



UNIVERSITÄT PADERBORN
Die Universität der Informationsgesellschaft

Fakultät für Naturwissenschaften — Department Physik

**TEMPERATURABHÄNGIGE EIGENSCHAFTEN
EINZELNER HALBLEITER-QUANTENPUNKTE
IM KOHÄRENTEN REGIME**

Dem Department Physik der Universität Paderborn
zur Erlangung des akademischen Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften

vorgelegte

Dissertation

von

Marc C. Hübner

Paderborn, Oktober 2009

DER VERSUCH
IST DER ERSTE SCHRITT ZUM SCHEITERN.

Homer J. Simpson

Paul

Zusammenfassung

Spätestens, seitdem Schlagworte wie „Quantencomputer“ oder „Quantenkryptographie“ auch in der allgemeinen öffentlichen Diskussion angekommen sind, rücken Quantenpunkte im Hinblick auf ihre potentiellen Anwendungen in festkörperbasierter Quanten-Informationsverarbeitung und ihrem Nutzen für die Grundlagenforschung in den Fokus des allgemeinen Interesses. Quantenpunkte werden in diesem Zusammenhang auch oft als „künstliche Atome“ bezeichnet. Dies fasst ihre Eigenschaften in vielen Bereichen sehr anschaulich zusammen und unterstreicht darüber hinaus ihr großes Potential für zukünftige Entwicklungen.

Als Grundlage zahlreicher Experimente dient dabei das theoretische Modell eines Zwei-Niveau-Systems, das durch einen einzelnen Quantenpunkt sehr gut repräsentiert werden kann, wenn man die An- bzw. Abwesenheit eines einzelnen Exzitons im Grundzustand einer solchen Struktur betrachtet. Erweiterung findet dieses Konzept auch, wenn man nicht nur ein einziges Exziton in diesem System betrachtet, sondern gleich deren zwei (Biexziton).

Übergänge zwischen den betrachteten Niveaus können durch optische Anregung induziert werden. Durch die Integration der Quantenpunkte in eine Diodenstruktur kann die Detektion elektrisch über Messung des Photostromes erfolgen. Dieser Detektionsmechanismus ist hochempfindlich und erlaubt es, die Energieniveaus des Quantenpunktes aufgrund des Stark-Effekts mittels der Variation einer extern angelegten Spannung sehr präzise gegenüber einer festen Laserenergie zu verstimmen. Die Übergänge erscheinen dann im Photostrom als extrem schmale Resonanzen. Das System lässt sich auf diese Weise als extrem sensibles Nano-Spektrometer einsetzen.

Zur Untersuchung kohärenter Wechselwirkungen zwischen Quantenpunkt und Lichtfeld erfolgt die Anregung mit Laserpulsen, die im Vergleich zur Dephasierungszeit (2 ps) deutlich kürzer sind. Die Beobachtung von Rabi-Oszillationen, mit denen jeder beliebige Überlagerungszustand der beiden Niveaus gezielt eingestellt werden kann, gilt dabei als grundlegende Beobachtung an Zwei-Niveau-Systemen. In dieser Arbeit wurde der vorhandene Messaufbau um die Möglichkeit ergänzt, die Temperatur

der Probe gezielt variieren zu können, bis zu diesem Zeitpunkt war nur die Messung bei 4,2 K möglich. Es konnten Rabi-Oszillationen bis zu Temperaturen von 70 K nachgewiesen werden. Darüber hinaus konnte gezeigt werden, welchen Einfluss die Temperatur auf weitere Eigenschaften des Systems hat. So kommt es zu einer deutlichen Verbreiterung der beobachteten Resonanzen, und damit einhergehend zu einer Verkürzung der Lebensdauer der damit verbundenen Zustände.

Ebenso konnte gezeigt werden, dass es mit Hilfe der Temperatur möglich ist, den vorherrschenden Rekombinationskanal des betrachteten Zustandes zu beeinflussen. Über die an der Probe angelegte Spannung lässt sich schon im Falle der Messung bei 4,2 K wählen, ob das Exziton eher strahlend zerfällt (Rückwärts-Spannung kleiner 0,4 V) oder ob im Falle einer stärkeren Verbiegung der Bänder (mehr als 0,4 V Spannung) eher Tunnelprozesse und damit im Photostrom messbare Prozesse bevorzugt werden. Durch eine Variation der Temperatur und damit einhergehender thermischer Aktivierung lässt sich diese Grenze nun deutlich zu Gunsten der Tunnelprozesse verschieben. Ein weiterer wichtiger Teil der Untersuchungen fanden im Rahmen von Quanten-Interferenzexperimenten statt, die gerade im Hinblick auf Quantum-Computing von Bedeutung sind. Dabei wird die Probe mit zwei zeitlich versetzten Laserpulsen angeregt. Der erste Puls definiert eine Überlagerung der beiden möglichen Zustände des Systems und prägt dem System seine Phaseninformation auf. Der zweite Puls fragt diese Information dann anschaulich gesehen ab und reagiert dabei äußerst sensitiv auf eine Verstimmung der Quantenpunktenergie, die über den Stark-Effekt beeinflusst werden. Auf diese Weise entstehen so genannte Ramsey-Interferenzen, deren Periode mit zunehmendem Pulsabstand immer schmaler wird. Dieser Abstand konnte in dieser Arbeit sowohl für das Exziton wie auch für das Biexziton bis auf nahezu 1 ns vergrößert werden. Ebenso wurden erstmals Ramsey-Interferenzen am Biexziton untersucht. Dieser gebundene Zustand aus zwei einzelnen Exzitonen wird mit einem resonanten und kohärenten Zwei-Photonen-Prozess erzeugt. Es konnte gezeigt werden, dass die Auflösung dieser Interferenzen im Hinblick auf die Verstimmung des Systems nochmals um den theoretisch erwarteten Faktor 2 gegenüber dem Exziton-Fall gesteigert werden kann.

Die kohärenten Zwei-Puls-Experimente eröffnen zahlreiche Möglichkeiten: die Frequenz-Stabilisierung von Quantenpunkten unterhalb ihrer homogenen Linienbreite, eine spannungsgesteuerte Zustandspräparation und nicht zuletzt die Realisierung von C-Not-Gates mit schwach gekoppelten Qubits.

Abstract

Recently, the public has become aware of keywords like “Quantum computer” or “Quantum cryptography”. Regarding their potential application in solid state based quantum information processing and their overall benefit in fundamental research quantum dots have gained more and more public interest. In this context, quantum dots are often referred to as “artificial atoms”, a term subsuming their physical properties quite nicely and emphasizing the huge potential for further investigations.

The basic mechanism to be considered is the theoretical model of a two-level system. A quantum dot itself represents this kind of system quite nicely, provided that only the presence or absence of a single exciton in the ground state of that structure is regarded. This concept can also be expanded to the presence of two excitons (bi-exciton).

Transitions between the relevant levels can be induced by optical stimulation. When integrating quantum dots in diode like structures measurements of this phenomena can be accomplished regarding photo currents. This means of detection is highly sensitive and allows for tuning of the energy levels with respect to the energy of an exciting laser utilizing the Stark effect (via an external electric field). The photo current then shows narrow resonances representing those transitions. By this, the system can be used as a highly sensitive nano-spectrometer.

The examination of coherent interactions between quantum dots and an electromagnetic field uses laser pulses that are much shorter than the dephasing time of the system (2 ps). The basic study to be done on two level systems is the measurement of Rabi oscillations allowing for the selection of an arbitrary superposition of states. In this work, the existing setup was improved regarding the possibility to control the temperature of the sample. Up to now, only investigations at 4,2 K have been possible. Even at 70 K Rabi oscillations could be shown. Moreover, the influence of temperature on other properties of the system could be investigated. Resonances show noticeable broadening which results in decreased lifetime of the levels participated.

In the same way it was shown that the temperature can influence the main channel of recombination of the predominate level. Varying

the external voltage at the sample even at 4,2 K can set the exciton to decay radiatively (bias voltage smaller than 0,4 V) or through tunneling processes—and thus measureable through photo currents—due to an increased bending of bands (more than 0,4 V). This border can be changed for the benefit of the tunneling processes by thermal activation at higher temperatures.

Investigations on quantum interference were another major part of the work. They are of special interest when it comes to quantum computing. For this, the sample is irradiated with two delayed laser pulses. The first pulse defines then a possible superposition of both possible states and gives the system a phase information. The following second pulse will sample this information with high sensitivity with respect to possible variations of the quantum dot energy. The latter one may be influenced via the Stark effect. This procedure results in so called Ramsey interferences. Their periodicity shrinks with decreasing pulse delay. This gap was widened to nearly 1 ns for both exciton and biexciton. For the first time, Ramsey interferences of the biexciton were studied as well. This state consists of two single excitons and is excited with a resonant and coherent two-photon process. It was shown that the resolution of these interferences is increased by a factor of two with respect to the exciton case as expected.

The coherent two-pulse experiments offer many possibilities: frequency stabilisation of quantum dots below the homogenous linewidth, a voltage controlled preparation of states and the implementation of C-not-gates with weakly coupled qubits.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
1.1. Halbleiter-Quantenpunkte	1
1.2. Diese Arbeit	3
2. Grundlagen der Quantenpunkte	5
2.1. Halbleiter-Quantenpunkte	5
2.2. Herstellung	7
2.3. Optische und elektronische Eigenschaften	10
2.3.1. Energiezustände	11
2.3.2. Feinstruktur	16
2.3.3. Stark-Effekt	16
2.4. Messmethoden	18
2.4.1. Photolumineszenz	18
2.4.2. Photostrom	22
3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen	23
3.1. Einführung	23
3.1.1. Zwei-Niveau-Systeme	23
3.1.2. Wechselwirkungen	24
3.2. Optische Bloch-Gleichungen und die Bloch-Kugel	29
3.3. Lebensdauer und Dephasierung	32
3.4. Rabi-Oszillationen des Exzitons	34
3.4.1. Exakte Resonanz	35
3.4.2. Reales System	36
3.4.3. Verstimmung	37
3.5. Ramsey-Interferenzen des Exzitons	38
3.6. Zwei-Photonen-Prozesse	43
3.6.1. Absorption	44
3.6.2. Interferenz	45
3.6.3. Rabi-Oszillationen des Biexzitons	49
3.6.4. Ramsey-Interferenzen des Biexzitons	54
3.7. Phononen	57

4. Experimenteller Aufbau und Proben	61
4.1. Optische Anregung	61
4.1.1. Laser	61
4.1.2. Anregungsseite	62
4.1.3. Probenstab	66
4.2. Probendesign	68
4.3. Temperaturkontrolle	72
4.4. Detektion	74
4.4.1. Optische Detektion	75
4.4.2. Elektrische Detektion	75
4.5. Probeneigenschaften	78
4.5.1. Energieniveaus	78
4.5.2. Quantum Confined Stark Effect	78
4.5.3. Dephasierungszeiten	81
4.5.4. Rabi-Oszillationen	81
4.5.5. Ramsey-Interferenzen	84
4.5.6. Biexziton	87
5. Experimentelle Ergebnisse	89
5.1. Photostromanregung – Übersicht	90
5.2. Stark-Effekt am Biexziton	93
5.3. Einfluss der Temperatur auf grundlegende Größen	96
5.3.1. Photostromresonanz des Exzitons	97
5.3.2. Lebensdauer	100
5.3.3. Einfluss auf die Bandlücke	101
5.3.4. Thermische Aktivierung	102
5.3.5. Rabi-Oszillationen	105
5.4. Ramsey-Interferenzen	111
5.4.1. Exziton	111
5.4.2. Biexziton	116
6. Ausblick	123
A. Temperaturregelung	127
A.1. Kalibrierung der Messwerte	127
A.2. Regelungsverhalten	129
Symbole und Abkürzungen	a

1. Einleitung

1.1. Halbleiter-Quantenpunkte

Nachdem in den frühen 1970er Jahren die ersten niedrigdimensionalen Heterostrukturen in Form von Quantenfilmen (engl.: *Quantum Well*, QW) die Grundlage für die meisten, heute verwendeten optoelektronischen Bauteile geliefert hatten¹, machte man sich schon bald daran, diese zwei-dimensionalen (2D) Strukturen weiter in ihren Freiheitsgraden einzuschränken. Die Folge waren 1D-Quantendrähte (engl.: *Quantum Wire*, QR) und als ultimative Begrenzung der räumlichen Freiheitsgrade der Ladungsträger, der „0D“-Fall, der Quantenpunkt (engl.: *Quantum Dot*, QD). Ihre Eigenschaften, die im Verlauf dieser Kapitel näher erläutert werden sollen, eignen sich hervorragend dazu, grundlegende Untersuchungen an ihnen durchzuführen. Sie gelten als vielversprechende Kandidaten für die Realisierung von Komponenten für Gatter eines Quantencomputers und für die Quantenkryptographie. Ihre direkte technische Anwendung wurde zwar schon früh prophezeit (z. B. 1982 als aktives Material eines Lasers [Ara82]), allerdings erst Anfang der 1990er Jahre realisiert. Ihren maßschneiderbaren Eigenschaften verdanken es die Quantenpunkte auch, dass sich ihnen in den letzten Jahren immer weitere Anwendungsmöglichkeiten eröffnen und sie in immer mehr kommerziellen Produkten zum Einsatz kommen. Die teilweise schon realisierten Vorschläge reichen dabei von den optisch aktiven Komponenten von Anzeigeeinheiten (Displays), der Verbesserung von lichtemittierenden Dioden (engl.: *Light Emitting Diode*, LED), dem Einsatz als Marker für biochemische Komponenten [Lid04], als Sicherheitsmerkmal in Tinten [Cha04] oder der Effizienzverbesserung von Solarzellen [Kon08].

Gänzlich handfeste Anwendungen im Bereich der Computertechnik werden für Quantensysteme im Allgemeinen und Systeme aus Quantenpunkten im Besonderen auch deshalb erwartet, weil sich das sogenannte „Moore'sche Gesetz“² in den letzten Jahrzehnten als erstaunlich aussage-

¹Nobelpreis für Physik im Jahre 2000 für Zhores Alferov und Herbert Kroemer (‘for developing semiconductor heterostructures used in high-speed- and opto-electronics’).

²Dabei sollte das Wort „Gesetz“ eher im Sinne von „Gesetzmäßigkeit“ verstanden werden.

1. Einleitung

kräftig herausgestellt hat [Moo65]. Die 1965 von ihm erstmals formulierte und 1975 in ihrer zeitlichen Einschätzung angepasste Beobachtung besagt, dass sich die Anzahl an Transistoren (bzw. die Integrationsdichte) auf einem handelsüblichen Prozessor alle achtzehn Monate verdoppelt. Die Halbleiterindustrie macht ihre Entwicklungspläne auf mehrere Jahre hinaus unter anderem anhand dieser Aussage fest. Allerdings mehren sich heute die Stimmen, die eine Verlangsamung der Zunahme der Integrationsdichte in naher Zukunft erwarten. Als ultimate Grenze darf dabei das Erreichen von Strukturgrößen betrachtet werden, die sich der Größenordnung einzelner Atome annähern. Als Ausweg aus diesem Dilemma werden daher Quantencomputer genannt, die die technische Bedeutung von Transistoren so stark mindern könnten, dass deren Anzahl nicht mehr als Maßzahl der Komplexität taugt. Kritiker dieser Thesen bemängeln jedoch, dass die Hürden zur Konstruktion eines realen Quantencomputers noch unüberschaubar scheinen. Denn zum einen muss ein System gefunden werden, dass sich hinreichend schnell präparieren lässt, dabei aber lange genug seine inhärenten Eigenschaften behält, um effiziente Berechnungen mit einem solchen System anstellen zu können. Potentiell bieten Quantencomputer die Möglichkeit, bestimmte Klassen von mathematischen Problemen mit deutlich reduziertem Aufwand berechnen zu können, da ein solches System inhärent parallel rechnet. Andererseits zeigen Überlegungen zu Quantenalgorithmen auf, dass eine hinreichend leistungsfähige Fehlerkorrektur für solche Systeme zwingend erforderlich ist. Deren Realisierung erhöht die für einen einsatzbereiten Quantencomputer zu treffenden Bemühungen aber enorm. Einzelne Kritiker bezweifeln jedoch, dass sich solche Systeme in absehbarer Zeit realisieren und kommerziell herstellen lassen, da zu viele technische und theoretische Fragen ungeklärt seien.

Ein weiterer, bereits aktuell in kleinem Massstab betriebener Anwendungszweig für Quantensysteme stellt die Quantenkryptographie dar. Dabei werden „abhörsichere“ Datenverbindungen realisiert, indem man dem Datenstrom quantenmechanische Eigenschaften aufprägt, die sich nicht ohne aufzufallen abhören lassen. In der Unterhaltungsindustrie werden bereits in großem Umfang Quanten-Well-Laser eingesetzt, wenn es um die Ausstattung von CD-Playern oder Video-Abspielgeräten geht. In der Entwicklung befinden sich Laser auf Quantenpunktbasis, die sich für den Einsatz in Displays oder Lasersystemen anbieten.

1.2. Diese Arbeit

In der hier vorliegenden Arbeit wurde ein System aus Halbleiter-Quantenpunkten auf seine kohärenten Eigenschaften hin untersucht. Die im Materialsystem GaAs/InGaAs realisierten Untersuchungen wurden in ähnlicher Form zwar teilweise schon zuvor untersucht, allerdings wurden im Rahmen dieser Arbeit einige Erweiterungen ausgearbeitet, die eine noch umfassendere Kontrolle des Quantensystems ermöglichen. Ein völlig neuer Parameterraum wurde mit der Realisierung einer Temperaturkontrolle des Systems erschlossen. Bis auf wenige Kelvin genau lässt sich mit dem erweiterten Probenhalter nun auch die thermodynamische Komponente hin zu größeren Temperaturen als die durch das als Kühlmittel eingesetzte flüssige Helium definierte erweitern. Darüber hinaus wurden die Untersuchungen von Ramsey-Interferenzen am Exziton-Übergang hin zu deren Beobachtung auch am Biexziton, also der Anregung von zwei Exzitonen zur gleichen Zeit im gleichen Quantenpunkt erweitert. Für beide Anregungszustände konnte zudem der einer Messung zugängliche Bereich von Pulsverzögerungen bis zu knapp einer Nanosekunde ausgedehnt werden. Nach einer solchen Zeit sind die Systeme zwar schon zum allergrößten Teil dephasiert, die Tatsache, dass trotzdem noch verwertbare kohärente Effekte gemessen werden konnten, verdeutlicht allerdings einmal mehr die Stärke und das Potential der angewandten Methoden.

Die Arbeit gliedert sich wie folgt:

In Kapitel 2 werden die Grundlagen der Quantenpunkte behandelt. Neben ihren physikalischen Prinzipien wird kurz auf ihre Herstellung eingegangen. Einer Erläuterung ihrer optischen und elektronischen Eigenschaften schließt sich eine Beschreibung der Messmethoden an, die eine Untersuchung solcher Systeme ermöglichen.

Kapitel 3 widmet sich der theoretischen Behandlung von Zwei-Niveau-Systemen. Grundlegende Gleichungen und eine theoretische Betrachtung der beobachteten Phänomene schliessen sich an.

In Kapitel 4 wird ausführlich der experimentelle Aufbau mit Anregung und Detektion besprochen. Eine Zusammenfassung der Eigenschaften der verwendeten Probe ist hier ebenso zu finden.

Die experimentellen Ergebnisse werden in Kapitel 5 vorgestellt und erläutert.

In Kapitel 6 schließlich wird die Arbeit zusammengefasst und ein Ausblick auf mögliche weiterführende Experimente gegeben.

Im Anhang findet sich darüber hinaus eine Zusammenfassung der für die Temperaturregelung des Systems relevanten Aufbauten.

2. Grundlagen der Quantenpunkte

Es ist inzwischen eine Binsenweisheit, dass nicht nur einzelne Teilchen bzw. Atome Quanteneigenschaften besitzen können, sondern auch Ansammlungen von Teilchen größerer Zahl ($> 10^4$ Atome). Halbleiter mit ihren unterschiedlichen Bänderdiagrammen bieten nun die Möglichkeit, Einschlusspotentiale für Ladungsträger zu generieren, indem zwei Materialien geeignet miteinander räumlich kombiniert werden. Damit erweitert sich das Feld der Quantenphysik auf Halbleiter mit ihren mesoskopischen Ausdehnungen.

Dieses Kapitel widmet sich der verschiedenen Möglichkeiten der Herstellung von Quantenpunkten und ihrer daraus resultierenden Struktur. Ferner werden ihre fundamentalen Eigenschaften beschrieben und näher erläutert, wie sich diese optisch und elektrisch bemerkbar machen.

2.1. Halbleiter-Quantenpunkte

Ein Festkörper, der bei tiefen Temperaturen nichtleitend, bei höheren Temperaturen dagegen leitend ist, wird auch als Halbleiter bezeichnet. Seine Eigenschaften rühren von der Ausbildung einer Energielücke zwischen Valenz- und Leitungsband her, die sich aus der aufgrund der Periodizität des Materialgitters ergibt. Ein Ladungsträger im Allgemeinen und ein Elektron im Besonderen kann sich in solch einem homogenen Halbleiter unter dem Einfluss des Kristallpotentials bewegen; diesem Umstand wird Rechnung getragen, indem ihm eine „effektiven“ Masse m^* zugeordnet wird, in der diese Einflüsse subsummiert sind.

Die zunächst kontinuierliche Zustandsdichte der Ladungsträger wird allerdings beeinflusst, wenn ihre Bewegungsfreiheit eingeschränkt wird. Dieser Einschluss kann beispielsweise durch elektrostatische Felder oder auch Grenzflächeneffekte beim Übergang von einem Halbleiter-Material zum anderen realisiert sein. Liegt die Größe dieser Strukturen im Bereich der de-Broglie-Wellenlänge der Ladungsträger, treten quantenmechanische Effekte auf, die dazu führen, dass diese Ladungsträger (Elektronen, Löcher und deren Kompositionen, also Exzitonen) keine kontinuierlichen

2. Grundlagen der Quantenpunkte

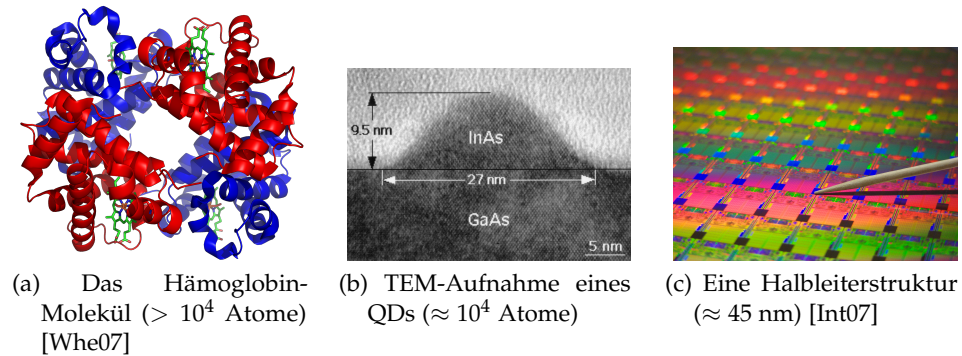


Abbildung 2.1.: Größenvergleich kleiner Strukturen.

Energieeigenwerte mehr annehmen können. Vielmehr bilden sich diskrete Energieniveaus aus, wenn es in allen drei Raumrichtungen zu Einschränkungen ihrer Bewegungsfreiheit kommt¹. Man hat es dann mit nanoskopischen Strukturen, Quantenpunkten, zu tun. In diesem Zusammenhang ist auch das vielzitierte und geflügelte Wort von den „künstlichen Atomen“ zu verstehen: zum einen die Formung diskreter Niveaus wie im Atom, obwohl die meisten Quantenpunkte aus einigen Dutzend bis zu 10^4 einzelnen Atomen bestehen (s. Abbildung 2.1), zum anderen gerade die sich aus diesem Grund ergebende Möglichkeit, diese Strukturen mitsamt ihren elektronischen Eigenschaften „künstlich“, nach eigenen Vorstellungen maßzuschneidern. Abbildung 2.2 zeigt die Änderung in der Zustandsdichte vom Volumen- zum 0D-System. Im letzteren Fall, also Quantenpunkten, bilden sich die erwähnten, δ -förmigen erlaubten Energiezustände aus.

Als Quantenpunkte kommt beispielsweise ein 2D-Elektronengassystem mit einer geeigneten Gatestruktur in Frage [Han05]. Eine andere Möglichkeit bietet ein „verunglückter“ Quantum well: durch statistische Fluktuationen zufällig etwas dickere Bereiche dieser Struktur zeigen ebenfalls Einschlusspotentiale aufgrund ihrer quasi-3D-Form [Zre94]. Jedoch sind diese Strukturen lateral meist vergleichsweise groß, was zu einer starken Ausdehnung des Exzitons und einem nur schwachen Einschlusspotential führt. Die weit verbreiteten selbstorganisierten Quantenpunkte, die inzwischen mit geringen Defektdichten und überaus gut reproduzierbar in verschiedenen Materialsystemen, die sich im Wesentlichen in ihrer Bandlücke und damit den relevanten Energieskalen unterscheiden, hergestellt

¹Daher spricht man auch von nulldimensionalen Systemen, da sich die Teilchen in keiner Raumrichtung mehr ungehemmt ausbreiten können.

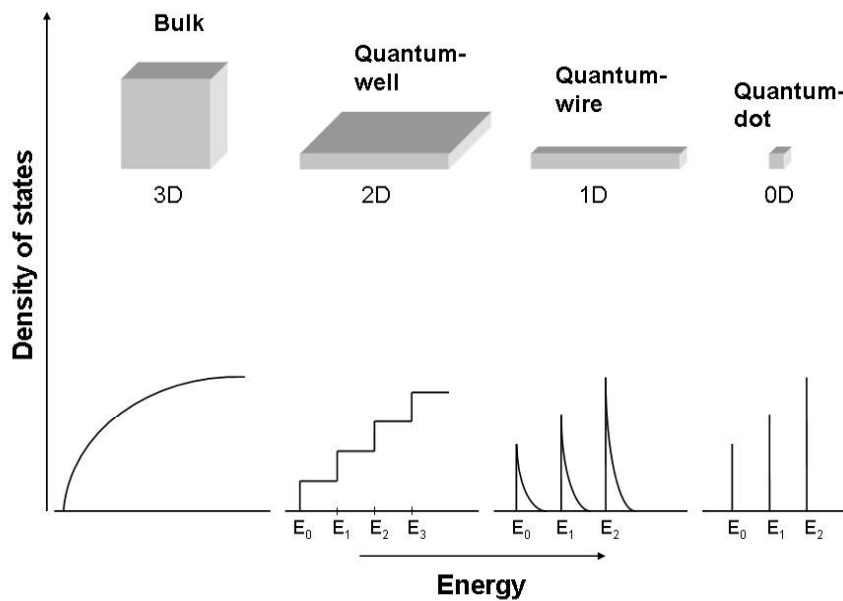


Abbildung 2.2.: Vergleich der Zustandsdichten für einen Volumen-Halbleiter und niedrig-dimensionale Systeme. Die Einschränkung in immer mehr Dimensionen führt im 0D-Fall zu Zustandsdichten wie in einem Atom.

werden können, sollen auch in dieser Arbeit die Grundlage der Proben bilden. Abbildung 2.3c) zeigt die AFM-Aufnahme der Oberfläche eines mit Quantenpunkten bewachsenen Substrates.

Solche Quantenpunkte zeichnen sich durch eine gute optische Qualität aus und können leicht in weitere äußere Strukturen (Dioden, Resonatoren, etc.) eingebettet werden.

2.2. Herstellung

Ein mögliches Verfahren zur Herstellung solcher Strukturen bildet die optische Lithographie. Über die Wellenlänge des verwendeten Lichts wird dabei jedoch eine untere Grenze für die realisierbaren Strukturgrößen vorgegeben. Strukturen unterhalb etwa 30 nm können so nur unter hohem finanziellen und technologischen Aufwand erstellt werden. Trotzdem wird gerade in der kommerziellen Produktion solcher Strukturen für Computer-

2. Grundlagen der Quantenpunkte

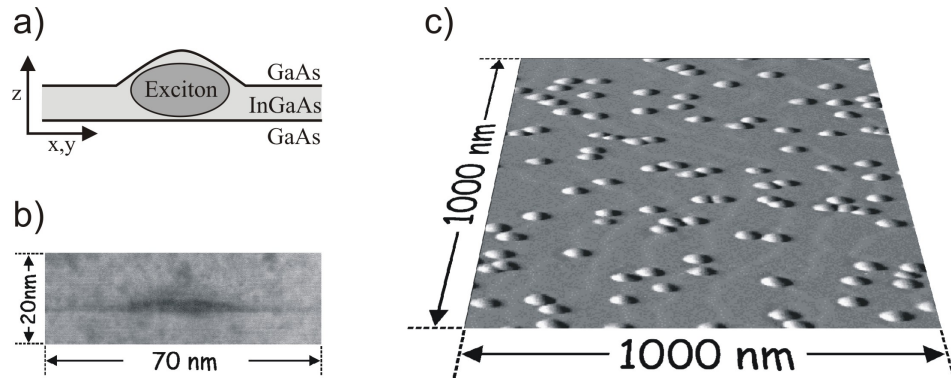


Abbildung 2.3.: Quantenpunkte: a) Schematische Darstellung eines Exzitons im QD, b) TEM-Schnitt durch einen QD, c) AFM-Aufnahme einer Oberfläche mit QDs

chips diese Grenze ständig nach unten verschoben (vgl. Abbildung 2.1c). Die Herstellung von Halbleiterstrukturen mittels Molekularstrahlepitaxie (engl.: *Molecular Beam Epitaxy*, MBE) oder der metallorganischen Gasphasenepitaxie (engl.: *Metal Organic Chemical Vapour Deposition*, MOCVD) ermöglicht die Herstellung von Strukturen in monoatomaren Lagen. So können auch Heterostrukturen aus verschiedenen Halbleitermaterialien mit dieser Genauigkeit produziert werden. Ein weiterer Vorteil besteht in der Möglichkeit, die Überprüfung der Struktur schon in der MBE während des eigentlichen Wachstumsprozesses (in situ) mittels Beugung hochenergetischer Elektronen (engl.: *Reflection High Energy Electron Diffraction*, RHEED) durchführen zu können.

Zur Herstellung solcher selbstorganisierter Quantenpunkte werden Materialien unterschiedlicher Gitterkonstanten kombiniert. Das System aus Indium-Arsenid (InAs), das auf Gallium-Arsenid (GaAs) in einer MBE-Anlage Atomlage für Atomlage abgeschieden wird, ist heute weit verbreitet. Das Wachstum findet dabei im sogenannten Stranski-Krastanow-Modus statt [Str]. Im hier betrachteten Fall scheidet sich also InAs als zwei-dimensionale Benetzungsschicht (engl.: *Wetting Layer*, WL) auf dem GaAs-Substrat ab. In dieser Schicht bilden sich aufgrund der größeren Gitterkonstanten des InAs ($6,0583 \text{ \AA}$ gegenüber $5,65325 \text{ \AA}$ bei GaAs) dann aber zunehmend Verspannungen auf, die ab einer kritischen Schichtdicke von etwa zwei Monolagen durch die Bildung von InAs-Inseln abgebaut werden. Diese Inseln zeichnen sich wie erwähnt durch eine hohe Defektfreiheit aus und macht sie daher für optische Untersuchungen sehr

geeignet. Nach dem gewünschten Wachstum werden die Inseln, die eher wie Pyramiden aussehen, mit dem Substratmaterial GaAs überwachsen und damit vollständig drei-dimensional eingekapselt. Die verglichen mit diesem umgebenden Matrixmaterial kleinere Bandlücke von InAs ermöglicht dann den Einschluß von Ladungsträgern in den Quantenpunkten, in Abbildung 2.3a schematisch für ein Exziton dargestellt. Die laterale Ausdehnung dieser Quantenpunkte liegt im Bereich von wenigen 10 nm, die Höhe bei typischen 5–8 nm. Die Inseln bilden sich spontan selbst, daher ist ihre Position ebenso wie ihre Größe und Form statistischen Schwankungen unterworfen. Sowohl die Quantenpunktdichte als auch die Größenverteilung kann über die Wachstumsbedingungen nur indirekt beeinflusst werden. Da die aufgeführten Unterschiede aber auch die Lage der Energieniveaus beeinflussen, zeigt die Emission eines Ensembles vieler Quantenpunkte eine starke inhomogene Verbreiterung. Nur wenn die Anregung oder Detektion auf einen einzelnen Quantenpunkt beschränkt wird, können dessen grundlegende Eigenschaften anhand scharfer Übergänge untersucht werden. In dieser Arbeit wurden daher eine Probe geringer QD-Dichte mit etwa 1 bis 10 QDs pro Mikrometer verwendet. Zusätzlich gestatten sowohl ein geeignetes Probandesign (Abschnitt 4.2) als auch der hochauflösende optische Aufbau (Abschnitt 4.1) somit die beschränkende Untersuchung einzelner QDs. Die Übergangsenergie des Grundzustands eines InAs-Quantenpunkts liegt direkt nach dem Wachsen typischerweise bei 1,1 eV entsprechend einer Wellenlänge von etwa 1127 nm. Sowohl für den Bereich der Anregung (durchstimmbarer Titan-Saphir-Laser, TiSa) als auch für die Detektion (Si-Detektoren) sind die derzeit leistungsfähigsten Systeme auf einen etwas höheren Energiebereich beschränkt ($> 1,24$ eV). Es wird daher versucht, die Grundzustandsenergie der Quantenpunkte durch Beimischung von Gallium auf diesen Bereich zu verschieben. Dies kann zum einen direkt beim Wachstum durch Abscheidung von InGaAs statt InAs geschehen. Zum anderen können auch InAs-QDs noch nach dem eigentlichen Wachsen durch zusätzliches Tempern mit thermisch mobilisiertem Gallium aus dem Matrixmaterial interdiffundiert werden. Diese Interdiffusion kann alternativ auch durch geeignete Wachstumschritte schon in der MBE-Anlage herbeigeführt werden. Eine weitere Möglichkeit ergibt sich durch nachträgliche laserinduzierte Interdiffusion. Dahinter verbirgt sich die Idee, einen energiereichen Laserstrahl so auf der Probe zu fokussieren, dass es lokal zu einer starken Erhitzung und damit ebenfalls thermischer Aktivierung kommt. Auch während dieser Arbeit wurde versucht, den Strahl des grünen Pump lasers (Wellenlänge $\lambda_{\text{pump}} = 512$ nm) für diese Zwecke zu benutzen. Angedacht war dabei

2. Grundlagen der Quantenpunkte

ein annähernder in situ-Modus, der aus einem Tempersschritt mittels des grünen Lasers und anschließender Detektion des erhofften Effektes auf die Übergangsenergien des behandelten Quantenpunktes bestehen sollte. Da diese Vorgänge direkt bei 4,2 K in der Helium-Kanne stattfinden sollten, wäre eine sukzessive Annäherung an den erwünschten Spektralbereich möglich gewesen. Es zeigte sich allerdings, dass die lokal induzierte Erwärmung der Probe durch den grünen Laser nicht ausreichend für messbare Effekte war, da der thermische Kontakt zwischen Probe und Umgebung zu effektiv ist². Dieses Ergebnis steht im Einklang mit den von Rastelli gesammelten Erkenntnissen [Ras07].

Andere Anstrengungen widmen sich dem Ort des QD-Wachstums, der zunächst rein statistisch auf der Probenoberfläche verteilt ist. Erste Erfolge zur aktiven Bestimmung der Stellen, an denen Quantenpunkte wachsen sollen, konnten z. B. von den Gruppen Reuter und Schmidt erzielt werden [Meh07, Kir05]. Ausgehend von diesen Ergebnissen bietet es sich dann an, diese gezielt gewachsenen QDs in äußere Dioden-Strukturen einzubetten, um damit eine möglichst kleine untersuchbare Struktur zu realisieren. Die in dieser Arbeit verwendeten Proben weisen eine solche Vereinzelung auf Dioden-Ebene noch nicht auf, sie sind vielmehr durch eine Schattenmaske (optisch) einzeln zugänglich.

2.3. Optische und elektronische Eigenschaften

Will man die Energieniveaus eines Quantenpunktes berechnen, so steht man zunächst vor einem Dilemma: seine strukturellen Eigenschaften sind zum einen oft nur sehr unvollständig und/oder ungenau bekannt, da zumeist weder über die genaue Form des Quantenpunktes noch über die Verteilung der die Bandlücke verringernden Elemente in ihm hinreichende Klarheit herrscht. Außerdem werden die Bänder auch noch durch eingebaute Verspannungen verbogen. Bei genauerer Betrachtung zeigt sich jedoch schnell Erstaunliches: für die Beschreibung vieler grundlegender Eigenschaften liefern auch vereinfachte, zum Teil sogar analytisch berechenbare Modelle ausreichend genaue Ergebnisse. Im Allgemeinen wird daher von einem möglichst einfachen Modell ausgegangen, das lediglich dann erweitert wird, wenn dies zur Beschreibung von Vorgängen notwendig ist. Speziell die in dieser Arbeit untersuchten Proben (GaAs/InGaAs-

²Die Anregungsleistung des Pumpasers wurde bis knapp an die Zerstörschwelle der eingesetzten optischen Komponenten (Pellicle) am Probenhalterkopf erhöht. Dies entsprach einer Leistung von knapp 400 mW vor dem Strahteiler.

2.3. Optische und elektronische Eigenschaften

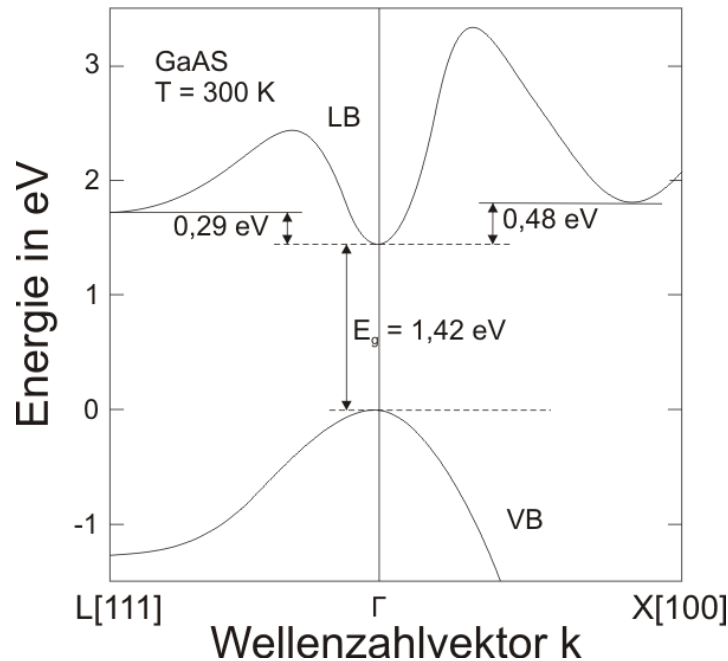


Abbildung 2.4.: Vereinfachte Bandstruktur von Gallium-Arsenid (GaAs) bei 300 K (aus: [Sch06])

Quantenpunkte) wurden mit ihren Ein- und Mehrteilchenzuständen sehr ausführlich bei Findeis [Fin01a] beschrieben und von Stufier erweitert [Stu05]. Auch zahlreiche Lehrbücher haben sich inzwischen dieses Themas ausführlichst angenommen [Bim99, Bry05, Wog97].

2.3.1. Energiezustände

Bei den zur Herstellung der hier eingesetzten Quantenstrukturen verwendeten Materialien Gallium-Arsenid (GaAs) und Indium-Arsenid (InAs) handelt es sich um direkte Halbleiter kubischer Symmetrie, d. h. ihr Leitungsbandminimum und das Valenzbandmaximum liegen beide übereinander am Γ -Punkt (Zentrum) der Brillouinzone (vgl. Abbildung 2.4).

Das Leitungsband (engl.: *Conduction Band*, CB) ist dabei s-artig (kugelsymmetrisch, Drehimpuls $L_C = 0$), das Valenzband (engl.: *Valence Band*, VB) p-artig ($L_V = 1$). Dadurch sind die energetisch niedrigsten Übergänge optisch erlaubt, da die Parität der Einhüllenden der Wellenfunktionen zwischen Anfangs- und Endzustand passend ist. Dieser Umstand macht das gesamte InAs/GaAs/AlGaAs-Materialsystem für optische Bauelemente

2. Grundlagen der Quantenpunkte

besonders gut geeignet. Im Gegensatz zum Leitungsband ist das Valenzband aufgrund der Spin-Bahn-Wechselwirkung entartet und es ergeben sich schwere ($J = 3/2$) und leichte Löcher ($J = 1/2$). Da die Quantisierungsenergie eines lokalisierten Teilchens umgekehrt proportional zu seiner Masse skaliert, sind für die niedrigsten Energieniveaus eines Quantenpunktes allerdings nur die schweren Löcher relevant. Bei In(Ga)As-QDs handelt es sich zudem um so genannte Typ-I-Quantenpunkte, die sowohl für Elektronen als auch für Löcher ein Potentialminimum darstellen. Im Einteilchenbild können daher Elektronen und Löcher analog beschrieben werden. Im einfachsten theoretischen Modell eines QDs werden die Einschlusspotentiale voneinander separiert. Für das Potential in lateraler Richtung wird ein symmetrischer harmonischer Oszillator angenommen. In z-Richtung dagegen wird nur das unterste, s-artige Energieniveau berücksichtigt, da hier die Quantisierungsenergien aufgrund der geringeren Abmessungen der QD-Struktur erheblich höher sind als in x- und y-Richtung. Das Niveauschema eines zweidimensionalen harmonischen Oszillators ergibt sich zu $E_{nm} = \hbar\omega_0(n + m + 1)$, denn die Schrödingergleichung eines zweidimensionalen harmonischen Oszillators lässt sich an dieser Stelle in die zweier eindimensionalen Oszillatoren separieren, deren Quantenzahlen mit n und m bezeichnet werden. Analog zur Atomphysik werden dabei die Zustände entsprechend ihrem Bahndrehimpuls $l = m - n = 0, 1, 2, \dots$ als s-, p-, d-, ...-Schale klassifiziert. Die Hauptquantenzahl $N = n + m$ liefert somit in dieser Näherung äquidistante Energieniveaus. Berücksichtigt man ferner die beiden bereits erwähnten möglichen Spineinstellungen, erhält man insgesamt eine Entartung von $2(N + 1)$. Die bekannte Auswahlregel für optische Übergänge ($\Delta l = \pm 1$; $\Delta m = 0, \pm 1$ und $\Delta s = 0$) wird im Halbleiter schon durch den s-Charakter der Blochwellen im Leitungsband gegenüber den p-artigen Blochwellen im Valenzband erfüllt. Die Quantenpunktorbitale bilden dabei die Einhüllende über die gitterperiodischen Blochwellen. Interband-Übergänge sind daher nur zwischen Quantenpunkt-Zuständen mit gleichem Bahndrehimpuls erlaubt, d. h. laut Auswahlregel $m = n = 0$. Zusätzlich muss für optische Übergänge noch der Spin berücksichtigt werden. Betrachtet man jeweils nur das unterste Niveau des Quantenpunktes, so ergeben sich für das Elektron die beiden Spineinstellungen $S_z = \pm 1/2$ und für das schwere Loch $J_z = \pm 3/2$ (wobei J : Gesamtdrehimpuls, ergibt sich aus der Kopplung von Spin und Bahndrehimpuls). Insgesamt erhält man so die vier in Abbildung 2.5 dargestellten Übergänge.

Aus dem Übergang $\pm 3/2 \rightarrow \mp 1/2$ resultiert ein Gesamtspin von 1, der durch ein zirkular polarisiertes Photon übertragen werden kann. Die Über-

2.3. Optische und elektronische Eigenschaften

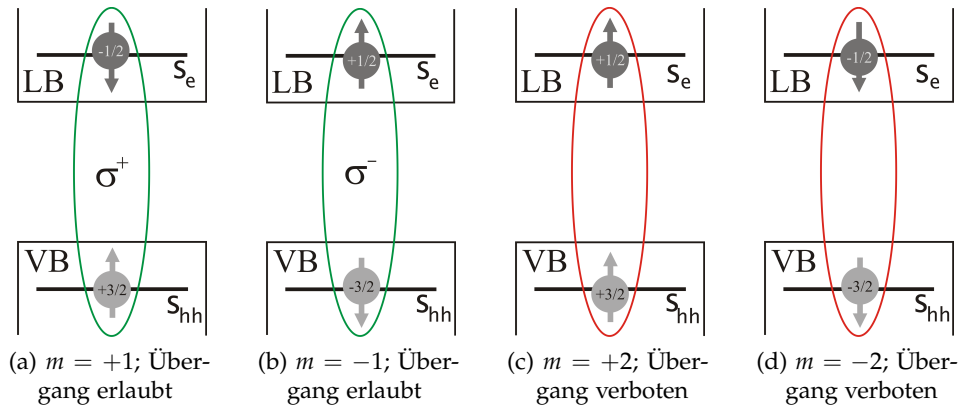


Abbildung 2.5.: Spineinstellung möglicher Anregungen des niedrigsten Energieniveaus eines einzelnen QDs. Nur die Fälle a) und b) (jeweils grün) sind dipol-optisch erlaubt, die roten Fälle c) und d) sind „dunkle“ Zustände, die z. B. erst in hohen magnetischen Feldern effektiv anregbar werden.

gänge $\pm 3/2 \rightarrow \pm 1/2$ ergeben einen Gesamtspin von 2 und sind damit keine dipol-optisch erlaubten Übergänge³. Bei Abweichung von dem angenommenen zylindersymmetrischen Potentialverlauf können in einem realen System jedoch Unterschiede zum diskutierten Verhalten auftreten. So können bei asymmetrischem Potential zum Beispiel auch optische Übergänge zwischen Zuständen mit unterschiedlichen Quantenzahlen erfolgen oder die Entartung der Energiezustände aufgehoben werden [Tsi97].

Exzitonen

Im Verlauf des Textes wurde bereits auf den einfachsten Fall eines Mehrteilchenzustandes im Quantenpunkt hingewiesen. Dieser ergibt sich bei Besetzung des QDs mit jeweils einem Elektron und einem Loch, d. h. einem einzelnen Exziton (Abkürzung: 1X). Abbildung 2.6 zeigt unter anderem schematisch die Besetzungsverhältnisse im Quantenpunkt für ein Exziton.

Die Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektron und Loch führt bereits im Volumenhalbleiter zu einer Energieerniedrigung (Renormalisierungsenergie etwa 4,2 meV) und damit zu einem gebundenen Zustand, dem Quasiteilchen Exziton. Im Quantenpunkt ist die Coulomb-Wechselwirkung durch die stärkere Lokalisierung der Wellenfunktionen noch zusätzlich

³Diese verbotenen Übergänge werden auch als „dunkle Exzitonen-Zustände“ bezeichnet.

