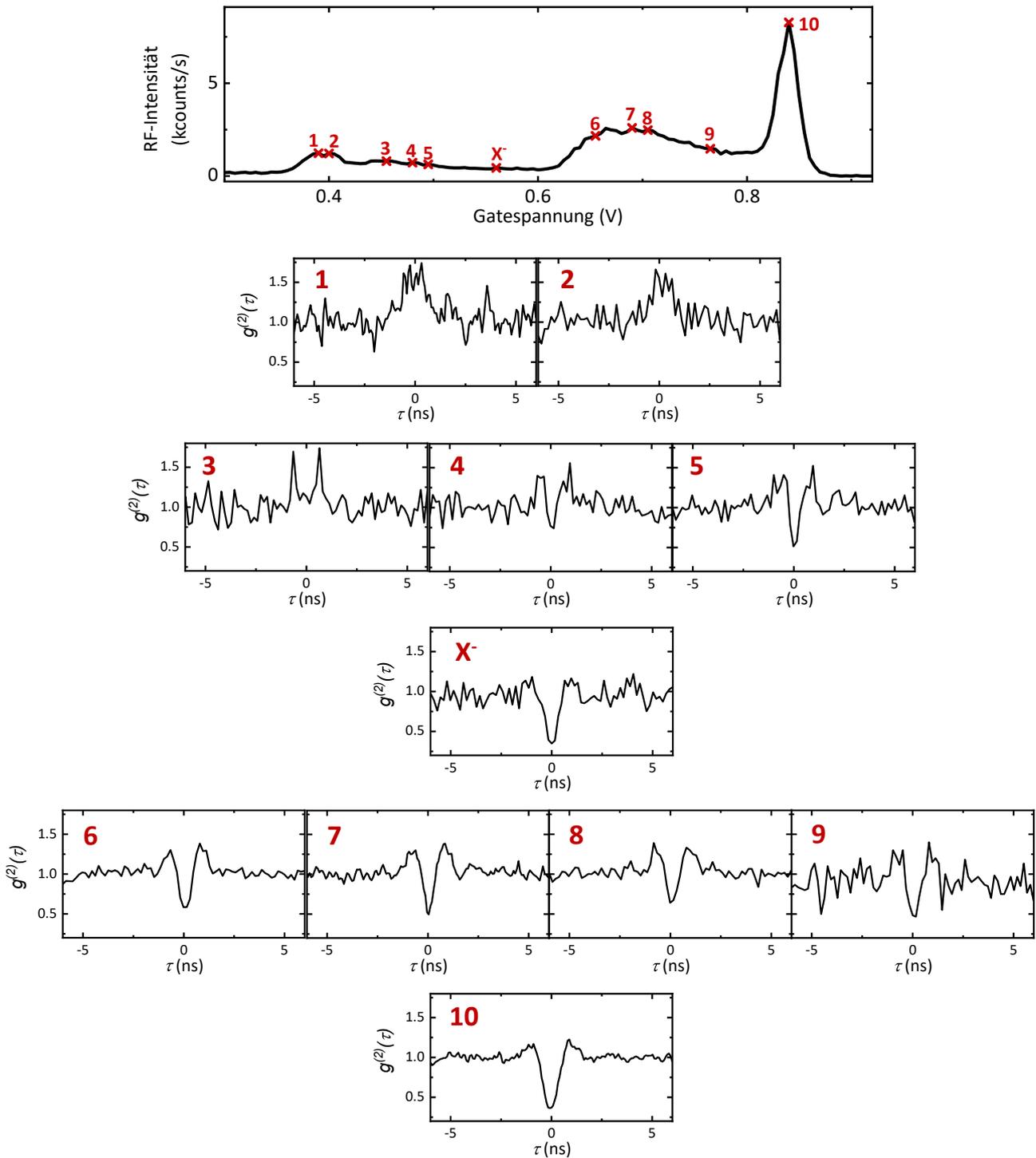


Abbildung 8.4: Autokorrelationsmessungen zweiter Ordnung an verschiedenen Stellen des RF-Spektrums bei einer Laserfrequenz von 324,5113 THz und einer Laserintensität von $8 \cdot 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$. Im Spektrum oben sind in rot die verschiedenen Messpunkte für die Korrelationsmessung markiert, darunter sind die jeweiligen $g^{(2)}(\tau)$ -Messungen zu sehen. Das Trion X^- bei einer Gatespannung von 0,56 V und das Maximum bei 0,84 V (10) zeigen das Verhalten einer Einzelphotonenquelle auf. Alle $g^{(2)}$ -Messungen wurden auf 1 normiert.

ken der Resonanz in Abbildung 4.6: Von Messpunkt 1 bis 5 verändert sich das Signal von einem Maximum bei $\tau = 0$ über zwei Maxima neben $\tau = 0$ zu einem Minimum bei $\tau = 0$ mit kleiner werdenden Überschwingern, die in ein stark ausgeprägtes Minimum bei der Trionresonanz münden. Das $g^{(2)}(\tau)$ -Verhalten der Messpunkte 1 bis 5 könnten also durch die resonante Fluoreszenz auf der Flanke der Trionresonanz bestimmt sein, wobei sich die Überschwinger wie in Kapitel 4.4 durch die erhöhte Rabi-Oszillation auf der Flanke der Resonanz erklären ließe.

Die $g^{(2)}(\tau)$ -Messungen bei den Gatespannungen 6 bis 9 (0,655 V, 0,69 V, 0,705 V und 0,765 V) weisen ein ähnliches Verhalten auf wie die bei Messpunkt 5: Bei $\tau = 0$ bildet sich ein Minimum mit einem Wert von etwa 0,4 und Überschwingern an den Flanken aus, es könnte sich hierbei also auch um Messungen des Trions auf der Flanke handeln (siehe dazu auch Kapitel 8.7). Zuletzt ist bei dem höchsten Maximum im Spektrum (Messpunkt 10, 0,84 V) wieder das Verhalten einer Einzelphotonenquelle mit einem Minimum von etwa 0,36 bei $\tau = 0$ zu beobachten.

8.5 Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz-Messungen

Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz-Messungen sollen Aufschluss über die zeitliche Entwicklung der RF-Intensität bei verschiedenen Präparations- und Detektionsspannungen geben. Alle Messungen in diesem Abschnitt werden bei einer Anregungsfrequenz von 324,5110 THz und einer Anregungsintensität von $8 \cdot 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ durchgeführt.

Präparationsspannung 1 V

Als erstes wird die Präparationsspannung fest auf 1 V gesetzt und zur Detektionsspannungen von 0,21 V bis 0,89 V in 0,01 V-Schritten gepulst (siehe Abbildung 8.5(a)). Die Präparationsspannung zieht das Leitungsband sehr weit nach unten, sodass der Quantenpunkt und etwaige weitere Zustände in der Umgebung wie beispielsweise durch Defekte verursacht, beladen sind. Die entsprechend gemessene RF-Intensität abhängig von der Zeit und Gatespannung ist in Abbildung 8.5(b) zu sehen. Bei sehr geringen Zeiten erkennt man bei niedrigeren Gatespannungen einen intensiveren Bereich, der bei etwa 0,5 V abzuknicken scheint. Dies wird unter anderem durch die RC-Konstante der Probe verursacht, wenn beim schnellen Verringern der Spannung über andere Resonanzen hinweggefahren wird. Abbildung 8.5(c) zeigt vier exemplarische Schnitte durch die Messung bei verschiedenen Gatespannungen, die jeweils ähnlich der weiteren beobachteten Transienten in dem Gatespannungsbereich sind. Wo die entsprechenden Messungen in Abbildung 8.5(b) liegen, zeigen die entsprechend farblich markierten horizontalen Linien. Bei einer Detektionsspannung von 0,25 V (Abbildung 8.5(c) unten, grün; bei dieser Spannung ist der Quantenpunkt im Gleichgewicht leer) sieht man beim schnellen Umschalten auf die Detektionsspannung ein Maximum von gut 28 kcounts/s, welches schnell auf gut 1 kcount/s abfällt. Passt man eine einfache Exponentialfunktion an den Transientenverlauf an, so erhält man eine Rate von 71 ms^{-1} . Bei dieser Gatespannung sollte das Tunneln mehrerer Elektronen aus dem Quantenpunkt in den Rückkontakt eine Rolle spielen, da bei der Präparationsspannung mindestens zwei Elektronen den Quantenpunkt besetzen.

Bei einer Detektionsspannung von 0,4 V (Abbildung 8.5(c) 2. von unten, orange; bei dieser Spannung ist im Gleichgewicht ein Elektron im Quantenpunkt geladen) steigt die RF-Intensität nach dem schnellen Umschalten auf die Detektionsspannung ebenfalls zunächst an auf einen Wert von 24 kcounts/s und fällt dann mit einer Rate von 15 ms^{-1} auf einen Wert von gut 9 kcounts/s ab. Aufgrund der Elektronenkonfiguration des Quantenpunkts bei dieser Gatespannung kann man annehmen, dass bei $t = 0$ das Trion angeregt wird, sich das Signal jedoch anschließend aufgrund von Auger-Emission verringert. Jedoch sollte die Trionresonanz bei einer höheren Gatespannung liegen, sodass die eben aufgestellte