2. Grundlagen der Quantenpunkte

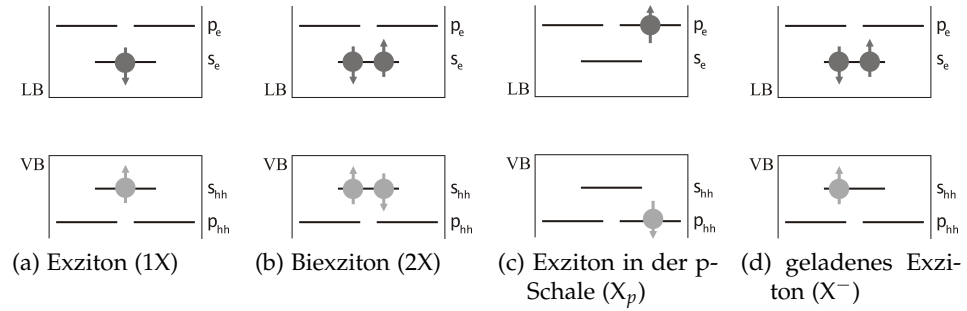


Abbildung 2.6.: Beispiele verschiedener Besetzungszustände in einem Quantenpunkt.

erhöht, in InGaAs/GaAs-QD beträgt die Coulombenergie ca. 25 meV und ist damit um den Faktor 5 größer [Bay98, Woj96]. Für rein optische Untersuchungen ist dieser Unterschied zu den Einteilchenzuständen im Grunde unerheblich, da hier ohnehin nur die Erzeugung oder Rekombination von (zwangsläufig gebundenen) Elektron-Loch-Paaren experimentell beobachtet werden kann. Bei Photostrømmessungen erfolgt die Detektion dagegen über einen Tunnelprozess, wobei Elektron und Loch im Allgemeinen unterschiedliche Tunnelzeiten besitzen. Beim ersten Tunnelprozess muss dabei zusätzlich zum Einschlusspotenzial des Quantenpunkts auch die Exziton-Bindungsenergie überwunden werden. Der danach noch verbliebene Ladungsträger wird dagegen durch den energetisch höher liegenden Einteilchenzustand beschrieben, weshalb seine Tunnelwahrscheinlichkeit nach dem ersten Tunnelereignis zunimmt.

Verfolgt man das Konzept des Exzitons als Quasiteilchens weiter, dann kann man durch Einbringung zusätzlicher Ladungsträger in den Quantenpunkt diesen laden und erhält somit neue Zustände: $1X^-$ in Anwesenheit eines zusätzlichen Elektrons und $1X^+$ bei einem zusätzlichen Loch. Zur Berechnung der entsprechenden Energieniveaus müssen dann neben der Coulombwechselwirkung auch noch Austausch- und Korrelationsenergien berücksichtigt werden. Diese Einflüsse führen zu einer Renormalisierung der Exziton-Bindungsenergie, ihr Vorzeichen und ihre Größe müssen im Einzelfall betrachtet werden. Bei den hier verwendeten InGaAs-Quantenpunkten kommen Theorie und Praxis zu einer Erniedrigung der Übergangsenergie von etwa 5 meV für den $1X^-$ -Zustand bzw. einer Energieerhöhung um 1,4 meV für den $1X^+$ -Fall [Fin01a, Fin01b].

Bi-Exzitonen

Fügt man dem mit einem Exziton besetzten Quantenpunkt nun nicht nur ein, sondern gleich zwei unterschiedliche Ladungsträger (also ein weiteres Exziton) hinzu, kommt es zu einer weiteren Renormalisierung der Energieniveaus, in den meisten Materialsystemen zu einer Energieerniedrigung ΔE_B . Im vorliegenden System beträgt diese Energie etwa 2,7 meV. Dadurch entsteht ein Komplex aus zwei miteinander wechselwirkenden Exzitonen, der als Biexziton (2X) bezeichnet wird (vgl. Abbildung 2.6). Für die strahlende Rekombination ergeben sich je nach Spineinstellung insgesamt wieder vier Möglichkeiten, analog zum Exziton-Fall (vgl. Abbildung 2.5). Allerdings sind auch in diesem Fall wieder nur zwei von diesen gemäß der optischen Auswahlregeln erlaubt. Der komplette strahlende Zerfall eines Biexzitons liefert dabei zwei Photonen unterschiedlicher Energie. Denn zuerst rekombiniert ein Exziton aus dem 2X-Zustand und danach des verbliebenen Exziton mit der etwas höheren 1X-Energie. Die Umkehrung dieses Prozesses ist die sequentielle optische Erzeugung eines Biexzitons. Dafür werden zwei Laserstrahlen unterschiedlicher Wellenlänge benötigt, welche jeweils resonant zur 1X- bzw. 2X-Energie sind. Umgekehrt kann mit monochromatischem Licht, dessen Wellenlänge der 1X-Resonanz entspricht, aufgrund der Renormalisierung nie mehr als ein Exziton zur selben Zeit erzeugt werden. Es besteht allerdings die Möglichkeit, beide Exzitonen gleichzeitig mittels eines Zwei-Photon-Prozesses zu erzeugen (vgl. Abschnitt 3.6). Dabei werden zwei gleichartige Photonen absorbiert, deren Energie jeweils um $\Delta E_B/2$ zur 1X-Resonanz erniedrigt ist. Dieser nichtlineare Effekt skaliert quadratisch mit der Laserleistung und ist daher nur bei hohen Intensitäten möglich. Neben der Selektivität in der Wellenlänge ergeben sich zusätzliche Auswahlregeln durch die Polarisation. Für einen vollkommen symmetrischen Quantenpunkt sind die beiden optisch erlaubten 1X-Übergänge zirkular polarisiert. Da linear polarisiertes Licht als Überlagerung zweier zirkular polarisierter Wellen interpretiert werden kann, ist die Erzeugung eines Exzitons grundsätzlich mit beliebiger Polarisation möglich. Im Biexziton sind dagegen sowohl das σ^+ - als auch das σ^- -polarisierte Exziton vertreten, sodass das 2X nur dann erzeugt werden kann, wenn auch in der Anregung beide Polarisationen vertreten sind [Bru94, Lan04a]. Eine genauere theoretische Beschreibung der kohärenten Wechselwirkung des Biexzitons mit intensiven Laserpulsen kann [Stu06] entnommen werden und findet sich in Auszügen auch in Abschnitt 3.6.

2. Grundlagen der Quantenpunkte

2.3.2. Feinstruktur

Aufgrund ihres selbstorganisierten, also relativ freien Wachstums zeigen solche Quantenpunkte oft eine leichte Asymmetrie zwischen der $[110]$ - und $[1\bar{1}0]$ -Richtung. Aufgrund der Austauschwechselwirkung zwischen den Ladungsträgern Elektron und Loch resultiert diese Asymmetrie in einer Aufspaltung der beiden optisch erlaubten Übergänge der s-Schale (grüne Fälle in Abbildung 2.5). Diese Aufspaltung liegt meist im Bereich einiger zehn bis 100 Mikro-Elektronenvolt und ist damit wesentlich geringer als die Renormalisierungsenergie unterschiedlicher Besetzungszustände. In erster Näherung sind die neuen, nicht-entarteten Eigenzustände entlang der $[110]$ - bzw. der $[1\bar{1}0]$ -Richtung linear polarisiert [Gam96, Bay99]. Im vorliegenden Quantenpunkt-System wurde bereits festgestellt, dass die beiden 1X-Übergänge zumindest nominell leicht elliptisch polarisiert sind. Durch eine geeignete Wahl der Anregungspolarisation lässt sich somit auswählen, welcher der beiden möglichen Übergänge angeregt werden soll.

Eine genaue Bestimmung der Feinstrukturaufspaltung gestaltet sich schwierig, da neben der Formasymmetrie auch die Verspannung und die Piezoelektrizität des Kristallgitters berücksichtigt werden müssen. Neuere Arbeiten zeigen, dass selbst absolut symmetrische Quantenpunkte eine Aufspaltung zwischen $[110]$ - und der $[1\bar{1}0]$ -Richtung zeigen, da die Zinkblendestruktur von III-V-Halbleiterkristallen ebenfalls nicht symmetrisch bezüglich dieser Richtungen ist [Bes05].

2.3.3. Stark-Effekt

Zur Beeinflussung von Eigenschaften eines Quantenpunktes bietet sich als einfache Methode das Anlegen eines lokalen elektrischen Feldes \vec{E} an. Dieses Feld soll in z-Richtung (Wachstumsrichtung) wirken und in erster Näherung für die x- und y-Richtung des Quantenpunktes vernachlässigbar sein. Somit beschränkt sich die Beschreibung der dabei ablaufenden Prozesse auf den eindimensionalen Fall eines Quantenfilms. Wie bereits erläutert spielt in z-Richtung meist wegen der starken Quantisierung nur das unterste, s-artige Quantisierungsniveau eine Rolle. Die Wirkung eines elektrischen Feldes besteht nun anschaulich darin, die Bänder zu verbiegen und damit die Wellenfunktionen im Quantenpunkt gegeneinander zu verschieben (vgl. Abbildung 2.7).

Bei diesem Vorgang entsteht ein Dipolmoment $\vec{\mu}$, das zu einer Erniedrigung der Übergangsenergie um $\Delta E = -\vec{\mu} \times \vec{E}$ führt. Bei niedrigen

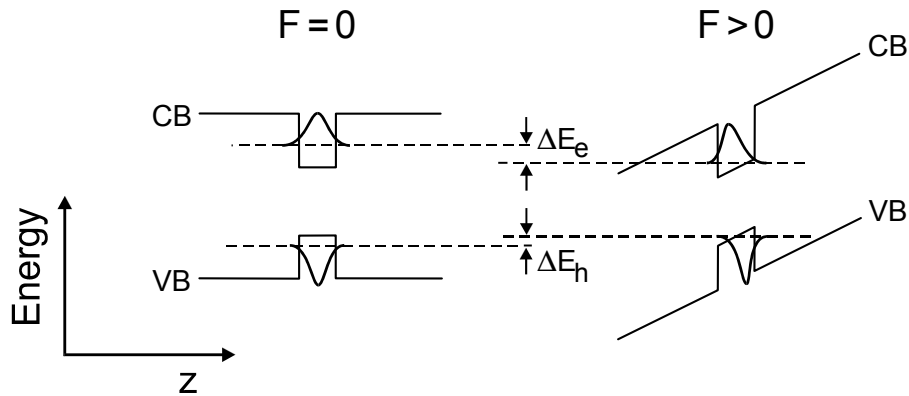


Abbildung 2.7.: Schematische Darstellung der Auswirkungen eines in z -Richtung angelegten elektrischen Felds F auf die optischen Übergänge im Quantentopf. Es kommt zu einer Rotverschiebung der optischen Übergänge und zu einer räumlichen Trennung der Wellenfunktionen von Elektron und Loch (aus: [Beh03]).

elektrischen Feldern ergibt sich somit eine quadratische Reduzierung der Übergangsenergie wenn man berücksichtigt, dass für diesen Fall das Dipolmoment selbst näherungsweise proportional zur elektrischen Feldstärke zunimmt. Die Abmessungen des Quantenpunktes begrenzen dieses Moment jedoch auf einen maximalen Wert, so dass bei hohen Feldern das Dipolmoment nurmehr linear mit der elektrischen Feldstärke anwächst. Nicht berücksichtigt sind in dieser groben, dennoch qualitativ ausreichenden Beschreibung Effekte durch eine Verringerung der Coulomb-Wechselwirkung aufgrund des durchschnittlich größeren Abstands zwischen Elektron und Loch sowie eine Änderung der Quantisierungsenergien. Entsprechende Übergangsmatrixelemente werden zudem durch die feldabhängige Verringerung des Überlapps von Elektron- und Lochwellenfunktion erniedrigt. Dieser gesamte Effekt wird als *Quantum Confined Stark Effect*, *QCSE* bezeichnet. Zusammengefasst lässt sich aber festhalten, dass durch das Anlegen eines einfachen elektrischen Feldes via den Stark-Effekt die Möglichkeit besteht, die Übergangsenergien eines Quantenpunktes abzustimmen. Die Energieniveaus lassen sich zwar um nur in relativ engen Grenzen variieren, die Einstellgenauigkeit jedoch ist dabei nahezu beliebig klein, denn dazu ist nur die Beherrschung von elektrischen Spannungen notwendig, was im allgemeinen als machbar gilt. Dieses Vorgehen gestattet somit die Durchführung von Photostromspek-

2. Grundlagen der Quantenpunkte

tren extrem hoher Auflösung, wie sich im Abschnitt 5, den experimentellen Ergebnissen, zeigt. In guter Näherung lässt sich der Verlauf der Stark-Verschiebung als Funktion des angelegten Feldes ($F = V_B/d$) parabolisch beschreiben [Fry00b]:

$$E = E_0 + p \cdot F + \beta \cdot F^2 = E_0 + \frac{p}{d} \cdot V_B + \frac{\beta}{d^2} V_B^2 \quad (2.1)$$

Dabei bezeichnet E_0 die (exzitonische) Übergangsenergie bei $F = 0$, p ist proportional zum permanenten Dipolmoment und β zur Polarisierbarkeit der Zustände im QD unter dem Einfluss eines elektrischen Feldes (dies ist der eigentliche QCSE).

Dabei beschränkt sich die Beeinflussbarkeit der Energieniveaus nicht nur auf Exziton-Zustände. Vielmehr können in ähnlicher Form auch die Biexzitonen energetisch beeinflusst werden, und das, wie in den Ergebnissen gezeigt werden wird, in analogem Umfang wie die Exzitonen (Abschnitt 5.2). Dabei unterscheiden sich natürlich im Detail z. B. die wirkenden Übergangsmatrixelemente und es kommen Einflüsse durch das Vorhandensein weiterer Ladungsträger hinzu. Das Prinzip der energetischen Beeinflussbarkeit der Übergänge bleibt aber bestehen.

2.4. Messmethoden

Die im Quantenpunkt ablaufenden Vorgänge (zumindest teilweise) sichtbar zu machen zählt zu den Aufgaben, die sich mit Hilfe mehrerer Ansätze lösen lassen. Egal, ob es sich dabei wie im Folgende vorgestellt um optische oder elektrische Signale handelt, die Interpretation der daraus resultierenden Messergebnisse kann immer nur Teile der Vorgänge enthüllen.

2.4.1. Photolumineszenz

Messungen der Photolumineszenz (PL) eignen sich besonders gut für eine erste Charakterisierung von Quantenpunktproben hinsichtlich ihrer optischen und elektronischen Eigenschaften, gerade weil theoretische Berechnungen der Spektren aufgrund vieler Unwägbarkeiten des Wachstums nur schwer möglich sind. Die diskreten Energieniveaus eines Quantenpunktes sollten dann dementsprechend auch zu scharfen Emissionspeaks im PL-Spektrum führen. Für die Anregung wird dabei meist ein Laser verwendet, dessen Energie über der Bandlücke des Matrixmaterials liegt.

Dadurch werden Ladungsträger im gesamten Volumen der Halbleiterprobe generiert, welche dann sowohl in den Wettinglayer als auch in die Quantenpunkte eingefangen werden können. Im Lumineszenzspektrum beobachtet man daher nicht nur die Linien der Quantenpunkte sondern auch das Signal des Wettinglayers und der Bandkante des Matrixmaterials. Dabei erhält man natürlich nur dann einzeln auflösbare Spektrallinien, wenn man sich auf die Detektion eines einzelnen QDs beschränkt.

Ein ganzes Ensemble von ihnen zeigt dagegen ein inhomogen verbreitertes Spektrum (vgl. Abbildung 2.8), da das selbstorganisierte Wachstum sich im Detail unterscheidende Quantenpunkte generiert, die zum Gesamtspektrum jeweils mit ihrem ganz eigenen Eigenenergien beitragen.

Das heißt im Umkehrschluss natürlich auch, dass die Breite einer Ensemble-PL als Maß für die Homogenität der erzeugten Quantenpunkte genommen werden kann. Analog dazu wird sich natürlich auch die genaue energetische Lage der Übergangsenergien von QD zu QD unterscheiden. Die Selektion einzelner Quantenpunkte wird im vorliegenden Fall durch die Verwendung von Proben nur geringer QD-Dichte erleichtert und abschließend durch eine Aluminium-Schattenmaske weiter verbessert.

Mit steigender Anregungsleistung werden die Energieniveaus im Quantenpunkt sukzessive besetzt. Bei niedriger Leistung beobachtet man im Fall eines ungeladenen Quantenpunktes nur die 1-Exziton-Linie (1X), bei steigender Leistung kommt dann die Biexziton-Linie (2X) sowie Rekombinationen aus höheren Schalen dazu (siehe Abbildung 2.9).

Die relative Stärke unterschiedlicher Linien gibt in diesen Messungen immer einen statistischen Mittelwert wieder, der durch die mittleren Einfang-, Relaxations- und optischen Rekombinationsraten der einzelnen Niveaus bestimmt wird. Eine typische leistungsabhängige Messung zeigt bei geringen Intensitäten eine linear anwachsende 1X-Linie. Bei höheren Intensitäten kommt eine quadratisch anwachsende 2X-Linie dazu, welche letztlich stärker als die 1X-Linie wird [Fin00a].

Nutzt man statt der nicht-resonanten Interband-Anregung einen resonanten Laser, so gelingt nur dann eine aussagekräftige PL-Messung, wenn sich Anregungs- und Emissionswellenlänge deutlich genug voneinander unterscheiden. Es bietet sich dann an, zunächst über höher gelegene Niveaus anzuregen und auszunutzen, dass dieser höherenergetische Zustand dann in den zu untersuchenden Zustand relaxiert. Ein solches Vorgehen wurde z. B. von Ester in vielen seiner Messungen gewählt (Anregungs-Photolumineszenz (engl.: *Photoluminescence Excitation, PLE*)) [Est08].

2. Grundlagen der Quantenpunkte

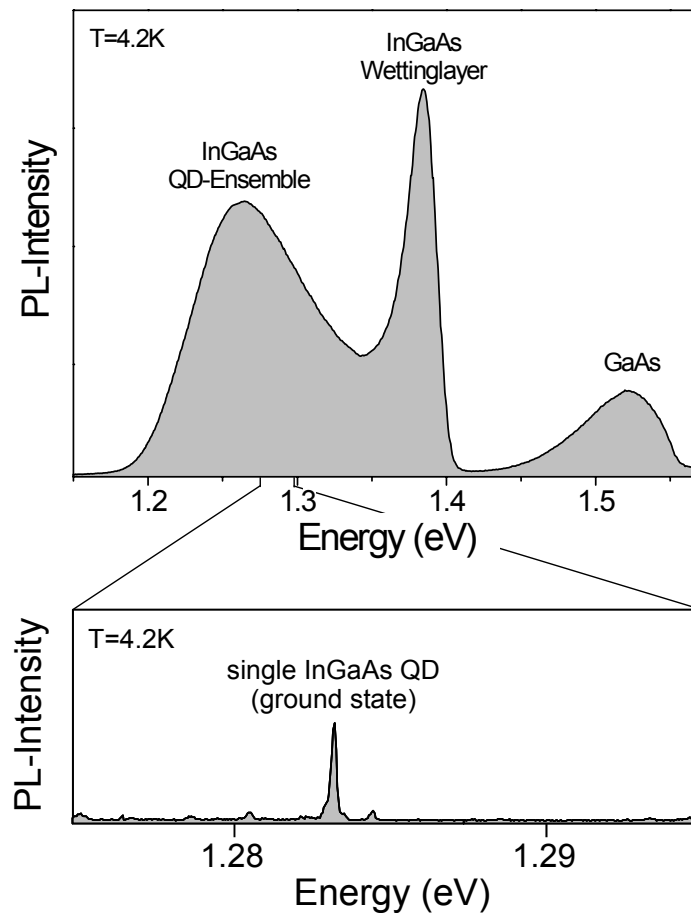


Abbildung 2.8.: Vergleich der Ergebnisse der PL-Spektroskopie am QD-Ensemble mit der an einem einzelnen QD [Beh03]. Das selbstorganisierte Wachstum der QDs resultiert in einer inhomogenen Verbreiterung der Spektren.

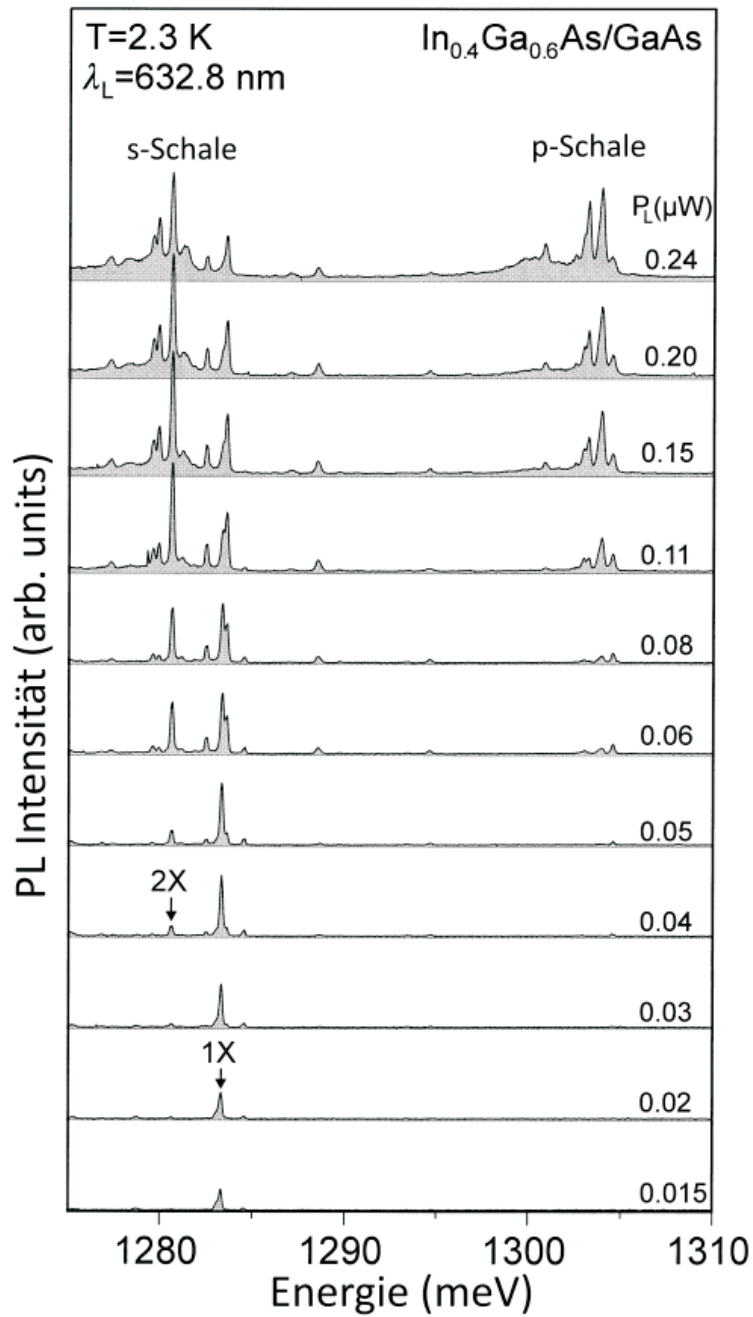


Abbildung 2.9.: Leistungsabhängige PL-Spektren eines einzelnen Quantenpunktes. In der s-Schale sind die Resonanzen des einzelnen Exzitons (1X) und des Biexzitons (2X) gekennzeichnet. Bei höheren Anregungsleistungen erscheinen zusätzlich Linien der p-Schale (aus:[Fin01a]).

2. Grundlagen der Quantenpunkte

2.4.2. Photostrom

Sind die Proben elektrisch kontaktiert, bietet sich dann zusätzlich die Möglichkeit, Absorptionsprozesse über den Photostrom zu detektieren [Cha00, Fry00a, Pat00, Beh03]. Die Anregung erfolgt dabei resonant, d. h. die spektrale Lage der QD-Niveaus wird über die Wellenlänge des Lasers adressiert. An die Probe wird über eine Dioden-Struktur zusätzlich eine Spannung angelegt, so dass die optisch erzeugten Ladungsträger aus dem Quantenpunkt heraustunneln können und einen Strom erzeugen. Je nach angelegter Spannung und damit internem elektrischen Feld kann die Tunnelzeit von wenigen Pikosekunden bis nahezu unendlich eingestellt werden. Ein messbares Photostromsignal erhält man natürlich nur, wenn die Tunnelzeit nicht (wesentlich) länger als die strahlende Lebensdauer des QD-Zustands ist, da sonst dieser die Oberhand gewinnt. Da die Detektion bei Photostrommessungen elektrisch erfolgt, kann auch eine resonante optische Anregung des Grundzustandes untersucht werden. Bei rein optischen Methoden ergeben sich sonst an dieser Stelle die erwähnten Probleme hinsichtlich der Unterscheidung zwischen Anregungs- und Detektionslicht.

Da im elektrischen Stromkreis alle Ladungsträger detektiert werden, ergibt sich ferner die Möglichkeit einer quantitativen Auswertung. Der Photostrom ist gegeben durch Tunnelrate τ und die Elementarladung ($I = e/\tau$), damit lassen sich unter geeigneten Voraussetzungen direkte Rückschlüsse von der Tunnelrate auf die Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunktes erzielen. Da zudem die Repetitionsrate des verwendeten Lasers bekannt ist, kann man bei Verwendung einer geeigneten Anregung (π -Pulse, vgl. Abschnitt 3.4) auch direkt auf den maximal messbaren Strom schließen: $I = f_{\text{Laser}} \cdot e$.

3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen

3.1. Einführung

Quantensysteme lassen sich aufgrund ihrer Natur im Allgemeinen nur schwer theoretisch vollständig beschreiben und experimentell untersuchen. Das einfachste nicht-triviale Quantensystem wird durch ein Zwei-Niveau-System repräsentiert, dass daher häufig als Ausgangspunkt von Untersuchungen dient. Die Beschreibung der Wechselwirkung von Licht und einem solchem System wird in verschiedenen Lehrbüchern theoretisch ausgearbeitet, einen ausführlichen Überblick bieten [All75, Mey91, Dem93]. Im Folgenden werden jedoch nur diejenigen theoretischen Überlegungen rekapituliert, die für das weitere Vorgehen relevant sind. Dabei werden in den meisten Fällen „nur“ auf das wesentliche reduzierte Herleitungen dargestellt, alles andere würde den Rahmen dieser Abhandlung sprengen.

3.1.1. Zwei-Niveau-Systeme

Der Vorteil eines Zwei-Niveau-System besteht zunächst darin, dass es grundsätzliche Aussagen über viele unterschiedliche physikalische Systeme treffen kann, da es sich nur um ein abstraktes theoretisches Modell handelt. Sein Aufbau mag auf den ersten Blick simpel erscheinen, bei näherer Betrachtung offenbaren sich jedoch schnell dessen nicht-trivialen Eigenschaften. In dieser Arbeit werden sowohl Exzitonen als auch Biexzitonen in Quantenpunkten als Zwei-Niveau-Systeme behandelt. Darüber hinaus können selbstverständlich auch einzelne elektronische Übergänge in Atomen, einzelne Spins oder noch abstraktere Konstrukte als (Zwei-Niveau-)Systeme behandelt werden (z. B. die Hyperfeinaufspaltung des $6^2S_{1/2}$ -Niveaus von Cäsium-133, oder kollektive Zustände von verschiedenen Gasen [Bri07]). Das letzte Beispiel zeigt exemplarisch, dass es dabei zunächst nicht darauf ankommt, ob das System tatsächlich nur aus zwei

3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen

Niveaus besteht. Es ist lediglich nötig, die Wechselwirkung mit dem von außen wirkenden Einfluss (im vorliegenden Fall also einem Lichtfeld) auf nur wenige Niveaus zu beschränken. Dies ist insbesondere dann der Fall, wenn Übergänge zwischen zwei Niveaus resonant angeregt werden und die spektrale Breite des in unserem Fall verwendeten Lasers deutlich geringer als der Abstand zum nächsten benachbarten optischen Übergang ist. Im Fall der hier verwendeten einzelnen Exzitonen (1X) bzw. Biexzitonen (2X) [Stu06] im Quantenpunkt stellt der leere QD das untere Niveau $|0\rangle$ und das einzelne (Bi-)Exziton das obere Niveau dar $|1\rangle$. Die Erzeugung des Exzitons erfordert dabei eine niedrigere Energie als die Erzeugung eines Biexzitons. Letzteres kann entweder aus dem schon mit einem Exziton besetzten QD erfolgen ($1X \rightarrow 2X$) oder bei ähnlicher Anregungsenergie wie ein Exziton über einen Zwei-Photon-Prozess aus dem leeren Quantenpunkt ($0 \rightarrow 2X$), vergleiche dazu auch Abschnitt 3.6).

Als Laser kommt ein Exemplar mit einer Pulsdauer von wenigen Piko-sekunden zum Einsatz (Abschnitt 4.1), um eine möglichst schnelle, aber gleichzeitig spektral hinreichend schmale Anregung zu erzielen.

3.1.2. Wechselwirkungen

Bereits erwähnt wurde, dass ein Zwei-Niveau-System von außen beeinflussbar sein muss, um es effektiv untersuchen zu können. Die Wechselwirkung zwischen einem Lichtfeld und solchen Systemen ist überaus komplex, bei ihrer nachfolgenden theoretischen Beschreibung werden allerdings (wie im Allgemeinen üblich) einige vereinfachende Näherungen gemacht, die nun kurz erläutert werden sollen.

Die semiklassische Theorie der Quantenelektrodynamik wird zumeist als Ausgangspunkt der Beschreibung dieser Vorgänge verwendet. Dabei wird das Zwei-Niveau-System quantenmechanisch behandelt, das Licht allerdings als klassische elektromagnetische Welle beschrieben. Weiterhin wird der Tatsache, dass das Quantensystem wesentlich kleiner ist als die Wellenlänge des Lichts (hier: $d_{\text{QD}} \approx 0,03 \text{ } \mu\text{m}$ im Vergleich zu $\lambda \approx 1 \text{ } \mu\text{m}$) Rechnung getragen, indem die räumliche Variation des elektrischen Feldes vernachlässigt wird, d. h. $\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}(t)$. Dieses Vorgehen wird auch als Dipolnäherung bezeichnet. Die Bezeichnung erklärt sich durch die Annahme, dass die einzige Wechselwirkung eines homogenen elektrischen Wechselfeldes mit dem Quantenpunkt hier über dessen Dipolmoment $\vec{\mu} = -e\vec{r}$ erfolgt¹. Der Quantenpunkt besitzt zwar auch ein

¹Je nach Schreibweise wird dieser Dipol über das Integral der Wellenfunktionen von

3.1. Einführung

statisches Dipolmoment in z-Richtung, für die Wechselwirkung mit dem Strahlungsfeld ist aber nur der dynamische Dipol des Übergangs in Polarisationsrichtung des Lichts bedeutsam. Am Ort des Quantenpunktes wird dann das oszillierende elektrische Feld wirksam: $\vec{E} = E_L \cdot \vec{e} \cdot \cos(\omega_L t)$. Dabei ist E_L die Amplitude, \vec{e} der normierte Polarisationsvektor und ω_L die Kreisfrequenz des Laserlichtes. Aus quantenmechanischer Sicht lässt sich ein Hamilton-Operator für die Wechselwirkung definieren, der sich aus dem entsprechenden Operator des ungestörten Systems H_{QD} und einem Wechselwirkungsteil V zusammensetzt. Die Wechselwirkungsenergie eines Teilchens mit einem Dipolmoment in einem elektrischen Feld ist $V = e \cdot \vec{r} \cdot \vec{E}(\vec{r}, t)$ bzw. hier $V = e \cdot \vec{r} \cdot \vec{E}(t)$. Die zeitliche Entwicklung dieses einem Lichtfeld ausgesetzten Zwei-Niveau-Systems wird durch die zeitabhängige Schrödinger-Gleichung beschrieben:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(\vec{r}, t) = H\psi(\vec{r}, t) = (H_{\text{QD}} + V)\psi(\vec{r}, t) \quad (3.1)$$

Unter der Annahme, dass nur zwei Niveaus effektiv an dem Vorgang teilnehmen, lässt sich eine Näherung für die Wellenfunktion angeben:

$$\psi(\vec{r}, t) = c_0(t) \exp(i\omega_0 t) \varphi_0(\vec{r}) + c_1(t) \exp(i\omega_1 t) \varphi_1(\vec{r}) \quad (3.2)$$

$$= c_0(t) |0\rangle + c_1(t) |1\rangle \quad (3.3)$$

$c_0(t)$ und $c_1(t)$ sind die zeitabhängigen Amplituden der stationären Eigenfunktionen $\varphi_0(\vec{r})$ und $\varphi_1(\vec{r})$. $|c_0(t)|^2$ bzw. $|c_1(t)|^2$ geben dabei die Wahrscheinlichkeit an, das System im Zustand $|0\rangle$ bzw. $|1\rangle$ anzutreffen; um die Normierungsbedingung zu erfüllen gilt daher: $|c_0(t)|^2 + |c_1(t)|^2 = 1$.

Abbildung 3.1 verdeutlicht nochmals die zugehörigen Niveaus und Größen. $\hbar\omega_0$ bzw. $\hbar\omega_1$ entsprechen den Energien der jeweiligen Niveaus, während $\hbar(\omega_1 - \omega_0) = \omega_{10} = \Delta E_{10}$ den Energieunterschied zwischen den Niveaus angibt.

Setzt man die Gleichung für $\psi(\vec{r}, t)$ in beide Seiten von Gleichung 3.1 ein und kürzt links $i\hbar$, so erhält man

Anfangs- und Endzustand (ψ_i bzw. ψ_f) oder das entsprechende Matrixelement ausgedrückt: $\vec{\mu} = \int \psi_i^*(\vec{r}) e\vec{r} \psi_f(\vec{r}) d^3r = \langle 0 | e\vec{r} | 1 \rangle$, mit der Elementarladung e und $e\vec{r}$ dem Dipoloperator in Matrixschreibweise.

3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen

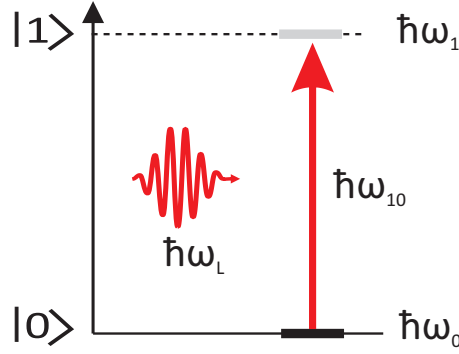


Abbildung 3.1.: Ein auf zwei Zustände reduziertes System. Licht der Frequenz $\omega_L/2\pi$ wechselwirkt mit dem Übergang ω_{10} näherungsweise sehr gut, wenn $\omega_L \approx \omega_{10}$ gilt, da die Kopplung zwischen anderen Energiezuständen aufgrund deren großer Verstimmung vernachlässigt werden kann.

$$\frac{\partial}{\partial t} \psi(\vec{r}, t) = [\dot{c}_0(t) |0\rangle + \dot{c}_1(t) |1\rangle + c_0(t)(-i\omega_0) |0\rangle + c_1(t)(-i\omega_1) |1\rangle] \quad (3.4)$$

$$H_{\text{QD}} \psi(\vec{r}, t) = c_0 E_0 |0\rangle + c_1 E_1 |1\rangle \quad (3.5)$$

$$V \psi(\vec{r}, t) = -e\vec{r} \cdot \vec{\epsilon} \cdot E_0 \cdot \cos(\omega_L t) (c_0 |0\rangle + c_1 |1\rangle) \quad (3.6)$$

Die Argumente für Raum und Zeit, \vec{r} und t werden hier ab jetzt der Übersichtlichkeit halber weggelassen. Multipliziert man nun Gleichung 3.1 sukzessive mit $\langle 1|$ und $\langle 0|$ jeweils von links, so ergibt sich²:

$$i\hbar \dot{c}_1 + c_1 \underbrace{\hbar\omega_1}_{E_1} = c_1 E_1 - E_0 \cos(\omega_L t) c_0 \langle 1 | \vec{d} | 0 \rangle \vec{\epsilon} \quad (3.7)$$

Daraus lassen sich mit dem elektrischen Dipoloperator $\vec{d} = -e\vec{r}$ nun für den idealen Fall zwei gekoppelte Differentialgleichungen für die zeitabhängigen Koeffizienten gewinnen:

$$\dot{c}_0 = \frac{i}{\hbar} E_0 d_{10}^{\epsilon} e^{-i\omega_{10}t} \cos(\omega_L t) c_1 \quad (3.8a)$$

$$\dot{c}_1 = \frac{i}{\hbar} E_0 d_{10}^{\epsilon} e^{i\omega_{10}t} \cos(\omega_L t) c_0 \quad (3.8b)$$

²Mit der Dirac-Notation gilt $\langle 0 | 1 \rangle = \langle 1 | 0 \rangle = 0$ und $\langle 0 | 0 \rangle = \langle 1 | 1 \rangle = 1$.

3.1. Einführung

Hierbei stellt $d_{10}^\epsilon e^{-i\omega_{10}t} = \langle 1 | \vec{d} | 0 \rangle \vec{\epsilon}$ die Projektion des Dipol-Matrixelementes auf die Polarisationsvektor dar. Dieses Matrixelement ist ein Maß für die Kopplungsstärke des betrachteten Übergangs zwischen $|0\rangle$ und $|1\rangle$. Wenn es verschwindet, gilt der Übergang als verboten. An dieser Stelle lässt sich auch bereits die Rabi-Frequenz einführen:

$$\Omega_0 = \frac{d_{10}^\epsilon E_0}{\hbar} \quad (3.9)$$

Unter Nutzung der Euler-Formel können die Gleichungen 3.8 folgendermaßen umgeschrieben werden:

$$\dot{c}_0 = i \frac{\Omega_0}{2} \left(e^{i(\omega_L - \omega_{10})t} + e^{-i(\omega_L + \omega_{10})t} \right) c_1(t) \quad (3.10a)$$

$$\dot{c}_1 = i \frac{\Omega_0}{2} \left(e^{-i(\omega_L - \omega_{10})t} + e^{i(\omega_L + \omega_{10})t} \right) c_0(t) \quad (3.10b)$$

Aus Gründen der Anschaulichkeit aber auch zur Vereinfachung der theoretischen Berechnungen wird an dieser Stelle im allgemeinen ein weiterer, vereinfachender Ansatz eingeführt, indem ein dynamisches Bezugssystem gewählt wird. Die damit verknüpfte Näherung wird als *Rotating frame approximation* bezeichnet. Wie man der obigen Gleichung entnimmt, tauchen nun Terme mit $\omega_L + \omega_{10}$ auf, die unter der Annahme nahresonanter Lichtfeld-QD-Kopplung sehr schnell oszillieren und deren kleiner Anteil an der Kopplung daher gegen Null geht und vernachlässigt wird. Vielmehr wird nur noch der Frequenzunterschied, also eine Verstimmung (engl.: *detuning*), $\delta = \omega_L - \omega_{10}$, betrachtet. Die Gleichungen 3.8 lassen sich nun erneut umschreiben:

$$\dot{c}_0 = i \frac{\Omega_0}{2} e^{i\delta t} c_1(t) \quad (3.11a)$$

$$\dot{c}_1 = i \frac{\Omega_0}{2} e^{-i\delta t} c_0(t) \quad (3.11b)$$

Auf diese Weise ist nun ein Zusammenhang zwischen den zeitabhängigen Konstanten und der Besetzungswahrscheinlichkeit des Systems hergestellt.

Diese Betrachtungsweise legt allerdings ein monochromatisches Laserfeld zugrunde, da nur dann die Rotationsgeschwindigkeit des Bezugssystems klar definiert ist. Für cw-Anregung ist diese Annahme annähernd erfüllt, bei gepulster Anregung ist die spektrale Breite der Pulse allerdings

3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen

nicht immer vernachlässigbar. Die hier wiedergegebenen analytischen Lösungen reichen für eine qualitative Beschreibung jedoch zumeist aus, selbst quantitative Aussagen werden teilweise noch gut wiedergegeben.

In den bisherigen Betrachtungen wurde von der Annahme ausgegangen, dass nur reine Zustände im System auftreten, denn nur solche können mit der Schrödinger-Gleichung korrekt wiedergegeben werden. In realen Systemen wie dem hier betrachteten Quantenpunkt hat man es jedoch auch mit der statistischen Superpositionen von Zuständen zu tun, da die Anregungen in diesem System nur über eine endliche Lebensdauer verfügen und unter Aussendung eines Photons spontan zerfallen können. Zur Berücksichtigung dieser Überlagerungen ist die Einführung einer Dichtematrix sinnvoll, mit deren Hilfe sich sowohl kohärente wie nicht-kohärente Zustandsmischungen beschreiben lassen. Die Dichtematrix wird wie folgt definiert:

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{00} & \rho_{01} \\ \rho_{12} & \rho_{11} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} c_0 c_0^* & c_0 c_1^* \\ c_1 c_0^* & c_1 c_1^* \end{pmatrix} \quad (3.12)$$

Die Elemente neben der Diagonalen werden auch als „Kohärenzen“ des Systems bezeichnet, während die beiden Elemente auf der Spur der Matrix die „Population“ der Systemzustände widerspiegeln. Erstere ergeben sich nur für kohärente Überlagerungszustände³, letztere geben die Wahrscheinlichkeit an, das System im Zustand $|0\rangle$ bzw. $|1\rangle$ vorzufinden. Befindet sich das System mit einer statistischen Wahrscheinlichkeit p_k im Quantenzustand $|\psi_k\rangle$, so schreibt sich der Dichteoperator zu:

$$\hat{\rho} = \sum p_k |\psi_k\rangle \langle \psi_k| \quad (3.13)$$

Die entsprechenden Dichtematrixelemente ρ_{ij} ergeben sich dann zu:

$$\rho_{ij} = \langle i | \hat{\rho} | j \rangle \quad (3.14)$$

Für reine Zustände gilt daher $\text{Spur}(\rho^2) = \text{Spur}(\rho) = 1$, für gemischte Zustände dagegen $\text{Spur}(\rho^2) < 1$.

³Sind sie gleich Null, so sind die Phasen zwischen den Zuständen $|0\rangle$ und $|1\rangle$ vollständig undefiniert.

3.2. Optische Bloch-Gleichungen und die Bloch-Kugel

Bisher wurden die Dichtematrixelemente nur stationär betrachtet. Will man nun ihre Zeitentwicklung berücksichtigen, leitet man sie (Gleichung 3.12) nach dieser Größe ab. Dies ergibt beispielsweise für ρ_{00} :

$$\frac{d}{dt}\rho_{00} = \frac{d}{dt}(c_0 c_0^*) = \dot{c}_0 c_0^* + c_0 \dot{c}_0^* \quad \text{mit 3.11} \quad i\frac{\Omega_0}{2} (e^{i\delta t}\rho_{10} - e^{-i\delta t}\rho_{01}) \quad (3.15)$$

Analog erhält man auch die Differenzialgleichungen für die anderen Matrixelemente. Zudem lässt sich jetzt noch die Wirkung der spontanen Emission berücksichtigen. Da dabei Population aus dem angeregten Zustand verloren geht, ergibt sich eine Dämpfung der Nebendiagonalelemente mit der Rate $\gamma/2$ und der Population im angeregten Zustand mit γ . Insgesamt erhält man so die Optischen-Bloch-Gleichungen⁴ (engl.: *Optical Bloch Equations, OBE*):

$$\frac{d}{dt}\rho_{00} = +\gamma\rho_{11} + i\frac{\Omega_0}{2} (\tilde{\rho}_{10} - \tilde{\rho}_{01}) \quad (3.16a)$$

$$\frac{d}{dt}\rho_{11} = -\gamma\rho_{11} + i\frac{\Omega_0}{2} (\tilde{\rho}_{01} - \tilde{\rho}_{10}) \quad (3.16b)$$

$$\frac{d}{dt}\tilde{\rho}_{01} = -(\gamma/2 + i\delta)\tilde{\rho}_{01} + i\frac{\Omega_0}{2} (\rho_{11} - \rho_{00}) \quad (3.16c)$$

$$\frac{d}{dt}\tilde{\rho}_{10} = -(\gamma/2 - i\delta)\tilde{\rho}_{10} + i\frac{\Omega_0}{2} (\rho_{00} - \rho_{11}) \quad (3.16d)$$

Dabei gilt $\tilde{\rho}_{01} = e^{-i\delta t}\rho_{01}$ und $\tilde{\rho}_{10} = e^{i\delta t}\rho_{10}$. Leicht lässt sich nun zeigen, dass $\rho_{00} + \rho_{11} = \text{const.} = 1$ und $\rho_{01} = \rho_{10}^*$ ist. Damit sind die vier OBEs nicht mehr unabhängig voneinander. Aus Anschaulichkeitsgründen lassen sich die Matrixelemente auch mit Hilfe des sogenannten Blochvektors (u, v, w) beschreiben. Seine Komponenten sind definiert durch:

$$u = \tilde{\rho}_{01} + \tilde{\rho}_{10} = 2 \text{Re}(\tilde{\rho}_{01}) \quad (3.17a)$$

$$v = i(\tilde{\rho}_{10} - \tilde{\rho}_{01}) = 2 \text{Im}(\tilde{\rho}_{01}) \quad (3.17b)$$

$$w = \rho_{11} - \rho_{00} \quad (3.17c)$$

⁴Diese Gleichungen wurden 1946 von Felix Bloch (Nobelpreis für Physik 1952) zuerst für die Kernspinresonanz entwickelt.

3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen

u bzw. v ist dabei die dispersive bzw. absorptive Komponente des Blochvektors. w wird als Inversion bezeichnet und stellt die Besetzungsdifferenz zwischen Grundzustand $|0\rangle$ und angeregtem Zustand $|1\rangle$ dar bzw. eine Besetzungswahrscheinlichkeit. Für die beiden Extremwerte gilt also

$$w = \begin{cases} -1 & \text{System im Grundzustand} \\ +1 & \text{System im angeregten Zustand} \end{cases} \quad (3.18)$$

Für die Besetzungswahrscheinlichkeit des oberen Zustandes lässt sich folglich formulieren:

$$P_{|1\rangle} = \frac{w + 1}{2} \quad (3.19)$$

Mittels des Blochvektors lassen sich die OBEs nun recht übersichtlich formulieren:

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} \Omega_0 \\ 0 \\ \delta \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix} - \underbrace{\gamma \begin{pmatrix} u/2 \\ v/2 \\ w+1 \end{pmatrix}}_{\text{Dämpfungsterm}} \quad (3.20)$$

Liegt keine Dämpfung vor, ergibt sich analog zu den klassischen mechanischen Kreiselgleichungen, dass obige Gleichung eine Präzessionsbewegung des Blochvektors um die Achse $(-\Omega_0, 0, -\delta)$ mit einer Kreisfrequenz $\Omega = \sqrt{\Omega_0^2 + \delta^2}$. Außerdem lässt sich leicht zeigen, dass sich der Blochvektor dann immer auf der Oberfläche einer Kugel mit Einheitsradius (Abbildung 3.2) bewegt, d. h.

$$u^2 + v^2 + w^2 = 1 \quad (3.21)$$

Im Fall mit Dämpfung bewegt sich der Blochvektor dementsprechend innerhalb dieser Kugel, die aus naheliegenden Gründen auch als Blochkugel bezeichnet wird.