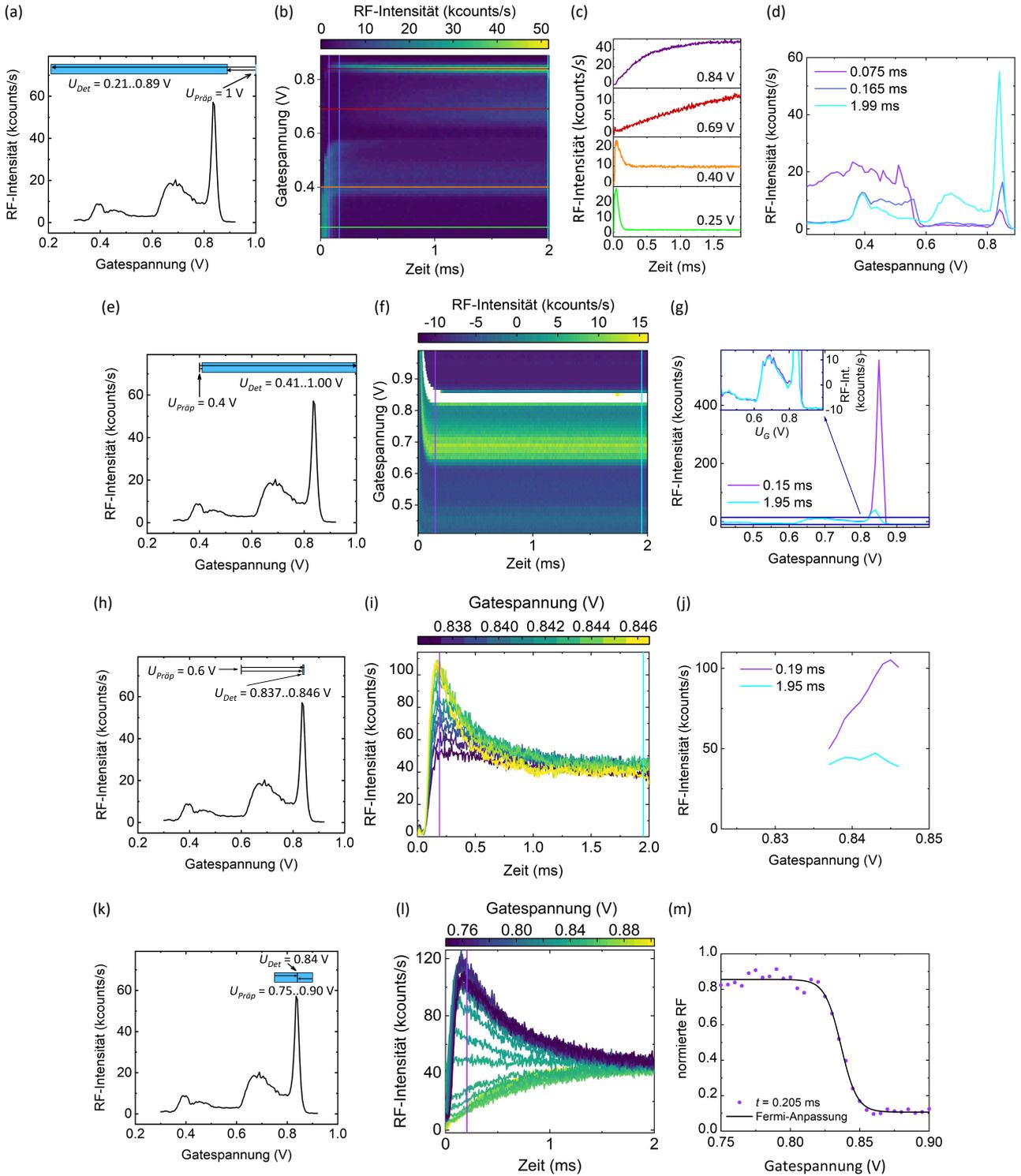


Abbildung 8.5: Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz-Messungen. (a), (e), (h) und (k) zeigen von welcher Präparationsspannung $U_{Präp}$ in den Messungen derselben Zeile auf welche Detektionsspannung U_{Det} umgeschaltet wird. (b), (f), (i) und (l) zeigen die jeweils gemessenen Transienten in 2D-Kontur- ((b) und (f)) beziehungsweise Einzeldarstellung ((i) und (l)). (c) zeigt Schnitte durch (b) bei verschiedenen Gatespannungen und (d), (g) und (j) Schnitte durch die entsprechenden Messungen bei verschiedenen Zeiten entsprechend der in (b), (f) und (i) eingezeichneten farbigen Linien. In (m) zeigen die violetten Datenpunkte die Transientenwerte bei $t = 0,205$ ms aus (l) (violette Linie) bei vorheriger Normierung auf das Maximum der höchsten Transiente. Die durchgezogene schwarze Linie ist eine Anpassung an die Datenpunkte mit einer Fermi-Funktion bei einem Hebelarm von $\lambda = 12$. Als Anpassungsparameter erhält man für die Temperatur $T = 5,6$ K.

Vermutung nur zutrifft, wenn die Linienbreite des Trions sich bis zu der gezeigten Gatespannung erstreckt. Zusätzlich sollte bei dieser Spannung das Tunneln von mindestens einem Elektron aus dem Quantenpunkt in den Rückkontakt eine Rolle spielen.

Bei der Detektionsspannung 0,69 V (Abbildung 8.5(c) 2. von oben, rot; bei dieser Spannung sind im Gleichgewicht mindestens zwei Elektronen im Quantenpunkt geladen) kann eine sehr langsam ansteigende Transiente (Rate $0,42 \text{ ms}^{-1}$) mit einem Sättigungswert von etwa 12 kcounts/s beobachtet werden, während die RF-Intensität bei der Detektionsspannung auf dem Maximum bei 0,84 V (Abbildung 8.5(c) oben, violett; bei dieser Spannung sind im Gleichgewicht mindestens zwei Elektronen im Quantenpunkt geladen) etwas schneller mit einer Rate von $2,3 \text{ ms}^{-1}$ ansteigt und bei knapp 50 kcounts/s sättigt. Diese Rate liegt in der Größenordnung der an diesem Quantenpunkt gemessenen Tunnelraten in und aus dem Grundzustand, sodass die Vermutung nahe liegt, dass der beobachtete Prozess durch Tunneln in oder aus dem Rückkontakt bestimmt wird.

Die in Abbildung 8.5(c) beschriebenen Verhalten in der Zeit verschiedener Gatespannungsbereiche spiegeln sich auch in Schnitten durch die Messungen bei verschiedenen Zeiten wider. Drei exemplarische Schnitte in der Zeit sind in Abbildung 8.5(d) dargestellt, in entsprechenden Farben sind die jeweiligen vertikalen Schnitte in Abbildung 8.5(b) eingezeichnet. Bei 0,075 ms ist insbesondere bei niedrigeren Spannungen bis zur Tunnelspannung des zweiten Elektrons eine RF-Intensität von etwa 20 kcounts/s zu beobachten. Zusätzlich ist das Maximum bei 0,84 V bereits mit einer Intensität von knapp 8 kcounts/s sichtbar. Bei einer etwas größeren Zeit von 0,165 ms ist im Gatespannungsbereich des unbesetzten Quantenpunkts bereits die finale resonante Fluoreszenz-Intensität erreicht, ebenso im Gatespannungsbereich um 0,4 V herum. Im darauffolgenden Gatespannungsbereich bis zur Tunnelspannung des zweiten Elektrons hat die Intensität abgenommen im Vergleich zu kleineren Zeiten, jedoch noch nicht die Endintensität erreicht. Das Maximum bei 0,84 V ist auf einen Wert von gut 16 kcounts/s angestiegen. Der Bereich dazwischen hat sich kaum verändert. Zuletzt ist ein Schnitt bei 1,99 ms zu sehen, der die finale RF-Intensität zeigt. Dieses Spektrum ist mit den zuvor gezeigten Gleichgewichtsspektren bei entsprechender Anregungsintensität und -frequenz vergleichbar.

Aus dieser Messung ergeben sich also aus dem Verhalten in der zeitlichen Entwicklung vier verschiedene Bereiche: Eine schnelle zeitliche Abnahme des RF-Signals im Spannungsbereich, wo der Quantenpunkt im Gleichgewicht unbeladen ist bis zu einer Gatespannung von etwa 0,38 V, eine etwas langsamere zeitliche Abnahme des RF-Signals im Spannungsbereich, wo der Quantenpunkt im Gleichgewicht mit einem Elektron beladen ist bis zu einer Gatespannung von etwa 0,58 V, eine sehr langsame zeitliche Zunahme des RF-Signals im Spannungsbereich, wo der Quantenpunkt im Gleichgewicht mit zwei Elektronen beladen ist bis zu einer Gatespannung von etwa 0,8 V und ein etwas schnellerer Anstieg auf eine hohe RF-Intensität bei einer Gatespannung von 0,84 V.

Präparationsspannung 0,4 V

Als nächstes wird die Präparationsspannung fest auf 0,4 V gesetzt, sodass der Quantenpunkt mit einem Elektron im Quantenpunkt präpariert wird und die Detektionsspannung in 0,01 V-Schritten von 0,41 V bis 1 V schrittweise erhöht (siehe Abbildung 8.5(e)). Die entsprechenden Transienten abhängig von der Zeit und der Gatespannung sind in Abbildung 8.5(f) dargestellt. Bei sehr kleinen Zeiten wird wieder die RC-Konstante der Probe sichtbar. Schnitte durch die Messungen bei zwei verschiedenen Zeiten sind durch vertikale Linien in der Abbildung angedeutet. Die entsprechenden Darstellungen der RF-Intensitäten abhängig von der Gatespannung sind in Abbildung 8.5(g) zu sehen. Der Einsatz zeigt eine Vergrößerung des RF-Signals bei geringen Intensitäten. In dieser Abbildung wird besonders gut ersichtlich, dass sich über die Zeit hinweg einzig das Maximum bei 0,84 V verändert und stark abnimmt, während sich bei den restlichen Gatespannungen keine Veränderungen der resonanten Fluoreszenz in der Zeit ergeben. Eine Anpassung einer einfachen Exponentialfunktion an die abfallende Transiente

bei 0,84 V ergibt wie beim schnellen Umschalten auf diese Spannung von einer Präparationsspannung von 1 V eine Rate von $2,3 \text{ ms}^{-1}$. Ist schon ein Elektron im Quantenpunkt geladen, hat eine instantane Veränderung der Gatespannung also nur Einfluss auf die resonante Fluoreszenz bei 0,84 V, bei allen anderen Gatespannungen ist sofort das RF-Signal im Gleichgewicht beobachtbar.

Genauere Untersuchung des Maximums bei 0,84 V

Um zu überprüfen, ob das Maximum bei 0,84 V sich wie im Abschnitt zuvor beschrieben verhält, wenn zwei Elektronen im Quantenpunkt präpariert werden, wird die Präparationsspannung auf 0,6 V festgelegt und die Detektionsspannung in feinen Schritten von 1 mV über den Spannungsbereich von 0,837 V bis 0,846 V variiert (siehe Abbildung 8.5(h)). Die entsprechenden Transienten sind in Abbildung 8.5(i) zu sehen. Schnitte bei zwei verschiedenen Zeiten (vertikale Linien in Abbildung 8.5(i)) sind in Abbildung 8.5(j) zu sehen. Auch hier sieht man eine klare Abnahme des Maximums in der Zeit. Bei der Anpassung einfacher Exponentialfunktionen an die Transienten ergeben sich für zunehmende Detektionsspannungen kontinuierlich ansteigende Raten von $0,9 \text{ ms}^{-1}$ bis $4,7 \text{ ms}^{-1}$. Eine Rate von $2,3 \text{ ms}^{-1}$, wie sie zuvor bei einer Detektionsspannung von 0,84 V bestimmt wurde, wird jetzt bei etwa 0,842 V erreicht. Eine Präparation des Quantenpunkts mit zwei Elektronen ändert also im Wesentlichen nichts am Verhalten des RF-Signals beim schnellen Umschalten auf das Maximum bei etwa 0,84 V.

Zuletzt wird zur Untersuchung dieses Maximums in einer zeitaufgelösten Messung die Präparationsspannung über einen Bereich von 0,75 V bis 0,9 V in 5 mV-Schritten variiert und jeweils auf eine Detektionsspannung von 0,84 V gepulst (vergleiche Abbildung 8.5(k)). Die entsprechenden Messungen sind in Abbildung 8.5(l) abgebildet. Wie nach der Beobachtung einer ansteigenden Transiente beim schnellen Umschalten von 1 V und einer abfallenden Transiente beim schnellen Umschalten von 0,4 V oder 0,6 V auf 0,84 V zu erwarten, können abfallende Transienten für Spannungen, die kleiner als die Detektionsspannung von 0,84 V sind, und ansteigende Transienten für größere Spannungen beobachtet werden. Normiert man die gemessenen Transienten auf das Maximum der höchsten Transiente und macht dann einen Schnitt bei $t = 0,205 \text{ ms}$, so ergeben sich die violetten Datenpunkte in Abbildung 8.5(m). Diese scheinen einer Fermi-Verteilung zu folgen und passt man eine solche mit einem Hebelarm von $\lambda = 12$ (entspricht dem Hebelarm der Probe, vergleiche Kapitel 3.1.2 und Formel (2.5)) an die Datenpunkte an, so erhält man die schwarze Kurve in Abbildung 8.5(m). Aus der Anpassung erhält man eine Temperatur von 5,6 K. Da diese gut mit den 4,2 K der Probe übereinstimmen, scheint das beobachtete Verhalten auf das Be- oder Entladen aus dem Fermi-verteilten Rückkontakt zurückzuführen zu sein.

8.6 Vergleich verschiedener Quantenpunkte

Abbildung 8.6 zeigt die Spektren drei verschiedener Quantenpunkte unter ähnlichen Messbedingungen. Die Anregungsfrequenz des Lasers wurde jeweils auf die Trionresonanz eingestellt und dann die Probe unter hoher Intensität angeregt. Quantenpunkt 1 wurde von Annika Kurzmänn gemessen. Die Trionresonanz liegt mit 324,2000 THz nah an der Resonanz des Trions von Quantenpunkt 2, welcher der zuvor untersuchte Quantenpunkt mit einer Trionresonanz von 324,5113 THz ist. Die Trionresonanz von Quantenpunkt 3 liegt bei einer etwas niedrigeren Frequenz von 319,05145 THz. Dieser Quantenpunkt hat also eine geringere Übergangsenergie, was darauf schließen lässt, dass der Einschluss etwas geringer ist, also der Quantenpunkt etwas größer ist als die Quantenpunkte 1 und 2. Die Quantenpunkte 1 und 2 zeigen in der Gatespannung ein nahezu identisches Verhalten, die zuvor bei Quantenpunkt 2 identifizierten Bereiche und deren Intensitäten lassen sich leicht bei Quantenpunkt 1 wiedererkennen. Das Spektrum von Quantenpunkt 3 hingegen weicht zunächst stark von diesem Verhalten ab. Betracht-

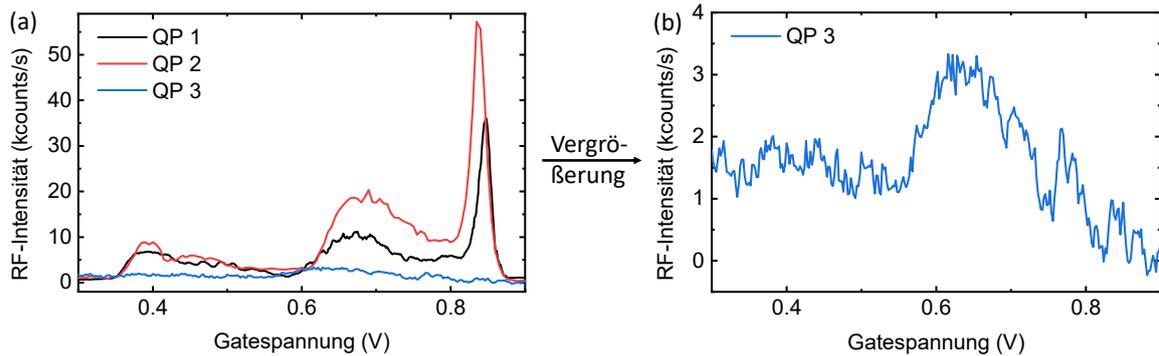


Abbildung 8.6: Vergleich der zusätzlichen Trionresonanzen an verschiedenen Quantenpunkten in derselben Probe. Quantenpunkt 1 (QP 1) wurde von Annika Kurzmann bei einer Anregungsfrequenz von 324,2000 THz und einer Laserintensität von $8 \cdot 10^{-3} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ gemessen. QP 2 ist der hier untersuchte Quantenpunkt bei einer Anregungsfrequenz von 324,5113 THz und einer Anregungsintensität von $8 \cdot 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$. QP 3 wurde von Britta Maib bei einer Anregungsfrequenz von 319,05145 THz und einer Laserintensität von $5 \cdot 10^{-1} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ gemessen. (b) zeigt eine Vergrößerung des Spektrums von QP 3.

tet man jedoch in Abbildung 8.6(b) die Vergrößerung des Spektrums, so könnte man wiederum einen Bereich bis etwa 0,55 V und einen von 0,55 V bis 0,75 V identifizieren sowie ein Maximum in der Nähe von 0,8 V, welches allerdings nur schwach ausgeprägt ist. Die Abweichungen vom Spektrum von Quantenpunkt 2 sind nicht zu verkennen, allerdings scheinen sich auch hier bestimmte Verhaltensweisen wiederzufinden.

Der zuvor untersuchte Quantenpunkt 2 ist also nicht der einzige Quantenpunkt in der Probe, an dem die beobachteten zusätzlichen Trionresonanzen beobachtet werden konnten.

8.7 Diskussion

Aus den gezeigten Messungen lassen sich bereits einige Schlüsse ziehen.

1. Der Ursprung des beobachteten RF-Signals ist der Quantenpunkt.
2. Die zusätzlichen Trionresonanzen sind kein spezifisches Phänomen des untersuchten Quantenpunkts sondern können auch bei weiteren Quantenpunkten in der Probe beobachtet werden.
3. Das beobachtete Spektrum wird nicht von Effekten wie einem sich bildenden Lochgas in der Quantenpunktumgebung beeinflusst.
4. Die beobachteten Resonanzen verschieben mit der Frequenz nicht in der Gatespannung, der Stark-Effekt hat also keine Auswirkung auf sie.
5. Alle beobachteten Resonanzen sind im Rahmen der Messgenauigkeit des Spektrometers mit CCD-Detektor bei derselben Wellenlänge lokalisiert, es ist also wahrscheinlich, dass es sich bei dem gemessenen Signal um resonante Fluoreszenz handelt.
6. Die gemessene Fermi-Verteilung beim schnellen Umschalten auf das Maximum bei 0,84 V legt den Schluss nahe, dass dieses vom Be- oder Entladen aus dem Fermi-Reservoir des Rückkontakts beeinflusst sein muss.

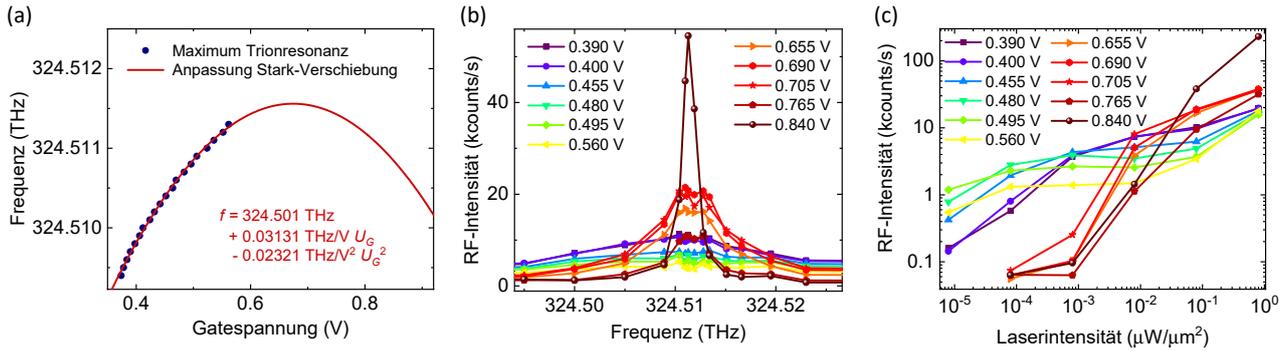


Abbildung 8.7: Verhalten der Trionresonanz unter verschiedenen Messparametern. (a) Stark-Verschiebung der Trionresonanz. Die rote Kurve entspricht der Anpassung nach Formel (2.6) an die Maxima der Trionresonanzen (blaue Datenpunkte). Die Anpassungsparameter sind in der Formel in rot dargestellt. (b) und (c) zeigt die resonante Fluoreszenz (RF)-Intensität abhängig von (b) der Frequenz und (c) der Laserintensität für verschiedene Gatespannungen. Die jeweiligen Kurven entsprechen Schnitten bei den angegebenen Gatespannungen in Abbildung 8.1 beziehungsweise Abbildung 8.2(a). Die Messungen in (b) wurden demnach bei einer Intensität von $8 \cdot 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ und in (c) bei einer Frequenz von 324,5110 THz durchgeführt.

7. Die Emission bei dem Maximum bei 0,84 V verhält sich wie eine Einzel-Photonen-Quelle.

Ein Erklärungsansatz, wieso überhaupt bei Spannungen oberhalb der Tunnelspannung des zweiten Elektrons in den Quantenpunkt bei etwa 0,58 V im Bereich der Trionanregungsfrequenz Fluoreszenz beobachtet werden kann, ergibt sich aus der in Kapitel 7 untersuchten internen Photoemission: Bei hohen Anregungsintensitäten können nicht-resonant Elektronen aus dem Quantenpunkt emittiert werden. Dadurch ist der Quantenpunkt für einige Zeit nur mit einem Elektron beladen, sodass Trionresonanzen angeregt werden können. Jedoch erklärt der interne Photoeffekt nicht, wieso die Resonanzen über den großen Gatespannungsbereich von teils mehr als 0,6 V bei ein und derselben Anregungsfrequenz sichtbar sind. Dies könnte durch die recht flache Stark-Verschiebung des Trions begünstigt werden, wie Abbildung 8.7(a) verdeutlicht. Hier sind die Maxima der Trionresonanzen aus Abbildung 6.2(a) beziehungsweise Abbildung 7.1 als blaue Messpunkte eingezeichnet und die Stark-Verschiebung ist als rote Kurve nach Formel (2.6) angepasst zu sehen. Man erkennt, dass das Maximum der Parabel bei einer Spannung von etwa 0,67 V und einer Frequenz von 324,51159 THz liegt. Auf der anderen Seite der Parabel wird bei einer Gatespannung von etwa 0,83 V wieder eine Frequenz von 324,5110 THz erreicht. Bei einer Spannung von 0,84 V beträgt die Frequenz 324,5109 THz. Im Rahmen der Ungenauigkeit der Anpassung der Stark-Verschiebung könnte das intensive Maximum bei 0,84 V also darin begründet sein, dass die Stark-Verschiebung über das Flachband hinaus den Trionübergang wieder in die Laserresonanz schiebt. Da es sich bei der Probenstruktur um eine p-i-n-Diode handelt, wobei sowohl der p- als auch der n-Bereich entartet dotiert sind, sollte beim Anlegen einer Spannung, die umgerechnet in eine Energie der Hälfte der Bandlücke von GaAs entspricht, die Flachbandbedingung erreicht sein. Die Flachbandspannung und somit das Maximum der Parabel der Stark-Verschiebung wäre somit bei etwa 0,76 V zu erwarten, was jedoch von dem eben benannten Wert des Maximums bei 0,67 V um 0,09 V abweicht.

Gleichzeitig ist resonante Fluoreszenz noch bei einer sehr großen Verstimmung der Laserfrequenz von der Trionresonanz messbar. Dies könnte eventuell durch das Phonon-Seitenband erklärt werden, welches bei resonanten Fluoreszenzmessungen durch Streuung an Phononen als ein spektral sehr breites (bis zu 1,7 THz) RF-Signal geringer Intensität gemessen werden kann [Matthiesen13]. Dieses Phonon-Seitenband ist asymmetrisch um die eigentliche Resonanz zu niedrigeren Frequenzen hin messbar. Abbildung 8.7(b) zeigt die RF-Intensität abhängig von der Frequenz für verschiedene Gatespannungen

aus Abbildung 8.2(a). Bei Verstimmung von der Resonanz ist weiterhin resonante Fluoreszenz bei geringerer Intensität messbar, jedoch symmetrisch um die Resonanz verteilt. Diese Beobachtung lässt sich nicht eindeutig dem Phonon-Seitenband zuordnen. Gleichzeitig sieht man in Abbildung 8.7(b), dass sich bei der Resonanzfrequenz bei vielen Gatespannungen ein kleines Minimum ausbildet.

Eine weitere Vermutung für die Entstehung der zusätzlichen Resonanzen ist die Beteiligung mehrerer Photonen bei der Erzeugung der Resonanzen. Wäre dies der Fall, müsste die Intensität der resonanten Fluoreszenz bei ansteigender Anregungsintensität mit einer höheren Potenz ansteigen. Abbildung 8.7(c) zeigt Schnitte durch die laserintensitätsabhängigen Messungen der RF-Intensität aus Abbildung 8.1 bei verschiedenen Gatespannungen. Je nach Gatespannungsbereich verhält sich die RF-Intensität unterschiedlich abhängig von der Laserintensität, jedoch ist keiner der Anstiege schneller als eine Gerade mit der Steigung 1. Trotzdem kann man nicht ausschließen, dass es sich indirekt um zwei-Photonen-Prozesse handelt.