Ergänzend kann man formulieren, dass jeder reine Zustand des Zwei-Niveau-Systems eindeutig einem auf der Einheitssphäre liegenden Blochvektor entspricht, während gemischte Zustände innerhalb der Kugel liegen und keine vollständigen Angaben über sie möglich ist. Die Messung eines Zustandes projiziert nun den Blochvektor auf die w -Achse und stellt damit direkt ein Maß für die Besetzungswahrscheinlichkeit dar. Die in u und v kodierte Phase kann mit einer solchen einfachen Projektionsmessung jedoch nicht extrahiert werden. Weitere Überlegungen zeigen, dass u und

3.2. Optische Bloch-Gleichungen und die Bloch-Kugel

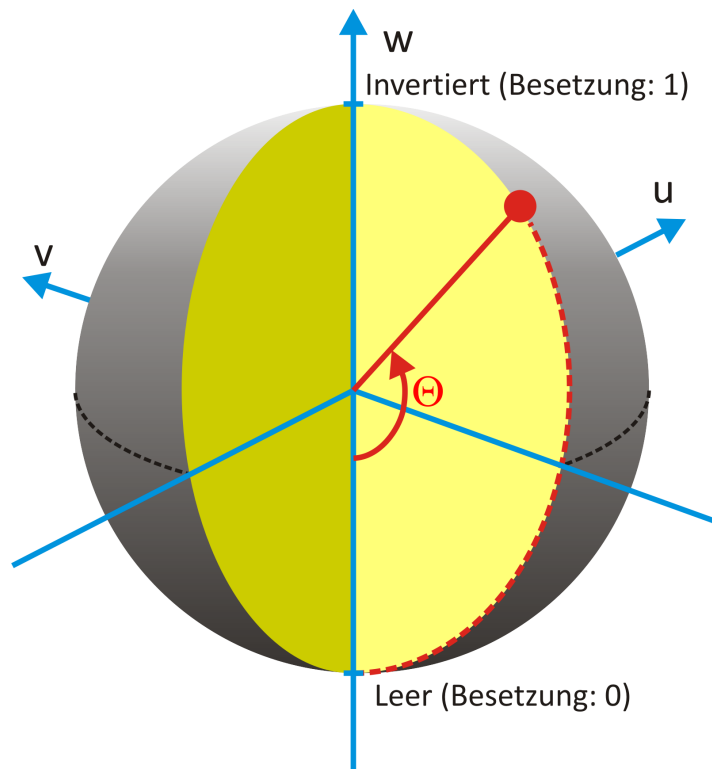


Abbildung 3.2.: Die Blochkugel kann anschaulich die kohärente Anregung eines Zwei-Niveau-Systems darstellen. u - bzw. v -Achse werden als dispersive bzw. absorptive Komponente des Blochvektors bezeichnet. w wird Inversion genannt und stellt die Besetzungswahrscheinlichkeit des Systems dar.

v ebenfalls anschaulich beschrieben werden können. Erstere Komponente ist proportional zum Dipolmoment, das in Phase mit dem E -Feld oszilliert, die letztere ist proportional zum Dipolmoment, das 90° außer Phase oszilliert. Man nennt dies auch die Quadratur-Komponente. Die oben ebenfalls verwendete Bezeichnung als absorptive Komponente rührt von der Tatsache her, dass die mittlere absorbierte Leistung von v abhängt, da sie über die optischen Blochgleichungen direkt mit der Verstimmung δ verknüpft und daher beeinflussbar ist.

3.3. Lebensdauer und Dephasierung

Ein reales Zwei-Niveau-System kann jedoch nie vollkommen von der Außenwelt (anderen Zuständen des Systems, Ladungsträgern, etc.) abgeschirmt werden und wird daher zwangsläufig beeinflusst. Im Besonderen wird hierdurch die kohärente Überlagerung der Zustände gestört, d. h. durch spontane Emission von Strahlung verliert das System seine Kohärenz, was in der Rabi-Oszillation zu einer Dämpfung führt (in Abschnitt 3.4.2 wird darauf noch näher eingegangen). Durch die Zeit, die dem angeregten Zustand verbleiben, bis seine Besetzungswahrscheinlichkeit auf $1/e$ abgefallen ist (T_1), wird also eine obere zeitliche Grenze definiert, während der kohärente Manipulationen möglich sind. Klassischer formuliert handelt es sich bei dem betrachteten System und einen elektrisch geladenen Oszillator, der während seiner Schwingung Energie in Form von Strahlung abgibt. Damit ändern sich sowohl die Oszillation (also die Anregung) selbst, als auch die Amplitude der Strahlung. Beide nehmen exponentiell ab und führen dazu, dass das Frequenzspektrum der abgegebenen Strahlung nicht mehr rein monochromatisch ist, sondern sich auffächert. Fourier-transformiert ergibt sich somit ein Lorentz-förmiges spektrales Strahlprofil:

$$A(t) = A_0 e^{-\gamma t} e^{i\omega t} \Rightarrow I(\omega) = I_0 \frac{\gamma^2}{(\omega - \omega_0)^2 + \gamma^2} \quad (3.22)$$

2γ gibt dabei die Halbwertsbreite (engl.: *Full Width Half Maximum*, *FWHM*) an, I_0 das Maximum. Im Energiebereich gilt dementsprechend $\Delta E = \hbar \Delta \omega$ oder auch für die Linienbreite $\Gamma_0 = \hbar 2\gamma$. Diese lässt sich mit der Lebensdauer T_1 verknüpfen und liefert die natürliche Linienbreite:

$$\Gamma_0 = \frac{\hbar}{T_1} \quad (3.23)$$

Aufgrund der Definition der Lebensdauer stellt diese Größe also eine untere Grenze für die tatsächlich beobachtbare Linienbreite des Systems dar.

Bereits in Gleichung 3.20 war ja bereits ein Dämpfungsterm eingefügt, der nun mit Hilfe von Zeitkonstanten gedeutet werden kann:

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} \Omega_0 \\ 0 \\ \delta \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} u/T_2 \\ v/T_2 \\ \delta/T_1 \end{pmatrix} \quad (3.24)$$

3.3. Lebensdauer und Dephasierung

Die Lebensdauer oder Zerfallszeit T_1 hängt also mit der Besetzungswahrscheinlichkeit w des Systems zusammen und wird als longitudinale Lebensdauer bezeichnet. In ihr sind alle inelastischen Einflüsse enthalten. Hingegen zeigen die Komponenten u und v eine andere charakteristische Lebensdauer, die als T_2 bezeichnet wird (transversale Lebensdauer) und zum Ausdruck bringt, dass auch elastische Prozesse wie Phononenstreuung zu einem Verlust der Kohärenz beitragen können, auch wenn die Besetzung des Systems davon nicht beeinflusst wird. Diese die Phasenlage des Zustandes beschreibende Größe wird homogene Linienbreite genannt:

$$\Gamma = \frac{2\hbar}{T_2} \quad (3.25)$$

Im allgemeinsten Fall berücksichtigt man nun noch alle Prozesse, die zwar zu einem Verlust der Phasenkohärenz jedoch nicht zu einer Änderung der Besetzung führen (engl.: *pure dephasing*), also beispielsweise eine Exziton-Phonon-Kopplung:

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \sum_i \frac{1}{T_i^*} \quad (3.26)$$

Dies bedeutet zusammengefasst also, dass sich die Phase eines Zustandes oder auch seine kohärente Beeinflussbarkeit zum einen durch pure Dephasierung als auch durch den schlichten Zerfall zerstören lässt. In vielen physikalischen Systemen ist die Dephasierungszeit T_2 erheblich kürzer als die Zustands-Lebensdauer T_1 . Allerdings kommt es in selbstorganisierten Quantenpunkten wie den vorliegenden zu sehr langen Dephasierungszeiten [Lan04b]. Dies lässt darauf schließen, dass reine Dephasierungsprozesse hier nur eine untergeordnete Rolle spielen und sich Gleichung damit vereinfacht darstellen lässt:

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} \quad (3.27)$$

Die Zustände der hier vorliegenden Zwei-Niveau-Systeme können über verschiedene Kanäle zerfallen:

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_{\text{esc}}(V)} + \frac{1}{\tau_{\text{rel}}} \quad (3.28)$$

Für den Grundzustand des Exzitons bezeichnet dabei $1/\tau_r$ den Prozess der optischen Rekombination und $1/\tau_{\text{esc}}(V)$ den von der Vorspannung abhängigen Tunnelprozess. Der angeregte Zustand eines Exzitons dagegen

3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen

kann sowohl durch Relaxation in den Grundzustand ($1/\tau_{\text{rel}}$), als auch durch optische Rekombination zerfallen. Das bedeutet natürlich, dass im Falle der kohärenten Grundzustandsmanipulation $t_{\text{rel}} \rightarrow \infty$ geht und T_1 hauptsächlich durch den schnellsten Prozess bestimmt wird. Die Dephasierung des exzitonischen Grundzustandes ist dann also folgendermaßen gegeben:

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\tau_r + \tau_{\text{esc}}(V)} \right) \quad (3.29)$$

Stellt sich eine Tunnelzeit $\tau_{\text{esc}}(V)$ ein, die kürzer als diejenige der optischen Rekombination ist (τ_r), so wird die Dephasierungszeit T_2 dementsprechend hauptsächlich von Tunnelprozessen beeinflusst. Die Lebensdauer des Zustandes im Quantenpunkt stellt dann auch eine untere Grenze für die homogene Linienbreite Γ_{hom} dar [Wog97]:

$$\Gamma_{\text{hom}} = \frac{2\hbar}{T_2} \quad (3.30)$$

In typischen Quantenpunkten (so auch in unserem) findet man Lebensdauern des Exzitons von $T = 300$ ps, was über obige Gleichung zu sehr schmalen Linienbreiten von hier $\Gamma_{\text{hom}} = 4,4$ μeV führt. Die Detektion solch feiner Unterschiede kann natürlich nur durch einen experimentellen Aufbau gelingen, der dazu eine noch bessere Energieauflösung bereitstellt. Die Linienbreite lässt sich allerdings auch direkt aus Doppelpulsexperimenten (vgl. Abschnitt 5.3.2) bestimmen. Eine weitere Schwierigkeit stellt die optische Detektion eines ebenfalls optisch resonant angeregten Grundzustandes des Systems dar, da sowohl Anregung als auch Emission bei der gleichen Wellenlänge stattfinden. Als Ausweg bieten sich hier Absorptionsmessungen an [Ale03, Hog04] oder als Mittel der Wahl die Messung von Photostromsignalen wie im vorliegenden Fall (Abschnitt 5). Dazu wird ein Zustand resonant optisch angeregt und der Strom detektiert, der sich nach Tunnelprozessen einstellt.

3.4. Rabi-Oszillationen des Exzitons

Auf die Möglichkeit einer kohärenten Anregung eines quantenmechanischen Zwei-Niveau-Systems mittels des Strahlungsfeldes eines Lasers und dessen Manipulation wurde ja schon in einem der vorausgegangenen Abschnitte eingegangen. Während sich bei kontinuierlichen Anregung allerdings nur die statistische Besetzung des Zwei-Niveau-Systems

beeinflussen lässt, kann bei kohärenter Anregung jeder beliebige Zustand auf der Blochkugel gezielt mit Hilfe geeigneter Laserpulse eingestellt werden. Als grundlegendes Experiment in diesem Bereich darf der Nachweis von Rabi-Oszillationen gelten. Dabei wird die Besetzung in Abhängigkeit von den Anregungsparametern (Anregungsdauer und -amplitude) gemessen und im Gegensatz zum Sättigungsverhalten im stationären Grenzfall eine Oszillation zwischen den beiden Extremwerten 0 und 1 beobachtet. Die Frequenz dieses Vorganges wird daher als Rabi-Frequenz bezeichnet (Gleichung 3.9)⁵. Dieser ideale Vorgang wird allerdings durch spontane Emission gedämpft, wie bereits Gleichung 3.20 zeigt. Da Rabi-Oszillationen die Grundlage für nahezu alle weiterführenden Experimente im Bereich der kohärenten Kontrolle darstellen, sind mittlerweile allein auf dem Gebiet der Halbleiter-Quantenpunkte zahlreiche Veröffentlichungen zu diesem Thema erschienen [Sti01, Kam01, Hto02, Zre02, Bor02, Bes03, Mul04b, Wan05, Uno05, Pat05].

3.4.1. Exakte Resonanz

Augenscheinlich lassen sich die Optischen Blochgleichungen (3.20) sehr übersichtlich schreiben, wenn man von resonanter Anregung des Zwei-Niveau-Systems ausgeht (Verstimmung $\delta = \omega_L - \omega_{10}$) und keine Dämpfung annimmt:

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} \Omega_0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix} = \Omega_0 \cdot \begin{pmatrix} 0 \\ w \\ -v \end{pmatrix} \quad (3.31)$$

Die Dispersionskomponente u ist also zeitlich konstant. Wie man leicht sieht, lassen sich die Lösungen für v und w als Schwingungen darstellen. Mit einem Exponentialansatz $w = Ae^{i\omega t}$ ergibt sich $\omega = \pm\Omega$. Mit dieser Rabi-Frequenz erhält man also für die Inversion:

$$w = A \left(e^{i\Omega_0 t} + e^{-i\Omega_0 t} \right) = 2A \cos(\Omega_0 t) \quad (3.32)$$

Betrachtet man ein zunächst im Grundzustand befindliches System ($w(t=0) = -1$, vgl. Fallunterscheidung 3.18), so erhält man nach zusätzliche Anwendung eines Additionstheorems:

⁵Isaac Isidor RABI (1898-1988) beobachtete solche Oszillationen bei der Untersuchung von Spin-Flip-Prozessen [Rab36, Rab37]. Er erhielt 1944 den Nobelpreis für Physik.

3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen

$$w = 2 \sin^2 \left(\frac{\Omega_0 t}{2} \right) - 1 \quad (3.33)$$

Diese Besetzungssoszillation schwingt also exakt mit der Rabi-Frequenz. Der Ausdruck $\Omega_0 t$ wird auch als Pulsfläche Φ bezeichnet.

Liegt ein exzitonisches System vor, so lässt sich die Besetzungswahrscheinlichkeit des oberen Zustandes $|1X\rangle$ (ein Exziton) mit Gleichung 3.19 also so formulieren:

$$P_{|1X\rangle} = \frac{w+1}{2} = \sin^2 \left(\frac{\Omega_0 t}{2} \right) = \sin^2 \frac{\Phi(t)}{2} \quad (3.34)$$

Um auch zeitlich veränderliche antreibende Felder E erfassen zu können (z. B. im Falle gepulster Anregung) wird eine integralen Schreibweise gewählt⁶:

$$\Phi(t) = \mu \int_0^t E(t') dt' \quad (3.35)$$

μ bezeichnet hier die Komponente des Dipol-Matrixelementes parallel zu \vec{E} , der Maximalamplitude des antreibenden Feldes.

Zwei wichtige Anregungen werden sehr oft eingesetzt:

$\pi/2$ -Puls: $\Phi = \pi/2$ Startet man mit einem System im Grundzustand, so erzeugt ein $\pi/2$ -Puls eine kohärente Überlagerung zwischen dem Grund- und angeregten Zustand. Dieser Zustand besitzt ein oszillierendes maximales Dipolmoment.

π -Puls: $\Phi = \pi$ Ein System im Grundzustand kann durch einen π -Puls komplett in den angeregten Zustand gebracht werden. Umgekehrt kann ein System im angeregten Zustand komplett in den Grundzustand überführt werden. Allgemein werden unter der Einwirkung eines π -Pulses die Amplituden zwischen den Zuständen $|0\rangle$ und $|1\rangle$ getauscht.

3.4.2. Reales System

Das oben beschriebene System gibt natürlich nur einen idealisierten Zustand wieder, der in realita nicht gegeben ist. Vielmehr können Einflüsse

⁶Unser Lasersystem erzeugt annähernd Gauss-förmige Pulse, die sich wie folgt beschreiben lassen: $E(t) = E_0 \exp \left(-\frac{(t-t_0)^2}{2\sigma^2} \right)$

anderer Zustände und der immer auch anzutreffenden weiteren Ladungsträger nie ganz ausgeschlossen werden. Das führt dann unweigerlich zu Dephasierungseffekten, auch wenn die Besetzung der Zustände selbst unter Umständen gar nicht beeinträchtigt wird. Die Koheränz wird also beeinträchtigt, was sich in einer Dämpfung der Rabi-Oszillation bemerkbar macht, die bei höheren Pulsflächen stärker wird. Trägt man dieser Dämpfung mit einem Dämpfungsparameter γ Rechnung, so ergibt sich phänomenologisch die folgende Besetzungswahrscheinlichkeit für den oberen Zustand:

$$P_{|1X\rangle} = e^{-\gamma\Omega_0 t} \left(\sin^2 \left(\frac{\Omega_0 t}{2} \right) - \frac{1}{2} \right) + \frac{1}{2} \quad (3.36)$$

Für große Pulsflächen geht die Funktion also gegen $1/2$ (vgl. Abbildung 3.3).

3.4.3. Verstimmung

Bereits erwähnt wurde, dass bei resonanter Anregung eines Zwei-Niveau-Systems mit einem Laserpuls die Phasenbeziehung zwischen diesem und dem System konstant ist. Das bedeutet die u -Komponente des Blochvektors war gleich Null (vgl. Gleichung 3.20 ohne Dämpfung). Hat man es aber mit einer verstimmten Anregung zu tun ($\delta \neq 0$), so ergeben sich also zusätzliche Anteile in der u - v -Ebene, da sich die Phase des Systems zeitlich anders entwickelt als die feste Phase des Lichtfeldes. Bereits gezeigt wurde, dass sich dann eine Präzessionsbewegung des Blochvektors um die Achse $(-\Omega_0, 0, -\delta)$ ausbildet (Abschnitt 3.2). Auch die Kreisfrequenz dieser Bewegung weicht dann von der idealen Rabi-Frequenz ab (verallgemeinerte Rabi-Frequenz Ω) und für die Besetzungswahrscheinlichkeit des oberen Zustandes ergibt sich somit (Annahme: $P_{|1X\rangle}(t=0) = 0$):

$$P_{|1X\rangle} = \frac{\Omega_0^2}{\Omega^2} \sin^2 \left(\frac{\Omega t}{2} \right) \quad \text{mit} \quad \Omega = \sqrt{\Omega_0^2 + \delta^2} \quad (3.37)$$

Die Amplitude der Rabi-Oszillationen (also die Besetzung) erreicht also nicht mehr die Maximalwerte 0 und 1.

Abbildung 3.3 zeigt sowohl den Fall der einfachen Dämpfung wie auch eine Rabi-Oszillation bei leichter Verstimmung. Die obige Beschreibung gilt jedoch nur für den Grenzfall einer Anregung des Systems mit monochromatischen Rechteckpulsen, da Ω_0 in diesen Fällen zeitlich konstant ist. Denn diese Frequenz geht in den modifizierten Vorfaktor oben quadratisch ein, daher kann sie nicht mehr einfach als effektive Durchschnittsfrequenz

3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen

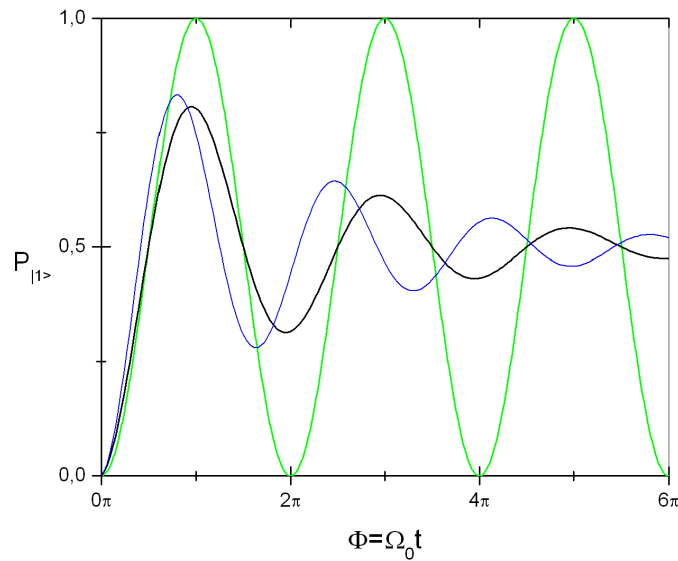


Abbildung 3.3.: Beispiele für Rabi-Oszillationen. grün: ohne Dephasierung und Verstimmung; schwarz: mit Dämpfung aber ohne Verstimmung; blau: mit Dephasierung und leichter Verstimmung (aus: [Est08])

betrachtet werden. Zusätzlich kann im realen Experiment natürlich auch nicht von einem perfekt monochromatischen Puls ausgegangen werden, dieser ist spektral vielmehr deutlich verbreitert. Daher hat man es im Experiment mit einer Vielzahl von Verstimmungen zu tun. Die Berücksichtigung all dieser Faktoren ist nicht trivial; auf eine eingehendere Diskussion wird an dieser Stelle verzichtet.

3.5. Ramsey-Interferenzen des Exzitons

In den bisherigen Überlegungen zur Manipulation des Bloch-Vektors auf der Bloch-Kugel wurden nur die Auswirkungen und Eigenschaften eines einzelnen Pulses betrachtet. Deutlich umfassendere Möglichkeiten der Beeinflussung (hier wird die Drehung um die u-Achse betrachtet) ergeben sich bei der Verwendung von mehreren (zwei) Pulsen. In einem solchen Szenario legt der erste das sich im Zustand $|0\rangle$ befindende System treffende Laserpuls eine Phase fest. Wenn der zweite Puls in Phase mit dem ersten ist, ändert er die Rotationsachse und auch die Richtung der Rotation auf der Blochkugel nicht. Das bedeutet, zu der ersten Drehung

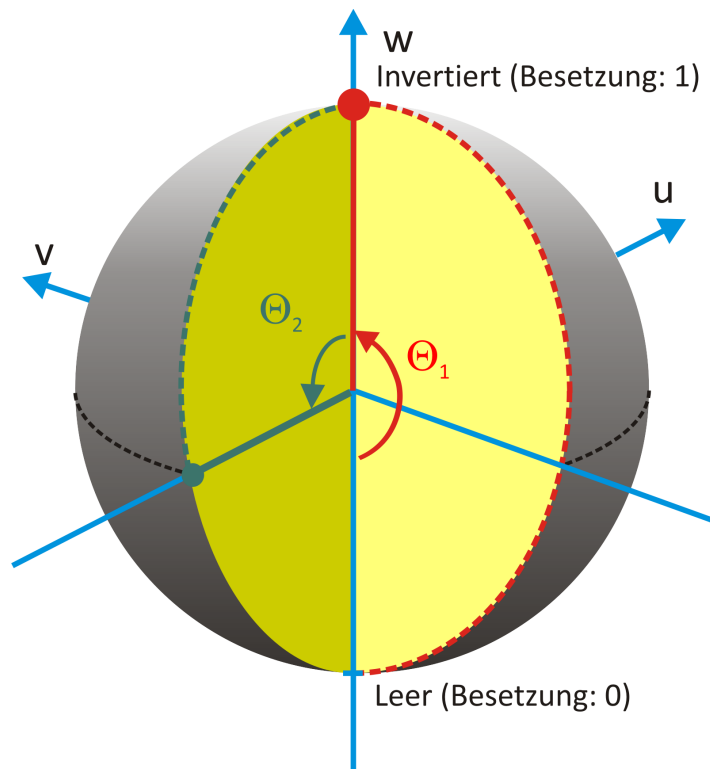


Abbildung 3.4.: Darstellung auf der Blochkugel: Anregung eines Zwei-Niveau-Systems mit einem π -Puls, gefolgt von einem $\pi/2$ -Puls und Phasenverschiebung: 90° .

um die u-Achse tritt eine weitere Rotation hinzu, die im resonanten Fall ebenfalls um diese Achse erfolgt, im leicht verstimmten Fall jedoch um eine dazu verkippte Achse. Tritt nun der Fall auf, dass sich die Phase zwischen den Pulsen um den Winkel ϕ unterscheidet, so dreht auch die zweite Anregung um diesen Winkel in der u-v-Ebene.

Beispielhaft veranschaulicht Abbildung 3.4 dies anhand des folgenden 2-Puls-Szenarios:

1. π -Puls
2. $\pi/2$ -Puls, Phasenverschiebung: 90° , d. h. $\phi = \pi$

Zuerst bewirkt der π -Puls analog zu seiner Definition eine Rotation des Blochvektors vom Süd- zum Nordpol, entsprechend einer Änderung der

3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen

Inversion von $w = -1$ nach $w = 1$. Der zweite Puls dreht den Vektor dann um 90° um die v -Achse auf $u = -1$ und $w = 0$.

Trennt man sich nun wieder vom idealisierten Bild der komplett resonanten Anregung und berücksichtigt eine kleine Verstimmung zwischen den beiden Pulsen, die jedoch deutlich geringer als die spektrale Breite der Pulse sein soll (d. h. $\delta/\tau_{\text{puls}}$), so kann man näherungsweise immer noch von einer resonanten Anregung des Systems sprechen. Allerdings ergeben sich einige entscheidende Unterschiede. Erneut gibt der erste Puls zwar eine Phase vor und rotiert den Bloch-Vektor näherungsweise um die u -Achse. Jedoch tritt im Bild der Rotating frame approximation nun noch eine Drehung dieses Vektors um die w -Achse mit der Winkelgeschwindigkeit $\dot{\phi}$ auf. Zum Zeitpunkt der Ankunft des zweiten Pulses τ_{delay} hat sich der Bloch-Vektor damit bereits um den Winkel $\phi = \dot{\phi}\tau_{\text{delay}}$ in der u - v -Ebene gedreht. Voraussetzung für diese Überlegungen ist natürlich, dass die Phaseninformation des ersten Laserpulses während der Kohärenzzeit des Systems in diesem erhalten bleibt und so mit weiteren Einflüssen von außen wechselwirken kann. Das folgende Beispiel (vgl. Abbildung 3.5) geht davon aus, dass beide Pulse in Phase sind, ihre Pulsfläche jeweils einem $\pi/2$ -Puls entspricht und beide nur schwach um δ gegeneinander verstimmt sind. Zudem befinde sich das System zu Anfang im unbesetzten Zustand am Südpol der Bloch-Kugel. Dann dreht der erste Puls den Bloch-Vektor auf $v = -1$. Entscheidend für den Endzustand nach dem zweiten Puls ist nun die Größe der Verstimmung zwischen den beiden Pulsen.

$\dot{\phi} = 2n \cdot \pi / \tau_{\text{delay}}$ Der Bloch-Vektor ist während seiner Rotation um die w -Achse wieder bei $v = -1$ angekommen, wenn der zweite Puls eintrifft. Damit wird seine durch den ersten Puls erfolgte Drehung um die u -Achse phasenrichtig um weitere 90° fortgesetzt. Im Endzustand befindet er sich also bei $w = 1$.

$\dot{\phi} = (2n+1) \cdot \pi / \tau_{\text{delay}}$ Der Bloch-Vektor steht gerade bei $v = +1$, als der zweite Puls eintrifft. Damit wird er gerade wieder um 90° um die u -Achse gedreht, allerdings landet man auf diese Weise wieder im Ausgangszustand bei $w = -1$.

$\dot{\phi} = (n+1/2) \cdot \pi / \tau_{\text{delay}}$ Der Bloch-Vektor ist während seiner Rotation um die w -Achse gerade bei $u = \pm 1$ angelangt. Die durch den zweiten Puls induzierte Rotation um die u -Achse beeinflusst ihn also gar nicht.

Diese Beispiele sollen das Prinzip verdeutlichen, nach dem diese Prozesse ablaufen. Analytisch erhält man für die Besetzungswahrscheinlichkeit für den oberen (Exziton-)Zustand nach beiden Pulsen folgende Ausdruck:

3.5. Ramsey-Interferenzen des Exzitons

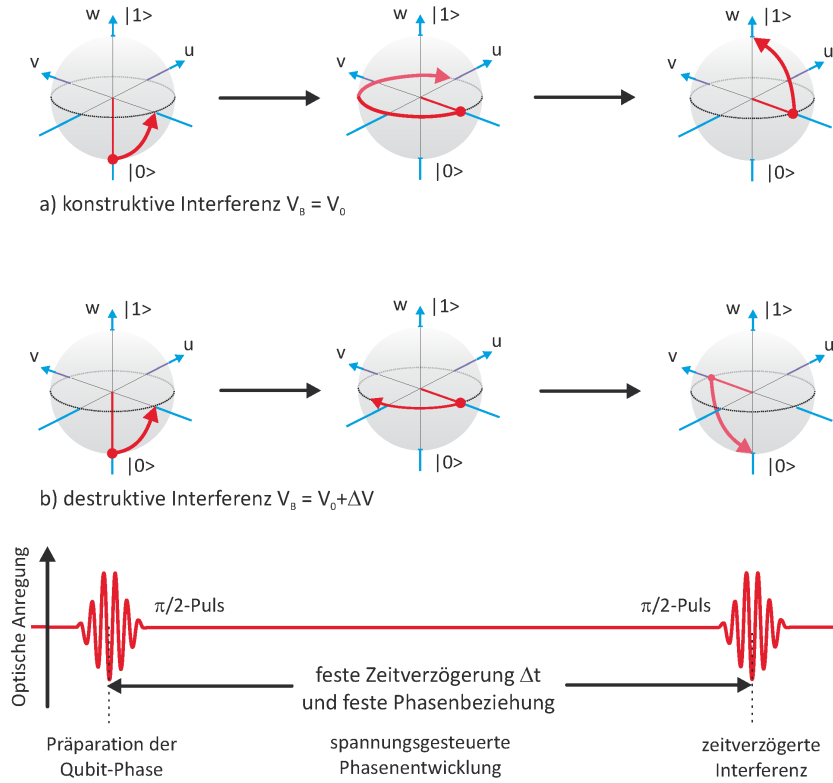


Abbildung 3.5.: Veranschaulichung des Prinzips hinter der Entstehung von Ramsey-Interferenzen. Konstruktive (a) bzw. destruktive (b) Interferenz.

$$P_{|1_X\rangle} \sim \cos^2(\phi \tau_{\text{delay}}/2) \quad (3.38)$$

Diese Oszillation wird nach ihrem Entdecker als Ramsey-Interferenz⁷ (engl.: *Ramsey-Fringes*) bezeichnet [Ram90]. Dessen Überlegungen stammen ursprünglich aus der Atomphysik. Mit Hilfe dieser Interferenzen ist es möglich, extrem empfindlich auch kleine Verstimmungen δ detektieren zu können, wenn nur der Pulsabstand τ_{delay} entsprechend groß ist. Im historischen Versuch wurde die Verstimmung durch eine Variation der Anregungsfrequenz erreicht; grundsätzlich ist der Ursprung einer solchen

⁷Norman F. Ramsey erhielt den Nobelpreis für Physik 1989: „For the invention of the separated oscillatory fields method and its use in the hydrogen maser and other atomic clocks.“

3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen

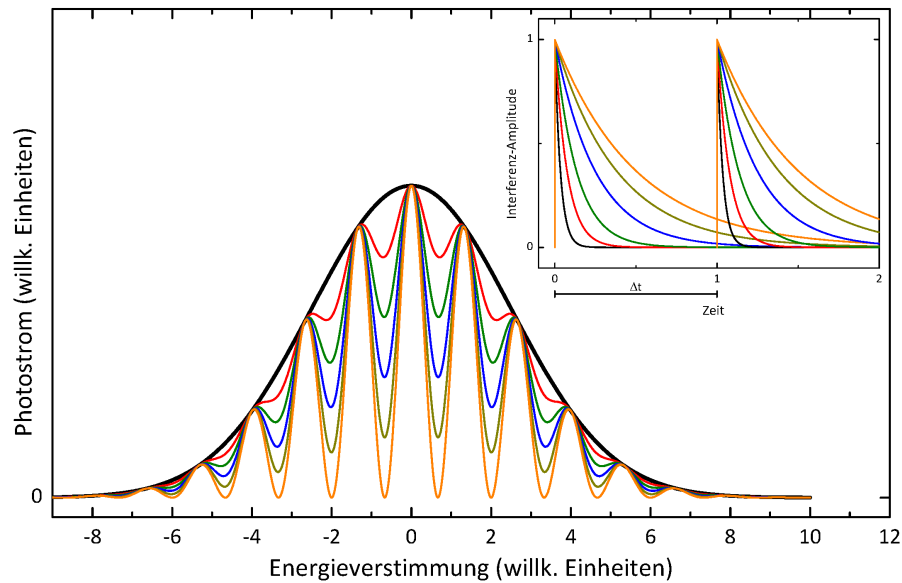


Abbildung 3.6.: Ramsey-Interferenzen mit verschieden stark ausgeprägtem Interferenz-Kontrast. Die Einhüllende und die Maxima bleiben gleich, allerdings ändert sich die Lage der Minima. Klein eingefügt sind die zugehörigen Anregungspulse verschieden schneller Dephasierung dargestellt.

Abweichung jedoch unerheblich. Im vorliegenden Fall wird durch das Anlegen und Ändern einer Bias-Spannung ja gerade die Übergangsenergie des Zwei-Niveau-Systems selbst über den Stark-Effekt variiert. Die Messung des Besetzungszustandes an sich erfolgt ja wie bereits beschrieben durch Bestimmung des Photostromes. Dies setzt einen zuvor erfolgten Tunnelprozess voraus, der einer Projektion des Bloch-Vektors auf die w -Achse entspricht⁸. Die genauere Form der gemessenen Ramsey-Interferenzen wird von einem weiteren Faktor beeinflusst. So ist in Abbildung 3.6 eine Abfolge verschieden stark ausgeprägter Ramsey-Interferenzen dargestellt (groß).

Die zugehörigen Anregungspulse sind ebenfalls angedeutet (klein). Die Verzögerungszeit zwischen den Pulsen beträgt Δt , allerdings dephasieren die Anregungen unterschiedliche schnell. Ist diese zu schnell, d. h. die

⁸Zu beachten ist, dass der Begriff der Ramsey-Interferenz von vielen Wissenschaftlern auch schon dann benutzt wird, wenn nur ein Zwei-Niveau-System mit mehr als einem Puls behandelt wird. Dabei ist eine Verstimmung dann nicht zwangsläufig involviert.

Pulse wechselwirken nicht mehr oder nur noch sehr wenig miteinander, so zeigen die entsprechenden Interferenzen keine Oszillation (schwarz). Vielmehr erkennt man nur noch eine Einhüllende, die im Wesentlichen die spektralen Eigenschaften der Anregungspulse selbst widerspiegelt. Wird dann der Überlapp der Pulse durch längere Dephasierungszeiten erhöht, kann auch eine Interferenz zwischen ihnen einsetzen. Die Einhüllende bleibt dabei selbstverständlich erhalten, so dass auch die Maxima reproduziert werden. Der Kontrast der Interferenzen allerdings wird durch die Lage der Minima bestimmt, d. h. denjenigen Energieverstimnungen, bei denen eine (teilweise bis vollständige) Auslöschung der Zustände erreicht wird.

3.6. Zwei-Photonen-Prozesse

Natürlich stellen physikalische Prozesse, die unter Absorption oder Emission eines einzelnen Photons stattfinden, die grundlegendste Möglichkeit dar, Materie und Licht in Wechselwirkung treten zu lassen. In einem nächsten Schritt kann man sich jedoch auch Prozesse vorstellen, die unter Involvierung mehrerer Photonen stattfinden können. Gerade im Bereich der Atom- und Molekülphysik aber auch in dem in dieser Arbeit betrachteten Gebiet der „künstlichen Atome“ bieten sich durch die inhärent nicht-linearen Eigenschaften von Multi-Photon-Prozesse vielfältige neue Möglichkeiten an. Die einfachste Möglichkeit der Anregung von Systemzuständen ist dabei die bereits erwähnte Einstufen-Anregung, bei der die Energiedifferenz der beteiligten Niveaus gerade der Energie eines Photons entspricht. Bei der Mehrstufen-Anregung werden von dem Atom oder Molekül mehrere Photonen absorbiert, deren Energien voneinander verschieden sein können, wobei die einzelnen Photonen Zwischenzustände anregen. Absorbiert das Atom oder Molekül mehrere Photonen der gleichen Energie, so spricht man von Multi-Photonen-Anregung. Dabei muss die Anregung nicht über einen resonanten Zwischenzustand erfolgen.

Zwei-Photonen-Prozesse (engl.: *Two Photon Absorption, TPA*) führten in den letzten beiden Jahrzehnten zu einigen direkten Anwendungen wie der dreidimensionalen optischen Speicherung von Daten, einem Zwei-Photonen-Raster-Fluoreszenz-Mikroskop, der Materialbearbeitung (Zwei-Photonen-Polymerisation (2PP) [Ost06]). Zudem gelten Laser mit Multi-Photonen-Absorption als sehr effizient, da zur Anregung Strahlung geringerer Wellenlänge verwendet werden kann und die überlineare Abhängigkeit des Anregungsprozesses von der Strahlungsintensität Vorteile

3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen

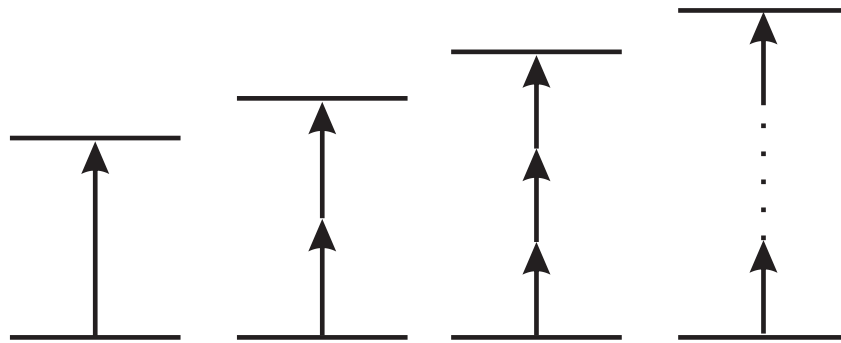


Abbildung 3.7.: Vereinfachte Darstellung von Einzel- und Multiphoton-Absorptionen.

bei der räumlichen Auflösung bietet [He02].

Betrachtet man kohärente Effekte, die unter der Aussendung von zwei Photonen ablaufen, so eröffnen sich weitere Möglichkeiten, nutzt man deren Eigenschaften aus, die sich aufgrund von Verschränkungseigenschaften (engl.: *entanglement*) ergeben. Von besonderem Interesse sind im Hinblick auf quantenkryptographische Anwendungen die Herstellung polarisationsverschränkter Photonen, die bei Bedarf mit einer hinreichend hohen Wahrscheinlichkeit zur Verfügung gestellt werden können.

3.6.1. Absorption

Die gleichzeitige Absorption mehrerer Photonen in einem physikalischen System wurde zunächst als rein akademisches Konstrukt 1931 von Maria Göppert-Mayer in ihrer Dissertation [GM31] formuliert. Die Grundlage der TPA besteht darin, den Zustand $|0\rangle$ eines quantenmechanischen System in einem einzigen Schritt so anzuregen, dass man in einem angeregten Zustand $|2\rangle$ landet (hier: das Biexziton), der über die gleiche Parität wie der Anfangszustand verfügt.

Die experimentelle Demonstration dieses Effektes mit Hilfe eines gepulsten Lasers ließ allerdings 30 Jahre auf sich warten [Kai61]⁹. Eng verknüpft ist die TPA mit der Raman-Streuung, bei der ein Photon absorbiert und

⁹Tatsächlich ist TPA eines der ersten nichtlinear optischen Phänomene, das nach der Erfindung des Lasers mit dessen Hilfe demonstriert werden konnte.

dann beinahe instantan mit anderer Energie emittiert wird. Der Energieunterschied verbleibt im System. Allerdings wurde dieser spontane Raman-Prozess bereits 1928 beobachtet. Im Gegensatz zur TPA, bei der die absorbierte Leistung quadratisch mit der einstrahlenden Intensität skaliert und daher prinzipiell höhere Intensitäten voraussetzt, hängt die Intensität des gestreuten Raman-Lichtes einfach proportional mit der einfallenden Intensität zusammen.

In der Laser-Spektroskopie ist die Zwei-Photonen-Absorption nahezu unersetzlich geworden, da es die Verknüpfung zweier Übergänge ermöglicht, die eigentlich Dipol-verboten sind. Diese Anregung wäre zwar auch resonant über ein reales Zwischenniveau möglich, allerdings verbreitert sich bei der TPA die Linienbreite nicht wie bei der resonanten Anregung, da hier die Linienbreiten beider Prozesse zum Tragen kommen. Ferner vermeidet man bei Zwei-Photonen-Absorption nahezu die Doppler-Verbreiterung, wenn man mit gegensätzlich propagierenden Photonen arbeitet.

Die für das hier untersuchte System relevanten theoretischen Betrachtungen werden in Abschnitt 3.6.3 vorgestellt. In diesem Zusammenhang kann man das betrachtete System in gewissem Sinn als Filter für verschränkte Photonen interpretieren. Denn zur Anregung des $2X$ -Zustandes sind ja zwei Photonen notwendig, die sowohl zeitlich als auch örtlich bestimmten Anforderungen genügen müssen; eine Voraussetzung, die gerade verschränkte Photonen erfüllen. Nur durch solche Paare, die in einem interferenzfähigen Laserstrahl immer anzutreffen sind, tragen so zur Anregung bei.

Eine zusätzliche Erweiterung dieses Konzeptes kann die Drei-Photonen-Absorption zur Anregung des Exzitons in einem HL-Quantenpunkt sein. Aufgrund der Paritätserhaltung ist die Anregung des Exzitons mittels zweier entarteter Photonen nur sehr ineffizient möglich, während die Involvierung von drei Photonen hier deutliche Vorteile bietet.

3.6.2. Interferenz

Interferenzen sind zwar von Grund auf klassische Welleneigenschaften, das ihnen zugrunde liegende Superpositionsprinzip wurde aber bereits von Feynman [Fey65] als essentieller Bestandteil der Quantenmechanik bewertet¹⁰. Als klassisches Beispiel für ein Interferenz-Experimenten mit

¹⁰Zum Einteilchen-Superpositionsprinzip: „... it has in it the heart of quantum mechanics. In fact, it contains the *only* mystery.“

3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen

„einem“ Teilchen darf das berühmte Zwei-Spalt-Experiment von Young gelten [You07]. Unter Zuhilfenahme der Quantenmechanik bieten sich diverse Ansätze an, den Durchgang eines einzelnen Photons z. B. durch ein Mach-Zehnder-Interferometer zu beschreiben: der Ansatz Feynmans von Wahrscheinlichkeitsamplituden für ununterscheidbare Wege [Fey65], Transformationen des Zustandsvektors durch die Interferometer-Bauteile [Gal05], Matrix-Operationen von Interferometer-Transformationen [Hol02] oder sogar Änderungen der Photonenanzahlzustände [Ger05]. Bei den Ereignissen am Ende von Zwei-Photonen-Experimenten handelt es sich dagegen um Koinzidenz-Phänomene. Das Konzept der alternativen Wege muss also noch viel eingehender überprüft werden, da nun zwei Photonen auf zwei möglichen Wegen die interferometrische Anordnung durchlaufen können und sich somit auf vier unterschiedliche Weisen überlagern können (vgl. Abbildung 3.8). Dies führt dann dazu, dass man Zwei-Photonen-Interferenz nicht einfach als Interferenz zwischen zwei einzelnen Photonen betrachten kann, sondern eingehender quantenmechanisch betrachten sollte. Die „normale“ Interferenz wird auch als Interferenz zweiter Ordnung bezeichnet. Es ist daher naheliegend, wenn die Überlagerung von zwei Photonen als Interferenz vierter Ordnung bezeichnet wird.

Nun gibt es verschiedene Fälle, die es zu unterscheiden gilt. Ist der Weglängenunterschied der Interferenzarme klein, so sind die Fälle a) und b) bzw. c) und d) aus Abbildung 3.8 ununterscheidbar. Bezeichnet man nun die Reflektions- bzw. die Transmissionsamplituden am Strahlteiler mit r bzw. t , so gilt für die Reflektions- bzw. Transmissionswahrscheinlichkeiten dementsprechend $R = rr^*$ bzw. $T = tt^*$. Für den bei uns eingesetzten Strahlteiler gilt $R = T = 0,5$. Fall A aus der Abbildung 3.8 führt nun also zu einer Änderung der beiden Eingangsamplituden, indem einmal am Strahlteiler reflektiert und danach dieser transmittiert wird zu der Ausgangsamplitude A_a :

$$A_a = rte^{ik_0l_1} \cdot rte^{ik_0l_1} = r^2t^2e^{i2k_0l_1} \quad (3.39)$$

$$= r^2t^2e^{2i\delta_1} \quad (3.40)$$

Hier bezeichnet $l_i (i = 1, 2)$ die Länge des benutzten Interferometerarms und k_0 die Zentralwellenzahl der betrachteten Photonen, dementsprechend ist $\delta_i = k_0l_i$. Für Fall b) ergibt sich dementsprechend:

$$A_b = t^2r^2e^{i2\delta_2} \quad (3.41)$$

Analog lassen sich c) und d) erhalten:

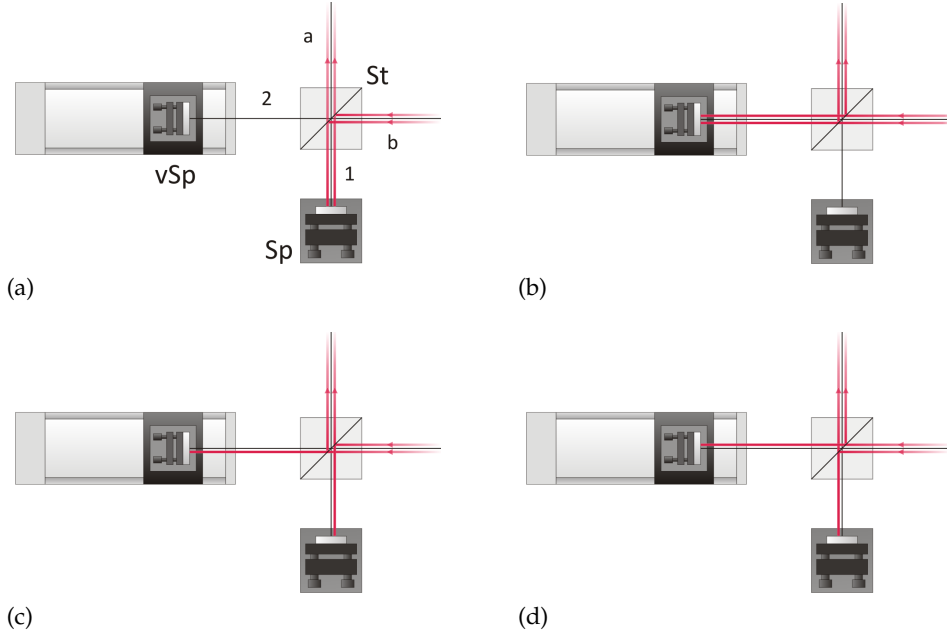


Abbildung 3.8.: Darstellung der vier möglichen Pfade für zwei kollineare Photonen in einem Michelson-Interferometer. Sp: fester Spiegel, vSp: variabler Spiegel, St: 50/50-Strahlteiler, a und b: Ausgänge, 1 und 2: Eingänge.

$$A_c = r t e^{i\delta_1} \cdot t r e^{i\delta_2} \quad (3.42)$$

$$A_d = t r e^{i\delta_2} \cdot r t e^{i\delta_1} \quad (3.43)$$

Die Wahrscheinlichkeit P_2 für den Durchgang der zwei Photonen durch das Interferometer erhält man also aus dem Betragsquadrat der aufsummierten Wahrscheinlichkeitsamplituden der Fälle a) und b) bzw. c) und d):

$$P_2 = \left| r^2 t^2 \left(e^{i2\delta_1} + e^{i2\delta_2} + 2e^{i\delta_1 + \delta_2} \right) \right|^2 \quad (3.44)$$

$$= 2R^2 T^2 (3 + \cos(2\delta) + 4 \cos \delta) \quad (3.45)$$

$$= 4R^2 T^2 (1 + \cos \delta)^2 \quad (3.46)$$

$$= 1/4 (1 + \cos \delta)^2 \quad (3.47)$$

3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen

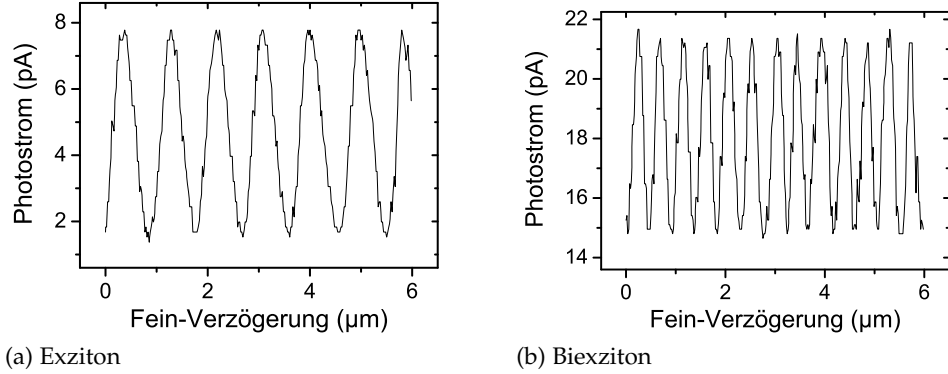


Abbildung 3.9.: Quanten-Interferenzen. Die Frequenz der Biexziton-Interferenz ist genau doppelt so groß wie die des einzelnen Exzitons (2-Photon-Prozess).

Hier wurde noch $\delta = \delta_1 - \delta_2$ gesetzt. Vergrößert man nun den Unterschied der Armlängen, so werden die beiden Fälle c) und d) unterscheidbar, d. h. im Kontext von Feynmans Ununterscheidbarkeit müssen ihre Beiträge zur Gesamtwahrscheinlichkeit nun separat zu den weiterhin ununterscheidbaren Fällen a) und b) hinzuaddiert werden:

$$P_2 = \left| r^2 t^2 \left(e^{i2\delta_1} + e^{i2\delta_2} \right) \right|^2 + R^2 T^2 + R^2 T^2 \quad (3.48)$$

$$= 2R^2 T^2 (1 + \cos(2\delta)) + 2R^2 T^2 \quad (3.49)$$

$$= 4R^2 T^2 (1 + \frac{1}{2} \cos(2\delta)) \quad (3.50)$$

$$= \frac{1}{4} (1 + \frac{1}{2} \cos(2\delta)) \quad (3.51)$$

Als Ergebnis erzielt man also eine Oszillation mit doppelt so hoher Frequenz wie im klassischen Fall der normalen Interferenz. Dieser letzte Fall ist der für unseren Messaufbau entscheidende, da δ in unserem Fall hinreichend groß ist. Die Ergebnisse decken sich zudem mit den Erkenntnissen aus [Fli04] und mit eigenen Messungen (vgl. Abbildung 3.9).

Ausnutzen lässt sich dieses Phänomen zur Erhöhung der Auflösung einer optischen Anordnung über die klassische Grenze hinaus verwenden.

3.6.3. Rabi-Oszillationen des Biexzitons

In den letzten Abschnitten wurde lediglich die kohärente optische Kontrolle eines Zwei-Niveau-Systems am Beispiel des Exziton-Übergangs (1X) sowie dessen zeitliches Verhalten betrachtet. Dieses System kam dem Ideal schon sehr nahe, Einflüsse weiterer Niveaus können nahezu vernachlässigt werden.

Es hat sich allerdings gezeigt, dass die bisherigen Betrachtungen auch auf das von einem Biexziton (2X) gebildete Zwei-Niveau-System anwendbar sind [Stu05]. Dieses sich aus zwei gebundenen Einzelexzitonen zusammensetzende System verfügt jedoch nicht nur über die beiden Extremzustände (kein Biexziton bzw. genau ein Biexziton), vielmehr müssen auch die möglichen 1X-Zustände Berücksichtigung finden.

Als weiterer Unterschied stellt sich die Anregung des 2X-Zustandes selbst heraus. Zu dessen kohärenter Erzeugung sind jetzt zwei Photonen erforderlich, für die daher gewisse Voraussetzungen erfüllt sein müssen (vgl. Abschnitt 3.6). Inkohärent wurde das Biexziton schon erzeugt [Bru94, Gin99]. Und auch die kohärente Anregung wurde zuvor bereits von [Fli04] und nicht zuletzt von [Stu05] untersucht und in letzterem Fall vor allem die Reaktion des Systems auf die Anregung mit hoher Pulsfläche betrachtet und Rabi-Oszillationen in diesem Fall untersucht.

Da sich in der Atom-Optik keine direkten Analogien zu diesem Prozess finden, ist ihre Betrachtung an dieser Stelle grundlegend interessant. In Bezug auf das erstrebte Rechnen mit Qubits (Quantum computing) ist das Biexziton vor allem deshalb einen Blick wert, da es den einfachsten gekoppelten Zustand aus zwei solchen Qubits darstellt, was die Möglichkeit einer bedingten Quantenoperation eröffnet [Li03, Tro00, Che01, Pie02]. Des weiteren wird das Biexziton aktuell intensiv als Ausgangspunkt für die Erzeugung polarisationsverschränkter Photonen diskutiert, die Anwendung im Bereich der Quantenkryptographie finden könnten (z. B. [Ben00]). Um tatsächlich Verschränkung sicherzustellen, muss dabei die Feinstrukturaufspaltung so gering sein, dass sie auf der Zeitskala der optischen Rekombination keine Rolle spielt [San02]. Derzeit beschäftigen sich mehrere Gruppen mit einer aktiven Kontrolle der Aufspaltung oder deren Minimierung schon bei der Herstellung der QD-Proben [Kow05, You05] bzw. ihrer nachträglichen Beeinflussung (vgl. Abschnitt 2.2).

Im Unterschied zu den bisher betrachteten Systemen aus einem Exziton müssen beim Biexziton insgesamt vier Zustände berücksichtigt werden: der Grundzustand $|0\rangle$, das Biexziton $|2X\rangle$ und die beiden Polarisationszustände des einzelnen Exzitons (hier: $|+\rangle$ und $|-\rangle$). Die Exziton-Zustände

3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen

beziehen sich dabei auf die jeweils antiparallelen Spinkonfigurationen des Elektrons ($S_z = \pm 1/2$) und des Lochs ($J_z = \mp 3/2$). Diese entsprechen einer Kopplung an links- bzw. rechts-zirkularer Polarisation des Lichtfeldes (σ^\pm). Der Übergang in die näherungsweise linear polarisierten Feinstruktur-niveaus kann für die Dauer der Anregung mit Pulsen von 2–3 ps Länge vernachlässigt werden. Dies bedeutet außerdem, dass bei zirkular polarisierter Anregung die Erzeugung des Biexzitons (ausgehend vom leeren QD) aufgrund des Pauli-Verbots unterdrückt ist [Bru94, Lan04a]. Für Experimente unter Verwendung von zwei Photonen wird daher linear polarisierte Anregung gewählt. Dazu kann dann direkt der Laserstrahl verwendet werden, der den Mira-Oszillator verlässt.

Die relevanten Energieniveaus sind zum einen durch den 1-Exziton-Übergang $E_0 = 1338$ meV und andererseits durch die Renormalisierungsenergie des Biexzitons $\Delta E_B = 2,5$ meV gegeben. Seine Anregung kann über zwei unterschiedliche Wege erfolgen (vgl. Abbildung 3.10):

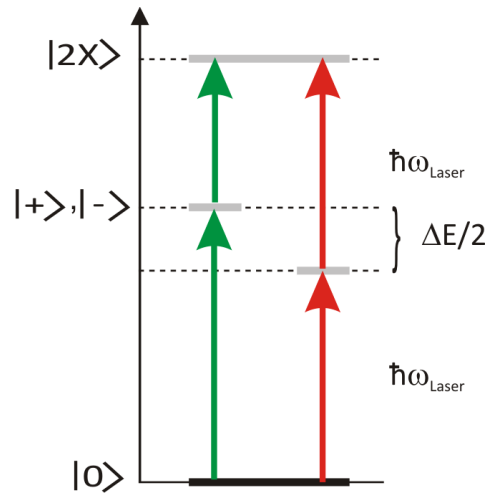
- Erzeugung eines einzelnen Exzitons $|0\rangle \rightarrow |1X\rangle$ (Resonanzenergie E_0), anschließend dann Erzeugung des Biexzitons $|1X\rangle \rightarrow |2X\rangle$ bei $\tilde{E} = E_0 - \Delta E_B$. Dazu sind zwei unterschiedliche Laserenergien notwendig.
- Gleichzeitige Erzeugung von zwei Exzitonen durch einen Zwei-Photon-Prozess bei $\tilde{E} = E_0 - \Delta E_B/2$. Nur eine Laserenergie muss eingesetzt werden, da die Anregung über ein virtuelles Zwischenniveau erfolgt.

Experimentelle Ergebnisse zu Biexziton-Rabioszillationen auf dem ersten Anregungsweg finden sich z. B. in [Li03]. In dieser Arbeit wurde dagegen der Zwei-Photon-Prozess untersucht. Dazu wird die Laserenergie wie oben bereits erwähnt auf $E_0 - \Delta E_B/2$ eingestellt und eine lineare Polarisation gewählt. Da die Experimente mit kurzen Pulsen hoher Intensität erfolgen, kann allerdings eine nicht-resonante Anregung der 1X-Zustände nicht komplett ausgeschlossen werden (vgl. Kapitel 3.4.3).

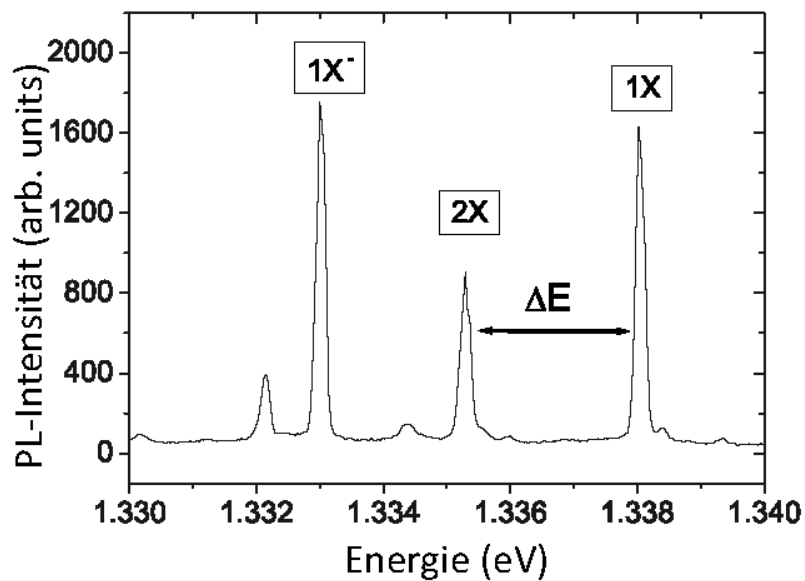
Zur Beschreibung der Wechselwirkung des Lichtfeldes mit dem QD-System wird erneut der Kontext des rotating wave frame genutzt. Folgende Hamilton-Funktion besitzt dann Gültigkeit:

$$H = \frac{\Delta E_B}{2} (|+\rangle \langle +| + |-\rangle \langle -|) + \frac{1}{2\sqrt{2}} f(t) (|0\rangle - |2X\rangle) (\langle +| - \langle -|) + \text{H.c.} \quad (3.52)$$

3.6. Zwei-Photonen-Prozesse



(a) Das Biexziton kann entweder über zwei energetisch unterschiedliche Anregungsprozesse mit dem Exziton als Zwischenzustand (grüne Pfeile) oder über einen Zwei-Photon-Prozess ohne realen Zwischenzustand angeregt werden (rote Pfeile).



(b) Die Übergangsenergie zwischen Biexziton und Exziton liegt um etwa $\Delta E_B = 2,5$ meV niedriger als der Übergang zwischen Exziton und leerem QD.

Abbildung 3.10.: Lage der Energieniveaus in 2X-Experimenten.

3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen

Die Gleichung gilt im Bezugssystem des Lasers, wodurch jeweils alle Oszillations-Terme der Form $e^{i\omega t}$ entfallen, die resonant zur Laserfrequenz $\omega = E_{\text{laser}}/\hbar$ sind. Der Faktor $f(t)$ beschreibt dabei die Form der Laserpulse und ist in den vorliegenden Experimenten proportional zu einer sech-Funktion.

Die kohärente Entwicklung des Systems lässt sich unter Zuhilfenahme neuer Basiszustände einfacher beschreiben:

$$\begin{aligned} |0\rangle &= \frac{|+\rangle + |-\rangle}{\sqrt{2}}, & |1\rangle &= \frac{|0\rangle + |2X\rangle}{\sqrt{2}} \\ |2\rangle &= \frac{|+\rangle - |-\rangle}{\sqrt{2}}, & |3\rangle &= \frac{|0\rangle - |2X\rangle}{\sqrt{2}} \end{aligned} \quad (3.53)$$

Die Zustände $|0\rangle$ und $|2\rangle$ entsprechen linear polarisierten Exziton-Zuständen, wobei der Zustand $|0\rangle$ senkrecht und der Zustand $|2\rangle$ parallel zur Anregung polarisiert ist. In dieser Basis erhält man für den Hamilton-Operator:

$$H = \begin{pmatrix} \Delta E_B/2 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \Delta E_B/2 & f(t)/\sqrt{2} \\ 0 & 0 & f(t)/\sqrt{2} & 0 \end{pmatrix} \quad (3.54)$$

Dies entspricht einer verstimzten Rotation in der $|2\rangle$ und $|3\rangle$ -Komponente, während die ersten beiden Zustände davon entkoppelt sind und nur einer trivialen zeitlichen Entwicklung unterliegen. Das Lichtfeld koppelt also nur an den $1X$ -Zustand, der parallel zur Anregung polarisiert ist. Der Anfangszustand (Grundzustand) wird nun beschrieben über:

$$|0\rangle = \frac{|1\rangle + |3\rangle}{\sqrt{2}}.$$

Im Grunde könnte die kohärente Entwicklung des Systems unter Gleichung (3.54) direkt numerisch bestimmt werden. Ein anschaulicheres Verständnis der relevanten Prozesse erhält man jedoch, wenn man den Zwei-Photon-Prozess als adiabatische Entwicklung des Systems betrachtet.

Für hinreichend langsame Variation lässt sich das System über den adiabatischen Grenzfall beschreiben [Mes66]. In diesem Fall wird das System zu jeder Zeit t in guter Näherung durch den instantanen (adiabatischen) Eigenzustand des Hamiltonoperators (3.54) bestimmt. Diese Näherung gilt umgekehrt nicht mehr, wenn die Pulse so kurz sind, dass

das Biexziton-System der optischen Anregung nicht sofort folgen kann ($\tau_0 \ll \hbar/\Delta E_B$).

Da im Experiment $\tau_0 \Delta E_B/\hbar \approx 10$ gilt, sollte die adiabatische Näherung sehr genaue Ergebnisse liefern.

Der Zustand wird dann beschrieben über:

$$|\psi\rangle = \frac{|1\rangle + (c_2(t)|2\rangle + c_3(t)|3\rangle)e^{-i\Lambda(t)}}{\sqrt{2}} \quad (3.55)$$

mit

$$\begin{aligned} c_2(t) &= \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{1 - \frac{\Delta E_B}{\sqrt{(\Delta E_B)^2 + 8f^2(t)}}} \\ c_3(t) &= \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{1 + \frac{\Delta E_B}{\sqrt{(\Delta E_B)^2 + 8f^2(t)}}} \end{aligned}$$

und

$$\Lambda(t) = \frac{1}{4\hbar} \int_{-\infty}^t \left(\Delta E_B - \sqrt{(\Delta E_B)^2 + 8f^2(\tau)} \right) d\tau \quad (3.56)$$

Nach Ende des Laserpulses lautet der Zustand somit

$$|\psi\rangle = \frac{|1\rangle + e^{-i\Lambda(\infty)}|3\rangle}{\sqrt{2}} = e^{-i\Lambda(\infty)/2} \left(\cos \frac{\Lambda(\infty)}{2} |0\rangle + \sin \frac{\Lambda(\infty)}{2} |2X\rangle \right) \quad (3.57)$$

und entspricht damit dem Biexziton, wenn $\Lambda(\infty) = \pi$. Allgemein gilt für die Besetzungswahrscheinlichkeit des 2X-Zustands:

$$P_{|2X\rangle} = |\langle 2X | \psi \rangle|^2 = \sin^2 \frac{\Lambda(\infty)}{2} \quad (3.58)$$

Die adiabatische Näherung gilt für lange und damit spektral schmale Pulse. In diesem Fall ist die Anregung des 1X-Zustands aus Gründen der Energieerhaltung verboten. Tatsächlich ist aus Gleichung (3.57) ersichtlich, dass der Zustand nach Ende des Laserpulses immer eine Überlagerung aus Grundzustand und Biexziton darstellt. Während der Anregung treten allerdings auch nicht-verschwindende Anteile des 1X-Zustands auf (c_2 -Komponente in Gleichung 3.55).

Bei einer Betrachtung der Abhängigkeit der Besetzungswahrscheinlichkeit $P_{|2X\rangle}$ von der Anregungsintensität wird die Stärke der Anregung über die Pulsfläche θ der Rabi-Oszillationen des einzelnen Exzitons charakterisiert. Mit Gleichung (3.56) kann man recht einfach zeigen, dass $\Lambda(\infty)$

3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen

und damit auch $P_{|2X\rangle}$ bei einer festen Pulsform nur von $\tau_0 \Delta E_B$ und der Pulsfläche θ abhängen.

Im Kontext der oben eingeführten Gleichungen bzw. Schreibweisen wird ein sech-Puls wie ihn unser Lasersystem liefert durch

$$f(t) = \frac{2 \operatorname{arcosh} \sqrt{2} \hbar \theta}{\pi \tau_0} \cdot \operatorname{sech} \frac{2 \operatorname{arcosh} \sqrt{2} t}{\tau_0} \quad (3.59)$$

beschrieben, wobei τ_0 der Halbwertsbreite (FWHM) der sech^2 -Intensitätseinhüllenden entspricht.

Im Grenzfall kleiner Pulsflächen ($\theta \ll \tau_0 \Delta E_B / \hbar$) erhält man:

$$\Lambda(\infty) \approx \frac{1}{\hbar \Delta E_B} \int_{-\infty}^{\infty} f^2(t) dt = \frac{4 \operatorname{arcosh} \sqrt{2} \hbar \theta^2}{\pi^2 \tau_0 \Delta E_B} \quad (3.60)$$

Die Besetzungswahrscheinlichkeit $P_{|2X\rangle}$ steigt damit bei niedriger Leistung proportional zu θ^4 (also proportional zum Quadrat der Laserintensität), so wie dies bei einem Zwei-Photon-Prozess zu erwarten ist (vgl. Abbildung 3.11).

Für sehr starke Anregung ($\theta \gg \tau_0 \Delta E_B / \hbar$) ist dagegen die Renormalisierungsenergie ΔE_B und damit auch die Verstimmung des Lasers gegenüber dem 1X-Übergang zu vernachlässigen und man erhält für die Besetzungswahrscheinlichkeit des Biexziton-Zustandes $P_{|2X\rangle} \approx \sin^2(\theta/(2\sqrt{2}))$. In diesem Grenzfall kann das Biexziton einfach als Summe der 1-Exziton-Zustände $|+\rangle$ und $|-\rangle$ gesehen werden, die unabhängig voneinander jeweils eine normale Rabi-Oszillation durchlaufen. Die Reskalierung der Pulsfläche mit dem Faktor $1/\sqrt{2}$ ergibt sich dabei aus der Verwendung linearer Polarisation $\pi_{x,y} = 1/\sqrt{2}(\sigma^+ \pm \sigma^-)$.

Im Gegensatz zu Rabi-Oszillationen eines einfachen 2-Niveau-Systems wird die Besetzung des 2X-Niveaus also nicht allein durch die Pulsfläche bestimmt. Selbst im Fall der adiabatischen Näherung, in der die Besetzung der 1-Exziton-Zustände vernachlässigt werden kann, ist die Oszillation immer auch vom Parameter $\tau_0 \Delta E_B / \hbar$ abhängig. Außerdem spielt die genaue Pulsform eine relativ starke Rolle.

3.6.4. Ramsey-Interferenzen des Biexzitons

Die in Abschnitt 3.5 beschriebenen Interferenzen beschränken sich natürlich nicht nur auf ein exzitonisches Zwei-Niveau-System, vielmehr können solche Überlagerungen auch in einem Biexziton-System gezeigt

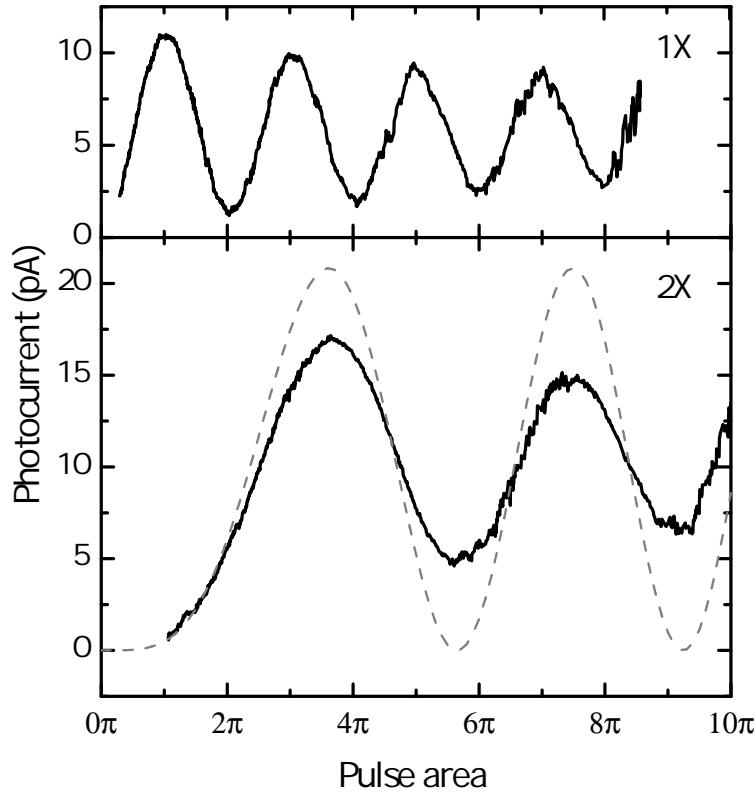


Abbildung 3.11.: Rabi-Oszillationen. Oben: Oszillation am einzelnen Exziton. Unten: Rabi-Oszillation des Biexzitons bei Anregung mittels eines Zwei-Photonen-Prozesses. Die gestrichelte Linie zeigt den theoretischen Verlauf (aus: [Stu05]).

werden (Abschnitt 5.4.2). Die bereits für das Exziton aufgeführten Argumentationen können in erster Näherung auch für den Fall von Ramsey-Interferenzen am Biexziton verwendet werden. Das Zwei-Niveau-System wird dann hier von Zustand $|0\rangle$ (leerer Quantenpunkt) und $|2X\rangle$ (Biexziton im Quantenpunkt) gebildet. Die Manipulation des Bloch-Vektors erfolgt ebenfalls analog. Die bei den Interferenzen am Exziton eingeführte Verzögerungszeit τ_{delay} kann auch im Biexziton-Fall angewandt werden, allerdings ergibt sich aufgrund der abweichenden Energien für die Verstimmung δ ein zu berücksichtigender Unterschied. Diese war ja als Energiedifferenz zwischen anregendem Laserpuls und dem Übergang definiert. Sowohl die Energie des Laserlichts ist im Falle der Zwei-Photonen-

3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen

Anregung des Biexzitons jedoch anders¹¹, als auch die des Übergangs selbst. Es galt:

$$\delta = \omega_L - \omega_{10} \quad (3.61)$$

Mit ω_L der Frequenz des Lasers und ω_{10} dem Frequenzunterschied zwischen den betrachteten Niveaus. Zur Anregung des Biexzitons über einen Zwei-Photonen-Prozess wird nun der Laser auf eine Frequenz eingestellt, die gerade dem halben Abstand zwischen den nun betrachteten Niveaus (leerer QD bzw. QD mit Biexziton) entspricht, damit wird zur Anregung des QD aber gerade die doppelte Frequenz wirksam:

$$\begin{aligned} \tilde{\omega}_L &= \frac{2}{\hbar} \left(E_0 - \frac{\Delta E_B}{2} \right) = \\ &= 2\omega_L - \frac{\Delta E_B}{2} \end{aligned} \quad (3.62)$$

Dabei ist E_0 die Energie des 1-Exziton-Übergangs und $E_B = 2,5$ meV die Renormalisierungsenergie des Biexzitons.

Analoge Überlegungen zum energetischen Abstand der anzuregenden Niveaus, der ja im Experiment durch das Anlegen einer äußeren Spannung verändert wird, führen dann zu:

$$\tilde{\omega}_{10} = \omega_{20} = 2\omega_{10} - \frac{\Delta E_B}{\hbar} \quad (3.63)$$

Diese angepassten Größen lassen sich nun in Gleichung 3.61 einsetzen, um die im Biexziton-Fall wirksame Verstimmung zu erhalten:

$$\begin{aligned} \tilde{\delta} &= \tilde{\omega}_L - \tilde{\omega}_{10} = \\ &= 2\omega_L - \frac{\Delta E_B}{2} - \left(2\omega_{10} - \frac{\Delta E_B}{\hbar} \right) \\ &= 2(\omega_L - \omega_{10}) \\ &= 2\delta \end{aligned} \quad (3.64)$$

Dies bedeutet, dass man im Falle der Anregung eines Biexzitons über einen Zwei-Photonen-Prozess Ramsey-Interferenzen erwarten darf, die doppelt so stark durch ein angelegtes E -Feld verstimmt werden, wie dies im Vergleich zum Exziton-Fall gegeben war. Dies wird im Experiment gut reproduziert (vgl. Abschnitt 5.4.2).

¹¹ Es ist ja gerade die Energie zweier Lichtquanten nötig, um das System in den gewünschten Zustand zu bringen.

3.7. Phononen

Bei der bisherigen Betrachtung des in dieser Arbeit verwendeten Materialsystem GaAs (InGaAs) wurde bisher immer von einem starren Gitter ausgegangen, auf dessen Plätzen die beteiligten Atome reglos sitzen. Es erscheint allerdings naheliegend, diese grobe Vereinfachung um Bewegungen oder Schwingungen des Kristallgitters zu erweitern. Als Phonon wird dann im Allgemeinen die quantisierte Kristallgitterschwingung eines Festkörpers bezeichnet. Bereits in Abschnitt 3.1.2 spielte das Dipolmoment des betrachteten System eine zentrale Rolle. Es ist nun offensichtlich, dass Schwingungen, d. h. zeitliche Veränderungen im Gitter sich natürlich auch auf ein solches Moment auswirken und das System in Gänze zusätzlich beeinflussen. Das Gegenteil ist allerdings auch der Fall: geladene Teilchen wie Elektron und Loch (d. h. z. B. auch ein Exziton) können mit den ebenfalls geladenen Kerne der Atome über elektromagnetische Kopplung wechselwirken. Im Gegensatz zum Photon, das wenig Impuls aber viel Energie mit sich führt, verhält es sich beim Phonon genau andersherum: sein Impuls ist groß, die Energie verhältnismäßig gering.

Das es sich bei GaAs (bzw. bei InGaAs erst recht) um ein Material handelt, bei dem sich mehr als ein Atom in der Einheitszelle befindet, muss man zusätzlich zwischen sog. akustischen bzw. optischen Phononen unterscheiden. Akustische Phononen erhalten ihren Namen von der Tatsache, dass man sie mit den Schallwellen in einem Kristall identifizieren kann. Bei einer solchen Schwingung bewegen sich die alle Atome einer Einheitszelle in Phase, während sich die Atome einer Einheitszelle bei optischen Phononen gegenphasig bewegen. Sind die gegenphasig schwingenden Atome geladen, so existieren Schwingungsmodi, bei denen entgegengesetzt geladene Untergitter gegeneinander schwingen. Die dabei oszillierenden Dipolmomente können mit Photonen wechselwirken (daher die Bezeichnung optisches Phonon). Ein zusätzliches Unterscheidungsmerkmal stellt die transversale bzw. die longitudinale Form der jeweiligen Phononen dar, daher auch die Abkürzungen LA und TA (für longitudinal akustisch bzw. transversal akustisch) bzw. LO und TO (longitudinal optisch und transversal optisch). Anschaulich wird der Unterschied zwischen akustischen und optischen Phononen in Abbildung 3.12 verdeutlicht.

Zusätzlich zeigt Abbildung 3.13 diese Dispersionsrelation (also der Verknüpfung von Energie und Impuls) für GaAs in Form einer ab initio-Kalkulation und experimenteller Werte.

In GaAs beträgt die LO-Phonon-Energie ca. 36,8 meV. Abbildung 3.13 zeigt am rechten Rand bereits eine weitere charakteristische Größe, die

3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen

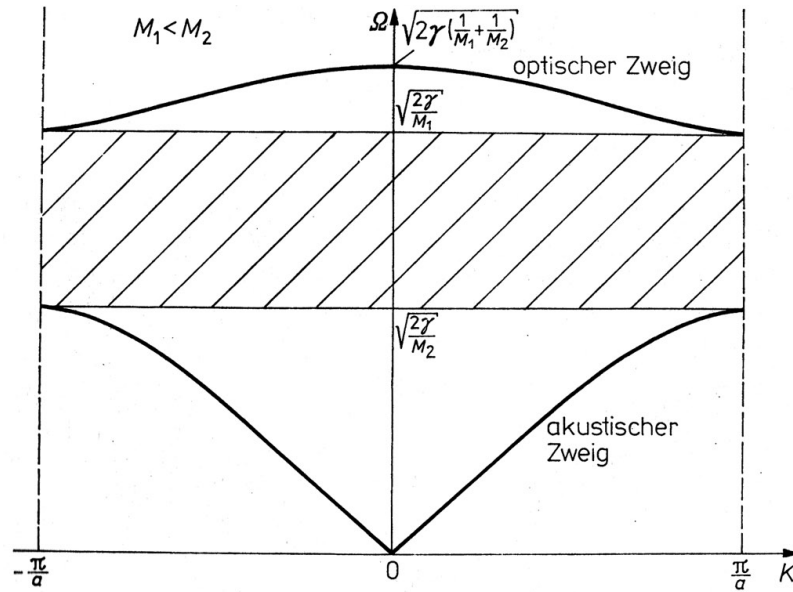


Abbildung 3.12.: Modell der Dispersionsrelation für eine Kette aus zwei unterschiedlichen Atomarten. Der sog. „optische Zweig“ ist oben, der „akustische“ unten abgebildet. Dazwischen liegt der verbotene Bereich einer Frequenzlücke (schraffiert) (aus: [Wei95]).

Zustandsdichte (engl.: *Density Of States, DOS*). Eine weitere Größe ist die Wahrscheinlichkeit, dass ein Zustand besetzt ist, also die Verteilungsfunktion der Phononen. Da das Phonon ein Boson ist (es hat Spin Null), kann die Bose-Einstein-Verteilungsfunktion zur Beschreibung verwendet werden. Im thermischen Gleichgewicht und im Falle einer harmonischen Näherung kann die Wahrscheinlichkeit, ein Phonon in einem bestimmten Zustand mit einer gewissen Energie gefunden zu werden folgendermaßen formuliert werden:

$$n(\omega_{k,s}) = \frac{1}{\exp(\hbar\omega_{k,s}/k_B T) - 1} \quad (3.65)$$

Dabei ist $\omega_{k,s}$ die Frequenz der Phononen, k_B die Boltzmann-Konstante und T die Temperatur.

Es lässt sich festhalten, dass Phononen auf unterschiedlichste Weise mit dem betrachteten Halbleiter-Quantenpunkt-System wechselwirken können. Wie erwähnt kommen dafür zum einen elastische Streuungen mit akustischen Phononen in Frage [Bes01], als auch inelastische Pro-

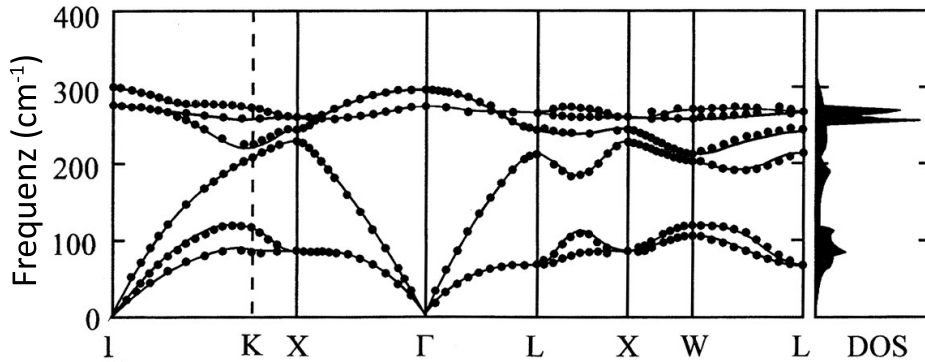


Abbildung 3.13.: Phononendispersion für GaAs. Durchgezogene Linie: theoretische Kalkulation, Punkte: experimentelle Daten (aus: [Gia91]).

zesse, wie die Phonon-assistierte Anregung der QD-Ladungsträger in höhere Zustände. Als weiterer möglicher Dekohärenz-Effekt wird in der Literatur die LO-Phonon-Streuung diskutiert, die allerdings nur für erhöhte Temperaturen relevant ist. Für Temperaturen unter 100 K wird als Dekohärenz-Prozess vor allem die Streuung mit akustischen Phononen betrachtet [Bor01, Ota98, Usk00]. Aktiv ausgenutzt werden LO-Phononen in der Arbeit von Ester [Est08], wo diese als höherenergetische Anregungsstufe genutzt werden, um dann an energetisch niedriger gelegenen Zuständen nach den nötigen Zerfallsprozessen Messungen durchführen zu können.

Bei der kohärenten Photostromspektroskopie ist eine Abnahme der Streuwahrscheinlichkeit mit abnehmender Temperatur zu erwarten. Optische Untersuchungen haben gezeigt, dass die Dekohärenzzeit des QD-Exzitons durch Streuung mit akustischen Phononen erst für etwa $T > 30$ K merklich beeinflusst wird [Bes01, Bor01, Ota98]. Diese Ergebnisse konnten in der vorliegenden Arbeit bestätigt werden (vgl. Abschnitt 5.3).

Eine von A. Grodecka durchgeführte systematische Literaturrecherche zum Dephasing der Zero-Phonon-Line [Gro08] kommt zu dem Schluss, dass noch keine brauchbare Theorie zu diesem Thema existiert, vielmehr werden unterschiedliche Ansätze diskutiert, die aber noch nicht vereinheitlicht werden konnten.

So werden experimentell beobachtete nicht-exponentielle Zerfälle der optisch getriebenen Polarisation, die zu nicht-lorentzförmigen Linien führen, bei denen einem schmalen Peak ein breites Band überlagert ist, mit dem *Independent Boson Model* erklärt. Die Amplitude der nicht-exponen-

3. Theorie der Optik und Elektronik von Zwei-Niveau-Systemen

tiellen Dynamik steigt dabei zu höheren Temperaturen hin, während die Zerfallszeit des exponentiellen Anteils kürzer wird. Das breite Unterband wird mit *pure dephasing* über die Interaktion von Exzitonen mit akustischen Phononen erklärt [Kru02,Vag02,Vag03]. Allerdings beschreibt dieser Ansatz nur die relative Abnahme des ZPL-Signals, während dessen Breite jedoch konstant bleibt.

Die experimentell jedoch beobachtete Verbreiterung der ZPL mit steigender Temperatur [Bor01,Bay02] wird durch weitere Ansätze zu verstehen versucht. Laut Theorie kommen dazu zwei Dephasierungs-Mechanismen in Betracht: zum einen ein Besetzungstransfer durch strahlende Rekombination samt Phonon-assistiertem Übergang in andere gebunden Zustände, zum anderen reine Dephasierung, die den Ladungsträgerzustand nicht ändert. Dabei wird das Model unabhängiger Bosonen mittels quadratischer Kopplung an optische [Usk00] und akustische [Mul04a] Phononen erweitert. Zieht man die Kopplung von dispersionsfreien LO-Phononen mit exzitonischen Zuständen in Betracht, so ergeben sich langlebige Mischzustände (Exziton-Polaronen), die keine Linienverbreiterung zeigen, wenn man das System auf eine endliche Anzahl exzitonischer Zustände begrenzt. Eine Erweiterung auf sehr viele Zustände führt dann jedoch zu spektraler Verbreiterung und einem komplettem Kohärenzverlust [Mul07]. Zusätzlich ist dann auch noch die anharmonische Streuung angedacht, bei der LA-Phononen im Feld von LO-Phononen beeinflusst werden können [Mac06]. Auch hier lässt sich feststellen, dass eine gute Theorie noch immer nicht verfügbar ist.

Um die ZPL-Verbreiterung zu beschreiben haben Borri et al. eine Fitfunktion an diesen Zusammenhang angepasst, in die zwei Bose-Funktionen mitsamt Aktivierungsenergien eingehen [Bor05]:

$$y(T) = p_0 + \frac{p_1}{(e^{p_2/T}) - 1} + \frac{p_3}{(e^{p_4/T}) - 1} \quad (3.66)$$

Es konnte dort ebenso gezeigt werden, dass die Theorie von Uskov ein Artefakt darstellt. Die quadratische Kopplung an Phononen wird aber bestätigt. Der Fit einer solchen Funktion ist auch für die in dieser Arbeit gemessenen Daten angepasst worden (vgl. Abschnitt 5.3.1).

4. Experimenteller Aufbau und Proben

Als Voraussetzung für effiziente und aussagekräftige Messungen ist ein leistungsfähiger experimenteller Aufbau unerlässlich. In diesem Kapitel wird daher zum einen auf die untersuchte Probe und ihren Aufbau eingegangen (Abschnitt 4.1), zum anderen wird der eigentliche Aufbau beschrieben. Letzterer gliedert sich in die Bereiche der (optischen) Anregung, der Detektion (optisch/elektrisch) und der Temperaturkontrolle. Der Grundaufbau bleibt jedoch bei allen Experimenten erhalten und wird in Details an die Anforderungen angepasst.

4.1. Optische Anregung

Grundlage für kohärente Untersuchungen von Halbleiter-Nanostrukturen ist selbstverständlich der Einsatz einer Anregungsquelle, die von sich aus schon kohärente Voraussetzungen bietet. Als optisches System kommt dazu natürlich ein Laser in Betracht. Dessen Licht muss dann in seinen Eigenschaften (z. B. Wellenlänge, Phase, Polarisierung, räumliche Ausdehnung und Intensität) noch an die gewünschten Bedingungen angepasst werden. Das dazu nötige Vorgehen wird weiter unten beschrieben.

4.1.1. Laser

Für eine erste Charakterisierung einer Quantenpunkt-Probe ist es im Allgemeinen nicht notwendig, resonant zu einem Energieniveau des Systems anzuregen, es reicht auch eine sogenannte Überbandanregung aus. Das bedeutet, dass mit Hilfe eines im Dauerstrichbetrieb betriebenen HeNe-Lasers (engl.: *continuous wave, cw*) mit einer Emissionswellenlänge von 632,8 nm (1,96 eV) oberhalb der Bandlücke des Matrixmaterials angeregt wird. Dort erzeugte Ladungsträger können dann in den Quantenpunkt gelangen und diesen laden oder ein Exziton formen.

Spezifischere Untersuchungen des Systems erfordern dann die resonante Anregung im cw- oder Puls-Betrieb. Dazu kommt ein Titan-Saphir-Laser

4. Experimenteller Aufbau und Proben

(TiSa) der Firma Coherent zum Einsatz (Modell *Coherent, Mira 900*) ②. Dabei handelt es sich um einen optisch gepumpten Festkörperlaser mit einer sehr großen Verstärkungsbandbreite des aktiven Kristallmaterials (700–980 nm). Da ein entsprechender Spiegelsatz verbaut ist, ist in diesem Bereich eine nahezu kontinuierliche Abstimmung möglich, als Pump-laser dient ein frequenzverdoppelter Nd:YVO₄-Ringlaser (*Coherent, Verdi V6* ①) mit einer Ausgangsleistung von 6,5 W bei einer fixen Wellenlänge von 532 nm (Absorptionsmaximum des TiSa). Ein doppelbrechendes Lyot-Filter ③ erlaubt eine Abstimmung der Wellenlänge durch Drehung. Standardmäßig dient dazu eine Mikrometerschraube, diese wurde jedoch durch eine motorisierte und damit von einem Rechner ansteuerbare Einheit ersetzt. Die mechanische Schrittweite dabei beträgt etwa 0,03 nm. Allerdings kommt es immer wieder vor, dass das Lasersystem sich auf einigen Wellenlängen nicht stabil betreiben lässt, oder auch hin- und herspringt. Daher kann im Allgemeinen nur von einer quasi-kontinuierlichen Durchstimmbarkeit gesprochen werden.

Der Laser kann sowohl im Dauerstrich- als auch im gepulsten Modus (Pulslänge 2–3 ps) betrieben werden und liefert eine Ausgangsleistung von etwas mehr als einem Watt im cw-Betrieb und etwas weniger als einem Watt im Puls-Betrieb. Der erzeugte Laserstrahl ist horizontal polarisiert (TEM₀₀) und besitzt einen Durchmesser von ca. 0,8 mm. Untersuchungen der spektralen Pulsform haben eine gute Übereinstimmung der Intensitätsverteilung einer sech^2 -Kurve ergeben [Stu05]. Allerdings ändern sich sowohl die Pulslänge als auch die Pulsform selbst leicht aber in den meisten Fällen unwesentlich durch die Feineinstellung der einzelnen Komponenten im Inneren des Lasers.

4.1.2. Anregungsseite

Um die Qualität dieses Strahls im Hinblick auf seine Divergenz zu verbessern, eine bessere Ausleuchtung der maßgeblichen Komponenten im Probenstab sicherstellen zu können und eine Leistungsregelung zu realisieren, wird er noch durch ein System aus zwei Linsen und einer Lochblende (engl.: *pinhole*) geschickt. Eine sphärische Linse kleinerer und eine achromatische Linse größerer Brennweite ($f_1/f_2 \approx 0,225$) sind so angeordnet, dass sich in ihrem gemeinsamen Brennpunkt eine Lochblende von 10 μm Durchmesser befindet ④.

Da die erste Linse – die Einkoppellinse also – in ihrem Abstand vom Pinhole durch piezoelektrische Aktoren verstellt beeinflusst kann, lässt sich auf diese Weise eine schnelle und elegante Leistungsregelung durch-

4.1. Optische Anregung

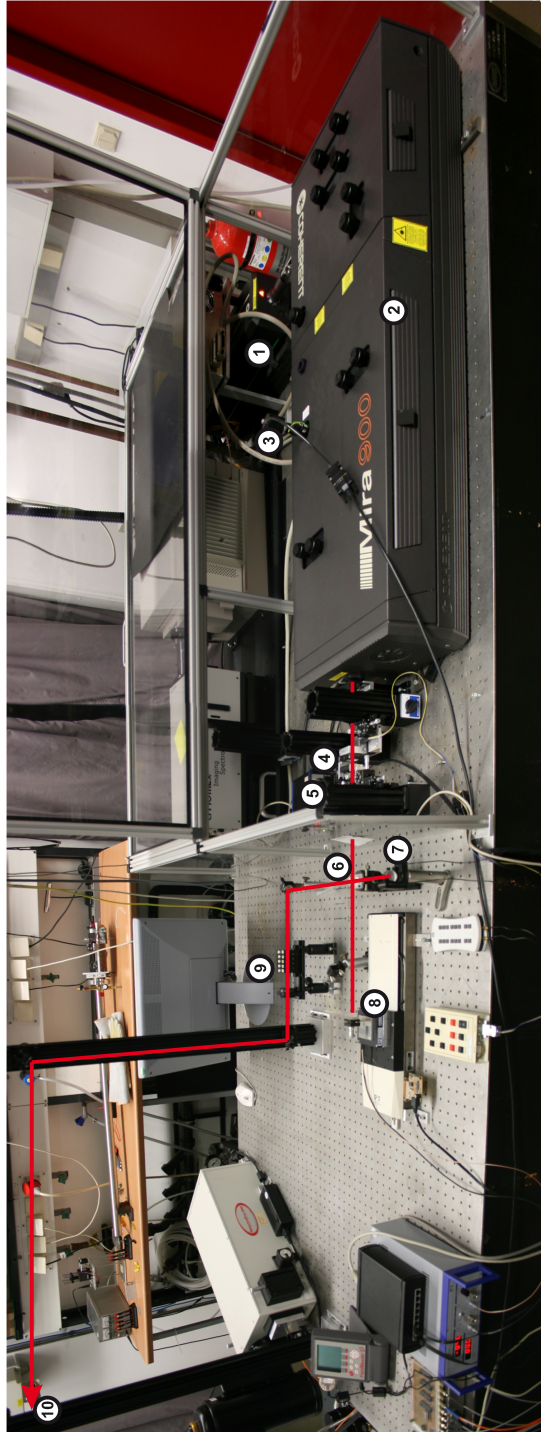


Abbildung 4.1.: ① Pumplaser, ② Ti:Sa-Resonator, ③ Wellenlängenabstimmung, ④ Strahlaufweitung, ⑤ nicht sichtbar: drehbares ND-Filter, ⑥ hier: Strahlteiler, auch möglich: Spiegel, ⑦ fester Arm des Interferometers, ⑧ beweglicher Arm des Interferometers, ⑨ ND-Filter und $\lambda/2$ -Plättchen, ⑩ Pfad zum Helium-Dewar

4. Experimenteller Aufbau und Proben

führen. Der Strahldurchmesser des Lasers hat sich nach dem Durchgang durch diese Optik auf etwa 3,6 mm erhöht, die Divergenz ist um einen vergleichbaren Faktor reduziert. Zum Schutz des recht kleinen Pinholes vor den starken optischen Leistungsdichten des den Laser verlassenden Strahles ist vor der Aufweitungsanordnung noch ein Neutraldichte-Filter (ND-Filter) mit einer Transmission von 5 % schräg angebracht. Dies hat sich als notwendig erwiesen, da das Pinhole sonst mit der Zeit beschädigt wird (die effektive Öffnung vergrößerte sich deutlich). Die Schrägstellung verhindert weiterhin eine Rückkopplung von Strahlung in den Laser, was dessen Stabilität vor allem im Modelocking-Betrieb zu Gute kommt. Da die experimentell auf der Probe benötigten Leistungen deutlich kleiner sind als die Ausgangsleistung des Lasers, entstehen dadurch keine Einschränkungen. Hinter der Aufweitung befindet sich ein per Schrittmotor und damit auch rechnergestützt steuerbares Filterrad, dessen Dichte über 360° kontinuierlich von 0 bis 4 ND verläuft ⑤. Seine Position kann kalibriert und damit reproduziert werden. Um Fabry-Perot-Interferenzen an den Grenzflächen und erneut ein Rückstrahlen in den TiSa zu vermeiden, wird auch das Filterrad schräg in den Strahlengang gestellt.