Weitere Effekte, die zur Erklärung der beobachteten Resonanzen beitragen könnten, sind Raman-Streuung, mehr-Elektronen-Anregung, Auger-Prozesse, bei denen nur ein Teil der Energie an einen oder mehrere weitere Ladungsträger abgegeben wird, Co-Tunneln mit dem Elektronenreservoir oder leichte Spinaufspaltung durch das Overhauser-Feld. Dies ist jedoch nur eine Sammlung von Ideen, die hier nicht weiter diskutiert werden sollen, da eine genaue Aufklärung der Phänomene jeweils weiterer Messungen bedarf.

Eine interessante Überlegung soll hier zuletzt nicht unerwähnt bleiben: Wie bereits in Kapitel 8.1 diskutiert, sieht man bei großen Anregungsintensitäten reproduzierbare Modulationen auf dem resonanten Fluoreszenzsignal. Diese Modulationen könnten durch Subbänder verursacht werden, die durch weitere Untersuchungen genauer identifiziert und charakterisiert werden könnten.

8.8 Zusammenfassung

Die resonante Fluoreszenz im Bereich der Trionresonanz zeigt in der vorliegenden Probe bei hohen Anregungsintensitäten unerwartete weitere Resonanzen in einem weiten Gatespannungsbereich über den Bereich, in dem im Gleichgewicht ein Elektron im Quantenpunkt geladen ist, hinaus. Aus der Variation der Anregungsfrequenz resultiert keine Verschiebung der Resonanzen sondern eine je nach Gatespannungsbereich schnellere oder langsamere Abnahme der RF-Intensität, jedoch ist selbst bei großen Verstimmungen von bis zu -40 GHz beziehungsweise $+140$ GHz noch resonante Fluoreszenz beobachtbar. Das Verhalten der zusätzlichen Trionresonanzen wurde bei verschiedenen Intensitäten und Frequenzen, teils zeitaufgelöst in gepulsten und Korrelationsmessungen untersucht, jedoch konnte bisher keine eindeutige Erklärung für das Erscheinen der zusätzlichen Trionresonanzen gefunden werden und weitere Untersuchungen sind nötig, um diese vollständig zu verstehen.

9 Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden einzelne selbstorganisierte Quantenpunkte in resonanten, zeitaufgelösten Messungen optisch untersucht. Durch die Einbettung der selbstorganisierten Quantenpunkte in eine maßgeschneiderte Diodenstruktur konnten diese elektrisch kontaktiert werden und mit einem Ladungsträgerreservoir wechselwirken. Die Kombination aus elektrischer Kontrolle über den Quantenpunkt und optischen Messungen ermöglichte zu untersuchen, welche Folgen die Wechselwirkung der eingeschlossenen Ladungsträger mit deren Umgebung auf die Eigenschaften der Quantenpunkte hat. Diese sind insbesondere bei der Betrachtung von Quantenpunkten als potenzielle Qubits für Quantencomputer und Quantennetzwerke von großer Bedeutung.

Hoher Kontrast in Reflexionsmessungen

Als erstes wurde eine Probe untersucht, die für optische Messungen optimiert wurde, indem eine Festkörperimmersionslinse aufgebracht wurde, ein epitaktisches Gate sowie ein Bragg-Spiegel verwendet wurden und die Quantenpunkte im Bauch beziehungsweise das Gate und der Rückkontakt im Knoten der sich durch den Bragg-Spiegel ausbildenden stehenden Welle positioniert wurden. Es zeigte sich eine hohe Photonenzählrate in resonanten Fluoreszenzmessungen und bei Messungen des Kontrasts zwischen Quantenpunkt- und reflektiertem Lasersignal wurden Werte erreicht, die je nach Messgeometrie zwei Größenordnungen über typischen Daten aus der publizierten Literatur liegen. Simulationen konnten die starke Wechselwirkung des Laserfelds mit dem Quantenpunktdipolmoment und die verringerte Streuung von Photonen in den dotierten Schichten aufgrund der Positionierung im Wellenknoten als wahrscheinlichste Ursache für diese Ergebnisse identifizieren. In dieser Arbeit konnten auch aufgrund der guten optischen Eigenschaften dieser Probe erst einige der weiteren Erkenntnisse erzielt werden.

Ausblick: Die hohe Photonenzählrate in resonanter Fluoreszenz ermöglicht hoch-zeitaufgelöste Messungen kleinster Effekte an einzelnen Quantenpunkten. Die hohen Kontraste erlauben außerdem, gleichzeitig polarisations- und zeitaufgelöste Messungen durchzuführen. Die aufgeführten Optimierungen sollten also zukünftig bei allen Proben dieser Anwendungen vorgenommen werden.

Quantenpunkt als Quantensensor

Da die Emission von Quantenpunkten sehr empfindlich auf Feldänderungen reagiert, konnte ein einzelner Quantenpunkt als Quantensensor dazu verwendet werden, Defekte in der nahen Quantenpunktumgebung zu charakterisieren. Bei dieser neuen Methode zur Defektcharakterisierung konnte in zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenzmessungen das Tunneln von Elektronen zwischen dem Reservoir und einzelnen Defektzuständen beobachtet werden. Durch die Anpassung eines Ratenmodells an die Daten konnten aus diesen Beobachtungen die Position der Defekte sowie die Aktivierungsenergien der Defektzustände bestimmt werden.

Ausblick: Diese Methode der Nutzung eines Quantenemitters als nanoskopisches Elektrometer stellt für sämtliche Materialien mit Quantenemittern eine Möglichkeit zur Defektcharakterisierung dar. Somit könnte man beispielsweise zunächst erforschen, welchen Anteil das Tunneln von Ladungsträgern zwischen dem Reservoir und Defekten an den linienverbreitenden Ladungsfluktuationen in der Quantenpunktumgebung hat. Weiterhin denkbar wäre die Verwendung der hier gezeigten Methode zur Bestimmung des Beladungsspektrums eines einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkts, was in Transportmessungen bisher nicht möglich war. Dazu kann ein einzelner Quantenpunkt in der direkten Umgebung unter einem weiteren Gate als Sensor verwendet werden. Unter der Verwendung mehrerer Quantenpunkte als Elektrometer können außerdem zukünftig durch Triangulation die absoluten Positionen lokalisierte Ladungen ermittelt werden.

Statistik der Auger-Emission

Durch die Messung des Telegraphenrauschens der resonanten Fluoreszenz konnten erstmals einzelne Auger-Rekombinationsereignisse von Trionen in einem einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkt in Echtzeit beobachtet werden. Ebenso konnte das anschließende Beladen des Quantenpunkts mit einem Elektron aus dem Reservoir beobachtet werden. Aus der Analyse vieler dieser Ereignisse in einer Reihe mittels voller Zählstatistik ließen sich die Emissions- und Tunnelrate sowie die Kumulaten der Wahrscheinlichkeitsverteilung des Auger-Prozesses bestimmen. Es konnte festgestellt werden, dass sich die Raten unabhängig voneinander manipulieren lassen, sodass über sie die Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts eingestellt werden kann. Außerdem ergibt ein Vergleich der Ergebnisse mit theoretischen Vorhersagen eine Übereinstimmung für ein 2-Zustands-System, wobei der leere und der mit einem Elektron beladene Quantenpunkt je einem Zustand entsprechen.

Ausblick: Durch die hier gewonnenen Erkenntnisse kann zukünftig der Auger-Prozess genutzt werden, um den Ladungszustand eines Quantensystems optisch zu kontrollieren und somit Quantenzustände zu präparieren. Weiterführend kann die Statistik der Auger-Emission auch im Magnetfeld untersucht werden, um das System durch die Aufspaltung des Trions zu einem 3-Zustände-System zu erweitern und das veränderte Verhalten in diesem zu erforschen. Neben weiteren Erkenntnissen über die Auger-Emission wie die Magnetfeldabhängigkeit können somit außerdem Einblicke in Effekte wie die Spinrelaxation erhalten werden. Anfänge dieser weiterführenden Untersuchungen wurden bereits von Hendrik Mannel und Britta Maib durchgeführt [Mannel20, Maib20].

Interne Photoemission

Es konnte erstmals nachgewiesen werden, dass Ladungsträger durch die direkte Wechselwirkung mit nicht-resonanten Photonen aus einem einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkt emittiert werden können. Dieser Prozess wird als interner Photoeffekt bezeichnet. Eine Beschreibung der beteiligten Prozesse wurde durch ein Ratenmodell vorgenommen. Die Emissionsrate stellt sich als linear abhängig von der einfallenden Lichtintensität heraus und lässt sich somit über mehrere Größenordnungen einstellen. Die emittierten Ladungsträger verbleiben zum Teil in der Quantenpunktumgebung und verschieben dessen Zustände durch den Stark-Effekt.

Ausblick: Eine wichtige anschließende Untersuchung ist die Erforschung der Abhängigkeit der internen Photoemission von der Energie des einfallenden Lichts. Dabei ist besonders von Interesse, ob und wie sich abhängig von dieser die Emissionsrate verändert, sodass diese Veränderung eventuell Rückschlüsse auf die den Quantenpunkt umgebende Bandstruktur zulässt. Außerdem sollte die interne Photoemission zukünftig in allen optischen Bausteinen, insbesondere der Quanteninformatonstechnologie, Beachtung finden. Die Entwicklung von Möglichkeiten zur Unterbindung der internen Photoemission ist erstrebenswert, da sie die Lebenszeit eines Quantenzustands und somit die wichtige Eigenschaft der Kohärenz beschränkt.

Zusätzliche Trionresonanzen bei hoher Anregungsintensität

Zuletzt wurden unerwartete weitere Resonanzen im Bereich der Trionresonanz gezeigt, welche bei hohen Anregungsintensitäten über einen weiten Gatespannungs- und Anregungsfrequenzbereich hinweg in resonanten Fluoreszenzmessungen sichtbar waren. Eine ausführliche Untersuchung dieser durch die Variation verschiedener Parameter wie Anregungsintensität, Anregungsfrequenz und Probenposition sowie eine Vielzahl an zeitaufgelösten Messungen konnten keine eindeutige Erklärung für die zusätzlich beobachteten Resonanzen geben.

Ausblick: Die vorgestellten Beobachtungen bilden somit das Fundament für die weitergehende Erforschung der zusätzlichen Resonanzen. Ein Erkenntnisgewinn über die Herkunft dieser könnte wichtig sein für die Optimierung des Probenwachstums oder auch Informationen über Beladungsmechanismen und die quantenpunktumgebende Bandstruktur liefern.