Nach dieser grundsätzlichen Strahlkonditionierung bietet sich nun die Möglichkeit, den Anregungspfad auf zwei verschiedene Arten zu modifizieren, um den entsprechenden Messanforderungen gerecht werden zu können. Folgende Komponenten können eingesetzt werden ⑥:

Spiegel Als einfachste Variante wird das Laserlicht einfach unverändert durch einen Spiegel Richtung Probe gelenkt.

Strahlteiler/Interferometer Eine weitere Möglichkeit ergibt sich, wenn der oben erwähnte Spiegel durch einen halbdurchlässigen Strahlteilerwürfel ersetzt wird. Auf diese Weise lässt sich im gepulsten Fall aus einem einzelnen Puls eine Folge von zwei Pulsen machen, deren zeitlicher Abstand variiert werden kann. Dazu dient ein Michelson-Interferometer-Aufbau. Einer der beiden Teilstrahlen wird dazu auf einen ortsfesten Spiegel gelenkt und von diesem Richtung Probe reflektiert ⑦. Der zweite Teilstrahl trifft ebenfalls auf einen Spiegel, dessen Abstand zum Strahlteiler und damit auch relativ zum ersten Spiegel lässt sich aber zweistufig ändern ⑧. Als Grobversteller dient ein Lineartisch der Firma PI mit einem Verstellbereich von ca. 20 cm. Im optimalen Fall lässt sich dadurch also eine zeitliche Verzögerung zwischen beiden Teilstrahlen von rund 0 ... 1330 ps einstellen (doppelte Verzögerungsstrecke, da der Strahl hin und wieder zurück laufen muss). Da der Lineartisch in der Vergangenheit

nur schlecht reproduzierbare Positionen anfahren und nur mittels Handsteuerung bedient werden konnte, wurde der Tisch gereinigt und eine CAN-Bus-Steuerung ergänzt, die bei einer recht guten Reproduzierbarkeit von ca. 100 μm (das entspricht also 0,67 ps) und einer ebenso großen Schrittweite nunmehr eine automatisierte Ansteuerung und damit Messschleifen erlaubt. Zur Feinpositionierung ist ein ebenfalls fernsteuerbarer Nanopositionierer (Modell P-762 von PI) montiert, der einen Verstellbereich von 100 μm und einer Auflösung von 25 nm bietet. Damit ist eine Zeitauflösung von 0,17 fs (2,5 % der Wellenlänge) gewährleistet. Bei guter Justage kann ein Kontrast besser als 100:1 über dem gesamten Verfahrbereich erzielt werden.

Von dieser modifizierbaren Anordnung aus wird der konditionierte Laserstrahl über zwei Spiegel auf eine Bank mit kaskadierten Neutraldichtefiltern verschiedener Dicke gelenkt (ND 0,1 bis 3) ⑨. Damit ist eine grobe Einstellung der auf der Proben ankommenden optischen Leistung möglich. Über die 2-Spiegel-Anordnung lässt sich der Strahl zudem komplett 2-dimensional steuern. Im Anschluss besteht die Möglichkeit, die Polarisation der Strahlung zu beeinflussen. Die ursprünglich den Laser horizontal polarisiert verlassende Strahlung kann z. B. mit einem $\lambda/2$ -Plättchen um beliebige Winkel gedreht werden. Ein $\lambda/4$ -Plättchen dagegen erzeugt bei einer Verkippung seiner optischen Achse zur Eingangspolarisation von $\pi/4$ einen zirkular polarisierten Strahl. Eine Kombination aus beiden Plättchen-Arten gestattet somit die Herstellung einer beliebig elliptischen Polarisation. Die bisher beschriebenen Komponenten befinden sich alle direkt auf dem optischen Tisch in direkter Strahlhöhe. Da sich die folgende Komponente, der Tieftemperatur-Probenstab, jedoch ca. 65 cm oberhalb dieses Niveaus befindet, muss der Laserstrahl noch auf diese Höhe gebracht werden. Dazu wurden in der ersten Zeit zwei Spiegel benutzt: der eine auf dem optischen Tisch reflektierte den Strahl in sehr flachem Winkel nach oben, der zweite befand sich auf der Optik-Platte des Probenstabes (vgl. Abschnitt 4.1.3) und wurde ebenfalls nur streifend getroffen. Dadurch ergaben sich sowohl Probleme in der Justage, die recht aufwändig und unübersichtlich war und in der Güte des dann in den Probenstab reflektierten Laserstrahls. Diese Anordnung wurde daher dahingehend modifiziert, dass der Strahl nun direkt nach der letzten Konditionierung über zwei nahezu rechtwinklig ausgerichtete Spiegel auf die Höhe der Optik-Platte gebracht wird. Die Befürchtung, dass die dazu benutzten Schienenträger zu instabil seien, bewahrheitete sich nicht. Es ist nun vielmehr möglich, die Helium-Kannen

4. Experimenteller Aufbau und Proben

zu tauschen und trotzdem nur minimale Korrekturen am Strahlverlauf vornehmen zu müssen ^⑩.

4.1.3. Probenstab

Die Untersuchungen an den beschriebenen Halbleiter-Proben können nur bei niedrigen Temperaturen (bisher: 4,2 K; jetzt: bis 80 K) durchgeführt werden, da nur hier thermische Anregungen z. B. in Form von Phononen ausreichend unterdrückt sind. Gleichzeitig ist oft eine hohe örtliche Auflösung nötig, denn einzelne Quantenpunkte als solche sind ja nur wenige Dutzend Nanometer groß. Zum Erreichen der nötigen Temperatur dient ein Helium-Kryostat, der allerdings nicht im Durchfluss sondern als Bad ausgeführt ist. Das benötigte Helium wird in einer kommerziell erhältlichen Spezialkanne mit einem Fassungsvermögen von 100 Liter aufbewahrt. In diese wird dann eine Eigenkonstruktion, der Probenstab, getaucht und abgekühlt. Dessen oberer Teil (außerhalb der Kanne) besteht aus einer Optik-Platte, auf der sich verschiedene Komponenten zur Ein- und Auskopplung der Laser-Strahlung sowie zur Charakterisierung befinden.

Dies sind im Einzelnen (vgl. Abbildung 4.2) ein Strahlteiler ^① (hier: wegen der geringen internen Reflektion ein *Pellicle* (engl.: *Häutchen*)), der Anregungs- und Detektionsseite trennt bzw. wieder kollinear zusammenführt. Hier trifft der Anregungsstrahl den Probenhalter und wird in das Rohr gelenkt. Dies geschah in allen hier betrachteten Fällen freistrahrend. Die früher zum Einsatz kommende Führung des Lichtes zur Optik-Platte mittels Glasfasern wurde nicht mehr verwendet, die Freistrahlanregung ist inzwischen gut beherrscht, und bietet zudem den Vorteil, Untersuchungen mit definierter Polarisation durchführen zu können. Bei Glasfasern wäre eine Erhaltung dieser Größe nicht gegeben. Zur Messung der Anregungsleistung (und zur evtl. Regelung auf einen konstanten Wert) dient eine großflächige Photodiode ^②. Ein motorisierter Klappspiegel ^③ lässt zwei Modi zu:

- Detektion (Spiegel ausgeklappt)
- optische Abbildung der Probe auf einer CCD samt Beleuchtung mittels LED ^④ (Spiegel eingeklappt)

Letztere Abbildungseinheit dient der optischen Kontrolle von Position und Fokus auf der Probe. Mit Hilfe der Faserkopplung ^⑤ wird das zu detektierende Lumineszenzlicht dann zum Spektrometer geführt. Weiterhin

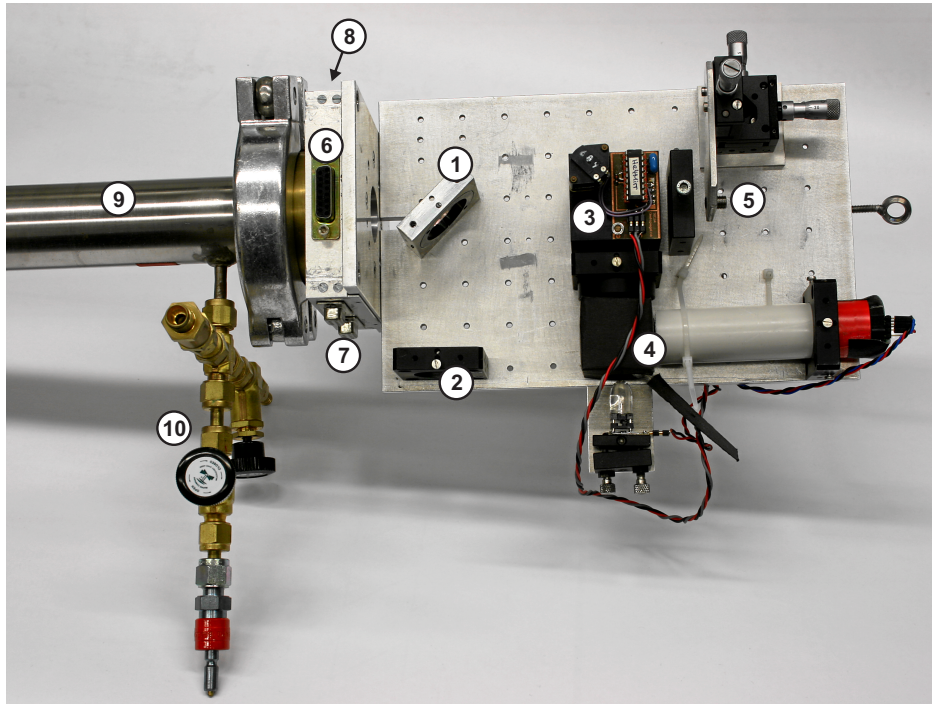


Abbildung 4.2.: Bild der Optikplatte mit einzelnen Komponenten.

verfügt die Optik-Platte über einen elektrischen SUB-D-Anschluss zum Anflanschen des Messkästchens ⑥, einen Anschluss für die Handsteuerung der Piezo-Aktuatoren ⑦, sowie dem Anschluss für die Temperaturregelung ⑧.

Der Teil des Probenhalters, der sich in der He-Kanne befindet besteht aus einem Edelstahl-Überrohr ⑨, das das Innenrohr und dessen Innenleben gegen das flüssige Helium abschirmt indem es mit dem Flansch am oberen Ende einen evakuierbaren Raum definiert. Dieser Hohlraum wird dann vor der Abkühlung der Apparatur abgepumpt (10^{-4} mbar) ⑩ und anschließend mit gasförmigen Helium gefüllt. Dies dient zum einen dazu, eventuelle Niederschläge von Luftbestandteilen auf den Optiken und der Probe zu unterbinden und zum anderen thermischen Kontakt mit dem umgebenden Temperatur-Bad herzustellen. Das Innenrohr (ebenfalls hohl) wird oben durch ein entspiegeltes BK7-Fenster begrenzt und gestattet dem Licht freistrahrenden Durchlauf. Am unteren Ende des Rohres befindet

4. Experimenteller Aufbau und Proben

sich ein Mikroskopobjektiv hoher Numerischer Apertur (NA)¹, um möglichst viel Licht auf die Probe zu bringen bzw. von dort einzusammeln und die nötige Ortsauflösung zu erzielen. Typischerweise wird ein Objektiv von Zeiss (Epiplan, 100x/0.75) mit einer NA von 0,75 verwendet, das einen Lichtpunkt und damit eine laterale Auflösung von 1 μm Durchmesser erzeugt. Diese Wahl schränkt zwar auch das Gesichtsfeld und den Kontrast ein, das sich mit der Kontroll-CCD am Optik-Halter auf einem Video-Monitor darstellen lässt, allerdings sind diese Umstände inzwischen gut beherrscht. Unterhalb dieses Objektives befindet sich die Probe in einem Arbeitsabstand von einem gut handhabbaren Millimeter². Sie lässt sich in allen drei Raumrichtungen mit Hilfe piezoelektrischen Aktuatoren bewegen. Der maximale Verstellbereich beträgt 5 mm, die Schrittweite bei 4,2 K ca. 100 nm. So ist es möglich, den Fokus anzupassen und die zu untersuchende Stelle auf der Probe anzufahren. Zahlreiche elektrische Leitungen verbinden den Probenkäfig mit der Optik-Platte am oberen Ende. Teilweise sind dies als Koaxialleitungen ausgeführt, um auch empfindliche Strommessungen (Auflösung: 0,15 pA) durchführen zu können (vgl. Abschnitt 4.4.2). Insgesamt lassen sich mit einfachen Leitungen leicht bis zu acht Diodenstrukturen mit der Außenwelt verbinden. Hilfsleitungen gestatten darüber hinaus die Ansteuerung der Linearversteller sowie die Messung und Regelung der Temperatur (Abschnitt 4.3).

4.2. Probendesign

Dieser Abschnitt gibt eine Einführung über den in dieser Arbeit untersuchten Probentyp. Alle Experimente und Messungen wurden an einer einzelnen, bestimmten Einzel-Quantenpunkt-Photodiode durchgeführt. Daher wird im Weiteren ein allgemeiner Überblick über den Aufbau und die optischen Eigenschaften der Probe gegeben.

Die hier verwendete Probe (Bezeichnung 120799.2) wurde 1999 am Walter Schottky Institut der TU München mittels Molekularstrahlepitaxie (engl.: *Molecular Beam Epitaxy*, MBE) gewachsen. Anschließend wurde sie in eine n-i-Schottky Diode eingebettet und mit Nahfeld-Schattenmasken versehen. Die Schichtfolgen sind schematisch in Abbildung 4.3 dargestellt, die einzelnen Schritte zur Herstellung sowie weitere Parameter der Probe

¹Die numerische Apertur bestimmt zusammen mit der Wellenlänge des Lichts die erzielbare Auflösung über $\Delta x \approx \lambda/\text{NA}$.

²Dieser Abstand ist vor allem bei Photostrommessungen wichtig, um einen elektrischen Kontakt zwischen dem Objektiv und den Bonddrähten der Probe zu verhindern.

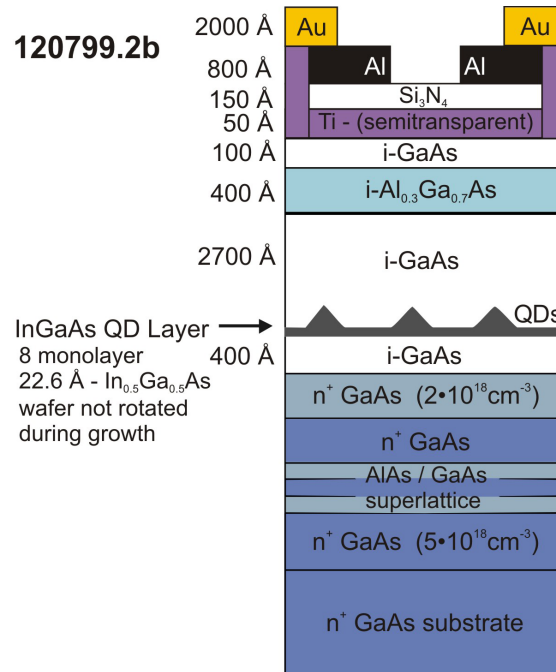


Abbildung 4.3.: Schichtfolge der n-i-Photodiode.

sind umfassend bei Findeis [Fin01a] aufgeführt.

Da die Quantenpunkte der Probe innerhalb einer Diodenstruktur liegen sollen – um ein elektrisches Feld und damit eine Abstimmbarkeit über den Stark-Effekt gewährleisten zu können – muss die QD-Schicht zwischen zwei Kontaktschichten eingebettet werden. Im vorliegenden Fall wurde dazu eine Schottky-Struktur gewählt, deren Rückkontakt eine stark n-dotierte GaAs-Schicht bildet. Oberhalb davon folgt eine 40 nm starke intrinsische (also undotierte) GaAs-Schicht. Die Quantenpunkte wurden selbstorganisiert in einer 2,26 nm dicken In_{0.5}Ga_{0.5}As einlagig gewachsen und mit einer intrinsischen GaAs-Schicht (270 nm) bedeckt. Die Quantenpunktdichte liegt bei 100–200 μm^{-2} . Oberhalb davon dient eine 40 nm dicke i-Al_{0.3}Ga_{0.7}As-Schicht als Barriere, bevor 10 nm i-GaAs die Oberflächendeckschicht bilden. Als Frontkontakt der Schottky-Struktur wurde ein Metall-Halbleiter-Kontakt aus einem semitransparenten Ti-Gate (ca. 5 nm) gewählt. Auf dieser dünnen Titan-Schicht befindet sich dann noch ein Gold-Bondpad zur elektrischen Kontaktierung jeder einzelnen Struktur und eine Al-Schattenmaske (80 nm) zur Einschränkung der untersuchbaren Bereiche.

4. Experimenteller Aufbau und Proben

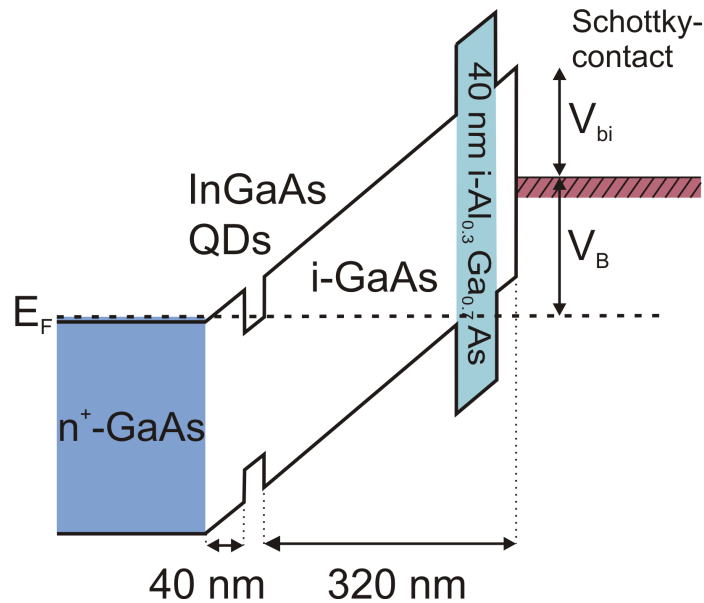


Abbildung 4.4.: Bandstruktur bei angelegter Sperrspannung V_B .

Abbildung 4.4 zeigt die sich unter Bias-Spannung in Sperrrichtung ausbildende Bandstruktur der so hergestellten Probe.

Die Bias-Spannung V_B (sie wird als die externe, in Sperrrichtung der Diode angelegte Spannung definiert) stellt generell das Feld in der Probe ein, das anschließend über der intrinsischen Schicht der Diode abfällt. Zusätzlich stellt sich auch ohne äußeres Feld ein inneres Feld im Bereich der Quantenpunkt-Schicht, das interne „built-in-Feld“ V_{bi} , ein. Es wird durch die Lage der Fermi-Energien von Front- und Rückkontakt bestimmt. Zusammengekommen ergibt sich folgender Zusammenhang zwischen der Spannung V_B und der Feldstärke [Beh03]:

$$|\vec{F}| = (V_B + V_{bi}) \cdot 27,78 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-1} \quad (4.1)$$

V_{bi} beträgt in diesem Fall ca. 0,84 V.

Über die Bias-Spannung wird zudem die Lage der Energieniveaus der Ladungsträger im Quantenpunkt in Bezug auf das Fermi-Niveau des n-dotierten Rückkontaktes bestimmt. Bei geringen Sperrspannungen und in Vorwärtspolung liegen die Quantenpunktniveaus der Elektronen unter der Fermi-Energie des Rückkontaktes. Unter diesen Bedingungen ist der Quantenpunkt im Gleichgewichtszustand (d. h. ohne optische Anregung)

mit einem oder mehreren Elektronen geladen. Bei höherer Sperrspannung (steilerer Potentialverlauf) liegt das niedrigste Leitungsband-Energieniveau des Quantenpunktes über dem Fermi-Niveau des Rückkontaktes, der Quantenpunkt ist somit nicht geladen.

Um individuelle Quantenpunkte selektiv untersuchen zu können, wird die Al-Schattenmaske per Elektronstrahlolithographie und anschließend Ätzen mittels reaktiver Ionen mit Aperturen versehen, die in fünf Reihen mit variierendem Öffnungsdurchmesser von 100 nm bis 500 nm angeordnet sind (Abbildung 4.5). Diese Öffnungen sind somit deutlich kleiner als die Wellenlänge des verwendeten Lichtes im Nahinfraroten (ca. 900 nm), und erfahren nach der Standard-Beugungstheorie bei dem Durchtritt durch diese Schicht eine erhebliche Dämpfung ($T = (d/\lambda)^2$, mit T : Transmission, d : Durchmesser der Apertur und λ : Wellenlänge des verwendeten Lichtes) und werden zudem stark in alle Richtungen gebeugt [Bet44, Bou50]. Die Schicht mit den eingebetteten Quantenpunkten liegt im vorliegenden Fall nur ca. 350 nm unterhalb der Oberfläche und werden somit noch ausreichend bestrahlt. Diese Aperturen schränken also schon auf rein geometrischer Art die Zahl der durch den fokussierten Laserstrahl anregbaren Quantenpunkte ein³. Zusätzlich findet auch noch eine energetische Selektion bei resonanter Anregung der QDs statt, da diese durch die inhomogene Verbreiterung der Ensemble-Energien hinreichend weit voneinander entfernt sind, um vom energetisch schmalen Laser unterschieden werden zu können.

Während also für Photolumineszenz-Spektroskopie einzelne Quantenpunkte optisch leicht adressierbar sind, wird im Gegensatz dazu ein ganzes Ensemble von Quantenpunkten elektrisch kontaktiert. Dies hängt mit der semitransparenten Titan-Schicht zusammen, die zum einen die optische Anregung der unter ihr liegenden Struktur zulässt, und zum anderen aber auch für eine homogene E -Feldverteilung über die gesamte Diodenfläche sorgt. Unterteilt ist die Probe in $300\text{ }\mu\text{m} \times 400\text{ }\mu\text{m}$ große Felder, die über einen dünnen Golddraht einzeln elektrisch kontaktiert werden können. Damit werden also theoretisch alle Photoströme der sich in diesem Bereich befindlichen Quantenpunkte (18 Millionen) detektiert. Der hier im Folgenden untersuchte Quantenpunkt befindet sich unterhalb einer Apertur von 300 nm Durchmesser (Feld 43, d. h. 3. Reihe, 4. Feld von links), ist aber energetisch hinreichend alleinstehend, so dass trotzdem eine selektive, ein-

³Die Probe hat eine QD-Dichte von $100\text{--}200\text{ }\mu\text{m}^{-2}$, d. h. bei einem Öffnungsdurchmesser von 300 nm befinden sich unter der Apertur durchschnittlich zwischen 7 und 14 Quantenpunkte.

4. Experimenteller Aufbau und Proben

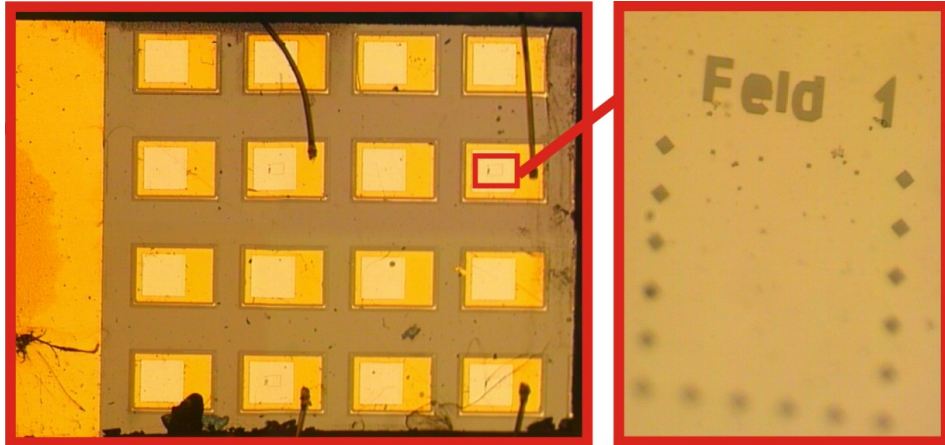


Abbildung 4.5.: links: Abbildung des Probenstückchens von oben gesehen mit Au-Kontaktierung, rechts: einzelnes Messfeld mit Al-Schattenmaske und Grenzmarkierungen.

zelne Anregung möglich ist. Begrenzt wird die Diodenfläche von größeren Markieröffnungen, die ein leichtes Zurechtfinden auf der Probe auch im abgekühlten Zustand über die CCD-Kamera gewährleisten und so erst die reproduzierbare Messung am betrachteten Quantenpunkt ermöglichen.

4.3. Temperaturkontrolle

Der Probenhalter, der seit Jahren standardmäßig im Probenrohr zum Einsatz kommt und dabei laufend verbessert wurde, erlaubt es lediglich, Messungen an der eingespannten Probe bei der Siede-Temperatur des Heliums ($T_{\text{He}} = 4,2 \text{ K}$) vorzunehmen. Es wurde stets davon ausgegangen, dass die Probe durch das sie umflutende Heliumgas thermisch mit dem Bad aus flüssigem Helium so gut verbunden ist, dass selbst starke optische Leistungen auf ihr nicht zu einer merklichen Änderung der Temperatur führen. Um nun diese aber beeinflussen zu können, ist es also notwendig, effektiv zusätzliche Energie zur Probe zu bringen, um diese zu erwärmen. Außerdem ist es dann unerlässlich, auch Möglichkeiten zu schaffen, die Temperatur der Probe messen und damit regeln zu können. Dazu bietet es sich an, über noch freie Leitungen, die vom Kopf des Probenhalterrohres bis zum Mikroskopkäfig führen, zu nutzen, um elektrische Energie mit Hilfe von Widerständen in direkter Nachbarschaft zur Probe dissipativ in Wärme zu wandeln. Daher wurde ein Probenaufnahmeteller (vgl. Ab-

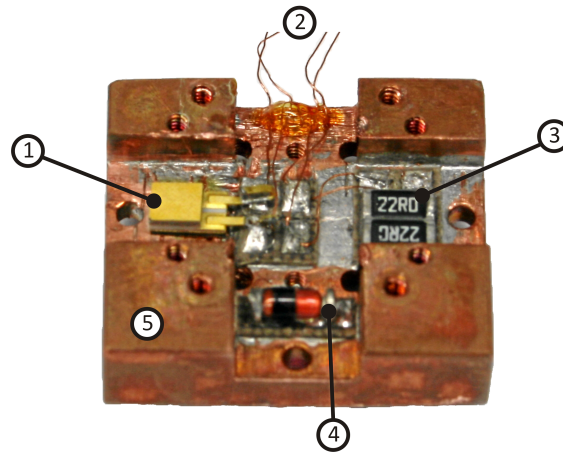


Abbildung 4.6.: Probenaufnahmeteller von unten gesehen. ①: Silizium-Diode (*LakeShore DT-670B-SD*) zur Temperatur-Messung, ②: Zuleitungen, ③: Heizwiderstände ($2 \times 22 \Omega$), ④: Diode, ⑤: Aufnahmeplatte aus Kupfer

bildung 4.6) konstruiert, der auf seiner Oberseite die zu untersuchende Probe aufnehmen kann und an den von unten die Widerstände ③ bzw. die Diode ① befestigt sind. Wegen seiner hohen thermischen Leitfähigkeit wurde als Material für diese Aufnahme Kupfer ⑤ gewählt, und im weiteren davon ausgegangen, dass sich eine homogene Temperaturverteilung über den Aufnahmeteller und damit die Probe einstellt.

Zwei parallel geschaltete SMD-Widerstände von jeweils 22Ω ③ sind auf einem kaschierten Kupferblech aufgebracht, so dass einerseits eine elektrische Isolation vom Kupfer und zugleich ein guter thermischer Kontakt gewährleistet werden kann. Die an den beiden Widerständen anliegende Spannung kann mit einer Auflösung von 16 Bit über einen DA-Wandler (*LTC 1655*) zwischen 0 und 6 V beeinflusst werden. Als Strom stellen sich laut Messung ca. 280 mA ein, zusammengekommen führt dieses Verhalten also zu einer regelbaren, an den Widerständen abfallenden Wärmeleistung. Allerdings stellte sich heraus, dass die Leistungsfähigkeit eines normalen USB-Anschlusses, wie er zuerst als Speisequelle für die Heizung benutzt wurde nicht ausreicht, um Temperaturen oberhalb von 55 K verlässlich zu erreichen. Durch eine zusätzliche Schaltung, die nun über ein externes Netzteil verfügt, werden stabile 6 V und ausreichende Stromreserven zur Verfügung gestellt.

4. Experimenteller Aufbau und Proben

Die Bestimmung der Probentemperatur erfolgt über die bereits erwähnte Silizium-Diode (Modell *LakeShore DT-670B-SD* ①), die nur wenige Millimeter groß ist und die Messung von Temperaturen zwischen 2 K und ca. 500 K mit einer Genauigkeit von ungefähr $\pm 0,5$ K ermöglicht. Zum Betrieb dieser Diode wird ein stabilisierter Konstantstrom von 10 μA benötigt. Die dann an ihr abfallende Spannung wird von einem AD-Wandler (ADC 8320) mit 16 Bit Auflösung verarbeitet und an den Messrechner gemeldet. Der Zusammenhang zwischen dieser Spannung und der Temperatur ist zwar nichtlinear, aber bekannt, und kann durch Chebychev-Polynome in vier Temperatur-Abschnitten ausgedrückt werden (vgl. Abschnitt A).

Die Steuerung der Heizspannung übernimmt ein selbsterstelltes Delphi-Programm, das auch die Darstellung der aktuellen und die Regelung auf die vorgewählte Temperatur überwacht. Die Ausregelung auf eine gewünschte Temperatur geschieht innerhalb von einigen Minuten, wird jedoch oberhalb ca. 40 K zunehmend langwieriger. Abweichungen von $\pm 0,5$ K können aber erreicht werden. Zudem überwacht das Programm ständig, ob es zu ungewöhnlichen Abweichungen kommt und unterbindet die Spannung notfalls, um ein unkontrolliertes Aufheizen der Probe zu vermeiden. Obwohl nur geringe Mengen von Heliumgas in die evakuierte Probenröhre eingebracht werden (standardmäßig nur einige Kubikzentimeter), stellt es dennoch einen so effizienten thermischen Kontakt zum Helium-Bad her, dass sich eine auf 60 K aufgeheizte Probe innerhalb von 30 s wieder auf 4,2 K abkühlt. Mit einer maximal anlegbaren Heizspannung von 6 V lässt sich eine Probentemperatur von deutlich über 80 K erzielen, so dass der direkte Anschluss an die Temperaturbereiche von flüssigem Stickstoff gegeben ist.

4.4. Detektion

Ein Anregungszustand in einem Quantenpunkt kann auf verschiedenen Kanälen zerfallen. Je nachdem, welcher Mechanismus vorherrscht, müssen unterschiedliche Detektionsmethoden zum Einsatz kommen. Wird der QD-Zustand resonant angeregt und kann durch Tunneln zerfallen, bildet sich ein Photostrom aus, der mit den in Abschnitt 4.4.2 beschriebenen Methoden untersucht werden kann. Wird der Zustand dagegen durch optische Rekombinationsmechanismen abgebaut, muss das Signal dieser Photolumineszenz untersucht werden (Abschnitt 4.4.1). Die angelegte Bias-Spannung an der Probe lässt eine Beeinflussung des vorherrschenden Zerfallskanals zu (vgl. Abschnitt 2.3.3).

4.4.1. Optische Detektion

Bei den in dieser Arbeit aufgeführten Untersuchungen an der Halbleiter-Quantenpunkt-Struktur waren in erster Linie die elektrischen Antworten der Probe von Interesse, dies wird im nächsten Abschnitt eingehend erläutert. Der Vollständigkeit halber soll aber auch auf die Möglichkeit zur optischen Detektion der Probenreaktion auf geeignete Anregungen erläutert werden. Das bei diesen Prozessen entstehende Lumineszenz-Licht wird von dem in Abschnitt 4.1.3 beschriebenen Objektiv eingesammelt, kollimiert und an der Optik-Platte ausgekoppelt. Dies kann entweder freistrahlend erfolgen, dann wird das Licht über entsprechende Spiegel an das Spektrometer geleitet. Zusätzlich besteht die Möglichkeit, das Lumineszenz-Licht noch am Kopf des Probenhalters in Multimode-Glasfasern (Kerndurchmesser: 50, 100 oder 200 μm) einzukoppeln und auf diese Weise zum Spektrometer zu führen. Bei Letzterem handelt es sich um ein 0,5-m-Gerät der Firma Acton Research (*Spectra Pro 500i*). Dort stehen zur spektralen Auffächerung der Strahlung Gitter mit 300 bzw. 1200 Linien pro Millimeter zur Verfügung. Das 300er-Gitter eignet sich eher für Übersichtsmessungen, während das 1200er-Pendant zusammen mit dem Silizium-Detektor (Si-CCD, gekühlt mit flüssigem Stickstoff, 400 Zeilen mit je 1340 Pixeln (jeweils 20 μm breit)) bei der Emissionswellenlänge der betrachteten GaAs-Quantenpunkte die Betrachtung eines 47 meV breiten Energiebereiches gestattet. Die Auflösung beträgt dann rechnerisch 35 μeV , allerdings ist die abbildende Eigenschaft des Spektrometers zu berücksichtigen, so dass der Kerndurchmesser der verwendeten Glasfasern in die Überlegungen mit einbezogen werden muss. Mit besagter 50- μm -Faser erhält man so eine Energieauflösung von 100 μeV . In jedem Fall aber sorgt ein Kantenfilter am Eingang des Spektrometers für eine Ausblendung der Anregungsstrahlung, da diese durch Reflexionen/Streulicht im Inneren des Gerätes zu unerwünschten Artefakten im Spektrum führen könnte.

4.4.2. Elektrische Detektion

Der wesentliche Teil der Untersuchungen dieser Arbeit wurde mittels elektrischer Detektion der an der Probe auftretenden Photoströme durchgeführt; diese Technik wird auch als Photostrom-Spektroskopie (engl.: *Photocurrent Spectroscopy, PC*) bezeichnet. Für diese Art der Messung charakteristisch ist das energetisch schmale Detektionsfenster, das aber durch eine sehr hohe Auflösung und die direkte Kopplung der Quantenpunkt-Zustände an elektrische Signal wett gemacht wird. Die direkte Messung

4. Experimenteller Aufbau und Proben

über elektrische Signale gestaltet sich dementsprechend oft einfacher als die optische Detektion und erlaubt zudem auch Experimente bei resonanter Anregung des Grundzustandes⁴. Prinzipbedingt werden bei diesen Messungen jedoch unterschiedslos alle Ladungsträger aufgefangen, gleich, von welcher Struktur sie stammen. Daher ist eine erste räumliche Selektion mit Hilfe der in Abschnitt 4.2 erläuterten Schattenmaske notwendig. Als zweiten Schritt regt man den zu untersuchenden QD resonant optisch an und kann so in gewissen Grenzen sicher sein, nur dessen spezifische elektrische Antwort aufzufangen. Wie in obigem Abschnitt ebenfalls erläutert, sind die Proben als Dioden ausgeführt. Dadurch ist es möglich, die Tunnelzeiten der optisch erzeugten Ladungsträger im Quantenpunkt über die angelegte Spannung und das dadurch induzierte interne E -Feld zu beeinflussen. Zeiten von weniger als 1 ps bis nahezu unendlich sind so einstellbar, erlauben aber natürlich nur dann die Messung eines Photostromes, wenn sie nicht wesentlich länger als die strahlende Lebensdauer des QD-Zustandes ist. Die Messanordnung durch einen geschlossenen Stromkreis bietet zudem die interessante Möglichkeit, auch quantitative Aussagen treffen zu können, da „alle“ Ladungsträger detektiert werden. Unter gewissen Umständen ist es dann möglich, Rückschlüsse auf die Besetzungswahrscheinlichkeit eines QD-Zustandes zu führen (Rabi-Oszillationen, vgl. Abschnitt 3.4).

In den vorliegenden Untersuchungen wird rechnergesteuert eine Bias-Spannung im Bereich von meist $-0,5 \dots +1,5$ V angelegt und zeitgleich der die Diode durchfließende Strom gemessen (typisch einige pA). Um diese sehr kleinen Ströme störungsarm von der eigentlichen Probe nach außen zu führen, werden die in Abschnitt 4.1.3 beschriebenen Koaxialleitungen genutzt. Die eigentliche Messung findet dann in einem abgeschlossenen Messkästchen statt, das direkt am Probenhalterkopf befestigt ist und auch die Bias-Spannung zur Verfügung stellt. In Ersterem kommt ein Digital-Analog-Wandler (DAC) als Spannungsquelle zum Einsatz. Er lässt Spannungen zwischen $-5 \dots +5$ V bei einer Auflösung von 16 Bit zu. Die Messung der Ströme erfolgt, indem dieser zunächst über einen Strom-Spannungs-Wandler mit einem Rückkoppelwiderstand von $100 \text{ M}\Omega$ (entspricht einer Verstärkung von 10^8 V/A)⁵ in eine äquivalente

⁴Erfolgt die Anregung und Detektion dagegen rein optisch, treten zusätzliche Komplikationen bezüglich der Trennung von Anregungs- und Lumineszenzlicht auf, auch wenn es dazu natürlich ausgefeilte experimentelle Methoden gibt [Ale03, Hog04, Lan04a].

⁵Die Verstärkung und damit die Auflösung könnte noch über einen größeren Widerstand (z. B. $1 \text{ G}\Omega$) erhöht werden, allerdings treten schon im aktuellen Fall starke Schwankungen der Messgrößen auf, die vor allem von Fluktuationen der Laserleistung

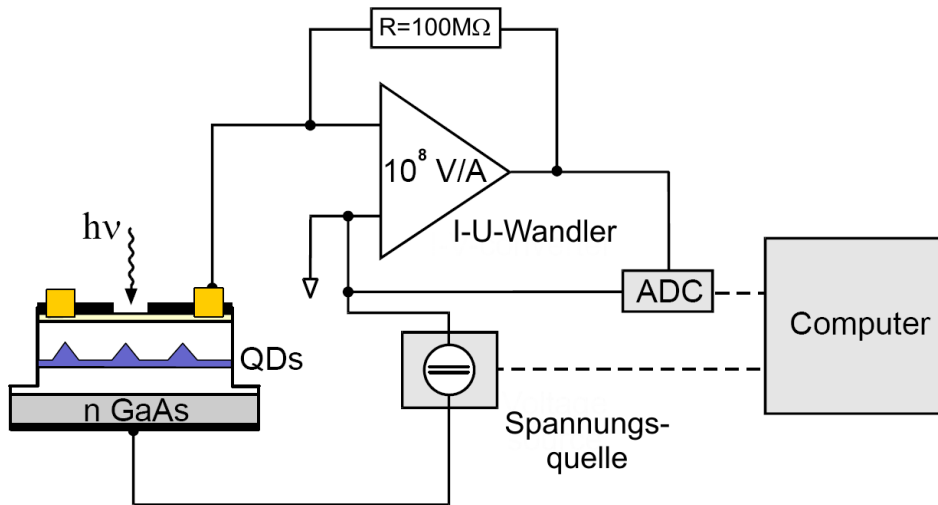


Abbildung 4.7.: Schematischer Aufbau der Schaltung zu Messung des Photostromes.

Spannung transferiert wird. Diese wird dann von einem 16-Bit-Analog-Digital-Wandler (ADC) für den Messrechner aufbereitet. Die Auflösung dieser Strommessung beträgt also $0,15\text{ pA}$ bei einem Messbereich zwischen $-5 \dots +5\text{ nA}$. Die Werte werden über eine Glasfaser zu einer Fibbox und von dort per USB zum Messrechner geleitet. Auf dem gleichen Wege gelangen auch die Signale einer Photodiode zum Rechner, die am Probenhalterkopf hinter dem Strahlteiler angebracht ist. Auf diese Weise ist es möglich, eine zur Intensität des Laserlichtes auf der Probe proportionale Messgröße mit aufzuzeichnen. In direkt intensitätsabhängigen Messungen (Rabi-Oszillationen) wird dieses Signal dann zur Definition der x-Achse verwendet, während das PC-Signal auf der y-Achse aufgetragen wird. Auf umgekehrtem Wege gelangen die einzustellenden Bias-Spannungswerte an die Messbox.

Zur störungs- und rauscharmen Erfassung dieser sehr kleinen Ströme werden zahlreiche Anstrengungen unternommen. Wie bereits beschrieben, kommen zur Führung der elektrischen Signale von der Probe zum Probenhalterkopf hauptsächlich Koaxialleitungen zur Anwendung. Alle ungeschirmten Kabel sind kürzestmöglich gehalten und nötigenfalls verdreht. Auf besonders rauscharme Bauteile wurde Wert gelegt, zudem integriert der ADC intern jeweils über Perioden von 50 ms Dauer. Rausch-

herrühren.

4. Experimenteller Aufbau und Proben

effekten (z. B. beim digitalen Sprung zwischen benachbarten Werten) wird durch die Verwendung von Tiefpassfiltern erfolgreich entgegengewirkt. Die direkt mit der Probe elektrisch in Kontakt stehenden Komponenten befinden sich wie erwähnt in einem einzigen, geschirmten Metallgehäuse und werden durch Batterien versorgt. Die Ankopplung an die „Außenwelt“ erfolgt potentialfrei über Glasfasern.

4.5. Probeneigenschaften

Im Folgenden sollen die bereits bekannten Eigenschaften der in dieser Arbeit untersuchten Probe (WSI 120799.2b, Feld 43) kurz zusammengefasst werden.

4.5.1. Energieniveaus

Einen Überblick über die energetische Lage der verschiedenen, anregbaren Niveaus im betrachteten Quantenpunkt kann Abbildung 4.8 entnommen werden.

Erkennbar sind vor allem das Exziton ($1X$), das Biexziton ($2X$) und das negativ geladene Exziton ($1X^-$). Ihre Neigung in der Vertikalen wird durch den Stark-Effekt hervorgerufen (vgl. Abschnitt 4.5.2). Der energetische Abstand ist ebenfalls erkennbar, $1X$ und $2X$ liegen etwa 2,5 meV auseinander.

4.5.2. Quantum Confined Stark Effect

Die einzelnen Emissionslinien der spannungsabhängigen Photolumineszenz-Messungen in Abbildung 4.8 verlaufen nicht ganz senkrecht, d. h. die Übergangsenergien verschieben leicht in Abhängigkeit von der äußeren Bias-Spannung (Stark-Effekt, vgl. Abschnitt 2.3.3). Dieser Effekt lässt sich auch bei höherer Sperrspannung messen, oberhalb von etwa 0,4 V allerdings nicht mehr als PL-Signal, sondern als Photostrom-Signal, da dann die Tunnelwahrscheinlichkeit die optische Rekombinationsrate übersteigt. In Abbildung 4.9 sind die beiden unterschiedlichen Messmethoden nochmals schematisch dargestellt:

- Bei PL-Messungen erfolgt die Anregung nicht-resonant über der Bandlücke des Matrixmaterials. Die Ladungsträger relaxieren in den QD und rekombinieren dort unter Abstrahlung eines Photons.

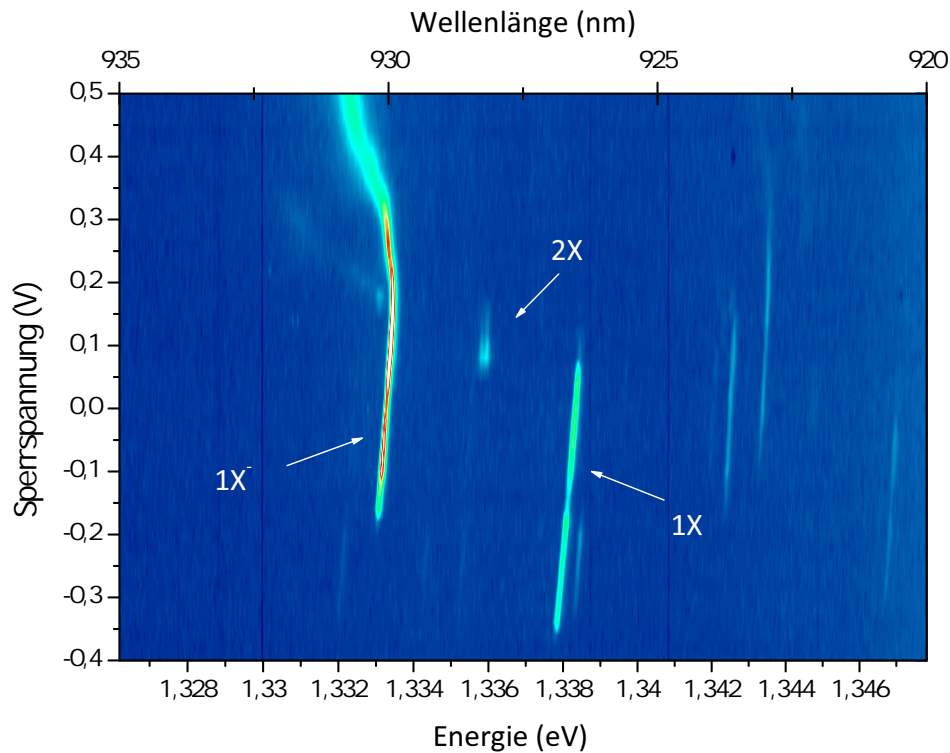


Abbildung 4.8.: Spannungsabhängige Photolumineszenz bei nicht-resonanter Anregung. Sichtbar sind Exziton, Biexziton und das einfach negativ geladene Exziton.

Die Information über Energieniveaus im QD erhält man aus der spektralen Lage der Emissionslinien.

- Bei Photostrommessungen wird der QD resonant angeregt, die Detektion erfolgt elektrisch. Die QD-Energieniveaus erhält man aus der spektralen Lage der Absorptionslinien beim Durchfahren der Laserwellenlänge.

Im Fall des 1X-Übergangs sind die Absorptions- und Emissionsenergie gleich. Die Datenpunkte in Abbildung 4.9 können daher durch eine stetige Fitkurve, in diesem Fall durch eine Parabel, angepasst werden.

Der Stark-Effekt kann auch dazu benutzt werden, die QD-Niveaus gegenüber einer festen Laserwellenlänge abzustimmen. Man erhält dadurch Spektren, die zwar nur einen relativ geringen Energiebereich abdecken, dafür allerdings eine sehr hohe Auflösung erreichen. Die Umrechnung

4. Experimenteller Aufbau und Proben

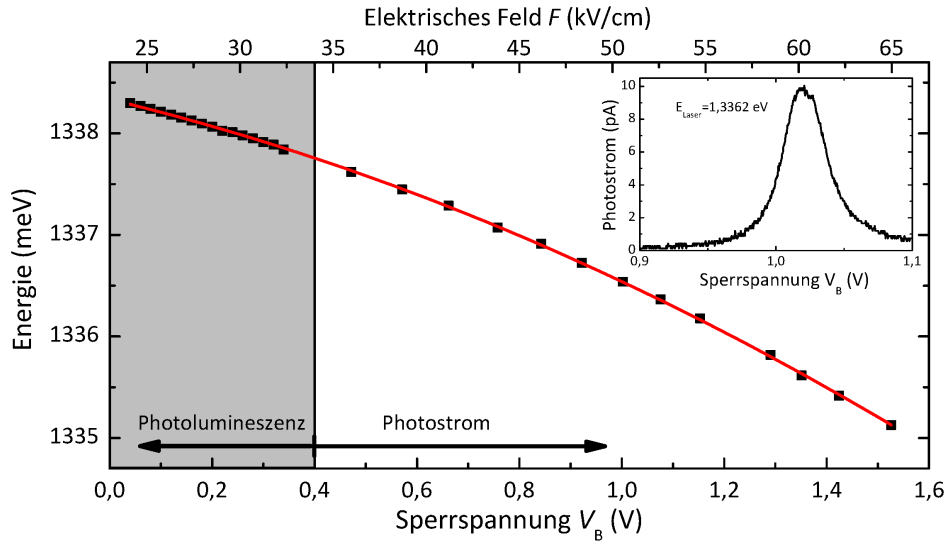


Abbildung 4.9.: Übergangsenergie des QD-Grundzustands in Abhängigkeit von der Probenspannung. Aufgrund des Stark-Effekts ergibt sich bei hohem elektrischem Feld eine Energieerniedrigung, welche zur Feinabstimmung des Übergangs verwendet werden kann. Der Übergang in der Detektionsmethode vom PL- zum Photostromregime liegt etwas unterhalb 0,4 V.

von Spannungs- in Energiewerte erfolgt über die Fitkurve aus Abbildung 4.9:

$$E = 1,33833 \text{ eV} - 12,13 \cdot 10^{-4} \text{ eV/V} \cdot V_B - 5,82 \cdot 10^{-4} \text{ eV/V}^2 \cdot V_B^2 \quad (4.2)$$

Oft wichtiger als die absolute Energie ist die relative Energieänderung ΔE bei Abstimmung der QD-Niveaus über die Spannung. Diese Energieänderung wird meist in μeV angegeben:

$$\Delta E = \left(-1210 \text{ } \mu\text{eV/V} - 1163 \text{ } \mu\text{eV/V}^2 \cdot V_B - 582 \text{ } \mu\text{eV/V}^2 \cdot \Delta V_B \right) \cdot \Delta V_B \quad (4.3)$$

Das negative Vorzeichen bringt die Tatsache zum Ausdruck, dass die Energie des 1X-Übergangs mit steigender Sperrspannung V_B abnimmt.

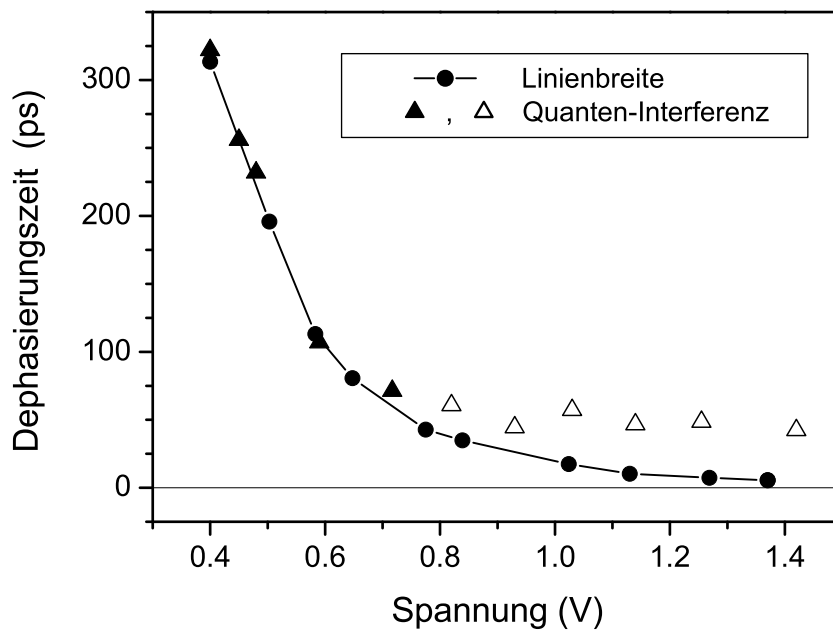


Abbildung 4.10.: Dephasierungszeiten des Systems bestimmt aus der Analyse von Linienbreiten bzw. Doppelpulsexperimenten (aus: [Stu05]).

4.5.3. Dephasierungszeiten

Die Dephasierungszeit des Systems wird maßgeblich durch Tunnelprozesse bestimmt und kann daher über die angelegte Spannung kontrolliert werden. Zunächst tunnelt das Elektron (geringere effektive Masse) und bestimmt damit die Kohärenz des ganzen Systems.

4.5.4. Rabi-Oszillationen

Der betrachtete Quantenpunkt wurde bereits weitreichend vorcharakterisiert [Stu06]. Die relevanten Zeitskalen der im Photostrom-Fall auftretenden Prozesse sind in Abbildung 4.11 skizziert.

Die Anregung des Systems erfolgt mit Hilfe eines mit 80 MHz gepulsten Lasersystems, das entspricht einer Zeit von 12,5 ns. Der Puls selbst ist etwa 2–2,5 ps lang, nach dieser Zeit ist die kohärente Anregung des Systems typischerweise abgeschlossen. Der schnellste in diesem System auftretende Dephasierungsprozess bei Heliumtemperatur erfolgt spannungsabhängig nach etwa 10 ps bis 300 ps (Tunneln des schnelleren Ladungsträgers), d. h. hinreichend langsamer als die Anregungsdauer. Da auch der langsa-

4. Experimenteller Aufbau und Proben

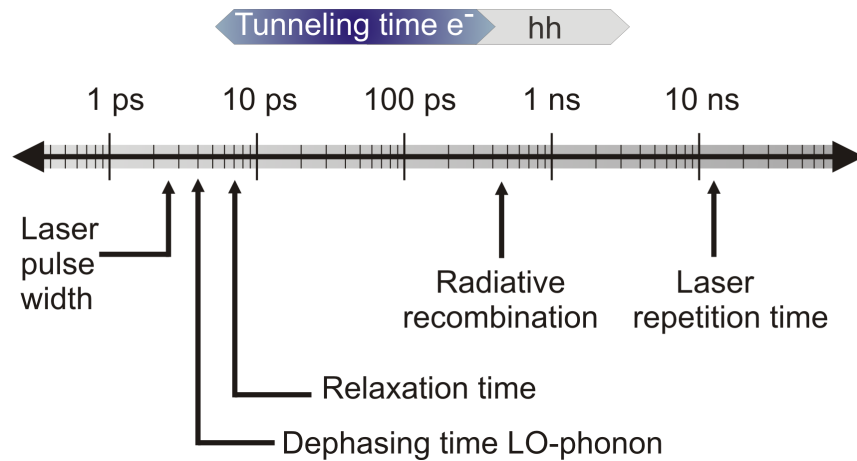


Abbildung 4.11.: Relevante Zeitskalen für kohärente Photostrom-Experimente. Die Tunnelzeit des Elektrons (e^-) wird über die Proben-spannung so eingestellt, dass sie deutlich länger ist als die Pulsbreite der Anregung aber kürzer als die optische Rekombinationszeit. Der Tunnelprozess des Lochs (hh) ist relativ langsam, erfolgt aber noch vor der nächsten Anregung (aus: [Stu05]).

me Ladungsträger spätestens nach einigen Nanosekunden aus dem QD tunnelt, befindet sich dieser beim Eintreffen des nächsten Laserpulses wieder im (leeren) Anfangszustand. Im idealisierten Fall einer vollständigen Anregung des QDs mit genau einem Exziton (π -Puls) würde also 80 Millionen mal pro Sekunde (Repetitionsrate des Lasers) bei der Rekombination des Exzitons ein Elektron erzeugt, was zu einem Strom von $I = f_{\text{Laser}} \cdot e$, im vorliegenden Fall also etwa 12,8 pA, führen würde. Im realen Fall wird dieser Wert jedoch nicht ganz erreicht, hier führen stets vorhandene Dekohärenzmechanismen und der Einfluss der angelegten Spannung zu Abweichungen. Erreichbar sind aber immerhin knapp 90 % des Maximalwertes (Abbildung 4.12).

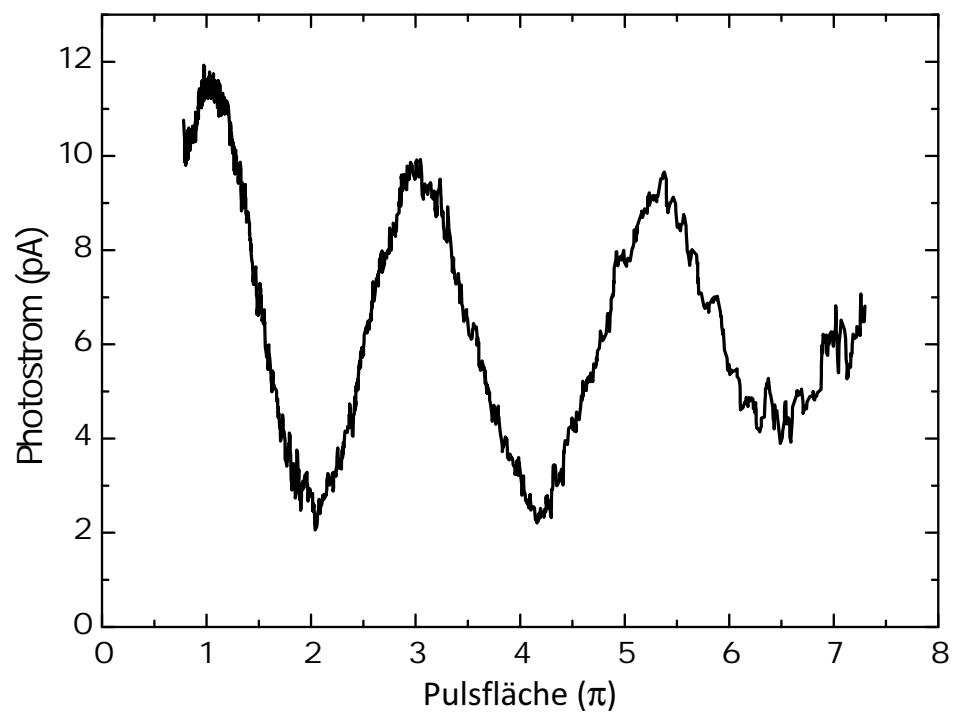


Abbildung 4.12.: Rabi-Oszillation des Exziton-Überganges bei 4,2 K.

4. Experimenteller Aufbau und Proben

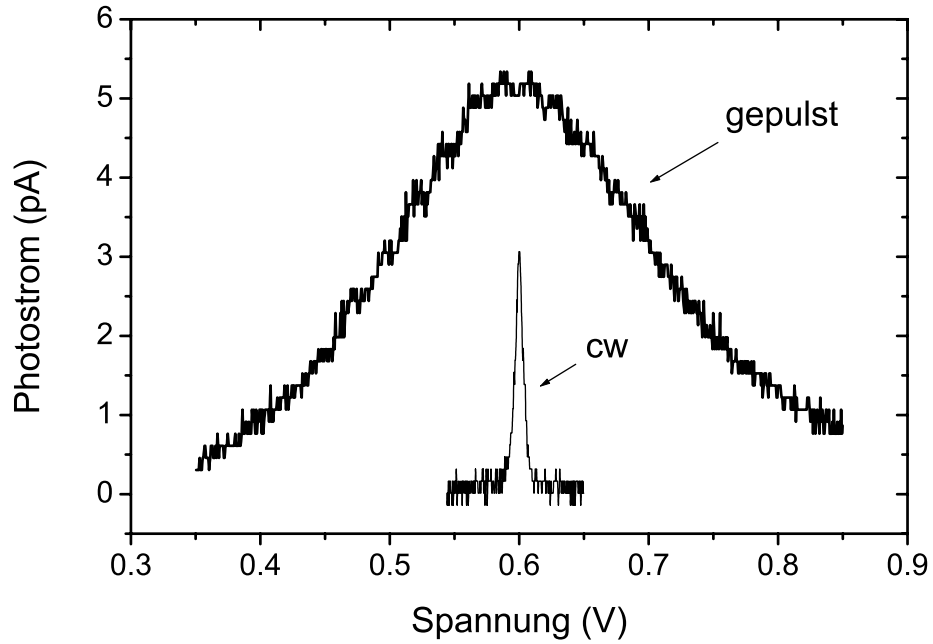


Abbildung 4.13.: Photostrom-Spektrum bei Anregung mit einzelnen $\pi/2$ -Pulsen bzw. unter cw-Anregung. Im Fall gepulster Anregung spiegelt das Photostromsignal im Wesentlichen die spektrale Breite der Laserpulse wider (aus: [Stu05]).

4.5.5. Ramsey-Interferenzen

Im vorliegenden Fall wird die Frequenz der Anregung konstant gehalten und stattdessen die Energie des Zwei-Niveau-Systems mithilfe des Stark-Effekt variiert. Man erwartet bei Anregung mit Doppelpulsen mit festem Pulsabstand τ_{delay} eine Interferenz in Abhängigkeit von der Verstimmung δ gemäß $N_1 = \cos^2(\delta\tau_{\text{delay}}/2)$. Diese Interferenz ist dem gewöhnlichen Absorptionsspektrum eines Einzelpulses (siehe Abbildung 4.13) überlagert.

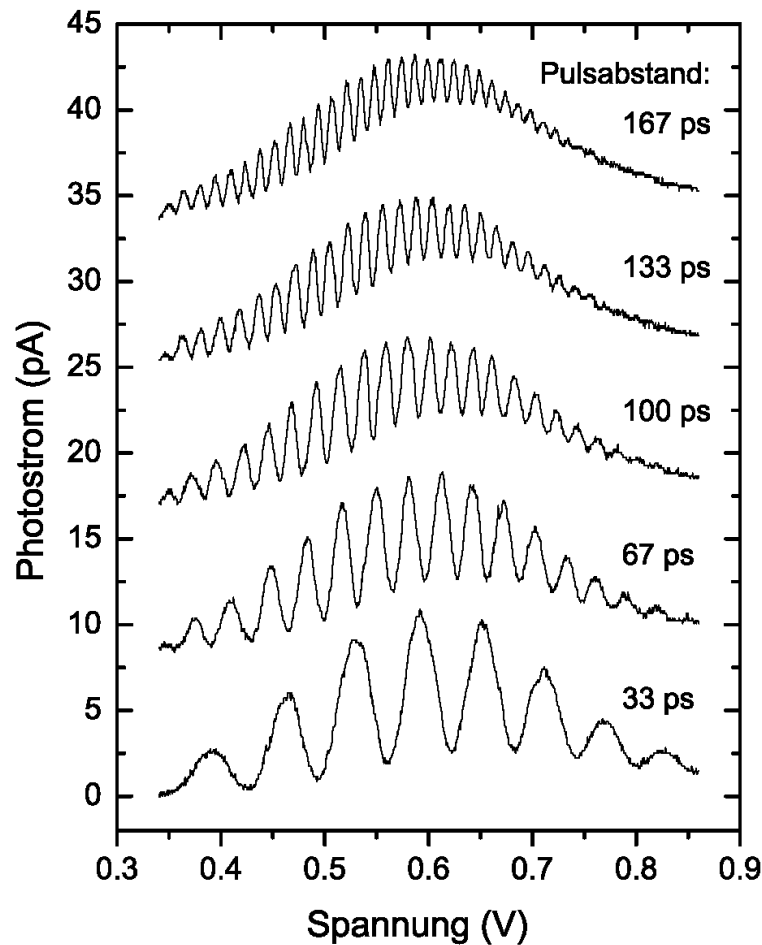


Abbildung 4.14.: Ramsey-Experiment für verschiedene Pulsabstände. Je größer der zeitliche Abstand der Pulse ist, desto schmäler werden die Interferenzen. Die Einhüllende des Signals entspricht dem Spektrum einzelner Pulse (vgl. Abbildung 4.13) (aus: [Stu05]).

Abbildung 4.14 zeigt das Ramsey-Experiment für verschiedene Pulsabstände. Die Interferenzen werden wie erwartet mit zunehmendem Pulsabstand immer schmäler. Weiterhin ist vor allem bei großen Pulsabständen eine starke Asymmetrie in der Amplitude der Interferenzoszillation zu erkennen. Diese stammt von der Spannungsabhängigkeit der Dephasierungszeit. Mit zunehmender Probenspannung nimmt die Tunnelzeit und damit auch die Kohärenz zu großen Pulsabständen hin ab. Der Anteil des kohärenten (oszillatorischen) Signals am Gesamtsignal ist daher bei

4. Experimenteller Aufbau und Proben

niedrigen Spannungen immer am stärksten.

Bis zu einer Verzögerungszeit von 670 ps konnten zu diesem Zeitpunkt Ramsey-Interferenzen beobachtet werden.

4.5.6. Biexziton

An dieser Probe konnten Rabi-Oszillationen des Biexzitons nachgewiesen werden (Abbildung 4.15).

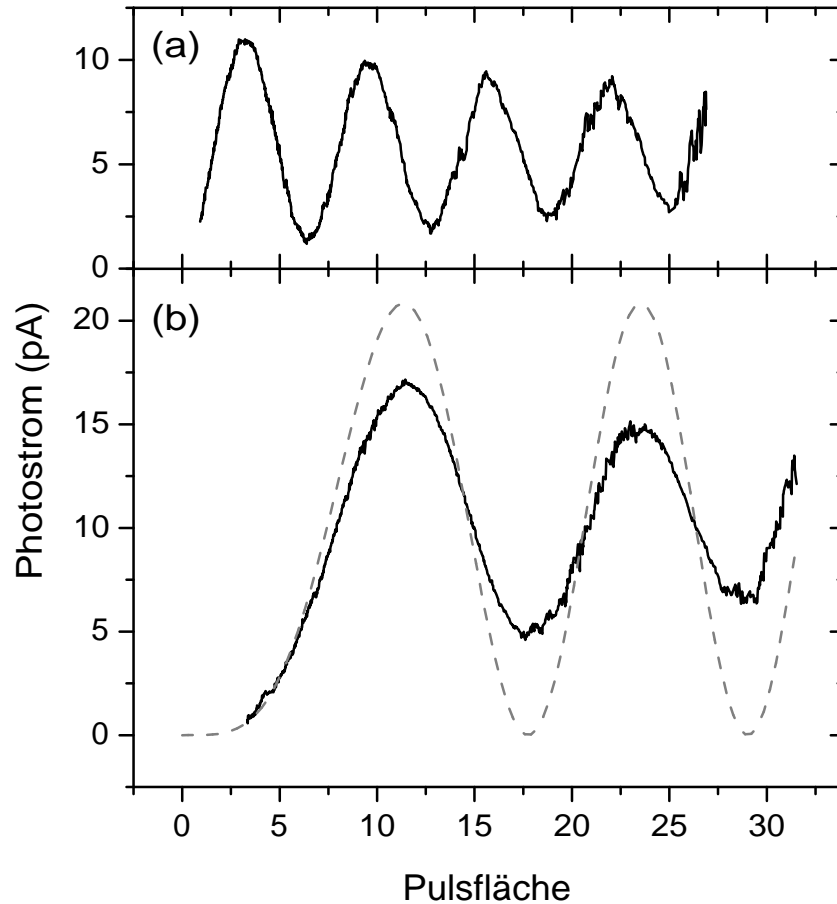


Abbildung 4.15.: (a) Rabi-Oszillation des Exzitons, (b) Rabi-Oszillation des Biexzitons bzw. theoretisch erwartetes Verhalten (aus: [Stu05]).

Für diese resonante Zwei-Photonen-Anregung des Biexzitons ergibt sich ebenfalls eine Oszillation, für diese ist allerdings eine doppelt so große Pulsfläche notwendig. Auch Dephasierungszeiten des Systems für diese Anregung wurden gemessen, das Ergebnis ist in Abbildung 4.16 dargestellt.

4. Experimenteller Aufbau und Proben

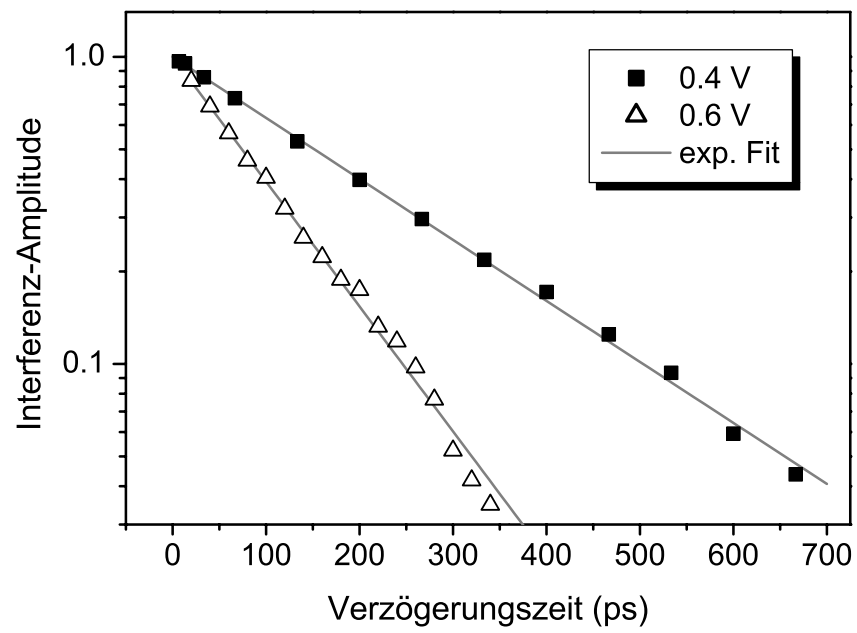


Abbildung 4.16.: Normierte Amplitude der Biexziton-Quanteninterferenz. Aus der exponentiellen Abnahme lassen sich die Dephasierungszeiten bestimmen (aus: [Stu05]).

5. Experimentelle Ergebnisse

In den zurückliegenden [Beh03,Stu05,Est06] und aktuellen [Lac07,Est08] Untersuchungen von GaAs-Quantenpunkten im Allgemeinen und dem einen auch hier betrachteten Exemplar (120799.2, Feld 43) im Besonderen wurde zwar eine Vielzahl von unterschiedlichen Effekten untersucht und beschrieben [Stu06,Est08], jedoch war man bei diesen Experimenten immer auf eine Temperatur der Probe festgelegt: die des flüssigen Heliums von 4,2 K. Um grundlegende und aufgrund ihrer Quantennatur auch schwache Effekte untersuchen zu können ist dies durchaus sinnvoll, da nur bei so geringen Temperaturen Kopplungen an die Umwelt und probeninterne, störende Einflüsse (Phononen) hinreichend schwach ausfallen. Noch tiefere Temperaturen mögen vielleicht noch sauberere Ergebnisse ermöglichen¹, allerdings ist deren Herstellung mit erheblichem Mehraufwand verbunden. Der Charme und gleichzeitig große Vorteil des von uns verwendeten Experimentes liegt aber gerade in seiner Einfachheit und Dauerhaftigkeit. Standzeiten der Heliumkanne von mehreren Wochen erlauben theoretisch die Durchführung ähnlich langer, reproduzierbarer Messungen. Mechanische Störungen in Form von Vibrationen, die bei der Verwendung von Durchflussskryostaten beinahe unvermeidlich sind, werden bei unserem Aufbau von vornherein vermieden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde der von uns genutzte Standardaufbau nun wie bereits erwähnt (vgl. Abschnitt 4.3) um die Möglichkeit erweitert, die Probe auf Temperaturen bis ca. 80 K aufheizen zu können. Diese Ergänzung bietet nun die Möglichkeit, viele bereits untersuchte Effekte auch im Hinblick auf ihr Temperaturverhalten zu untersuchen und so auch neue Erkenntnisse über ihre genaue Natur zu erlangen. Als erstmals realisiert darf die Ramsey-Oszillation des Biexzitons gelten, die erstmals gezeigt wurde.

¹Bei anderen Systemen, die zur Realisierung von Quantenpunkten oder ganzen -systemen untersucht werden, ist die Erzeugung von extrem tiefen Temperaturen (Millikelvin) sogar Grundvoraussetzung.

5.1. Photostromanregung – Übersicht

Bei der sogenannten Photolumineszenzanregung (engl.: *Photoluminescence Excitation, PLE*) wird die anregende Wellenlänge variiert (über die Verstimmung des Lasers), während die Photolumineszenz auf einer bestimmten einzelnen Wellenlänge detektiert wird. Damit ist es möglich, auch höhere Schalen des QDs zu untersuchen, die mit normaler PL nicht zugänglich sind. Analog dazu bietet sich im Photostrom-Regime die interessante Möglichkeit, ebenfalls die anregende Wellenlänge zu verändern und dabei den auftretenden Photostrom zu messen². Auch hier können dann verschiedene, wenn auch unterschiedliche Resonanzenergien des Quantenpunktes abgetastet werden. Ein weiterer wichtiger Unterschied zur PLE ergibt sich allerdings dadurch, dass der letztliche Ursprung des integral gemessenen Stromes nicht eindeutig einem bestimmten Zustand zugeordnet werden kann, vielmehr werden bei dieser Art der Stromaufnahme die Beiträge aller Zustände innerhalb der Diodenstruktur registriert, die auf irgendeinem Wege angeregt werden. Mögliche Quellen für solch eine parasitäre Anregung kann z. B. Streulicht sein, das benachbarte Quantenpunkte oder andere Rekombinationszentren erreicht. Trotzdem lassen sich anhand der so erstellten Übersicht trotzdem einige wichtige Überblicke über den Quantenpunkt gewinnen. Eine weitere Besonderheit der hier angewandten Messmethode ist die doppelte Möglichkeit der Energieverstimmung. Eine Änderung der Anregungsenergie per Variation der Laserwellenlänge geschieht auf einer eher groben Energieskala, die Beeinflussung der Energien der Quantenpunktniveaus über den Stark-Effekt lässt dagegen eine Abstimmung auf einer viel feineren Skala zu. Ein mittels dieser Methode gewonnenes Photostrom-Spektrum ist in Abbildung 5.1 dargestellt.

²In Analogie zur PLE wird diese Art der Messung an dieser Stelle als Photostromanregung (engl.: *Photocurrent Excitation, PCE*) bezeichnet.

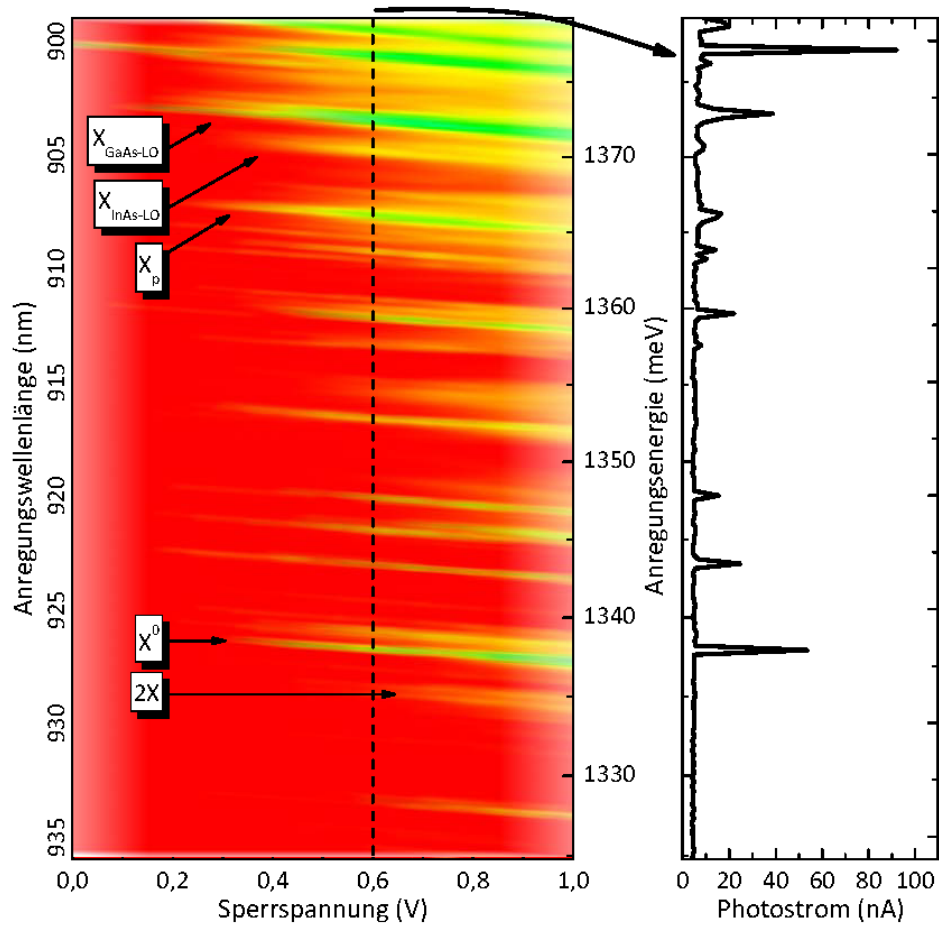


Abbildung 5.1.: Photostromanregungsmessung (PCE) des Quantenpunktes. Die Feinverstellung (Abszisse) wird mittels QCSE realisiert, die Grobverstellung (Ordinate) wird über die Anregungswellenlänge des Lasers durchgeführt. Verschiedene Ladungszustände des Quantenpunktes sind erkennbar (vgl. Text). Dieser Art Messung schafft einen guten Überblick über die PC-Eigenschaften der Probe.

5. Experimentelle Ergebnisse

Die abgebildeten Messdaten wurden gewonnen, indem der anregende Laser im cw-Betrieb auf eine bestimmte Wellenlänge (y-Achse) gefahren wurde. Anschließend wurde die an der Probe anliegende Rückwärtsspannung (x-Achse) variiert und der zugehörige Photostrom aufgenommen. Dessen Größe ist über die Farbe in der Darstellung kodiert. Die an die Probe angelegte Bias-Spannung ist über den Stark-Effekt direkt mit einer Energie verknüpft, allerdings unterscheidet sich dieser Zusammenhang natürlich in Abhängigkeit vom beeinflussten Zustand, so dass aus diesem Grund an dieser Stelle auf eine entsprechende absolute Umrechnung verzichtet wird. Auffällig an der gezeigten Messung sind zum einen die horizontalen Unterbrechungen der einzelnen Zustandsresonanzen, die sich ergeben, da sich der Laser in diesem Fall nur in diskreten Stufen einstellen ließ. Bei einer so breiten Abstimmung des Lasers über 50 nm hinweg rücken ferner zwei weitere Parameter in den Vordergrund: Strahlversatz und Leistungsänderung der anregenden Strahlung in Abhängigkeit von der Wellenlänge. Beide Einflüsse führen zu einer nicht-konstanten Anregungsleistung auf der Probe, was sich sichtbar in generell höheren Photostrom bei kleinen Wellenlängen äußert. Letzteres Phänomen rührt allerdings auch daher, dass man sich zunehmend dem Wetting-Layer der Struktur energetisch nähert. Startet man bei den kleinen Energien, so lassen sich folgende Zustände identifizieren:

X^0

Bei einer Bias-Spannung von 0,6 V liegt die Übergangsenergie des exzitonischen Zustandes in diesem Fall bei einer Anregungswellenlänge von 926,8 nm, das entspricht einer Energie von etwa 1337,8 meV. Der Verlauf der Resonanzenergiekurve ist marginal nach oben gebogen, dies ist auf den QCSE zurückzuführen (vgl. Abschnitt 4.5.2). Es zeigt sich zudem wieder das bekannte Verhalten, dass die Resonanz mit kleinerer Spannung ebenfalls schwächer wird und unterhalb etwa 0,4 V ganz verschwindet. Zu höheren Spannungen hin wird der Photostrom deutlich stärker, die Struktur insgesamt aber auch erheblich breiter.

2X

In dieser Auftragung ist die Struktur, die einer Anregung des Biexzitons zuzuordnen wäre nur schwer etwa $\Delta E_B = 2,5$ meV oberhalb der 1X-Linie zu erkennen. Dies liegt unter anderem daran, dass zur Anregung jener deutlich höhere optische Leistungsdichten notwendig sind, als in diesem

5.2. Stark-Effekt am Biexziton

Fall zur Verfügung standen. Daher kann die dem Biexziton zuzuordnende Resonanz hier nur mit Mühe identifiziert werden.

X_p

Etwa 29 meV oberhalb des Grundzustandes dagegen ist deutlich eine weitere Resonanz zu erkennen, die in Übereinstimmung mit anderen Messungen zwanglos der p-Schale des QDs zugeordnet werden kann [Fin00b, Est08].

$X_{\text{InAs-LO}}$

32,8 meV vom X^0 entfernt lässt sich ein erhöhter Photostrom erahnen, der eventuell dem Einfluss von LO-Phononen des InAs-Materials zugeschrieben werden können.

$X_{\text{GaAs-LO}}$

Die Photoströme, die sich ungefähr 35 meV vom Grundzustand entfernt vergleichsweise stark zeigen, könnten von GaAs-Phononen herrühren, die assistierend zu Absorptionen beitragen. Zu LO-Phononen passt die besagte Energie recht gut.

5.2. Stark-Effekt am Biexziton

Bereits in Abschnitt 4.5.2 wurde der experimentell ermittelte Einfluss eines externen, in Wachstumsrichtung der Probe angelegten E -Feldes auf die Übergangsenergien von angeregten Zuständen im Quantenpunkt diskutiert, während die theoretischen Überlegungen in Abschnitt 2.3.3 erörtert wurden. Die Abstimmung des Energieniveaus des 1X-Übergangs der hier verwendeten Probe ist somit schon bekannt, es konnte auch eine Fitfunktion für die Abhängigkeit der Übergangsenergie von der angelegten Spannung ermittelt werden (Gleichung 4.2). Aus grundsätzlichem Interesse und weil das Biexziton im Rahmen dieser Arbeit von besonderer Bedeutung ist, wurde daher der Einfluss eines E -Feldes auf die Übergangsenergie des Biexzitons untersucht. Abbildung 5.2 zeigt die auf üblichem Wege erhalten Messpunkte: im PL-Regime wurden die Werte einer spannungsabhängigen Photolumineszenz-Messung entnommen, auf der die Rekombinationsenergie des Biexzitons erkennbar war. Für den

5. Experimentelle Ergebnisse

PC-Bereich wurde bei variabler Bias-Spannung die Lage des Photostrom-Maximums für die als Biexziton gefundene Resonanz verzeichnet. Dabei ist allerdings zu berücksichtigen, dass der Abstand in der PC-Anregungsspektroskopie zwischen 1X und 2X nur gerade dem halben korrekten energetischen Abstand entspricht, da es sich dabei um die Anregung über einen 2-Photonen-Prozess handelt.

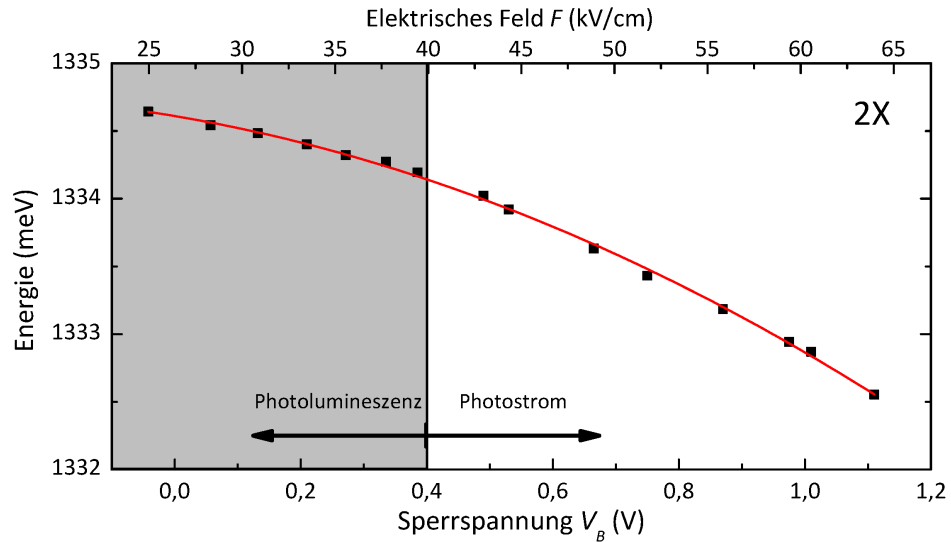


Abbildung 5.2.: Quantum Confined Stark Effect am Biexziton. Die 2X-Bindungsenergie zeigt eine quadratische Abhängigkeit von der angelegten Spannung. Auch die Grenze zwischen Photolumineszenz- und Photostrom-Regime ist verzeichnet.

An den ermittelten Datenpunkten wurde dann ein parabolischer Fit angelegt, der ebenfalls in der Abbildung eingetragen ist. Dabei ist natürlich zu berücksichtigen, dass man es beim Biexziton mit insgesamt vier Teilchen zu tun und daher die Konzepte für das Exziton streng genommen nicht 1:1 übernommen werden dürfen. Allerdings wird sich im Folgenden eine qualitativ gute Übereinstimmung bei der Erweiterung von zwei auf vier Teilchen zeigen. Man erhält:

$$E_{2X} = 1,33460 \text{ eV} - 3,59 \cdot 10^{-4} \text{ eV/V} \cdot V_B - 13,4 \cdot 10^{-4} \text{ eV/V}^2 \cdot V_B^2 \quad (5.1)$$

Auffallend ist zum einen die leicht andere Krümmung der Parabel im Vergleich zum 1X-Fall (vgl. Abbildung 5.3). Zum anderen liegt das Maximum der Kurve nicht wie im Exziton-Fall bei -1,04 V, sondern deutlich

5.2. Stark-Effekt am Biexziton

näher am feldfreien Fall bei -0,41 V. Für das Exziton liegt das Maximum der Energie als in etwa im Bereich der built-in-Spannung der Struktur, die mit 0,84 V bestimmt worden ist. Liegt dagegen das Biexziton vor, ist ein weniger großes äußeres Feld zur Erreichung der maximalen Energie notwendig. Man könnte dies so deuten, dass die built-in-Spannung in diesem Fall durch die 4-Teilchen-Konfiguration effektiv abgesenkt wird.

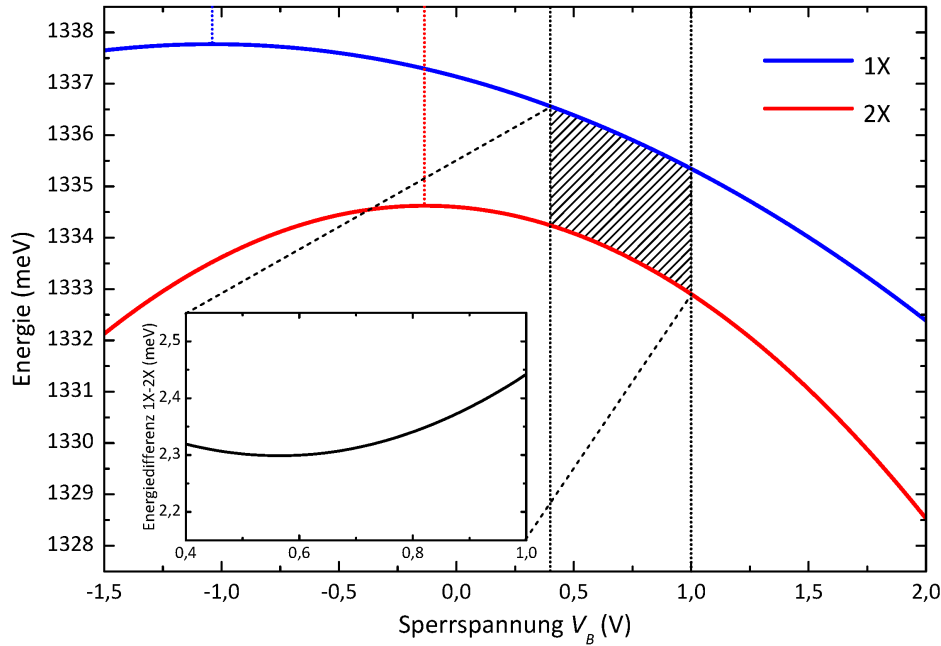


Abbildung 5.3.: Vergleich des Stark-Effektes für Exziton und Biexziton. Die beiden quadratischen Fitfunktionen zeigen deutliche Unterschiede im Detail (Lage des Maximums, Krümmung). Im für PC-Messungen relevanten Bereich (Vergrößerung) jedoch ist ihr energetischer Abstand nahezu konstant.

Die durch den leicht unterschiedlichen Kurvenverlauf ebenfalls spannungsabhängig werdende Renormalisierungsenergie des Biexzitons variiert jedoch in dem für uns interessanten Bereich der Bias-Spannung zwischen 0,4 V und 1,0 V kaum (vgl. schraffierten Bereich in Abbildung 5.3). Vielmehr verlaufen beide Kurven in diesem Bereich nahezu parallel, die Abweichung der Bindungsenergie beträgt $\pm 3 \%$, und kann daher gerade im Hinblick auf die absolute Genauigkeit des verwendeten Spektrometers in sehr guter Näherung als konstant angesehen werden.

Da die Abhängigkeit des QCSE-Einflusses jedoch essentiell von der

5. Experimentelle Ergebnisse

geometrischen Form des Quantenpunktes abhängt, können an dieser Stelle keine weiteren Aussagen zur theoretisch zu erwartenden Verschiebung getroffen werden. Dazu sind die Einflüsse der QD-Geometrie auf die elektrischen Momente und die Lage der Wellenfunktionen zu vielfältig. Man kann aber die gute qualitative Übereinstimmung von 1X- und 2X-Fall festhalten.

5.3. Einfluss der Temperatur auf grundlegende Größen

Bei tiefen Temperaturen (typischerweise also bei 4,2 K) stellt sich die Linienbreite des Grundzustandes eines Quantenpunktes als so klein dar, dass sie mit der Auflösung, die ein normales Spektrometer bietet, nicht mehr dargestellt werden kann. Eine Alternative stellen daher Messungen dar, die sich den Effekt der Absorption einer Anregung zunutze machen. Dazu ist es nötig, die relative Energie-Verstimmung zwischen Anregung und System zu variieren. Üblicherweise wird dazu die Wellenlänge des Lasers verändert, allerdings stellt dies zahlreiche Anforderungen an die Abstimmbarkeit der Laserlinie selbst und deren modensprungfreie Änderung. Da man es, wie bereits erwähnt, im vorliegenden Fall allerdings mit Quantenpunkten zu tun hat, die innerhalb einer Diodenstruktur elektrisch abstimmbare sind, kann man den Stark-Effekt (vgl. Abschnitt 2.3.3) ausnutzen. Die auf diese Weise erzielbare Energieauflösung so erstellter Spektren beträgt etwa $0,3 \mu\text{eV}$. Die Photostromresonanz des Exziton-Übergangs lässt sich für verschiedene Anregungsenergien dann wie in Abbildung 5.4 dargestellt gewinnen.

Die Spektren wurden bei verschiedenen Wellenlängen des Anregungslasers jeweils durch Variation der Bias-Spannung an der Probe erhalten. Verschiebt man die Laserwellenlänge, so verschiebt sich die Resonanz zu einer anderen Proben-Spannung. Das System offenbart in diesen Spektren schon einige seiner Charakteristika. So werden die Resonanzen mit zunehmender Spannung aufgrund der höheren Tunnelraten und damit einhergehender verkürzter Dephasierungszeiten breiter. Dies führt dazu, dass nur auf der Niedrigspannungsseite die Feinstrukturaufspaltung sichtbar ist. Diese $30 \mu\text{V}$ starke Doppelstruktur wird mit einer leichten Asymmetrie des Quantenpunktes bezüglich der Kristallachsen in Verbindung gebracht. Durch Änderung der Polarisationsrichtung der Anregung lässt sich tatsächlich jeweils eine der beiden Strukturen komplett unterdrücken. Ob die Aufspaltung allerdings auf ein geändertes Einschlusspotential aufgrund

5.3. Einfluss der Temperatur auf grundlegende Größen

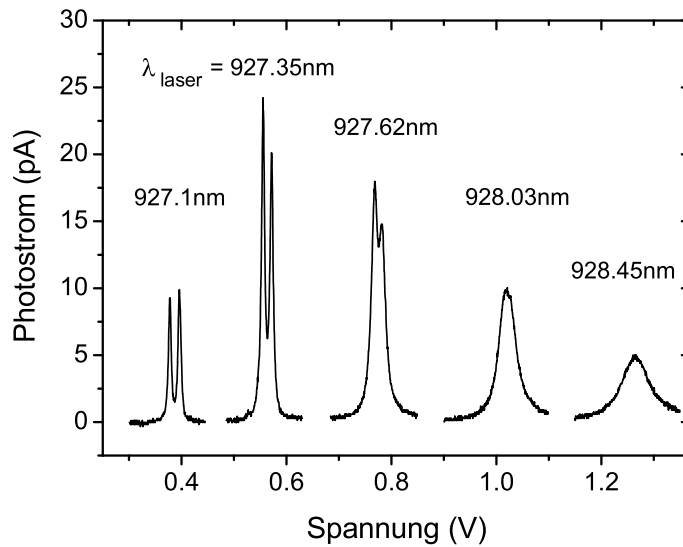


Abbildung 5.4.: Photostromresonanz des Exziton-Überganges in Abhängigkeit der anregenden Laserwellenlänge. Der Stark-Effekt verschiebt die Übergangsenergie mit der Probenspannung. Bei geringer Spannung sind, bedingt durch die langen Tunnelzeiten, sogar die Feinstrukturaufspaltungen sichtbar (aus: [Stu05]).

einer abweichenden Bandstruktur oder auf die Anregung unterschiedlicher Spinzustände zurückzuführen ist, ist nicht abschließend geklärt. Im weiteren Verlauf der Untersuchungen wird die Polarisation der Anregung so eingestellt, dass nur eine Resonanz beobachtbar ist, wenngleich sich bei erhöhten Temperaturen beide Zustände stark überlagern und nicht mehr vollständig getrennt werden können (Abschnitt 5.3.1). Weiterhin auffällig an Abbildung 5.4 ist zudem die abnehmende (integrale) Intensität der Resonanz bei kleinen Spannungen, was sich durch größere Tunnelzeiten und damit steigende Wahrscheinlichkeit der Abregung des 1X-Zustandes mittels PL erklärt (Abschnitt 4.4.2). Wie noch gezeigt werden wird, verschiebt allerdings auch diese Grenze zwischen Photolumineszenz und Photostrom mit der Temperatur (Abschnitt 5.3.4).