Eigene Publikationen

Im Zusammenhang mit dieser Dissertation entstandene Publikationen

- P. Lochner, A. Kurzmann, R. Schott, A. D. Wieck, A. Ludwig, A. Lorke und M. Geller, *Contrast of 83% in reflection measurements on a single quantum dot*, Scientific Reports **9**, 8817 (2019)
- P. Lochner, A. Kurzmann, J. Kerski, P. Stegmann, J. König, A. D. Wieck, A. Ludwig, A. Lorke und M. Geller, *Real-Time Detection of Single Auger Recombination Events in a Self-Assembled Quantum Dot*, Nano Letters **20**, 1631 (2020)
- P. Lochner, J. Kerski, A. Kurzmann, A. D. Wieck, A. Ludwig, M. Geller und A. Lorke, *Internal photoeffect from a single quantum emitter*, Physical Review B **103**, 075426 (2021)
- J. Kerski, P. Lochner, A. Ludwig, A. D. Wieck, A. Kurzmann, A. Lorke und M. Geller, *Quantum Sensor for Nanoscale Defect Characterization*, Physical Review Applied **15**, 024029 (2021)

Weitere Publikationen

- S. Pal, C. Junggebauer, S. R. Valentin, P. Eickelmann, S. Scholz, A. Ludwig und A. D. Wieck, *Probing indirect exciton complexes in a quantum dot molecule via capacitance-voltage spectroscopy*, Physical Review B **94**, 245311 (2016)
- S. R. Valentin, J. Schwinger, P. Eickelmann, P. A. Labud, A. D. Wieck, B. Sothmann und A. Ludwig, *Illumination-induced nonequilibrium charge states in self-assembled quantum dots*, Physical Review B **97**, 045416 (2018)
- G. N. Nguyen, A. R. Korsch, M. Schmidt, C. Ebler, P. A. Labud, R. Schott, P. Lochner, F. Brinks, A. D. Wieck und A. Ludwig, *Influence of molecular beam effusion cell quality on optical and electrical properties of quantum dots and quantum wells*, Journal of Crystal Growth **550**, 125884 (2020)

10 Literaturverzeichnis

- [Abelein12] U. Abelein, H. Lochner, D. Hahn und S. Straube, *Complexity, quality and robustness - the challenges of tomorrow's automotive electronics*, in *2012 Design, Automation & Test in Europe Conference & Exhibition (DATE)*, 870–871, IEEE, Dresden (2012).
- [Akimov02] I. A. Akimov, A. Hundt, T. Flissikowski und F. Henneberger, *Fine structure of the trion triplet state in a single self-assembled semiconductor quantum dot*, *Applied Physics Letters* **81**, 4730 (2002).
- [Al-Ashouri17] A. Al-Ashouri, *Ladungstragedynamik in optisch angeregten Quantenpunkt-Heterostrukturen*, Masterarbeit, Universität Duisburg-Essen (2017).
- [Al-Ashouri18] A. Al-Ashouri, A. Kurzmann, B. Merkel, A. Ludwig, A. D. Wieck, A. Lorke und M. Geller, *Photon Noise Suppression by a Built-in Feedback Loop*, *Nano Letters* **19**, 135 (2018).
- [Alén03] B. Alén, F. Bickel, K. Karrai, R. J. Warburton und P. M. Petroff, *Stark-shift modulation absorption spectroscopy of single quantum dots*, *Applied Physics Letters* **83**, 2235 (2003).
- [Andreani99] L. C. Andreani, G. Panzarini und J.-M. Gérard, *Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities: Theory*, *Physical Review B* **60**, 13276 (1999).
- [Arakawa82] Y. Arakawa und H. Sakaki, *Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current*, *Applied Physics Letters* **40**, 939 (1982).
- [Astafiev10] O. Astafiev, A. M. Zagoskin, A. A. Abdumalikov, Y. A. Pashkin, T. Yamamoto, K. Inomata, Y. Nakamura und J. S. Tsai, *Resonance Fluorescence of a Single Artificial Atom*, *Science* **327**, 840 (2010).
- [Bagrets03] D. A. Bagrets und Y. V. Nazarov, *Full counting statistics of charge transfer in Coulomb blockade systems*, *Physical Review B* **67**, 085316 (2003).
- [Bagrets06] D. Bagrets, Y. Utsumi, D. Golubev und G. Schön, *Full counting statistics of interacting electrons*, *Fortschritte der Physik* **54**, 917 (2006).
- [Bayer02] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. A. Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. L. Reinecke, S. N. Walck, J. P. Reithmaier, F. Klopff und F. Schäfer, *Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots*, *Physical Review B* **65**, 195315 (2002).

- [Beattie59] A. R. Beattie und P. T. Landsberg, *Auger effect in semiconductors*, Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences **249**, 16 (1959).
- [Bester03] G. Bester, S. Nair und A. Zunger, *Pseudopotential calculation of the excitonic fine structure of million-atom self-assembled $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}/\text{GaAs}$ quantum dots*, Physical Review B **67**, 161306(R) (2003).
- [Birkedal00] D. Birkedal, J. Bloch, J. Shah, L. N. Pfeiffer und K. West, *Femtosecond dynamics and absorbance of self-organized InAs quantum dots emitting near $1.3 \mu\text{m}$ at room temperature*, Applied Physics Letters **77**, 2201 (2000).
- [Blanter00] Y. Blanter und M. Büttiker, *Shot noise in mesoscopic conductors*, Physics Reports **336**, 1 (2000).
- [Born70] M. Born und E. Wolf, *Principles of Optics - Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light*, Pergamon Press, Oxford, London, Edinburgh, New York, Toronto, Sydney, Paris, Braunschweig, 4. Aufl. (1970).
- [Borovitskaya02] E. Borovitskaya und M. S. Shur, *Quantum Dots*, World Scientific Publishing Co Pte Ltd (2002).
- [Brunner92] K. Brunner, U. Bockelmann, G. Abstreiter, M. Walther, G. Böhm, G. Tränkle und G. Weimann, *Photoluminescence from a single $\text{GaAs}/\text{AlGaAs}$ quantum dot*, Physical Review Letters **69**, 3216 (1992).
- [Chung18] Y. J. Chung, K. W. Baldwin, K. W. West, M. Shayegan und L. N. Pfeiffer, *Surface segregation and the Al problem in GaAs quantum wells*, Physical Review Materials **2**, 034006 (2018).
- [Cooper62] J. W. Cooper, *Photoionization from Outer Atomic Subshells. A Model Study*, Physical Review **128**, 681 (1962).
- [Cornish38] E. A. Cornish und R. A. Fisher, *Moments and Cumulants in the Specification of Distributions*, Revue de l'Institut International de Statistique / Review of the International Statistical Institute **5**, 307 (1938).
- [Dabbousi97] B. O. Dabbousi, J. Rodriguez-Viejo, F. V. Mikulec, J. R. Heine, H. Mattoussi, R. Ober, K. F. Jensen und M. G. Bawendi, *(CdSe)ZnS Core-Shell Quantum Dots: Synthesis and Characterization of a Size Series of Highly Luminescent Nanocrystallites*, The Journal of Physical Chemistry B **101**, 9463 (1997).
- [Dalgarno08] P. A. Dalgarno, J. M. Smith, J. McFarlane, B. D. Gerardot, K. Karrai, A. Badolato, P. M. Petroff und R. J. Warburton, *Coulomb interactions in single charged self-assembled quantum dots: Radiative lifetime and recombination energy*, Physical Review B **77**, 245311 (2008).
- [deGroot00] P. de Groot, *Measurement of transparent plates with wavelength-tuned phase-shifting interferometry*, Applied Optics **39**, 2658 (2000).
- [Delteil15] A. Delteil, Z. Sun, W. bo Gao, E. Togan, S. Faelt und A. Imamoğlu, *Generation*

- of heralded entanglement between distant hole spins*, Nature Physics **12**, 218 (2015).
- [Deutsch85] D. Deutsch, *Quantum theory, the Church–Turing principle and the universal quantum computer*, Proceedings of the Royal Society of London. A. Mathematical and Physical Sciences **400**, 97 (1985).
- [Dirac26] P. Dirac, *On the theory of quantum mechanics*, Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character **112**, 661 (1926).
- [DiVincenzo00] D. P. DiVincenzo, *The Physical Implementation of Quantum Computation*, Fortschritte der Physik **48**, 771 (2000).
- [Drexler94] H. Drexler, D. Leonard, W. Hansen, J. P. Kotthaus und P. M. Petroff, *Spectroscopy of Quantum Levels in Charge-Tunable InGaAs Quantum Dots*, Physical Review Letters **73**, 2252 (1994).
- [Ediger07] M. Ediger, G. Bester, A. Badolato, P. M. Petroff, K. Karrai, A. Zunger und R. J. Warburton, *Peculiar many-body effects revealed in the spectroscopy of highly charged quantum dots*, Nature Physics **3**, 774 (2007).
- [Efros97] A. L. Efros und M. Rosen, *Random Telegraph Signal in the Photoluminescence Intensity of a Single Quantum Dot*, Physical Review Letters **78**, 1110 (1997).
- [Eickelmann16] P. Eickelmann, *Ladespektroskopie unter quasi-resonanter Anregung von Exzitonen in InAs-Quantenpunkten*, Masterarbeit, Ruhr-Universität Bochum (2016).
- [Einstein05] A. Einstein, *Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt*, Annalen der Physik **322**, 132 (1905).
- [Ekert91] A. K. Ekert, *Quantum cryptography based on Bell’s theorem*, Physical Review Letters **67**, 661 (1991).
- [Feynman82] R. P. Feynman, *Simulating physics with computers*, International Journal of Theoretical Physics **21**, 467 (1982).
- [Fisher05] B. Fisher, J.-M. Caruge, Y.-T. Chan, J. Halpert und M. G. Bawendi, *Multiexciton fluorescence from semiconductor nanocrystals*, Chemical Physics **318**, 71 (2005).
- [Flindt09] C. Flindt, C. Fricke, F. Hohls, T. Novotny, K. Netocny, T. Brandes und R. J. Haug, *Universal oscillations in counting statistics*, Proceedings of the National Academy of Sciences **106**, 10116 (2009).
- [Fock28] V. Fock, *Bemerkung zur Quantelung des harmonischen Oszillators im Magnetfeld*, Zeitschrift für Physik **47**, 446 (1928).
- [Fox06] M. Fox, *Quantum Optics*, Oxford University Press (2006).
- [Fricke07] C. Fricke, F. Hohls, W. Wegscheider und R. J. Haug, *Bimodal counting stati-*

- stics in single-electron tunneling through a quantum dot*, Physical Review B **76**, 155307 (2007).
- [Fry00] P. W. Fry, I. E. Itskevich, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, J. J. Finley, J. A. Barker, E. P. O'Reilly, L. R. Wilson, I. A. Larkin, P. A. Maksym, M. Hopkinson, M. Al-Khafaji, J. P. R. David, A. G. Cullis, G. Hill und J. C. Clark, *Inverted Electron-Hole Alignment in InAs-GaAs Self-Assembled Quantum Dots*, Physical Review Letters **84**, 733 (2000).
- [Gao13] W. Gao, P. Fallahi, E. Togan, A. Delteil, Y. Chin, J. Miguel-Sanchez und A. Imamoglu, *Quantum teleportation from a propagating photon to a solid-state spin qubit*, Nature Communications **4**, 2744 (2013).
- [Gazzano18] O. Gazzano, T. Huber, V. Loo, S. Polyakov, E. B. Flagg und G. S. Solomon, *Effects of resonant-laser excitation on the emission properties in a single quantum dot*, Optica **5**, 354 (2018).
- [Geller10] M. Geller, B. Marquardt, A. Lorke, D. Reuter und A. D. Wieck, *A Two-Dimensional Electron Gas as a Sensitive Detector for Time-Resolved Tunneling Measurements on Self-Assembled Quantum Dots*, Nanoscale Research Letters **5**, 829 (2010).
- [Geller19] M. Geller, *Nonequilibrium carrier dynamics in self-assembled quantum dots*, Applied Physics Reviews **6**, 031306 (2019).
- [Gerry04] C. Gerry und P. Knight, *Introductory Quantum Optics*, Cambridge University Press (2004).
- [Gordon66] E. I. Gordon, *A Review of Acoustooptical Deflection and Modulation Devices*, Applied Optics **5**, 1629 (1966).
- [Gorman17] S. Gorman, Y. He, M. House, J. Keizer, D. Keith, L. Fricke, S. Hile, M. Broome und M. Simmons, *Tunneling Statistics for Analysis of Spin-Readout Fidelity*, Physical Review Applied **8**, 034019 (2017).
- [Grimmeiss81] H. G. Grimmeiss und C. Ovren, *Fundamentals of junction measurements in the study of deep energy levels in semiconductors*, Journal of Physics E: Scientific Instruments **14**, 1032 (1981).
- [Grimnes15] S. Grimnes und r. G. Martinsen, *Bioimpedance and Bioelectricity Basics*, Elsevier, Oslo, 3. Aufl. (2015).
- [Gross14] R. Gross und A. Marx, *Festkörperphysik*, de Gruyter, Berlin u.a., 2. Aufl. (2014).
- [Grundmann95] M. Grundmann, J. Christen, N. N. Ledentsov, J. Böhrer, D. Bimberg, †. S. S. Ruvimov, P. Werner, U. Richter, U. Gösele, J. Heydenreich, V. M. Ustinov, A. Y. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kop'ev und Z. I. Alferov, *Ultrannarrow Luminescence Lines from Single Quantum Dots*, Physical Review Letters **74**, 4043 (1995).
- [Guffarth03] F. Guffarth, *Elektronische Eigenschaften von In(Ga)As/GaAs Quantenpunkten*, Dissertation, Technische Universität Berlin (2003).

- [Gustavsson06] S. Gustavsson, R. Leturcq, B. Simovič, R. Schleser, T. Ihn, P. Studerus, K. Ensslin, D. C. Driscoll und A. C. Gossard, *Counting Statistics of Single Electron Transport in a Quantum Dot*, Physical Review Letters **96**, 076605 (2006).
- [Gustavsson09] S. Gustavsson, R. Leturcq, M. Studer, I. Shorubalko, T. Ihn, K. Ensslin, D. Driscoll und A. Gossard, *Electron counting in quantum dots*, Surface Science Reports **64**, 191 (2009).
- [Hanbury Brown56] R. Hanbury Brown und R. Q. Twiss, *Correlation between Photons in two Coherent Beams of Light*, Nature **177**, 27 (1956).
- [Hansom14] J. Hansom, C. H. H. Schulte, C. Matthiesen, M. J. Stanley und M. Atatüre, *Frequency stabilization of the zero-phonon line of a quantum dot via phonon-assisted active feedback*, Applied Physics Letters **105**, 172107 (2014).
- [Hauck14] M. Hauck, F. Seilmeier, S. E. Beavan, A. Badolato, P. M. Petroff und A. Högele, *Locating environmental charge impurities with confluent laser spectroscopy of multiple quantum dots*, Physical Review B **90**, 235306 (2014).
- [Hawrylak96] P. Hawrylak und A. Wojs, *Electronic structure and optical properties of self-assembled quantum dots*, Semiconductor Science and Technology **11**, 1516 (1996).
- [Heindel13] T. Heindel, *Elektrisch gepumpte Quantenpunkt-Einzelphtonquellen für die Quantenkommunikation*, Dissertation, Julius-Maximilians-Universität Würzburg (2013).
- [Henkel10] F. Henkel, M. Krug, J. Hofmann, W. Rosenfeld, M. Weber und H. Weinfurter, *Highly Efficient State-Selective Submicrosecond Photoionization Detection of Single Atoms*, Physical Review Letters **105**, 253001 (2010).
- [Herrmann94] K. H. Herrmann, *Der Photoeffekt - Grundlagen der Strahlungsmessung*, Vieweg+Teubner Verlag, Wiesbaden (1994).
- [Hertz87] H. Hertz, *Ueber einen Einfluss des ultravioletten Lichtes auf die elektrische Entladung*, Annalen der Physik und Chemie **267**, 983 (1887).
- [Högele04] A. Högele, S. Seidl, M. Kroner, K. Karrai, R. J. Warburton, B. D. Gerardot und P. M. Petroff, *Voltage-Controlled Optics of a Quantum Dot*, Physical Review Letters **93**, 217401 (2004).
- [Houel12] J. Houel, A. V. Kuhlmann, L. Greuter, F. Xue, M. Poggio, B. D. Gerardot, P. A. Dalgarno, A. Badolato, P. M. Petroff, A. Ludwig, D. Reuter, A. D. Wieck und R. J. Warburton, *Probing Single-Charge Fluctuations at a GaAs/AlAs Interface Using Laser Spectroscopy on a Nearby InGaAs Quantum Dot*, Physical Review Letters **108**, 107401 (2012).
- [Ioffe20] Ioffe, *NSM Archive - Physical Properties of Semiconductors*, <http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond/> (15.09.2020).
- [Jha09] P. P. Jha und P. Guyot-Sionnest, *Trion Decay in Colloidal Quantum Dots*, ACS

- Nano **3**, 1011 (2009).
- [Jovanov11] V. Jovanov, S. Kapfinger, M. Bichler, G. Abstreiter und J. J. Finley, *Direct observation of metastable hot trions in an individual quantum dot*, Physical Review B **84**, 235321 (2011).
- [Joyce85] B. A. Joyce, *Molecular beam epitaxy*, Reports on Progress in Physics **48**, 1637 (1985).
- [Karrai03] K. Karrai und R. J. Warburton, *Optical transmission and reflection spectroscopy of single quantum dots*, Superlattices and Microstructures **33**, 311 (2003).
- [Kennedy03] M. K. Kennedy, F. E. Kruis, H. Fissan, B. R. Mehta, S. Stappert und G. Dum-pich, *Tailored nanoparticle films from monosized tin oxide nanocrystals: Particle synthesis, film formation, and size-dependent gas-sensing properties*, Journal of Applied Physics **93**, 551 (2003).
- [Kerski18] J. Kerski, *Optische Detektion der Coulomb-Wechselwirkung zwischen selbstorganisierten Quantenpunkten*, Masterarbeit, Universität Duisburg-Essen (2018).
- [Kerski21] J. Kerski, P. Lochner, A. Ludwig, A. Wieck, A. Kurzmann, A. Lorke und M. Geller, *Quantum Sensor for Nanoscale Defect Characterization*, Physical Review Applied **15**, 024029 (2021).
- [Khuchua03] N. P. Khuchua, L. V. Khvedelidze, M. G. Tigishvili, N. B. Gorev, E. N. Privalov und I. F. Kodzhespirova, *Deep-Level Effects in GaAs Microelectronics: A Review*, Russian Microelectronics **32**, 257 (2003).
- [Kimble08] H. J. Kimble, *The quantum internet*, Nature **453**, 1023 (2008).
- [Kleinherbers18] E. Kleinherbers, P. Stegmann und J. König, *Revealing attractive electron–electron interaction in a quantum dot by full counting statistics*, New Journal of Physics **20**, 073023 (2018).
- [Klimov00] V. I. Klimov, *Quantization of Multiparticle Auger Rates in Semiconductor Quantum Dots*, Science **287**, 1011 (2000).
- [Klingshirn05] C. F. Klingshirn, *Semiconductor optics*, Springer, Berlin New York (2005).
- [Kuhlmann13a] A. V. Kuhlmann, J. Houel, D. Brunner, A. Ludwig, D. Reuter, A. D. Wieck und R. J. Warburton, *A dark-field microscope for background-free detection of resonance fluorescence from single semiconductor quantum dots operating in a set-and-forget mode*, Review of Scientific Instruments **84**, 073905 (2013).
- [Kuhlmann13b] A. V. Kuhlmann, J. Houel, A. Ludwig, L. Greuter, D. Reuter, A. D. Wieck, M. Poggio und R. J. Warburton, *Charge noise and spin noise in a semiconductor quantum device*, Nature Physics **9**, 570 (2013).
- [Kuhlmann15] A. V. Kuhlmann, J. H. Prechtel, J. Houel, A. Ludwig, D. Reuter, A. D. Wieck und R. J. Warburton, *Transform-limited single photons from a single quantum dot*, Nature Communications **6**, 8204 (2015).

- [Kuhn02] A. Kuhn, M. Hennrich und G. Rempe, *Deterministic Single-Photon Source for Distributed Quantum Networking*, Physical Review Letters **89**, 067901 (2002).
- [Kurzmann16a] A. Kurzmann, A. Ludwig, A. D. Wieck, A. Lorke und M. Geller, *Auger Recombination in Self-Assembled Quantum Dots: Quenching and Broadening of the Charged Exciton Transition*, Nano Letters **16**, 3367 (2016).
- [Kurzmann16b] A. Kurzmann, A. Ludwig, A. D. Wieck, A. Lorke und M. Geller, *Photoelectron generation and capture in the resonance fluorescence of a quantum dot*, Applied Physics Letters **108**, 263108 (2016).
- [Kurzmann16c] A. Kurzmann, B. Merkel, P. Labud, A. Ludwig, A. Wieck, A. Lorke und M. Geller, *Optical Blocking of Electron Tunneling into a Single Self-Assembled Quantum Dot*, Physical Review Letters **117**, 017401 (2016).
- [Kurzmann17] A. Kurzmann, *Zeitaufgelöste optische Transportspektroskopie an einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkten*, Dissertation, Universität Duisburg-Essen (2017).
- [Kurzmann19] A. Kurzmann, P. Stegmann, J. Kerski, R. Schott, A. Ludwig, A. Wieck, J. König, A. Lorke und M. Geller, *Optical Detection of Single-Electron Tunneling into a Semiconductor Quantum Dot*, Physical Review Letters **122**, 247403 (2019).
- [Labud14] P. Labud, A. Ludwig, A. Wieck, G. Bester und D. Reuter, *Direct Quantitative Electrical Measurement of Many-Body Interactions in Exciton Complexes in InAs Quantum Dots*, Physical Review Letters **112**, 046803 (2014).
- [Lang74] D. V. Lang, *Deep-level transient spectroscopy: A new method to characterize traps in semiconductors*, Journal of Applied Physics **45**, 3023 (1974).
- [Löbl20] M. C. Löbl, C. Spinnler, A. Javadi, L. Zhai, G. N. Nguyen, J. Ritzmann, L. Midolo, P. Lodahl, A. D. Wieck, A. Ludwig und R. J. Warburton, *Radiative Auger process in the single-photon limit*, Nature Nanotechnology **15**, 558 (2020).
- [Leonard93] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C. M. Reaves, S. P. Denbaars und P. M. Petroff, *Direct formation of quantum-sized dots from uniform coherent islands of InGaAs on GaAs surfaces*, Applied Physics Letters **63**, 3203 (1993).
- [Leonard94] D. Leonard, K. Pond und P. M. Petroff, *Critical layer thickness for self-assembled InAs islands on GaAs*, Physical Review B **50**, 11687 (1994).
- [Levitov96] L. S. Levitov, H. Lee und G. B. Lesovik, *Electron counting statistics and coherent states of electric current*, Journal of Mathematical Physics **37**, 4845 (1996).
- [Li00] S.-S. Li und J.-B. Xia, *Quantum-confined Stark effects of InAs/GaAs self-assembled quantum dot*, Journal of Applied Physics **88**, 7171 (2000).
- [Liu16] M. Liu, O. Voznyy, R. Sabatini, F. P. G. de Arquer, R. Munir, A. H. Balawi, X. Lan, F. Fan, G. Walters, A. R. Kirmani, S. Hoogland, F. Laquai, A. Amassian und E. H. Sargent, *Hybrid organic-inorganic inks flatten the energy landscape in colloidal quantum dot solids*, Nature Materials **16**, 258 (2016).