5.3.1. Photostromresonanz des Exzitons

Die Auswirkung einer erhöhten Temperatur auf die Ergebnisse der Messung des Photostromes der hier verwendeten InGaAs-QDs lässt sich als erstes und am einfachsten an der Form der jeweiligen Photostromresonan-

5. Experimentelle Ergebnisse

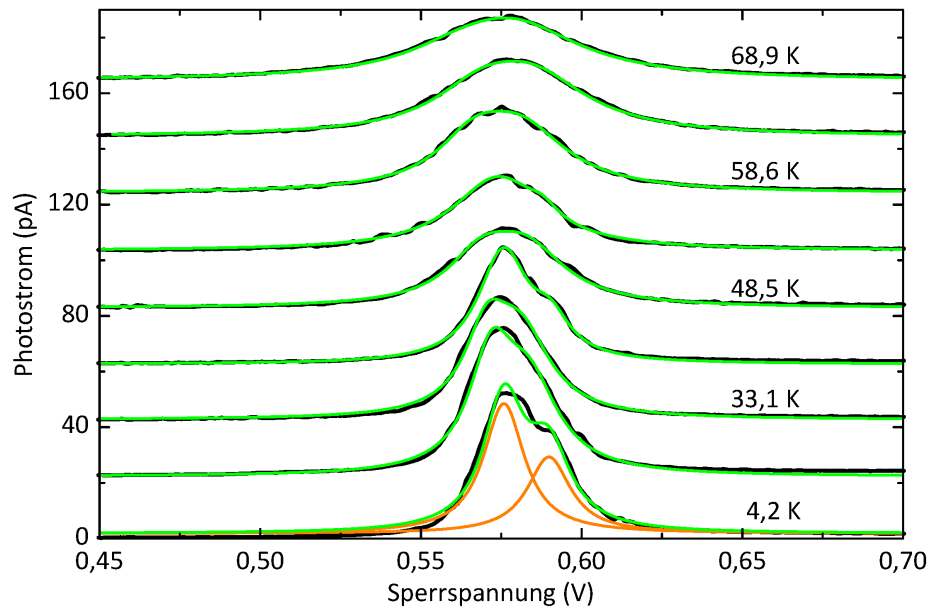


Abbildung 5.5.: Photostrommessungen des Exziton-Überganges bei verschiedenen Temperaturen. Die Messwerte sind in schwarz, die sich aus zwei Lorentz-Impulsen zusammensetzenden Fits in grün eingezeichnet.

zen ablesen. Können diese bei 4,2 K noch ohne weiteres durch Lorentz-Fitkurven reproduziert werden, so gilt dies bei höheren Temperaturen nur noch eingeschränkt.

Wie man in Abbildung 5.5 erkennen kann, werden die Photostrom-Resonanzen des Exziton-Grundzustandes mit zunehmender Temperatur deutlich breiter. Zu beachten ist, dass bei allen Temperaturen mit einer optischen Leistung angeregt wurde, die nicht mehr als „klein“ im Sinne einer Maximierung der Auflösung bezeichnet werden kann. Vielmehr dürften auf die Probenoberfläche abgeschätzte 520 nW Leistung aufgetroffen sein. Nötig wurde diese Vorgehensweise, da die geringen Leistungen, mit denen man bei 4,2 K sehr präzise Messungen durchführen konnte, im Fall höherer Temperaturen zu keinen mess- und auswertbaren Effekten mehr führen. Die Linienbreite bei Heliumtemperatur ist mit jeweils etwa 30 μeV somit also schon größer, als es Präzisionsmessungen [Stu05] ergeben, zumal die Polarisation des Lasers die Asymmetrie-aufgespaltenen

5.3. Einfluss der Temperatur auf grundlegende Größen

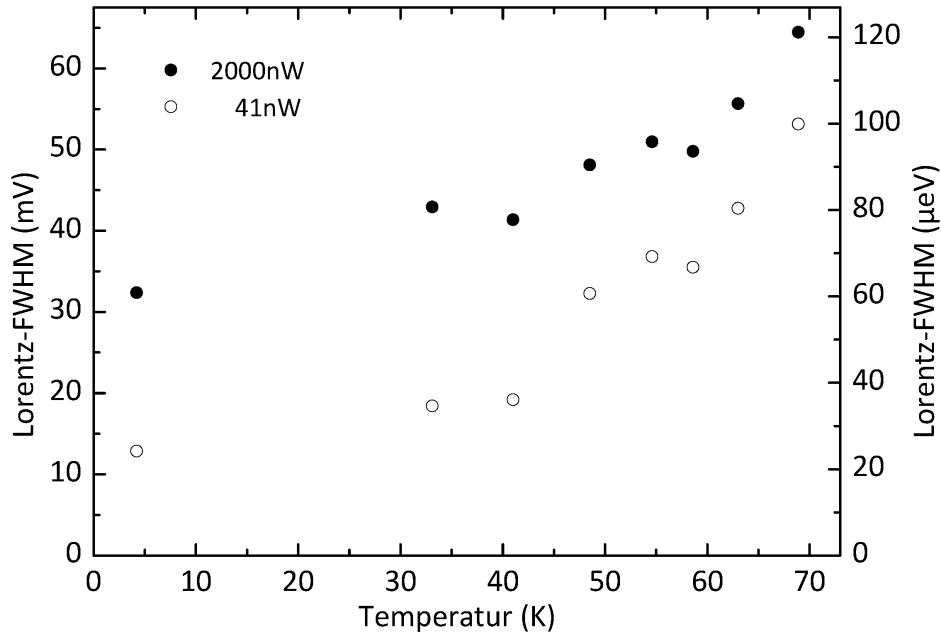


Abbildung 5.6.: Temperaturabhängigkeit der Breite der Photostromresonanz des Exzitons für zwei unterschiedliche Anregungsleistungen.

Doppellinien sichtbar macht. Bei erhöhten Temperaturen ließ sich diese Aufspaltung zudem mit keiner Einstellung der Polarisationssebene mehr verhindern. Sichtbar ist im vorliegenden Fall hauptsächlich die lorentzförmige Null-Phonon-Linie (engl.: *Zero Phonon Line, ZPL*). Bis etwa 30 K ändert sich die Breite der Struktur nur wenig, danach jedoch steigt sie deutlich bis auf 96 µeV an. Allerdings lassen sich auch diese Resonanzen bei nahezu 70 K und damit schon nah an der Temperatur flüssigen Stickstoffs immer noch sehr gut durch eine einfache Lorentz-Funktion anfitzen, wie aus der Abbildung ersichtlich ist. Die Ursache dieser Verbreiterung bei gleichzeitigem Fehlen von Seitenbanden ist aus theoretischer Sicht nicht endgültig geklärt, hierzu gibt es verschiedene, konkurrierende Ansätze (vgl. Abschnitt 3.7). Abbildung 5.6 illustriert den Zusammenhang zwischen der Breite einer angefitteten Lorentz-Funktion (sowohl im Spannungs- als auch umgerechnet in den Energiebereich) an das gemessene Spektrum in Abhängigkeit der Proben temperatur.

In der Abbildung sind die ermittelten Werte für zwei stark unterschiedliche Anregungsleistungen aufgetragen. Während die Anregung mit etwa 41 nW auf der Probenoberfläche auftreffender optischer Leistung mit

5. Experimentelle Ergebnisse

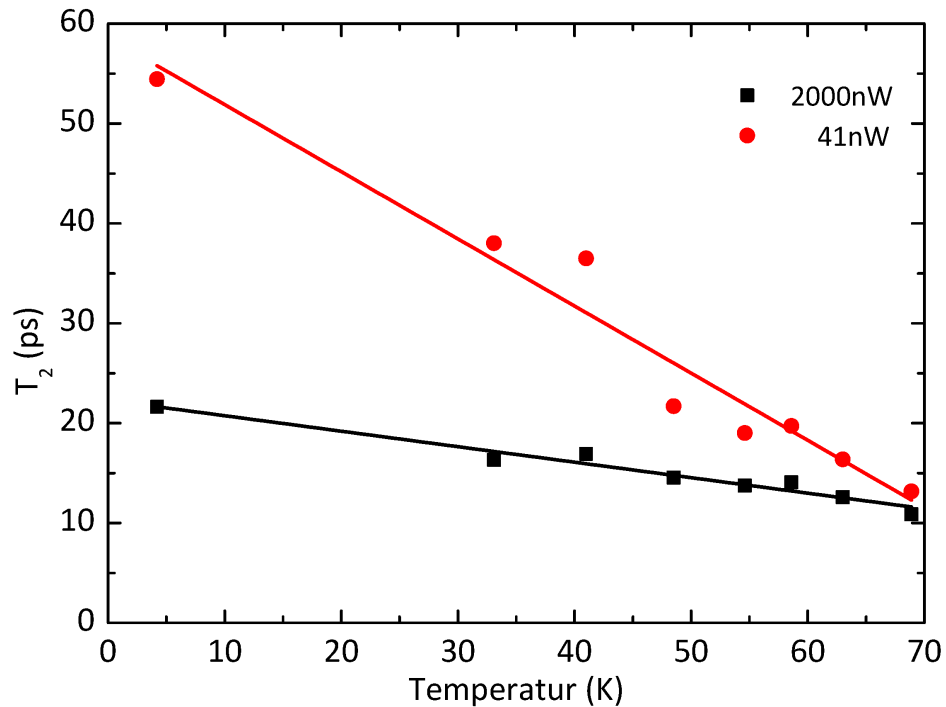


Abbildung 5.7.: Excitation induced dephasing des Exziton-Überganges für verschiedene Anregungsleistungen.

knapp über 20 μeV relativ nah an der auflösbaren Breite der Resonanz liegt, ist die 1X-Resonanz bei ca. 50fach höheren Leistung deutlich verbreitert (Faktor 2,5 bei 4,2 K). Während beide Kurven überlinear mit der Temperatur ansteigen, wird ihr Abstand jedoch zunehmend geringer.

5.3.2. Lebensdauer

Ermittelt man aus den Resonanzbreiten über die Beziehung $\Gamma = 2\hbar/T_2$ die Lebensdauer (in diesem Falle also die Dephasierungszeit) des entsprechenden Zustandes, so ergeben sich wieder für zwei unterschiedliche Anregungsleistungen dargestellt Abnahmen der Lebensdauern (Abbildung 5.7).

Die bei hoher Anregungsleistung gemessenen Übergänge starten allerdings erwartungsgemäß bei viel kleineren Lebensdauern (20 ps) und werden dann nur um einen Faktor 2 kurzlebiger hin zu Temperaturen knapp unter 70 K. Im Fall der kleinen Anregungsleistung jedoch ergeben

5.3. Einfluss der Temperatur auf grundlegende Größen

sich Dephasierungszeiten von nahezu 55 ps, diese fallen allerdings bis auf 13 ps ab und nähern sich damit dem zuvor erwähnten Fall an. Die Temperatur hat hier also über die von Exzitonen induzierte Dephasierung einen enormen Einfluss auf die Lebensdauer der Zustände und verkürzt sie so sehr, dass vorhandene Anregungseffekte überkompensiert werden.

5.3.3. Einfluss auf die Bandlücke

Ein weiterer Effekt der Temperaturveränderung des Quantenpunkt-Systems offenbart sich in der Verschiebung des Resonanzenergie des hier betrachteten 1X-Zustandes. Wie in Abbildung 5.8 dargestellt, verschiebt sich diese Energie mit steigender Temperatur zu kleineren Werten, sie nimmt also ab. Diese Verschiebung erklärt sich durch die Temperaturabhängigkeit der Bandlücke von halbleitenden Materialien. Bei den betrachteten InGaAs-Quantenpunkten handelt es sich um ein ternäres Material, d. h. aus drei Komponenten bestehend (Indium, Gallium, Arsen). Für dieses wurden semiempirisch polynomische Gleichungen 2. Grades entwickelt, die einen Zusammenhang zwischen der stöchiometrischen Zusammensetzung ($\text{Ga}_x \text{In}_{1-x} \text{As}$) des Materials und seiner temperaturabhängigen Bandlücke beschreiben [Kar94, Pau91]:

$$E_g(x, T) = 0,42 + 0,625x - \left(\frac{5,8}{T + 300} - \frac{4,19}{T + 271} \right) 10^{-4} T^2 x - \frac{4,19 \cdot 10^{-4}}{T + 271} T^2 + 0,475x^2 \quad (5.2)$$

Passt man diese Funktion an die gemessenen Werte an, so erhält man für den einzigen freien Fitparameter x einen Wert von 0,88 (vgl. Abbildung 5.8), also einen effektiven Indiumanteil von lediglich 12 %. Es sind zwar deutliche Abweichungen zwischen Theorie und Praxis zu erkennen, zumal im Bereich niedriger Temperaturen der Fit zu hoch ansetzt, zu höheren Temperaturen hin dann aber nach unten abweicht, allerdings ist der gewichtete Gesamtfehler der Anpassung niedrig.

Nominell wurde die Schicht der Quantenpunkte wie in Abschnitt 2.2 beschrieben mit $x = 0,5$ gewachsen, allerdings können Interdiffusionsprozesse während und nach dem eigentlichen Wachstum diesen Wert beeinflussen. Eine weitere Quelle der Abweichung liegt in dem recht komplexen Aufbau der Quantenpunkte, in denen der Indiumanteil starken Schwankungen unterliegt (z. B. vertikaler Kompositionsgradient). Die Indium-Konzentration nimmt dabei von $x = 0$ an der Basis bis auf $x = 1$ an

5. Experimentelle Ergebnisse

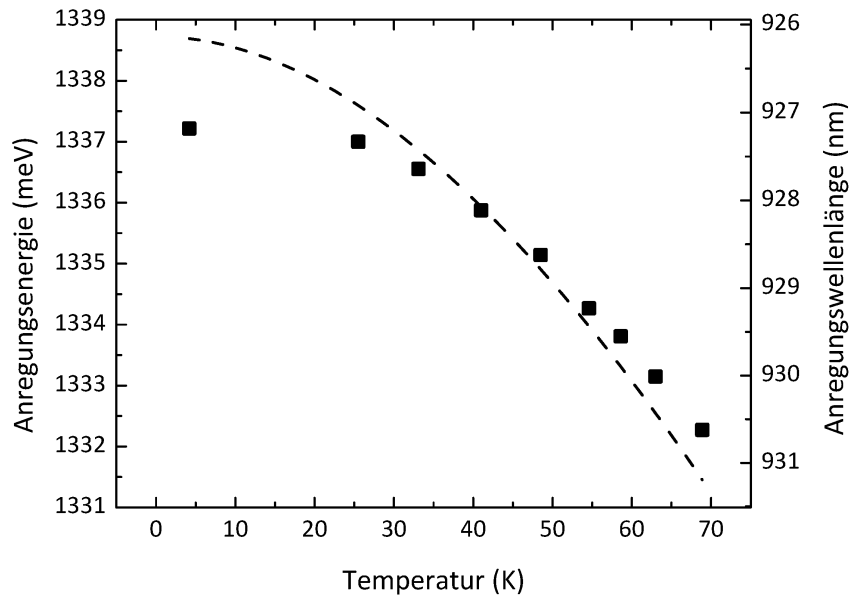


Abbildung 5.8.: Abhängigkeit der 1X-Resonanz von der Proben­temperatur. Die gemessenen Werte sind als Punkte dargestellt, die gestrichelte Linie gibt den Fit der Funktion 5.2 wieder. Es ergibt sich ein effektiver Indiumanteil im QD von 12 %.

der Spitze des QDs zu. Beim Überwachen der Inseln mit GaAs führen Prozesse wie Segregation und Interdiffusion zu einer In-Ga-Durchmischung, so dass über die genaue Verteilung von Indium im QD keine Aussage mehr getroffen werden kann. Effektiv scheinen im vorliegenden Fall also 12 % Indium wirksam zu werden, auch wenn die ursprünglich entwickelte semi-empirische Formel nur für homogene Gemische entwickelt wurde.

5.3.4. Thermische Aktivierung

Durch die Einbettung der Quantenpunkt-tragenden Schicht in eine Di­odenstruktur kann der Bandverlauf der QD-Systeme über weite Bereiche verstimmt werden. Wie bereits erläutert, werden durch unterschiedliche Vorspannungen auch die charakteristischen Zeiten für Tunnel- und Rekombinationsprozesse beeinflusst, so dass eine Bevorzugung von PL bzw. PC möglich wird. Bei Heliumtemperatur liegt die Grenze zwischen Photostrom- und Photolumineszenzregime bei ungefähr 0,4 V (Abbildung 5.10). Bei kleineren Spannungen lassen sich PL-Messungen durchführen,

5.3. Einfluss der Temperatur auf grundlegende Größen

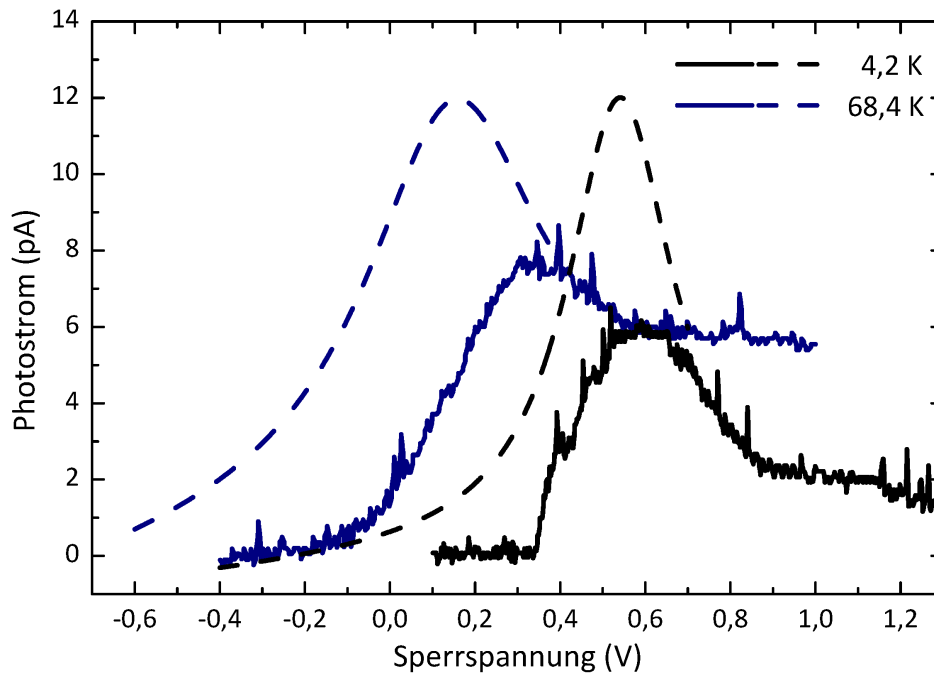


Abbildung 5.9.: Photostrom-Resonanz bei Temperaturen von 4,2 K und 68,4 K. Gestrichelt ist die eigentlich zu erwartende Resonanz eingezeichnet, die aber durch den Übergang zum PL-Regime unterdrückt ist. Als Grenze wurde die Spannung definiert, bei der gerade kein Signal mehr messbar war.

größere Spannungen erlauben Photostrom-Untersuchungen. Betrachtet man diese Grenze auch bei erhöhten Temperaturen, lässt sich eine Verschiebung dieser Grenze hin zu kleineren Spannungen hin beobachten, d. h. auch bei flacherem Verlauf der Bänder lassen sich noch effektiv Ströme messen, die Tunnelzeiten sind somit gesenkt. Abbildung 5.9 zeigt eine typische PC-Resonanzmessung bei einer Temperatur von 68,4 K.

Führt man diese Art der Regimegrenzenbestimmung³ auch bei anderen Temperaturen durch, so ergibt sich folgendes Bild:

Auch hier wird erneut deutlich, dass sich an den betrachteten Systemeigenschaften unterhalb von etwa 30 K kaum etwas ändert. Oberhalb dieses

³Die Festlegung des Grenzbereiches erfolgte, indem mit einer hinreichend breiten und im Übergangsbereich liegenden resonanten Anregung der Spannungswert ermittelt wurde, bei dem ein vom Untergrund nicht mehr unterscheidbares Signal im Photostrom registriert wurde.

5. Experimentelle Ergebnisse

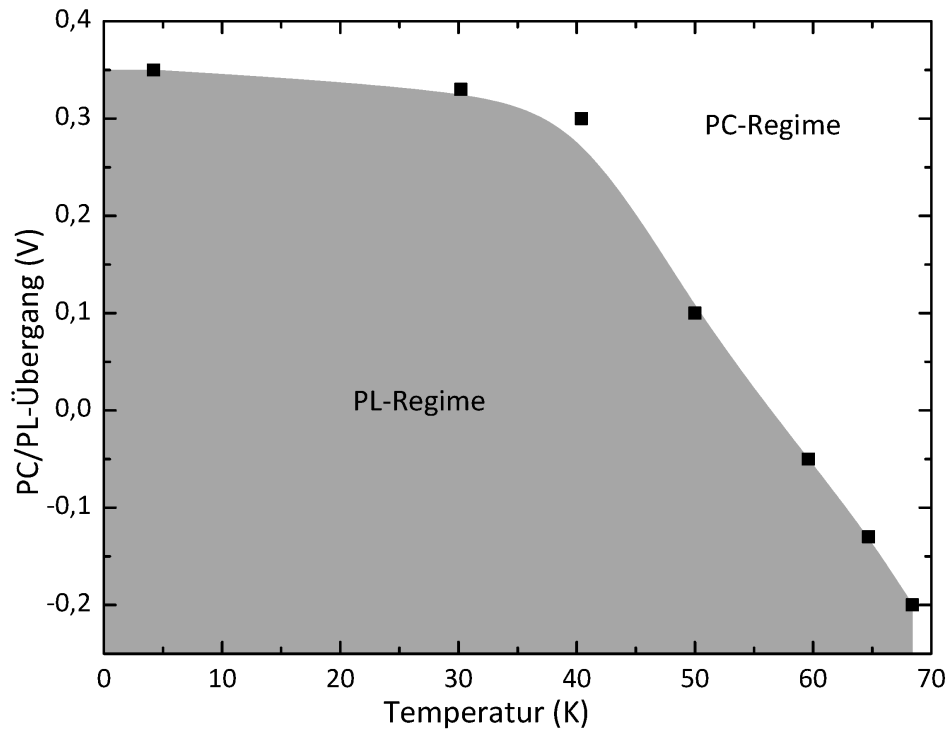


Abbildung 5.10.: Temperaturabhängige Verschiebung der Grenze zwischen PC- und PL-Regime.

Wertes kommt es jedoch zu einer starken Verschiebung der PL/PC-Grenze, die annähernd quadratisch in der Temperatur verläuft. Eine Erklärung für dieses Phänomen ist nicht leicht zu entwickeln, da viele Faktoren eine Rolle spielen. Elektron und Loch verhalten sich im Falle erhöhter Temperatur stark unterschiedlich. Die Elektronen verfügen in dem untersuchten Material über eine deutlich kleinere effektive Masse als die mit ihnen zu einem Exziton verbundenen Löcher. Daher dürfte das Tunneln der Elektronen aus dem Potentialtopf der QDs heraus für die deutliche Verbreiterung der PC-Resonanz verantwortlich sein. Jedoch wird auch die Fähigkeit der Löcher, den Quantenpunkt tunnelnd zu verlassen und somit zu einem effektiven Strom beizutragen durch den Einfluss der erhöhten Temperatur gesteigert.

Einen guten Überblick über die möglichen emissionsbeeinflussenden Effekte kann [Sch05] entnommen werden. Die Tunnelemissionsrate ist im Normalfall einer verspannten Bandstruktur durch die Breite und Tiefe

5.3. Einfluss der Temperatur auf grundlegende Größen

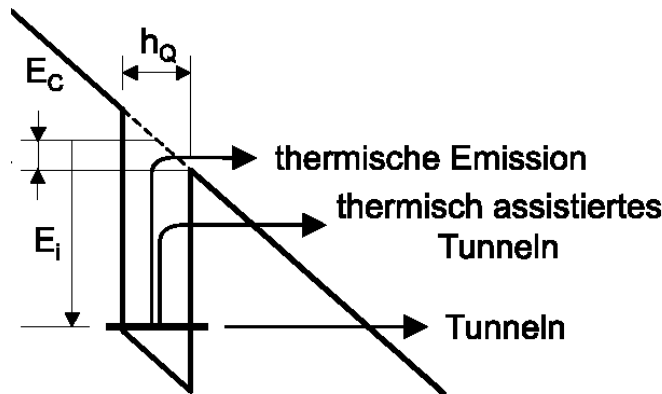


Abbildung 5.11.: Mögliche Emissionsprozesse von Elektronen aus einem Quantentopf der Bindungsenergie E_i . Als Prozesse sind die thermische Emission, die Tunnelemission und deren Mischprozess, das thermisch assistierte Tunneln, skizziert (aus: [Sch05]).

der Barriere, also durch die Emissionsfeldstärke und die Bindungsenergie bestimmt. Darüber hinaus ist ein Mischprozess von thermischer Emission und Tunneln möglich. Dieser Vorgang wird als thermisch assistiertes Tunneln (TAT) oder thermionisches Tunneln bezeichnet (vgl. Abbildung 5.11).

Dabei wird zunächst ein Elektron thermisch vom gebundenen Zustand auf ein Zwischenniveau E^4 angehoben. Anschließend tunnelt es durch die noch verbleibende Barriere in das Leitungsband. Dieser Prozess bewirkt eine ausgeprägte Erhöhung der Emissionsrate gegenüber der rein thermischen Emission und bevorzugt damit im vorliegenden Fall eine Rekombination des Exzitons über Photostromprozesse, was sich durch eine Erniedrigung der PC-/PL-Übergangsspannung bemerkbar macht. Aufwendigere quantenmechanische Modelle der TAT berücksichtigen Elektron-Phonon-Wechselwirkungen sowie Multiphonon-Prozesse [Pon79, ME82].

5.3.5. Rabi-Oszillationen

Das vorangegangene Kapitel beschäftigte sich mit der cw-Anregung des betrachteten Zwei-Niveau-Systems. Dabei kann jedoch nur die statische Besetzung des Systems beeinflusst werden, eine kohärente Anregung über

⁴ E stellt kein diskretes Niveau dar, sondern ist vielmehr Teil eines fiktiven kontinuierlichen Bandes.

5. Experimentelle Ergebnisse

geeignete Laserpulse gestattet hingegen, einen beliebigen Punkt auf der Bloch-Kugel einzustellen. Ein klassisches und für die weitere Betrachtung kohärenter Eigenschaften grundlegendes Experiment stellt in diesem Zusammenhang die Beobachtung von Rabi-Oszillationen dar (vgl. Abschnitt 3.4). Wird die Besetzungswahrscheinlichkeit der Systemzustände in Abhängigkeit von Anregungsdauer und Anregungsamplitude betrachtet, so beobachtet man eine Oszillationen zwischen den beiden Extremwerten 0 und 1, ganz im Gegensatz zu dem Sättigungsverhalten im stationären Fall.

Theoretisch wurden die Rabi-Oszillationen ja schon in Abschnitt 3.4 beschrieben. Wie dort erläutert, stellt die Pulsfläche der Anregung die Größe dar, über die sich die Oszillation beeinflussen lässt (über den Drehwinkel auf der Blochkugel). Um diese Fläche zu beeinflussen, kann man entweder die Leistung des anregenden Laserpulses ändern, oder man variiert dessen Länge. Letztere Methode ist allerdings technisch deutlich aufwändiger zu beherrschen und kann von dem hier verwendeten Lasersystem nicht geleistet werden. Erst durch die Verwendung eines kurz vor der Auslieferung stehenden Pulsshapers, der ebenfalls von der Firma Coherent stammt (Modell *Silhouette II*), wird es möglich werden, die Länge der Pulse zu beeinflussen. Technisch einfacher und mit den bestehenden Mitteln zu realisieren ist allerdings die Variation der Laserleistung, mit der die Rabi-Oszillation quadratisch skaliert (also linear mit der Amplitude).

Da die Oszillation des 1X-Überganges für Heliumtemperatur bereits bekannt ist, wurde an dieser Stelle das Verhalten des Systems bei Änderung der äußeren Temperaturbedingungen untersucht. Dazu diente der bereits in Abschnitt 4.3 näher beschriebene Aufbau. In Abbildung 5.12 sind die Rabi-Oszillation des 1X-Übergangs in Abhängigkeit von der Laseramplitude für verschiedene Temperaturen dargestellt.

Die Messungen wurden in allen Fällen bei einer Spannung von etwa 0,55 V durchgeführt. Um die Resonanz des 1X-Überganges für erhöhte Temperaturen in diesen Bereich zu bringen, war ein Nachregeln der Laserwellenlänge unumgänglich, da sich die Bandlücke der Halbleitermaterialien temperaturabhängig ändert (Abschnitt 5.3.3). Die x-Achse der Messungen, also die Anregungs-Pulsfläche wurden weiterhin so skaliert, dass das erste Rabi-Maximum jeweils bei 1π liegt. Durch diesen Umstand gehen zwar eventuelle Informationen über die relative Lage des ersten Maximums in Abhängigkeit der Temperatur verloren, allerdings kann gerade bei erhöhten Temperaturen nicht mehr ein direkter Vergleich zwischen den gemessenen Pulsflächenwerten getroffen werden, da diese am Probenkopf aufgenommen wurden, die Anregung aber durchaus unter veränderten Bedingungen stattfindet. So war z. B. eine Nachregelung des Fokus nötig,

5.3. Einfluss der Temperatur auf grundlegende Größen

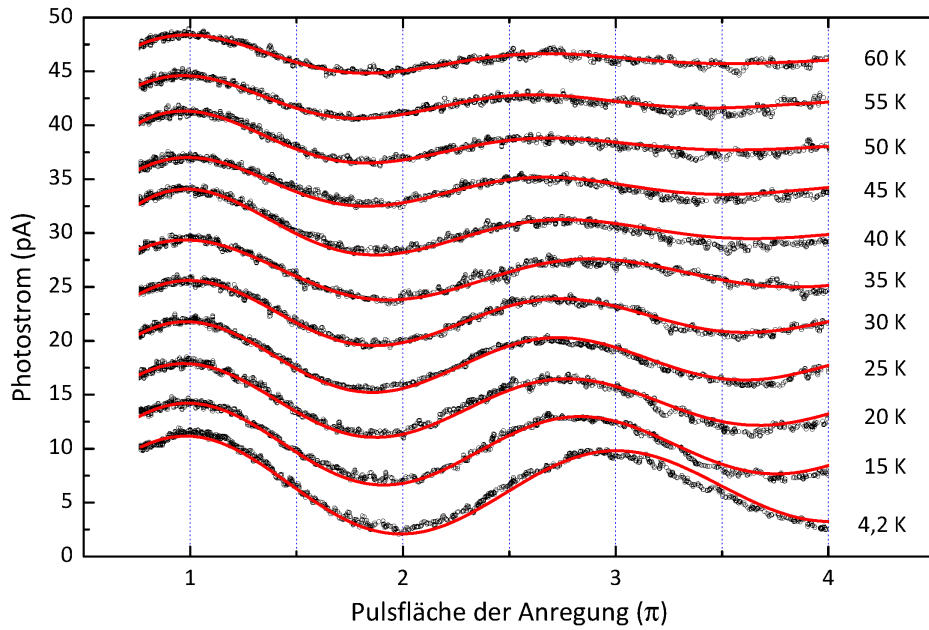


Abbildung 5.12.: Experimentell ermittelte Rabi-Oszillationen (offene Kreise) bei verschiedenen Temperaturen mit jeweils angefitzter theoretischen Funktion (rote Kurve).

der sich mit wachsender Temperatur verschob. In allen hier gezeigten Messungen der Rabi-Oszillationen ist zudem bereits ein Untergrundstrom abgezogen, der sich mit wachsender Anregungsleistung und steigender Temperatur ergibt. Der Untergrund skaliert anscheinend linear mit der Laserleistung und wird daher inkohärenten Absorptionsprozessen in der Umgebung des Quantenpunktes zugeschrieben. Der inkohärente Anteil ist mit 6 % bei einer π -Puls-Anregung gering. Da das kohärente Signal selbst aber nach oben beschränkt ist (12,8 pA), übersteigt der Untergrund bei sehr hohen Anregungsleistungen dennoch das eigentliche Messsignal. Der Untergrund dürfte erheblich reduziert werden, wenn auch die elektrische Detektion räumlich beschränkt wäre. Bei der hier untersuchten Probe wird der Laserstrahl zwischen Rückkontakt und Schattenmaske mehrfach reflektiert, dabei wird immer ein Teil der Leistung absorbiert. Da sich der elektrische Kontakt über die gesamte Fläche der Mesa-Struktur erstreckt, liefert so jeder Absorptionsprozess einen Beitrag zum Photostrom und damit zum Untergrund. Temperaturabhängige Aktivierung verschärfen

5. Experimentelle Ergebnisse

diese Effekte noch, was zu den erwähnten erhöhten Untergrundströmen bei steigenden Temperaturen führt. Es lässt sich überdies beobachten, dass die Lage des ersten Rabi-Minimums, das für Helium-Temperatur definitionsgemäß bei 2π zu finden ist, für höhere Temperaturen kontinuierlich zu kleineren Anregungs-Pulsflächen schiebt. Der Abbildung 5.12 entnimmt man, dass es nahezu bei nur noch $1,5\pi$ für 60 K zu finden ist. Dieser Effekt wurde auch schon von Krügel theoretisch beschrieben (vgl. [Krü05]) und dort mit dem Einfluss akustischer Phononen auf die Rabi-Oszillation in Halbleiter-QD in Verbindung gebracht. Zu hohen Temperaturen hin wird dieser Effekt allerdings sukzessive von der wachsenden Dämpfung überlagert.

In der Abbildung ist ferner für jede der angefahrenen Temperaturen ein Fit mit fünf Parametern eingezeichnet, dessen Formel wie folgt lautet:

$$I_{\text{Ph}}(\theta) = p_0 \cdot e^{p_1 \cdot \theta} \cdot \sin(p_2 \cdot \theta + p_3) + p_4 \quad (5.3)$$

Dabei entspricht $I_{\text{Ph}}(\theta)$ dem pulsfächenabhängigen Photostrom. Die Beziehung stellt also eine exponentiell gedämpfte harmonische Schwingung dar. p_0 ist ein Skalierungsparameter, p_1 ist damit der eigentliche Dämpfungsparameter, p_2 stellt die Frequenz der Oszillation und p_3 deren Phase dar. p_4 schließlich dient zur Korrektur der Ordinatenlage. Die angefiteten Daten reproduzieren in weiten Bereichen die gemessenen Werten erstaunlich gut. Zur besseren Übersicht sind die Werte für p_1 , p_2 und p_3 nochmals separat in ihrer Temperaturabhängigkeit in Abbildung 5.13 aufgetragen.

In allen drei Graphen wird deutlich, dass es sich bei der Messung bei 35 K um einen Ausreißer handelt, da hier starke Abweichungen vom tendenziellen Verhalten zu Tage treten. Sieht man von diesem Messfehler ab, der auf ein sich nicht vollständig eingestelltes thermisches Gleichgewicht der Probe herrühren könnte, zeigen die Werte eindeutige Verhaltensmuster. Die Dämpfung (Abbildung 5.13 oben) ist erwartungsgemäß bei Heliumtemperatur noch relativ gering, dies steht in Einklang mit den bis in hohe Pulsflächenbereiche messbaren Rabi-Oszillationen. Jedoch steigt dieser Parameter bis auf das fünffache für 70 K an, die entsprechenden Oszillationen sind nur noch bei relativ kleiner Anregung erkennbar und werden zudem zunehmend vom stärker werdenden Untergrundsignal (hier nicht dargestellt) überdeckt. Ebenfalls eingezeichnet sind Fits des Dämpfungsparameters an zwei unterschiedliche Funktionen: linear (dunkelblau) und an die Borri-Funktion (pink, vgl. Gleichung 3.66). Aus der Borri-Funktion lässt sich nun eine Aktivierungsenergie von etwa 2,9 meV extrahieren.

5.3. Einfluss der Temperatur auf grundlegende Größen

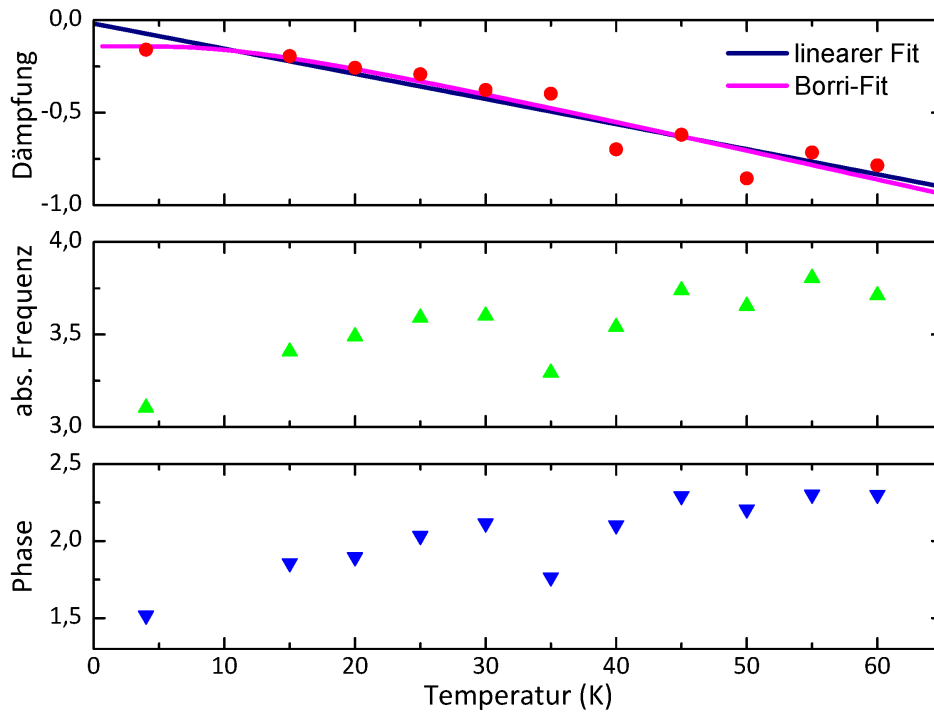


Abbildung 5.13.: Darstellung der Fitparameter Dämpfung, Frequenz und Phase über der Temperatur.

Auch die in der Mitte der Abbildung dargestellte Frequenz der Rabi-Oszillation unterliegt einer Temperaturabhängigkeit. Ihr Betrag wird zunehmend größer, d. h. die Oszillation wird schneller und damit stärker von der anregenden Pulsfläche abhängig. Dies bedeutet jedoch auch, dass die Schwingungen nicht mehr π -periodisch sind, bei erhöhten Temperaturen also nicht mehr von einem einfachen Zusammenhang zwischen den Parametern ausgegangen werden kann. Die im unteren Teil der Abbildung schließlich dargestellte Phase liefert keine weiteren Informationen, sie gibt vielmehr den Verlauf der Frequenz qualitativ wieder. Diese Messreihen zeigen darüber hinaus in einer anderen Darstellung das Maß für die Vollständigkeit der Exziton-Zustandspräparation. Wie bereits zuvor erwähnt ergibt sich bei dem hier verwendeten Lasersystem ein maximaler, theoretischer Photostrom von 12,8 pA für die $(2n + 1) \cdot \pi$, $n \in \mathbb{N}$ -Anregungen des exzitonischen Grundzustandes. Abbildung 5.14 entnimmt man, dass dieser Wert für Heliumtemperatur bei etwa 11,4 pA liegt und damit ca. 90 % des theoretischen Maximalwertes erreicht.

5. Experimentelle Ergebnisse

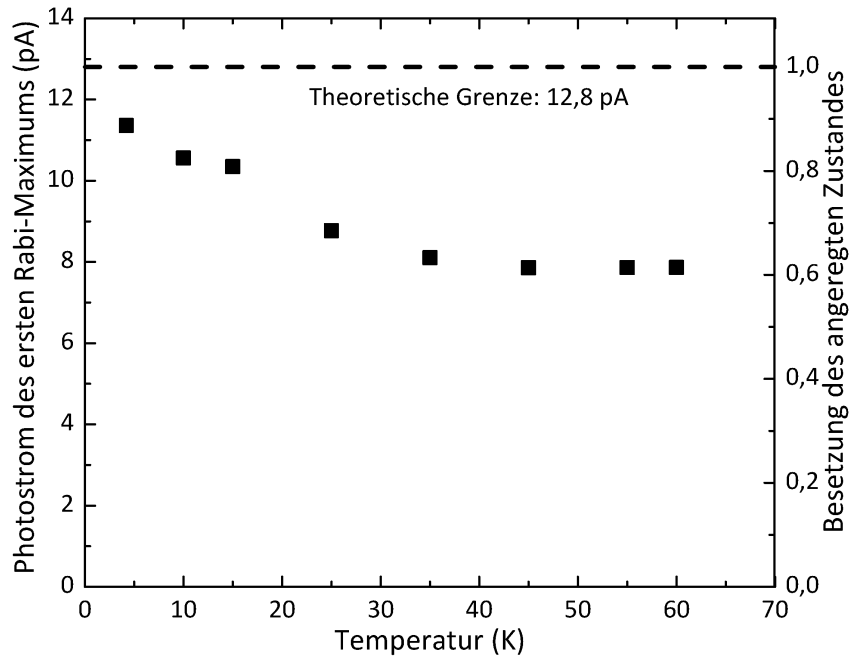


Abbildung 5.14.: 1X-Zustandspräparation für verschiedene Temperaturen. Vom Maximalwert bei 12,8 pA ist man bei 4,2 K nicht weit entfernt, die Werte sättigen zu hohen Temperaturen hin bei 50 %.

Auch für die weiteren vermessenen Probertemperaturen sind die jeweiligen Extremalwerte aufgetragen. Es ergibt sich insgesamt ein Abfall in der Vollständigkeit der 1X-Präparation, allerdings ist die kohärente Zustandsanregung selbst nahe 70 K noch deutlich zu erkennen. Die Werte scheinen aber zu sättigen, intuitiv sollte sich für noch höherer Temperaturen der Wert einer inkohärenten Anregung ergeben, also 50 %.

Festzuhalten bleibt, dass sich bis hinauf zu einer Temperatur von etwa 70 K noch deutliche Rabi-Oszillationen nachweisen lassen. Diese Ergebnisse legen den Schluss nahe, dass selbst bei 77 K, und damit der Temperatur flüssigen Stickstoffs, noch solche Phänomene an diesen GaAs-Quantenpunkten nachgewiesen werden können. Diese Tatsache würde im Hinblick auf den zu betreibenden instrumentellen Aufwand deutlich reduzieren und zeit- und kostensparende Messungen in diesem hohen Temperatur-Regime möglich machen. Die Ergebnisse zu höheren Temperaturen hin extrapolierend muss man allerdings davon ausgehen, dass ein Überschreiten der 100 K-Marke mit dem hier verwendeten Messaufbau

kaum möglich sein dürfte. Eine bessere Stromauflösung sowie weitere Maßnahmen zur Reduzierung von Rausch- und anderen Störeffekten könnte hier nochmals eine Steigerung ermöglichen.

5.4. Ramsey-Interferenzen

Bei kohärenter Anregung des Zwei-Niveau-Systems mit zwei einzelnen $\pi/2$ -Pulsen erhält man wie bereits beschrieben Ramsey-Interferenzen. Die spektrale Breite pro Periode dieser Interferenzen nimmt dabei direkt proportional zum zeitlichen Abstand der beiden Pulse ab.

5.4.1. Exziton

Grenzfall langer Verzögerungen bei $T = 4,2\text{ K}$

Ramsey-Oszillationen des Exziton-Überganges wurden an diesem Quantenpunkt schon zuvor gemessen (siehe [Stu05]), allerdings betrug die damalige maximale Verzögerung zwischen den beiden beteiligten Laserpulsen nur etwa 670 ps. Die spektrale Breite einer Halbperiode einer solchen Interferenz lag damit bei ungefähr 3 μeV , und damit schon unterhalb der natürlichen Linienbreite des Systems (5 μm). Da die Ramsey-Interferenzen proportional mit zunehmendem Pulsabstand immer schmaler werden, lässt sich theoretisch eine beliebig hohe spektrale Auflösung erreichen. Die Amplitude der Oszillation nimmt allerdings entsprechend der Dephasierungszeit des Systems exponentiell mit wachsendem Pulsabstand ab, daher bleibt die tatsächlich realisierbare Auflösung eingeschränkt. Trotzdem wurde in dieser Arbeit versucht, die Grenzen des Machbaren auszuloten und noch zeitlich weiter auseinander liegende Pulse zu verwenden. In Abbildung 5.15 ist eine Ramsey-Messung für einen Pulsabstand von 997 ps dargestellt, wobei hier eine Anregungsenergie in Resonanz zu 0,5 V gewählt wurde.

Es errechnet sich eine Periodenbreite von nur noch 770 neV, wobei der Hub der Oszillation lediglich 0,4 pA beträgt. Es erscheint jedoch nicht unmöglich, bei Bedarf in Zukunft auch noch längere Pulsabstände realisieren zu können, auch wenn in der Abbildung Phasensprünge sichtbar werden. Verbesserungsbedarf besteht dann allerdings im Aufbau des Interferometers, das dann aktiv stabilisiert werden sollte. Auch eine Verbesserung der Auflösung der Strommessungen an der Probe verbunden mit einer guten Rauschunterdrückung könnte die Grenze für noch registrier- und nutzbare Interferenzen auf einige Nanosekunden erhöhen. Gleichzeitig hätte dies

5. Experimentelle Ergebnisse

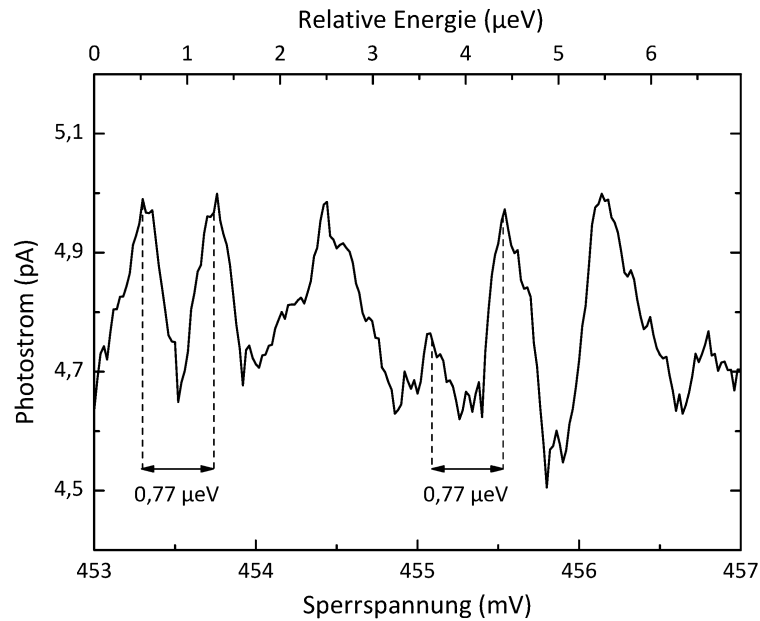


Abbildung 5.15.: Nah an der Nachweisgrenze: Ramsey-Interferenzen bei einem Pulsabstand von 997 ps und einer Anregungsenergie resonant zu 0,5 V. Die spektrale Breite einer Periode beträgt nur noch 770 neV.

natürlich auch eine deutliche Verbesserung der realisierbaren Energieauflösung zur Folge. Im hier untersuchten System beträgt die gemessene Dephasierungszeit bei 0,4 V etwa 320 ps, d. h. nach einer Verzögerung von nahezu einer Nanosekunde dürfte das System somit schon zu 95 % dephasiert sein.

Temperaturabhängigkeit

Da das Tieftemperatur-Mikroskop, das standardmäßig zur Messung in der Helium-Kanne eingesetzt wurde, ja um eine Temperaturregelung erweitert wurde, bietet sich auch die Beobachtung von Ramsey-Interferenzen bei höheren Werte als den 4,2 K des flüssigen Heliums an. Dazu wurde die Temperatur entsprechend eingeregelt, die sich dadurch verschiebende Resonanzenergie des betrachteten Quantenpunktsystems durch ein Nachregeln der Laserwellenlänge kompensiert und dann wie üblich der Photostrom in Abhängigkeit der angelegten Spannung an der Probe (Feinverstellung der Energie) erfasst. Beispielfhaft für ein aus diesem Vorgehen entstammendes Spektrum zeigt Abbildung 5.16.