- [Lochner19] P. Lochner, A. Kurzmann, R. Schott, A. D. Wieck, A. Ludwig, A. Lorke und M. Geller, *Contrast of 83% in reflection measurements on a single quantum dot*, Scientific Reports **9**, 8817 (2019).
- [Lochner20] P. Lochner, A. Kurzmann, J. Kerski, P. Stegmann, J. König, A. D. Wieck, A. Ludwig, A. Lorke und M. Geller, *Real-Time Detection of Single Auger Recombination Events in a Self-Assembled Quantum Dot*, Nano Letters **20**, 1631 (2020).
- [Lochner21] P. Lochner, J. Kerski, A. Kurzmann, A. D. Wieck, A. Ludwig, M. Geller und A. Lorke, *Internal photoeffect from a single quantum emitter*, Physical Review B **103** (2021).
- [Loudon00] R. Loudon, *The Quantum Theory of Light*, Oxford University Press (2000).
- [Lounis05] B. Lounis und M. Orrit, *Single-photon sources*, Reports on Progress in Physics **68**, 1129 (2005).
- [Ludwig11] A. Ludwig, *Elektrische Spininjektion in InAs-Quantenpunkten*, Dissertation, Ruhr-Universität Bochum (2011).
- [Ludwig17] A. Ludwig, J. H. Prechtel, A. V. Kuhlmann, J. Houel, S. R. Valentin, R. J. Warburton und A. D. Wieck, *Ultra-low charge and spin noise in self-assembled quantum dots*, Journal of Crystal Growth **477**, 193 (2017).
- [Luyken99] R. J. Luyken, A. Lorke, A. O. Govorov, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro und P. M. Petroff, *The dynamics of tunneling into self-assembled InAs dots*, Applied Physics Letters **74**, 2486 (1999).
- [Ma03] Z. Ma, K. Pierz, U. Keyser und R. Haug, *Photoluminescence of self-assembled InAs/AlAs quantum dots as a function of density*, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures **17**, 117 (2003).
- [Ma14] Y. Ma, P. E. Kremer und B. D. Gerardot, *Efficient photon extraction from a quantum dot in a broad-band planar cavity antenna*, Journal of Applied Physics **115**, 023106 (2014).
- [Maib20] B. Maib, *Zeitaufgelöste Auger-Spektroskopie an selbstorganisiertenQuantenpunkten*, Bachelorarbeit, Universität Duisburg-Essen (2020).
- [Malik97] S. Malik, C. Roberts, R. Murray und M. Pate, *Tuning self-assembled InAs quantum dots by rapid thermal annealing*, Applied Physics Letters **71**, 1987 (1997).
- [Mannel20] H. Mannel, *Optische Detektion der Nichtgleichgewichtsdynamik in Halbleiter-Quantenstrukturen*, Bachelorarbeit, Universität Duisburg-Essen (2020).
- [Mansfield90] S. M. Mansfield und G. S. Kino, *Solid immersion microscope*, Applied Physics Letters **57**, 2615 (1990).
- [Marquardt11] B. Marquardt, M. Geller, B. Baxevanis, D. Pfannkuche, A. D. Wieck, D. Reuter und A. Lorke, *Transport spectroscopy of non-equilibrium many-particle spin*

- states in self-assembled quantum dots*, Nature Communications **2**, 209 (2011).
- [Márquez01] J. Márquez, L. Geelhaar und K. Jacobi, *Atomically resolved structure of InAs quantum dots*, Applied Physics Letters **78**, 2309 (2001).
- [Marzin94] J. Y. Marzin, J. M. Gérard, A. Izraël, D. Barrier und G. Bastard, *Photoluminescence of Single InAs Quantum Dots Obtained by Self-Organized Growth on GaAs*, Physical Review Letters **73**, 716 (1994).
- [Matthiesen12] C. Matthiesen, A. N. Vamivakas und M. Atatüre, *Subnatural Linewidth Single Photons from a Quantum Dot*, Physical Review Letters **108**, 093602 (2012).
- [Matthiesen13] C. Matthiesen, M. Geller, C. H. H. Schulte, C. L. Gall, J. Hansom, Z. Li, M. Hugues, E. Clarke und M. Atatüre, *Phase-locked indistinguishable photons with synthesized waveforms from a solid-state source*, Nature Communications **4**, 1600 (2013).
- [Medeiros-Ribeiro95] G. Medeiros-Ribeiro, D. Leonard und P. M. Petroff, *Electron and hole energy levels in InAs self-assembled quantum dots*, Applied Physics Letters **66**, 1767 (1995).
- [Meitner22] L. Meitner, *Über die β -Strahl-Spektren und ihren Zusammenhang mit der γ -Strahlung*, Zeitschrift für Physik **11**, 35 (1922).
- [Melet08] R. Melet, V. Voliotis, A. Enderlin, D. Roditchev, X. L. Wang, T. Guillet und R. Grousson, *Resonant excitonic emission of a single quantum dot in the Rabi regime*, Physical Review B **78**, 073301 (2008).
- [Merkel17] B. Merkel, A. Kurzmann, J.-H. Schulze, A. Strittmatter, M. Geller und A. Lorke, *Charge-driven feedback loop in the resonance fluorescence of a single quantum dot*, Physical Review B **95**, 115305 (2017).
- [Meschede08] D. Meschede, *Optik, Licht und Laser*, Vieweg + Teubner, Wiesbaden, 3. Aufl. (2008).
- [Meschede10] D. Meschede (Hg.), *Gerthsen Physik*, Springer Berlin Heidelberg, Heidelberg Dordrecht London NewYork, 24. Aufl. (2010).
- [Mills00] A. P. Mills, L. N. Pfeiffer, K. W. West und C. W. Magee, *Mechanisms for Si dopant migration in molecular beam epitaxy Al_xGa_{1-x}As*, Journal of Applied Physics **88**, 4056 (2000).
- [Muller07] A. Muller, E. B. Flagg, P. Bianucci, X. Y. Wang, D. G. Deppe, W. Ma, J. Zhang, G. J. Salamo, M. Xiao und C. K. Shih, *Resonance Fluorescence from a Coherently Driven Semiconductor Quantum Dot in a Cavity*, Physical Review Letters **99**, 187402 (2007).
- [Munsch17] M. Munsch, A. V. Kuhlmann, D. Cadeddu, J.-M. Gérard, J. Claudon, M. Poggio und R. J. Warburton, *Resonant driving of a single photon emitter embedded in a mechanical oscillator*, Nature Communications **8**, 76 (2017).

- [Murray93] C. B. Murray, D. J. Norris und M. G. Bawendi, *Synthesis and characterization of nearly monodisperse CdE (E = sulfur, selenium, tellurium) semiconductor nanocrystallites*, Journal of the American Chemical Society **115**, 8706 (1993).
- [Mutoh96] S. Mutoh, S. Shigematsu, Y. Matsuya, H. Fukuda, T. Kaneko und J. Yamada, *A 1-V multithreshold-voltage CMOS digital signal processor for mobile phone application*, IEEE Journal of Solid-State Circuits **31**, 1795 (1996).
- [Najer19] D. Najer, I. Söllner, P. Sekatski, V. Dolique, M. C. Löbl, D. Riedel, R. Schott, S. Starosielec, S. R. Valentin, A. D. Wieck, N. Sangouard, A. Ludwig und R. J. Warburton, *A gated quantum dot strongly coupled to an optical microcavity*, Nature **575**, 622 (2019).
- [Nguyen11] H. S. Nguyen, G. Sallen, C. Voisin, P. Roussignol, C. Diederichs und G. Cassa-bois, *Ultra-coherent single photon source*, Applied Physics Letters **99**, 261904 (2011).
- [Nielsen10] M. A. Nielsen und I. L. Chuang, *Quantum Computation and Quantum Information*, Cambridge University Pr. (2010).
- [Pavesi94] L. Pavesi und M. Guzzi, *Photoluminescence of Al_xGa_{1-x}As alloys*, Journal of Applied Physics **75**, 4779 (1994).
- [Petroff84] P. M. Petroff, R. C. Miller, A. C. Gossard und W. Wiegmann, *Impurity trapping, interface structure, and luminescence of GaAs quantum wells grown by molecular beam epitaxy*, Applied Physics Letters **44**, 217 (1984).
- [Petroff01] P. M. Petroff, A. Lorke und A. Imamoglu, *Epitaxially Self-Assembled Quantum Dots*, Physics Today **54**, 46 (2001).
- [Pinotsi11] D. Pinotsi, P. Fallahi, J. Miguel-Sanchez und A. Imamoglu, *Resonant Spectroscopy on Charge Tunable Quantum Dots in Photonic Crystal Structures*, IEEE Journal of Quantum Electronics **47**, 1371 (2011).
- [Prechtel16] J. H. Prechtel, A. V. Kuhlmann, J. Houel, A. Ludwig, S. R. Valentin, A. D. Wieck und R. J. Warburton, *Decoupling a hole spin qubit from the nuclear spins*, Nature Materials **15**, 981 (2016).
- [Press07] D. Press, S. Götzinger, S. Reitzenstein, C. Hofmann, A. Löffler, M. Kamp, A. Forchel und Y. Yamamoto, *Photon Antibunching from a Single Quantum-Dot-Microcavity System in the Strong Coupling Regime*, Physical Review Letters **98**, 117402 (2007).
- [Rakić96] A. D. Rakić und M. L. Majewski, *Modeling the optical dielectric function of GaAs and ALAs: Extension of Adachi's model*, Journal of Applied Physics **80**, 5909 (1996).
- [Ram-Mohan88] L. R. Ram-Mohan, K. H. Yoo und R. L. Aggarwal, *Transfer-matrix algorithm for the calculation of the band structure of semiconductor superlattices*, Physical Review B **38**, 6151 (1988).

- [Reithmaier04] J. P. Reithmaier, G. Sek, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke und A. Forchel, *Strong coupling in a single quantum dot–semiconductor microcavity system*, Nature **432**, 197 (2004).
- [Renker09] D. Renker und E. Lorenz, *Advances in solid state photon detectors*, Journal of Instrumentation **4**, P04004 (2009).
- [Rezai19] M. Rezai, J. Wrachtrup und I. Gerhardt, *Detuning dependent Rabi oscillations of a single molecule*, New Journal of Physics **21**, 045005 (2019).
- [Robel09] I. Robel, R. Gresback, U. Kortshagen, R. D. Schaller und V. I. Klimov, *Universal Size-Dependent Trend in Auger Recombination in Direct-Gap and Indirect-Gap Semiconductor Nanocrystals*, Physical Review Letters **102**, 177404 (2009).
- [Sah70] C. Sah, L. Forbes, L. Rosier und A. Tasch, *Thermal and optical emission and capture rates and cross sections of electrons and holes at imperfection centers in semiconductors from photo and dark junction current and capacitance experiments*, Solid-State Electronics **13**, 759 (1970).
- [Santori02] C. Santori, D. Fattal, J. Vučković, G. S. Solomon und Y. Yamamoto, *Indistinguishable photons from a single-photon device*, Nature **419**, 594 (2002).
- [Schöll19] E. Schöll, L. Hanschke, L. Schweickert, K. D. Zeuner, M. Reindl, S. F. C. da Silva, T. Lettner, R. Trotta, J. J. Finley, K. Müller, A. Rastelli, V. Zwiller und K. D. Jöns, *Resonance Fluorescence of GaAs Quantum Dots with Near-Uncertainty Photon Indistinguishability*, Nano Letters **19**, 2404 (2019).
- [Schottky39] W. Schottky, *Zur Halbleitertheorie der Sperrschicht- und Spitzengleichrichter*, Zeitschrift für Physik **113**, 367 (1939).
- [Schubert06] E. F. Schubert, *Physical Foundations of Solid-State-Devices*, Troy, New York (2006).
- [Schulte15] C. H. H. Schulte, J. Hansom, A. E. Jones, C. Matthiesen, C. L. Gall und M. Atatüre, *Quadrature squeezed photons from a two-level system*, Nature **525**, 222 (2015).
- [Scully97] M. O. Scully und M. S. Zubairy, *Quantum Optics*, Cambridge University Press (1997).
- [Seidl05] S. Seidl, M. Kroner, P. A. Dalgarno, A. Högele, J. M. Smith, M. Ediger, B. D. Gerardot, J. M. Garcia, P. M. Petroff, K. Karrai und R. J. Warburton, *Absorption and photoluminescence spectroscopy on a single self-assembled charge-tunable quantum dot*, Physical Review B **72**, 195339 (2005).
- [Skowronski90] M. Skowronski, S. T. Neild und R. E. Kremer, *Location of energy levels of oxygen-vacancy complex in GaAs*, Applied Physics Letters **57**, 902 (1990).
- [Snider13] G. Snider, *Gregory Snider*, <http://www3.nd.edu/~gsnider/> (10.11.2013).
- [Sta11] Stanford Research System, Kalifornien, *MODEL SR830DSP Lock-In Amplifier*

- Manual*, 2. Aufl. (2011).
- [Stegmann15] P. Stegmann, B. Sothmann, A. Hucht und J. König, *Detection of interactions via generalized factorial cumulants in systems in and out of equilibrium*, Physical Review B **92**, 155413 (2015).
- [Stevenson06] R. M. Stevenson, R. J. Young, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *A semiconductor source of triggered entangled photon pairs*, Nature **439**, 179 (2006).
- [Stier99] O. Stier, M. Grundmann und D. Bimberg, *Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band k - p theory*, Physical Review B **59**, 5688 (1999).
- [Stranski38] I. N. Stranski und L. Krastanow, *Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von Ionenkristallen aufeinander*, Monatshefte für Chemie **71**, 351 (1938).
- [Sze06] S. M. Sze und K. K. Ng, *Physics of Semiconductor Devices*, WILEY (2006).
- [Thorn04] J. J. Thorn, M. S. Neel, V. W. Donato, G. S. Bergreen, R. E. Davies und M. Beck, *Observing the quantum behavior of light in an undergraduate laboratory*, American Journal of Physics **72**, 1210 (2004).
- [Vamivakas07] A. N. Vamivakas, M. Atatüre, J. Dreiser, S. T. Yilmaz, A. Badolato, A. K. Swan, B. B. Goldberg, A. Imamoğlu und M. S. Ünlü, *Strong Extinction of a Far-Field Laser Beam by a Single Quantum Dot*, Nano Letters **7**, 2892 (2007).
- [Vamivakas09] A. N. Vamivakas, Y. Zhao, C.-Y. Lu und M. Atatüre, *Spin-resolved quantum-dot resonance fluorescence*, Nature Physics **5**, 198 (2009).
- [Vamivakas10] A. N. Vamivakas, C.-Y. Lu, C. Matthiesen, Y. Zhao, S. Fält, A. Badolato und M. Atatüre, *Observation of spin-dependent quantum jumps via quantum dot resonance fluorescence*, Nature **467**, 297 (2010).
- [Vamivakas11] A. N. Vamivakas, Y. Zhao, S. Fält, A. Badolato, J. M. Taylor und M. Atatüre, *Nanoscale Optical Electrometer*, Physical Review Letters **107**, 166802 (2011).
- [vanEnk00] S. J. van Enk und H. J. Kimble, *Single atom in free space as a quantum aperture*, Physical Review A **61**, 051802(R) (2000).
- [vanEnk04] S. J. van Enk, *Atoms, dipole waves, and strongly focused light beams*, Physical Review A **69**, 051802(R) (2004).
- [Vaxenburg15] R. Vaxenburg, A. Rodina, A. Shabaev, E. Lifshitz und A. L. Efros, *Nonradiative Auger Recombination in Semiconductor Nanocrystals*, Nano Letters **15**, 2092 (2015).
- [Wang74] S. Wang, *Principles of distributed feedback and distributed Bragg-reflector lasers*, IEEE Journal of Quantum Electronics **10**, 413 (1974).
- [Warburton97] R. J. Warburton, C. S. Dürr, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro

- und P. M. Petroff, *Charged Excitons in Self-Assembled Semiconductor Quantum Dots*, Physical Review Letters **79**, 5282 (1997).
- [Warburton98] R. J. Warburton, B. T. Miller, C. S. Dürr, C. Bödefeld, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, P. M. Petroff und S. Huant, *Coulomb interactions in small charge-tunable quantum dots: A simple model*, Physical Review B **58**, 16221 (1998).
- [Warburton02] R. J. Warburton, C. Schulhauser, D. Haft, C. Schäfflein, K. Karrai, J. M. Garcia, W. Schoenfeld und P. M. Petroff, *Giant permanent dipole moments of excitons in semiconductor nanostructures*, Physical Review B **65**, 113303 (2002).
- [Warburton13] R. J. Warburton, *Single spins in self-assembled quantum dots*, Nature Materials **12**, 483 (2013).
- [Wasilewski99] Z. Wasilewski, S. Fafard und J. McCaffrey, *Size and shape engineering of vertically stacked self-assembled quantum dots*, Journal of Crystal Growth **201-202**, 1131 (1999).
- [Wood82] D. L. Wood und K. Nassau, *Refractive index of cubic zirconia stabilized with yttria*, Applied Optics **21**, 2978 (1982).
- [Wüst16] G. Wüst, M. Munsch, F. Maier, A. V. Kuhlmann, A. Ludwig, A. D. Wieck, D. Loss, M. Poggio und R. J. Warburton, *Role of the electron spin in determining the coherence of the nuclear spins in a quantum dot*, Nature Nanotechnology **11**, 885 (2016).
- [Xie16] X. Xie, *Low-power technologies in high-performance computer: trends and perspectives*, National Science Review **3**, 23 (2016).
- [Yang09] X.-F. Yang, K. Fu, W. Lu, W.-L. Xu und Y. Fu, *Strain effect in determining the geometric shape of self-assembled quantum dot*, Journal of Physics D: Applied Physics **42**, 125414 (2009).
- [Yeap13] G. Yeap, *Smart mobile SoCs driving the semiconductor industry: Technology trend, challenges and opportunities*, in *2013 IEEE International Electron Devices Meeting*, 1.3.1–1.3.8, IEEE, Washington, DC (2013).
- [Yilmaz10] S. T. Yilmaz, P. Fallahi und A. Imamoğlu, *Quantum-Dot-Spin Single-Photon Interface*, Physical Review Letters **105**, 033601 (2010).
- [Zeeman97] P. Zeeman, *The Effect of Magnetisation on the Nature of Light Emitted by a Substance*, Nature **55**, 347 (1897).
- [Zhirnov03] V. Zhirnov, R. Cavin, J. Hutchby und G. Bourianoff, *Limits to binary logic switch scaling—a gedanken model*, Proceedings of the IEEE **9**, 1934 (2003).
- [Zrenner02] A. Zrenner, E. Beham, S. Stufler, F. Findeis, M. Bichler und G. Abstreiter, *Coherent properties of a two-level system based on a quantum-dot photodiode*, Nature **418**, 612 (2002).

- [Zumofen08] G. Zumofen, N. M. Mojarad, V. Sandoghdar und M. Agio, *Perfect Reflection of Light by an Oscillating Dipole*, Physical Review Letters **101**, 180404 (2008).
- [Zwiller02] V. Zwiller und G. Björk, *Improved light extraction from emitters in high refractive index materials using solid immersion lenses*, Journal of Applied Physics **92**, 660 (2002).

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich gerne bei allen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen und mich begleitet haben.

Zuerst möchte ich mich bei **PD Dr. Martin Paul Geller** für die gute Betreuung während meiner gesamten Promotionszeit bedanken. Seine unzähligen gute Ideen, seine Unterstützung im Labor und bei allen ~~Problemen~~ Herausforderungen, die sich im Laufe der Zeit aufgetan haben, seine Motivation, gemeinsame Diskussionen, sein immer offenes Ohr und sein Vertrauen in mich haben diese Arbeit überhaupt erst ermöglicht. Ich freue mich sehr, dass er meine Arbeit nun auch begutachtet. Danke Paul, ohne dich wäre diese Arbeit nicht, was sie ist!

Kein minderer Dank gilt **Prof. Dr. Axel Lorke** für die Möglichkeit, meine Doktorarbeit in seiner Arbeitsgruppe zu schreiben, für sein andauerndes Interesse an der Arbeit und auch dem Befinden aller seiner Mitarbeiter, für die ständige Bereitschaft, sich Zeit zu nehmen, um Ergebnisse und Fragen zu diskutieren, für seine ansteckende Begeisterung für Physik und Forschung, dafür, dass er so ein gutes Arbeitsklima schafft und für die großartige Unterstützung und Mitfreude während meiner Schwangerschaft. Ich hätte mir keinen besseren Chef wünschen können!

Dann danke ich allen, mit denen ich im Laufe meiner Zeit in der AG Lorke gemeinsam im Labor arbeiten durfte: **Dr. Annika Kurzmann** für die gute Einarbeitung, die Tipps und Hilfen auch weit über die Zeit, die wir gemeinsam in der AG Lorke gearbeitet haben hinaus und dass ich von ihr ein so gut funktionierendes und geliebtes Labor übernehmen durfte. Danke, dass ich so viel von dir lernen durfte! Auch **Amran Al-Ashouri** danke ich für die Einarbeitung insbesondere zu Beginn meiner Promotionszeit und dass ich ihn mit all meinen Fragen immer wieder von seiner Masterarbeit abhalten durfte. Ich danke den Studenten **Jens Kerski, Hendrik Mannel, Fabio Riemek** und **Konstantin Frenzer**, deren Abschlussarbeiten ich betreuen durfte. Es hat mir sehr viel Spaß gemacht, mit euch gemeinsam zu forschen, zu diskutieren und mich mit euch über eure schönen Ergebnisse zu freuen. Insbesondere danke ich Jens Kerski, dessen Ergebnisse seiner akribischen, fleißigen und geduldigen Arbeit ich teilweise hier verwenden durfte.

Alle hier präsentierten Ergebnisse wären nie zustande gekommen, hätten wir nicht so gute Quantenpunktproben gehabt. Für das Wachstum und die teilweise Prozessierung der Proben sowie die gute Zusammenarbeit und den ständigen Austausch danke ich dem Lehrstuhl für Angewandte Festkörperphysik von **Prof. Dr. Andreas D. Wieck**, insbesondere **Dr. Arne Ludwig, Dr. Rüdiger Schott, Dr. Patrick A. Labud** und **Nadine Viteritti**.

Für die gemeinsame Arbeit, die fruchtbaren Diskussionen und die Unterstützung in der Theorie über Telegraphenrauschen und volle Zählstatistik danke ich **Prof. Dr. Jürgen König, Dr. Philipp Stegmann** und **Eric Kleinherbers**.

Den Verantwortlichen unseres Graduiertenkollegs danke ich für die vielen geschaffenen Möglichkeiten zum Austausch, zum Netzwerken und zur Fortbildung bei Workshops und Auslandsaufenthalten.

Prof. Dr. Klaus D. Jöns danke ich für die bereitwillige Übernahme des Zweitgutachtens dieser Arbeit.

Dr. Günther Prinz und **Mathias Bartsch** aus der AG Lorke danke ich für alles, was sie mehr oder weniger unbemerkt organisieren, reparieren und instand halten und natürlich für die Betreuung des Reinraums. **Jennifer Stein** und **Marion Hannemann** danke ich für die großartige Sekretariatsarbeit, ihre Freundlichkeit und die Nachsicht bei den ständigen Fehlern, die wir beim Ausfüllen von Formularen für Bestellungen, Dienstreisen, ... machen. Ich danke allen, mit denen ich in meiner Zeit in der AG Lorke ein Büro teilen durfte für die vielen Diskussionen, moralische Unterstützung, Zettelbotschaften und manchmal auch einfach nur das kurze Lächeln über die Schreibtische hinweg: **Dr. Annika Kurzmann**, **Kevin Eltrudis**, **Amran Al-Ashouri**, **Isabel Oppenberg**, **Hendrik Manne** und besonders **Jens Kerski** für seinen Rückhalt, sein Vertrauen, die gute Zusammenarbeit und die vielen guten Gespräche. Der gesamten AG Lorke danke ich für die gute Atmosphäre, den freundschaftlichen Umgang, die gegenseitige Unterstützung, zahlreiche Filmabende, Gruppenaktivitäten und natürlich unsere alljährliche „Klassenfahrt“ nach Ameland. Vielen Dank für diese wunderbare Zeit!

Zuletzt möchte ich meiner Familie und meinen Freunden für die Begleitung und Unterstützung während meiner Promotionszeit danken. Insbesondere danke ich meinem Mann und meiner Tochter für ihre Liebe, für ihre Geduld, wenn mal wieder etwas länger gedauert hat und für all die schönen Abenteuer, die wir schon zusammen erlebt haben und noch gemeinsam erleben werden.