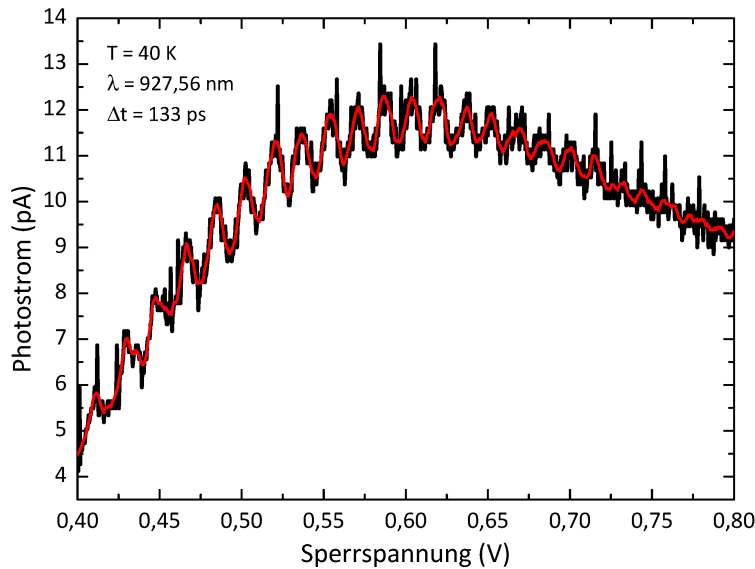


Abbildung 5.16.: Gemessene Ramsey-Interferenzen bei einer Temperatur von 40 K und einer Pulsverzögerung von 133 ps. Die Interferenz zeigt eine spektrale Halbperiode von 14 μeV .

In diesem Diagramm ist der durch Ramsey-Interferenzen oszillierende Photostrom bei einer Pulsverzögerung von 133 ps und einer Temperatur von 40 K aufgetragen. Die Oszillation selbst ist sehr gut zu erkennen, sie ist wie üblich einer breitbandigen Struktur überlagert, die das spektrale Abbild der anregenden Laserstrahlung darstellt. Die Interferenz selbst zeigt eine Halbperiode von 14 μeV , der Oszillationshub fällt mit 1,3 pA deutlich aus, auch wenn er natürlich im Vergleich mit den Messungen bei geringerer Verzögerung und niedrigerer Temperatur kleiner ausfällt. Weniger deutlich wird das Signal jedoch, wenn man bei dieser Temperatur zu längeren Verzögerungszeiten (hier: 233 ps) wechselt (vgl. Abbildung 5.17).

Hier beträgt die Auslenkung nur noch etwa 0,6 pA, die Halbperiode kann zu 9,5 μeV bestimmt werden. Das Austesten der Messgrenzen lässt sich jedoch auch im Parameterraum der Temperatur fortsetzen. Ihre Steigerung auf 60 K produziert bei Verzögerungen von 66 ps noch deutlich sichtbare Oszillationen (vgl. Abbildung 5.18).

Die Halbperiode der Interferenz ist hier 25,8 μeV breit.

Diese Beispiele verdeutlichen die enorme Auflösung und Nachweiswahrscheinlichkeit, die in den vorliegenden Experimenten gegeben ist.

5. Experimentelle Ergebnisse

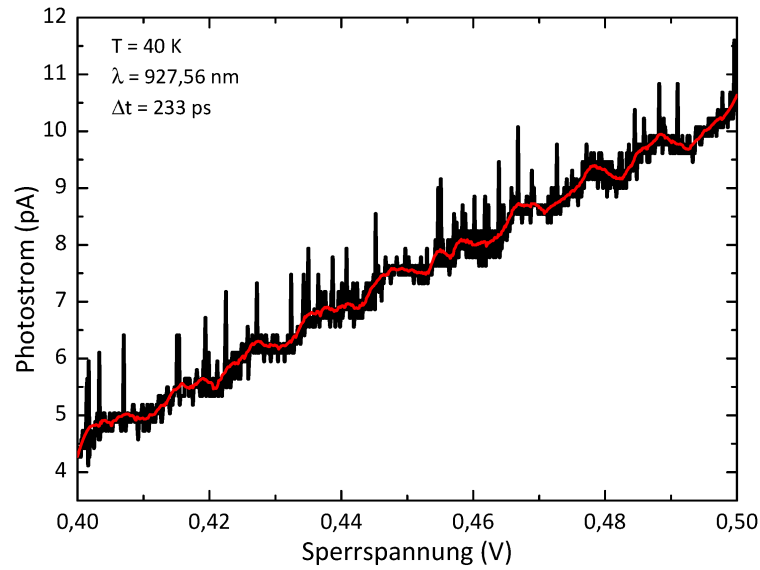


Abbildung 5.17.: Gemessene Ramsey-Interferenzen bei einer Temperatur von 40 K und einer Pulsverzögerung von 233 ps. Die Interferenz zeigt eine spektrale Halbperiode von $9,5\text{ }\mu\text{eV}$.

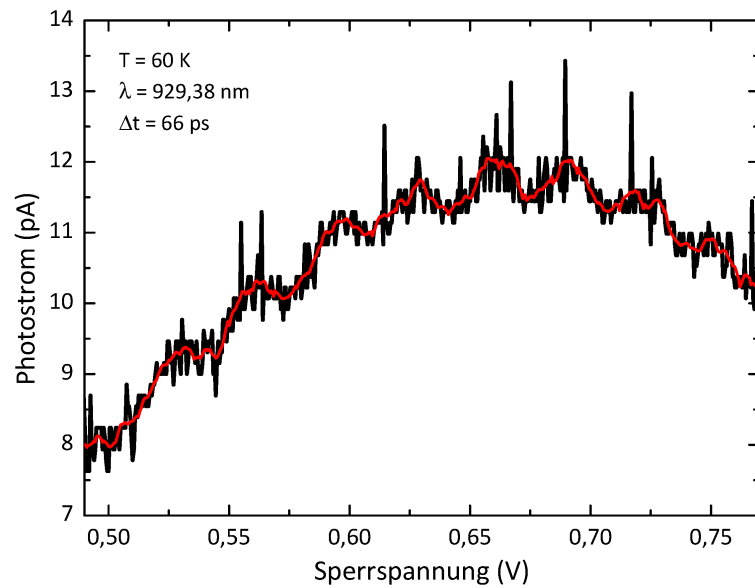


Abbildung 5.18.: Gemessene Ramsey-Interferenzen bei einer Temperatur von 60 K und einer Pulsverzögerung von 66 ps. Die Interferenz zeigt eine spektrale Halbperiode von $25,8\text{ }\mu\text{eV}$.

In unserem System, dessen Energie also über die Spannung kontrolliert werden kann, könnte der Ramsey-Effekt verwendet werden, um den Übergang sehr genau auf die Energie des Anregungslasers zu stabilisieren. Eine weitere Anwendungsmöglichkeit ergibt sich aus der hohen Empfindlichkeit der phasensensitiven Messung gegenüber jeder Schwankung der Übergangsenergie. Denkbar ist hier eine Anwendung als Sensor für wie auch immer geartete Wechselwirkungen innerhalb des Zeitintervalls zwischen den beiden Laserpulsen, die auf das System einwirken und so messbar sind. Für mögliche Anwendungen im Bereich der Quanten-Informationstechnologie sind Pulsabstände, die kürzer als die Dephasierungszeit sind, von Interesse. Wie oben gezeigt, bewirkt bei Doppelpulsanregung schon eine geringe, im Einzelpulsfall nahezu vernachlässigbare Verstimmung des Systems einen Wechsel zwischen konstruktiver und destruktiver Interferenz. Sofern die Kohärenz des Systems erhalten ist, kann daher allein durch eine geringfügige Änderung der Übergangsenergie eine Variation im Rotationswinkel des Endzustands zwischen 0 und π eingestellt werden. Im hier vorgestellten Experiment bedeutet dies, dass allein durch eine geeignete Wahl der Spannung jede beliebige Besetzung und Phase des Zwei-Niveau-Systems generiert werden kann, ohne dabei die optische Anregung verändern zu müssen. Weiterhin ist der Effekt auch für Gatter-Operationen eines Quantencomputers interessant, in denen sowohl Ziel- als auch Kontroll-Bit auf kohärenten Zuständen basieren. Skalierbare Ansätze beruhen beispielsweise auf gekoppelten Quantenpunktsystemen. Wie in den vorigen Abschnitten gezeigt, reicht bei Anregung mit Doppelpulsen schon eine sehr geringe Änderung der Übergangsenergie aus, um die Rotation des Ziel-Qubits zwischen 0 und π zu variieren. Durch diese hohe Empfindlichkeit auf geringe Energievariationen kommen auch schwache Wechselwirkungsmechanismen, z. B. über Dipol-Dipol-Kopplung benachbarter QDs [Uno05], für die Realisierung bedingter Qubit-Rotationen in Frage. Unabhängig von der genauen Art der Wechselwirkung lässt sich bei Rotation des Qubits mittels zweier zeitlich getrennter $\pi/2$ -Pulse die Operationszeit eines Quantengatters exakt an die Kopplungsstärke anpassen. Auch wenn die hier vorgestellten Anwendungsmöglichkeiten aktuell meist noch relativ weit von einer tatsächlichen Realisierung entfernt sind, zeigen sie dennoch das enorme Potential durch die Verwendung von Doppelpulsen in Kombination mit einer Variation der Resonanzenergie zur kohärenten optischen Kontrolle.

5. Experimentelle Ergebnisse

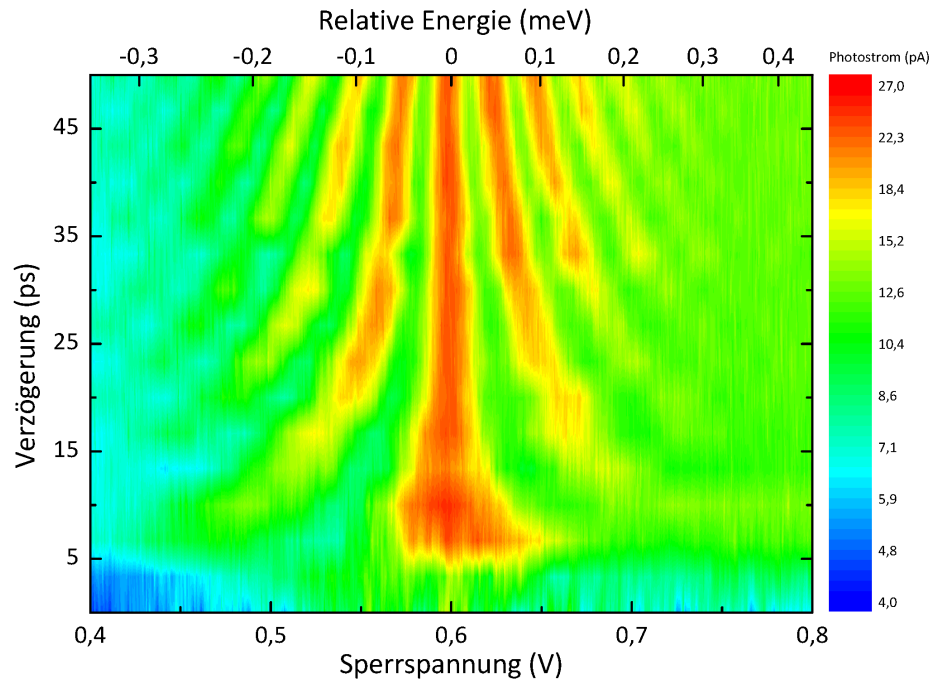


Abbildung 5.19.: Ramsey-Interferenzen des Biexzitons für verschiedene Pulsabstände (linke Achse). Mit zunehmendem zeitlichen Abstand der Pulse werden die Interferenzen schmäler.

5.4.2. Biexziton

Wie bereits in den Theorie-Abschnitten erläutert wurde, eignet sich auch der 2X-Zustand des Quantenpunktes dazu, kohärent mit zwei Pulsen so angeregt zu werden, dass sich Ramsey-Interferenzen ausbilden. Da das Biexziton eine im Vergleich zum Exziton geringfügig kürzere Dephasierungszeit zeigt⁵, sollten sich für vergleichbare Pulsabstände auch ähnliche Ramsey-Interferenzen zeigen. Mit dem wichtigen Unterschied allerdings, dass die Breite einer Halbperiode um den Faktor 2 gegenüber dem 1X-Fall schmaler sein sollte. Abbildung 5.19 zeigt das Ergebnis einer Anregung des Quantenpunktes mit zwei zeitlich variabel verzögerten $\pi/2$ -Pulsen.

Zur Bestimmung der für einen solchen Puls notwendigen Leistung

⁵Die Tunnelrate wird beim Biexziton zwar durch eine höhere Tunnelbarriere zum GaAs verringert, allerdings ist die strahlende Rekombination in diesem Fall deutlich ausgeprägter, da die Rekombinationszeiten in In(Ga)As-Quantenpunkten kürzer als die des Exzitons ist.

wurde zunächst eine Rabi-Oszillation des Biexzitons am Quantenpunkt durchgeführt und der maximale Photostrom für einen π -Puls festgestellt. Dieser maximale Photostrom wurde anschließend um einen Offset-Wert korrigiert, da die Messapparatur auch bei nicht vorhandener optischer Leistung etwa 2,5 pA anzeigt. Danach wurde das Filterrad im optischen Aufbau so weit verstellt, bis genau der halbe Photostrom des zuvor ermittelten Maximums gemessen werden konnte. Da Rabi-Oszillationen am Biexziton im Bereich geringer Anregung jedoch eine deutliche Abweichung vom harmonischen Verhalten aufweisen, ist die Pulsfläche für diesen $\pi/2$ -Puls größer als die halbe Pulsfläche des π -Pulses. Die grobe Einstellung dieser Zeit wurde mit Hilfe des Verfahrtsches erzielt. Eine Fein-Anpassung der Phase über den Piezo-Versteller erfolgte in diesem Testaufbau nicht automatisch, vielmehr wurden die Messwerte im Anschluss manuell korrigiert. Die Sichtbarkeit ist mit den Exziton-Messungen vergleichbar, auch werden die Interferenzen, wie nicht anders zu erwarten, mit steigendem Pulsabstand schmaler. Es zeigt sich zudem die erwartete doppelte Oszillationsfrequenz, die also bei einer Verzögerungszeit von 50 ps zu einer Breite der Halbperiode von 24,5 μeV führt und damit um den Faktor zwei größer als beim Exziton ist (vgl. Abbildung 5.22). Die eigentlichen Interferenzen werden noch von einer Einhüllenden überlagert, dem Absorptionsspektrum des Biexzitons für einen Einzelpuls. Dieses Spektrum kehrt bei höheren Spannungen nicht wieder in die Nulllage zurück sondern behält einen deutlich sichtbaren Untergrund bei. Da in diesem Fall der 2X-Anregung deutlich höhere optische Leistungen benötigt werden, ist dieses Verhalten bei den höheren Spannungen wahrscheinlich auf einen inkohärenten Untergrund-Strom zurückzuführen, der bei hoher Anregungsleistung zunehmend an Bedeutung gewinnt, denn die Dephasierungszeit nimmt hier stark zu. Für verschiedene Verzögerungszeiten sind die Ramsey-Interferenzen auch nochmal in der üblicheren gestaffelten Darstellung aufgetragen (vgl. Abbildung 5.20).

Grenzfall langer Verzögerungen

Auch im Falle der 2X-Anregung wurde versucht, die Verzögerungszeit zu steigern. Abbildung 5.21 verdeutlicht diesen Extremfall.

Bei einer Verzögerungszeit von 997 ps konnte noch immer eine Oszillation des Photostroms in Abhängigkeit von der Energieverstimmung beobachtet werden. Die Stromunterschiede sind zwar nur noch extrem gering und gehen beinahe im Rauschen unter, allerdings ergeben sich exzellente Übereinstimmungen mit den Periodendauern, die am gleichen

5. Experimentelle Ergebnisse

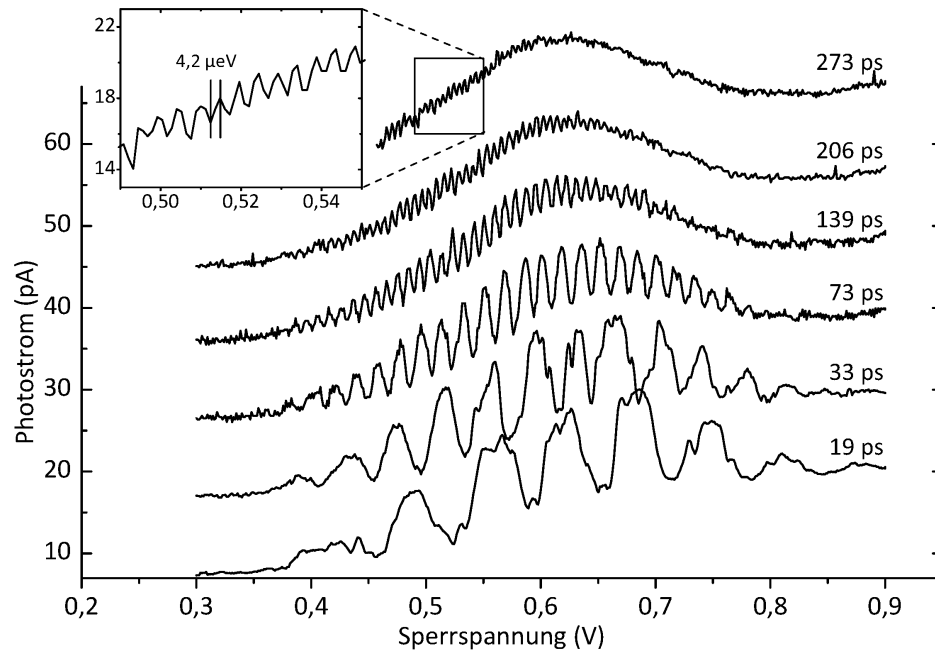


Abbildung 5.20.: Ramsey-Interferenzen des Biexzitons für verschiedene Pulsabstände.

Quantenpunkt für den Zerfall des Exziton-Grundzustandes ermittelt wurden. Im hier betrachteten 2X-Fall ist die Halbperiode nur noch 178 neV breit, das entspricht fast genau der Hälfte des 1X-Wertes (385 neV). Bei einer Spannung von 421,5 meV ist zudem das Ergebnis eines Phasensprunges der Interferenz erkennbar. Abschließend sind noch einmal die spektralen Breiten einer Periode der Ramsey-Interferenz für den Exziton- und Biexzitonfall in Abhängigkeit von der Verzögerungszeit τ in Abbildung 5.22 aufgetragen.

Leicht ersichtlich ist, dass die spektralen Breiten im Fall des Biexzitons immer genau halb so groß sind wie die des Exzitons und generell monoton fallen.

Auch an dieser Stelle lässt sich wieder feststellen, dass zunächst keine grundlegenden Tatsachen gegen die Detektion noch stärker gegeneinander verzögerter Laserpulse sprechen sollte. Durch eine Optimierung des gesamten Messaufbaus sollte sich dieser Messbereich noch deutlich erweitern lassen.

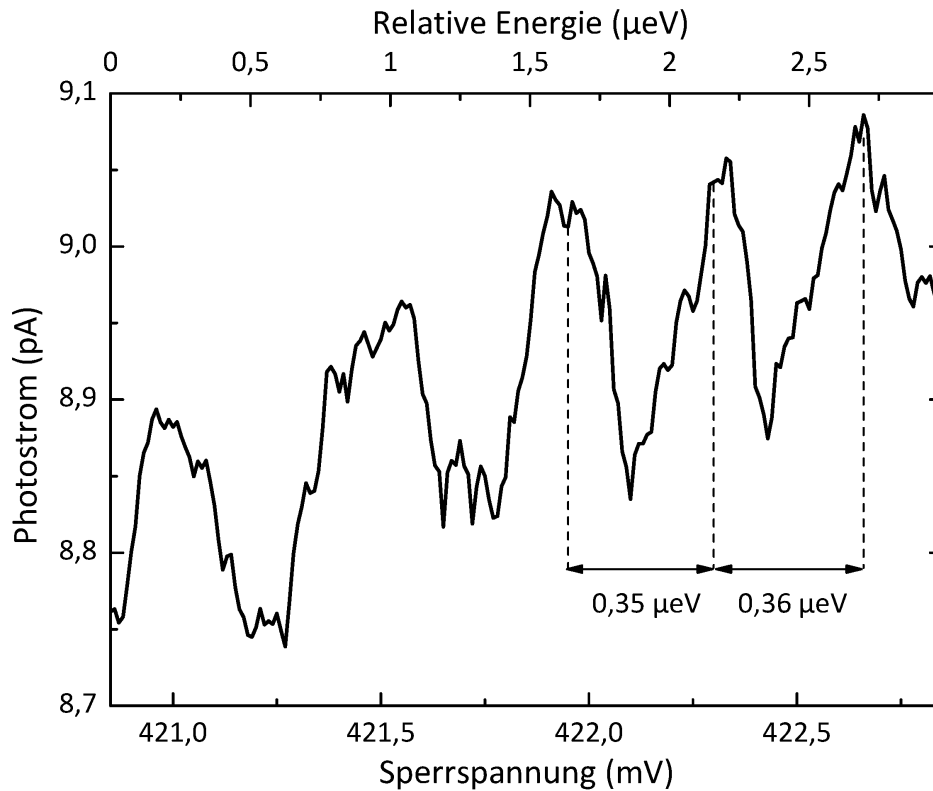


Abbildung 5.21.: Ramsey-Interferenzen des Biexzitons bei einem Pulsabstand von 997 ps. Die spektrale Breite einer Halbperiode beträgt nur noch etwa 178 neV, also fast genau dem halben Wert des entsprechenden Exziton-Falles.

Verstimmung

Weiter interessante Details enthüllt Abbildung 5.23. Hier wurde der Photostrom der Biexziton-Ramseyinterferenzen als Funktion einer weiteren Verstimmung, die in diesem Fall durch eine Variation der anregenden Laserwellenlänge realisiert wurde, aufgetragen. In diesem vorliegenden Fall war die Verzögerung zwischen zwei Laserpulsen auf etwa 66 ps eingestellt und festgehalten worden.

Horizontale Schnitte durch diese Darstellung entsprechen also einer regulären Messung einer Ramsey-Interferenz. Sehr gut ist an dieser Darstellung das Verschwinden von Effekten bei Spannungen kleiner als etwa 0,35 V sichtbar. Zu größeren Spannungen hin kommt es zu einem starken

5. Experimentelle Ergebnisse

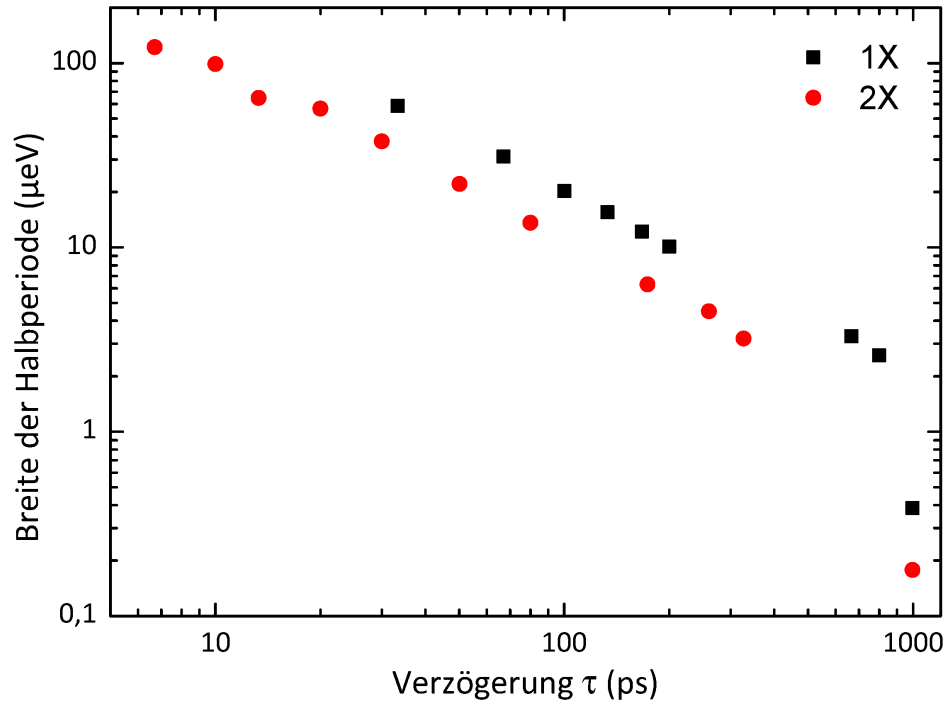


Abbildung 5.22.: Die spektralen Breiten einer Periode der Ramsey-Interferenz für den Exziton- und Biexzitonfall in Abhängigkeit von der Verzögerungszeit τ .

Anstieg der gemessenen Ströme, sobald man die eigentliche Resonanz zu größeren Energien schiebt. Dieser Effekt wurde ja auch schon im Falle der normalen 2X-Resonanzen beobachtet und dort näher erläutert. Ferner lässt sich ein Abfallen der Abhängigkeit des maximalen Photostromes von der Verstimmung beobachten. Dieser Zusammenhang ist hier annähernd linear.

Die erstmalige Realisierung solcher kohärenter Zwei-Photon-Prozesse für den Fall einer variablen zeitlichen Verstimmung ist insofern von grossem Interesse, da hier zum einen eine doppelt so hohe Auflösung der Oszillation ausgenutzt werden kann. Zum anderen kann der Zerfall des Biexziton-Zustandes dazu genutzt werden, verschränkte Photonen zu erzeugen. Die elektrische Abstimbarkeit gestattet es dann, mittels einer nur sehr geringen Spannungsänderung zwischen konstruktiver und destruktiver Interferenz schalten und damit verschränkte Photonen bei Bedarf auf Knopfdruck erzeugen zu können.

5.4. Ramsey-Interferenzen

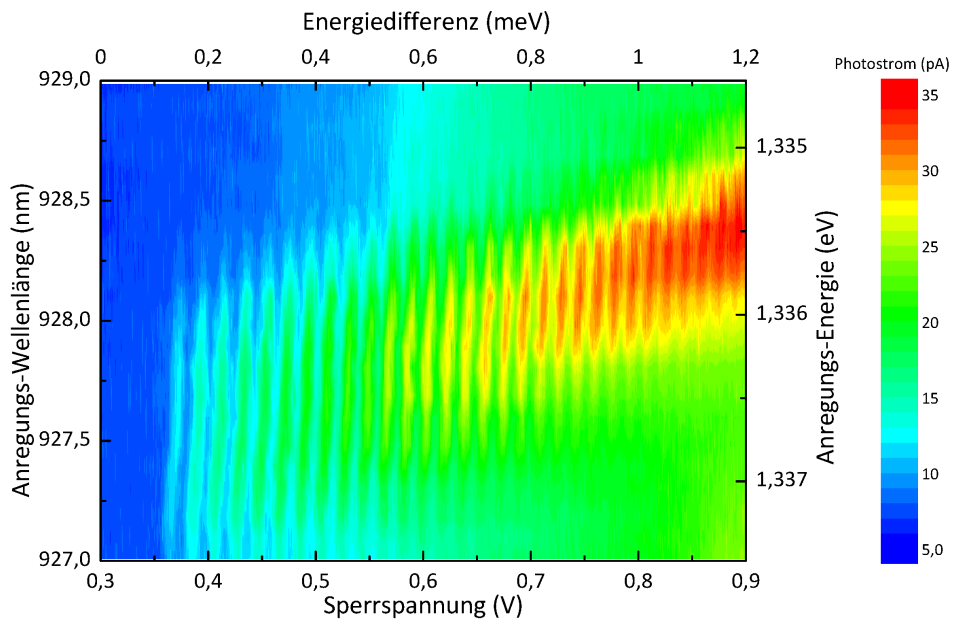


Abbildung 5.23.: Photostrom der 2X-Ramseyinterferenz bei fester Pulsverzögerung (66 ps) aber variabler Anregungsenergie.

Gerade im Hinblick auf Anwendungen in der Quanten-Kryptographie ist dieser Ansatz sehr interessant.

6. Ausblick

Obwohl sich das Gebiet der Quanten-Informationsverarbeitung und mit diesem auch die kohärenten Untersuchungen von Halbleiter-Quantenpunkten noch relativ am Anfang seiner Entwicklung befindet, sind die Erwartungen und damit einhergehend auch die Herausforderungen enorm groß. Auch wenn viele hier anzutreffende oder theoretisch zu erwartende Eigenschaften von großem Interesse nicht nur für die Grundlagenforschung, sondern auch für die kommerzielle Nutzbarmachung, kann noch nicht übersehen werden, in welchem Maße sich diese hohen Erwartungen werden erfüllen lassen können. Jedoch versprechen die hier anzutreffenden Aufgabenstellungen und Fragen auch aus Sicht rein wissenschaftlicher Grundlagenforschung eine sehr interessante Verknüpfung zwischen Laborexperimenten und elementarer Quantentheorie.

In dieser Arbeit konnte gezeigt werden, dass viele der kohärenten Eigenschaften und Manipulationen an dem Quantenpunktsystem auch bei höheren Temperaturen noch möglich und messbar sind. Der Anschluss an den Bereich flüssigen Stickstoffs konnte gezeigt werden. Zudem wurde die mittels zeitlich variabler Manipulation der Zustände mögliche Energieauflösung nochmals deutlich gesteigert. Allerdings stößt man mit solchen Messungen in Bereiche vor, die bereits im Grenzbereich des mit dem vorhandenen Messaufbau noch zu bewältigenden Rahmens liegen. So scheint eine Verbesserung der elektrischen Messapparatur unumgänglich, will man noch kleinere Effekte reproduzierbar messen. Allerdings legen die erzielten Ergebnisse nahe, dass grundsätzlich nichts gegen die weitere Erhöhung des Parameters Temperatur auch im vorhandenen Materialsystem spricht.

Ebenfalls dürfte ein Wechsel des Materialsystems von InGaAs-Quantenpunkten hin zu GaAs/AlGaAs bzw. – für den kommerziellen Bereich wohl noch interessanter – CdSe/ZnSe eine deutliche Verbesserung der Nachweiswahrscheinlichkeiten bedeuten, da sich die Übergangsenergien dieser Systeme in den sichtbaren Spektralbereich verschieben. Dies führt dann auch zu einer starken Vereinfachung des Messaufbaus, da die gesamte Anregung und Detektion für das unbewaffnete menschliche Auge sichtbar wird. Optiken für diesen Spektralbereich sind in ebenso hoher

6. Ausblick

Qualität verfügbar wie die entsprechenden Nachweisinstrumente. Die nötige Ausstattung dazu wurde angeschafft, so stehen inzwischen weitere Lasersysteme und ein OPO zur Verfügung. Mit diesen Materialien sollte es auch deutlich leichter fallen, kohärente Phänomene bei oder nahe bei Raumtemperatur – und damit für die Anwendung deutlich interessanter – zu beobachten.

Erste Arbeiten mit diesem Materialsystem werden momentan in Zusammenarbeit mit Kooperationspartnern durchgeführt. Da zudem inzwischen ein Pulseshaper-System zur Verfügung steht, erschließt sich ein weiterer Parameterraum, den man zur optimierten Anregung der Systeme nutzen kann. Durch geeignete Formung der Pulse werden sich darüber hinaus auch theoretische Modelle falsifizieren und erweitern lassen.

Verbesserungspotential bietet sich auch durch die Integration der Quantenpunkte in eine geeignete Mikroresonator-Struktur an. Damit ließe sich zum einen die Ausbeute an detektierbaren optischen Signalen erhöhen, zum anderen Eigenschaften wie die strahlende Lebensdauer gezielt beeinflussen.

Deutlich verbesserte Möglichkeiten der Beeinflussung von Quantensystemen im Hinblick auf mögliche zukünftige Computeranwendungen bieten die in dieser Arbeit ja schon ausgiebigst genutzten Möglichkeiten, die sich durch elektrische Kontaktierung der Qubits bieten. Zur Realisierung kohärenter – und damit im Zweifel komplexer – Quantenoperationen ist eine Kombination von verschiedenen Wechselwirkungsmechanismen und eine Kontrolle über die Kopplungsstärke erforderlich. Ganz allgemein stellt sich dabei das Problem, dass Systeme mit sehr schwacher Kopplung an ihre Umgebung zwar lange Kohärenzzeiten zeigen, umgekehrt aber aufgrund kleiner Wechselwirkungsmöglichkeiten auch nur sehr langsam initialisiert, manipuliert und ausgelesen werden können. Bisher wurden die elektrisch kontaktierten Quantenpunkte nur bei einer zeitlich konstant gehaltenen Spannung untersucht. Der Übergang zu zeitabhängigen Probenspannungen ermöglichte dann, den Initialisierungs- und Ausleseprozess, d. h. das Tunnelereignis, von den Zeitskalen der Dephasierung zu entkoppeln. Gleiches würde dann auch für die Aufhebung des Zusammenhangs zwischen Abstimmung der Energieniveaus über den Stark-Effekt und einer damit einhergehenden Variation der Dephasierungszeit. Bei schneller und präziser elektrischer Ansteuerung über ganze Sequenzen von Spannungen böten sich so deutlich erweiterte Kontrollmechanismen über die Systemparameter an. Zu Realisierung dieser anspruchsvollen Aufgaben laufen zur Zeit Vorbereitungen in der Arbeitsgruppe Zrenner.

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass sowohl der experimentelle

Aufbau selbst noch deutliches Potential zur Optimierung aufweist. Als Flaschenhals erwies sich bei der hohen Energieauflösung der Messungen zuletzt in zunehmendem Maße der anregende TiSa-Laser. Entgegen der zuvor jahrelang erprobten Praxis ließ sich dieser teilweise nicht mehr auf jeder gewünschter Wellenlänge zum Pulsen bringen, außerdem schlugen nun Intensitätsschwankungen stärker durch. Hier wäre eine weitere sorgfältige Analyse der Problemstellen sicherlich von Nutzen. Zu einer verbesserten Proben temperatur könnten optimierte Regelungsroutinen beitragen, die Strommessungen selbst sollten durch einen überarbeiteten Aufbau der daran beteiligten elektrischen Komponenten verfeinert werden. Dies geschieht im Augenblick auch im Zuge der Einführung einer schnellen schaltbaren Elektronik.

Die Verbindung von kohärenter optischer Anregung mit der elektrischen Kontaktierung eines Quantensystems erweitert um die Möglichkeit der Temperaturbeeinflussung eröffnet eine Vielzahl neuer Kontrollmöglichkeiten und bietet zudem eine sehr präzise und gleichzeitig technisch relativ einfache Messmethode. Auch aus theoretischer Sicht lassen sich damit viele Konzepte überprüfen.

A. Temperaturregelung

In diesem Anhang wird kurz auf die zur Ermittlung der Temperatur der Probe notwendigen Umrechnungen der Messwerte (Spannung) eingegangen. Außerdem ist die Skizze der realisierten elektrischen Schaltung aufgeführt, die zum Betrieb des Temperatursensors benötigt wird.

A.1. Kalibrierung der Messwerte

Die Temperaturantwort-Kurve (Abbildung A.1) des DT-670-Sensors von LakeShore kann durch einen auf Chebyshev-Polynome aufbauenden Ausdruck beschrieben werden.

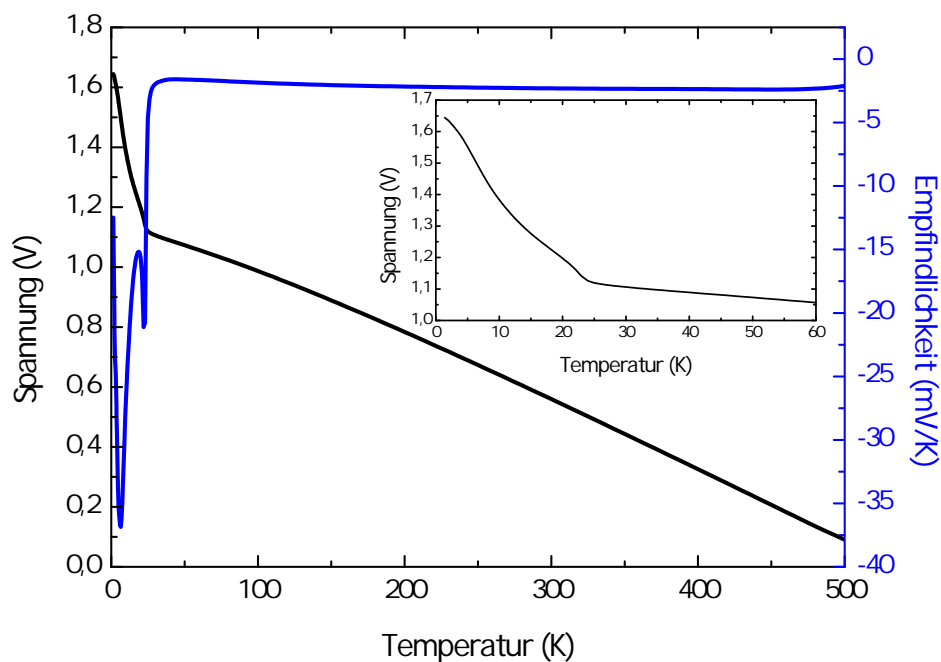


Abbildung A.1.: Darstellung des Zusammenhangs zwischen am Sensor abfallender Spannung und der Temperatur (linke Skala) bzw. der temperaturabhängigen Empfindlichkeit (rechte Skala).

A. Temperaturregelung

Tabelle A.1.: Chebychev-Parameter für die Temperaturkurve des DT-670-Sensors

	2,0 ... 12,0 K	12,0 ... 24,5 K	24,5 ... 100 K
Z_L	1,294390	1,112300	0,909416
Z_U	1,680000	1,383730	1,122751
$A(0)$	6,429274	17,244846	82,017868
$A(1)$	-7,514262	-7,964373	-59,064244
$A(2)$	-0,725882	0,625343	-1,356615
$A(3)$	-1,117846	-0,105068	1,055396
$A(4)$	-0,562041	0,292196	0,837341
$A(5)$	-0,360239	-0,344492	0,431875
$A(6)$	-0,229751	0,271670	0,440840
$A(7)$	-0,135713	-0,151722	-0,061588
$A(8)$	-0,068203	0,121320	0,209414
$A(9)$	-0,029755	-0,035566	-0,120882
$A(10)$		0,045966	0,055734
$A(11)$			-0,035974

Dazu sind drei separate Definitionsbereiche nötig, um die Kurve angemessen wiederzugeben¹. In Tabelle A.1 sind die notwendigen Parameter aufgeführt. Die Abweichung zwischen Fitkurve und tatsächlicher Sensorcharakteristik beträgt laut Hersteller maximal 10 mK.

Die Chebychev-Gleichung lautet:

$$T(x) = \sum_{i=0}^n a_i t_i(x) \quad (\text{A.1})$$

Dabei ist $T(x)$ die Temperatur in Kelvin, $t_i(x)$ ein Chebychev-Polynom und a_i der Chebychev-Koeffizient. Der Parameter x ist eine normalisierte Variable und durch

$$x = \frac{(Z - Z_L) - (Z_U - Z)}{Z_U - Z_L} \sum_{i=0}^n a_i t_i(x) \quad (\text{A.2})$$

¹Für die Messungen in dieser Arbeit war nur der Temperaturbereich bis 100 K von Bedeutung. Der Sensor kann jedoch bis 500 K eingesetzt werden, dann wird allerdings die Definition eines weiteren Parameterbereiches (100–500 K) notwendig.

gegeben (Z : Spannung, Z_L und Z_U : untere und obere Spannungsgrenze des Fitbereiches). Die Chebychev-Polynome können durch folgende Rekursionsvorschrift erzeugt werden:

$$t_0(x) = 1 \quad (\text{A.3})$$

$$t_1(x) = x \quad (\text{A.4})$$

$$t_{i+1}(x) = 2xt_i(x) - t_{i-1}(x) \quad (\text{A.5})$$

Nachstehende Routine zeigt ein einfaches Beispiel, wie sich die obige Rekursionsvorschrift am Rechner dazu nutzen lässt, aus den ermittelten Spannungswerten die Temperatur zu generieren:

```
FUNCTION Chebychev (Z as double) as double
REM Evaluation of Chebychev series
  X=((Z-ZL)-(ZU-Z))/(ZU-ZL)
  Tc(0)=1
  Tc(1)=X
  T=A(0)+A(1)*X
  FOR I=2 to Ubound(A())
    Tc(I)=2*X*Tc(I-1)-Tc(I-2)
    T=T+A(I)*Tc(I)
  NEXT I
  Chebychev=T
END FUNCTION
```

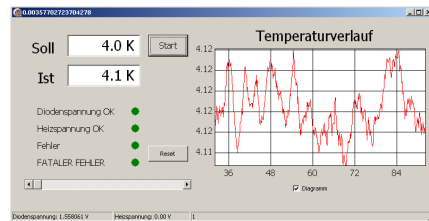
Das Programm erwartet die Spannung Z in Volt und gibt die berechnete Temperatur T in Kelvin aus. Die Unterrouinen greifen auf die dem Temperaturbereich entsprechenden Parameter zurück (Tabelle A.1).

A.2. Regelungsverhalten

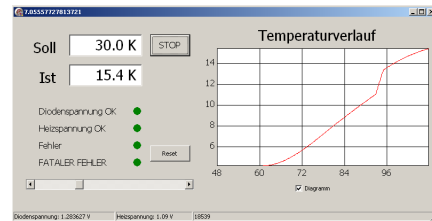
Die folgenden Abbildungen zeigen beispielhaft die zeitliche Entwicklung typischer Temperaturregelungen.

Abbildung A.2a) zeigt die Programmoberfläche im Ruhezustand. Oben links sind sowohl die aktuell ermittelte Ist-Temperatur, als auch die gewünschte Soll-Temperatur in Kelvin angegeben. Die darunter angeordneten Status-Zeilen weisen einen störungsfreien Betrieb aus. Angezeigt werden hier unplausible Werte für die Spannung an der Messdiode oder der Heizspannung. Tritt ein solcher Fall ein, wird automatisch eine Notabschaltung der Heizung vorgenommen. Ebenso wird ständig geprüft, ob

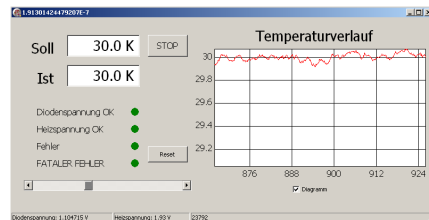
A. Temperaturregelung



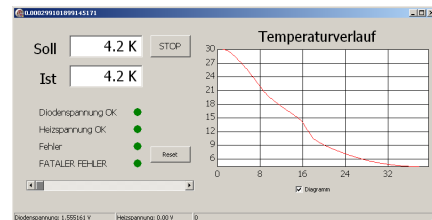
(a)



(b)



(c)



(d)

Abbildung A.2.: Beispiele für das Verhalten der Temperaturregelung. a) Messwertschwankungen im ungeregelten Betrieb. b) Aufheizphase mit sichtbarem Sprung beim Übergang von einem Chebychev-Bereich zum nächsten. c) Regelverhalten bei Erreichen der eingestellten Temperatur (30 K). d) Selbständiges Abkühlen bei abruptem Abschalten der Heizung.

der Gradient der Temperaturänderung einen bestimmten kritischen Wert überschreitet. Auch in einem solchen Fall wird die Heizung gestoppt. Das Diagramm auf der rechten Seite zeigt den Verlauf der Temperatur (Kelvin) an der Probe über der Zeit (Sekunden) dar. In der Statuszeile am unteren Rand des Fensters wird zudem die an der Diode gemessene Spannung sowie eine evtl. angelegte Heizspannung angezeigt. Der Fenstertitel zeigt die Abweichung zwischen Soll- und Ist-Wert.

Symbole und Abkürzungen

δ	Verstimmung des Lasers bezüglich der QD-Resonanz ($\delta = \omega_{\text{Laser}} - \omega_{\text{QD}}$)
φ	Phasenwinkel (Winkel in der u-v-Ebene der Blochkugel)
γ	Zerfallsrate
Γ	Linienbreite (Energie)
Γ_0	natürliche Linienbreite
Γ_{hom}	homogene Linienbreite
λ	Wellenlänge
$\vec{\mu}$	Dipolmoment
θ	Pulsfläche
σ^{\pm}	zirkulare Polarisierung
τ	Zeitskala, z. B. Tunnelzeit, Pulsdauer, Pulsabstand
ω	Kreisfrequenz der Laserstrahlung bzw. eines optischen Übergangs
Ω, Ω_0	Rabi-Frequenz (in Resonanz)
ψ	Wellenfunktion
$1X$	einzelnes Exziton
$1X^{-}$	negativ geladenes Exziton
$1X^{+}$	positiv geladenes Exziton
$2X$	Biexziton

Symbole und Abkürzungen

CB	Leitungsband (engl.: <i>Conduction Band</i> , VB)
cw	kontinuierlicher, d.h. nicht-gepulster Betrieb des Lasers (engl.: <i>continuous wave</i>)
e	Elementarladung ($1,6022 \cdot 10^{-19}$ C)
e^{-}	Elektron
$E, \Delta E$	Energie(unterschied)
\vec{E}	elektrisches Feld
f_{Laser}	Wiederholfrequenz des Lasers (80 MHz)
$ 0\rangle$	Grundzustand des Zwei-Niveau-Systems, d.h. leerer QD
h	Planck'sches Wirkungsquantum ($4,1357 \cdot 10^{-15}$ eVs)
\hbar	$h/2\pi$ ($6,5821 \cdot 10^{-16}$ eVs)
hh	schweres Loch
I	Strom
J, J_z	Gesamtdrehimpuls (z-Komponente)
l	Bahndrehimpuls
LB	Leitungsband
MBE	Molekularstrahlepitaxie (engl.: <i>Molecular Beam Epitaxy</i>)
NA	Numerische Apertur
ND	Neutral-Dichte
P	(optische) Anregungsleistung
PC	Photostrom (engl.: <i>Photo Current</i>)
PCE	Photostromanregung (engl.: <i>Photocurrent Excitation</i>)
PL	Photolumineszenz
PLE	Anregungs-Photolumineszenz (engl.: <i>Photoluminescence Excitation</i>)

QD	Quantenpunkt (engl.: <i>Quantum Dot</i>)
QR	Quantendraht (engl.: <i>Quantum Wire</i>)
QW	Quantenfilm (engl.: <i>Quantum Well</i>)
S, S_z	Spin (z-Komponente)
t	Zeit (Variable)
T	Zeitperiode
T_1	Lebensdauer
T_2	Dephasierungszeit
T_i^*	Zeitskala reiner, d. h. nicht lebensdauerbedingter Dephasierung (engl.: <i>pure dephasing</i>)
$T_{4\text{He}}$	Siede-Temperatur von ^4He (4,2 K)
u	dispersive Komponente des Blochvektors (Phaseninformation)
v	absorptive Komponente des Blochvektors (Phaseninformation)
V_B	Vorspannung der Photodiode (engl.: <i>bias voltage</i>)
V_{bi}	Eigenspannung der Photodiode (engl.: <i>built in</i>)
VB	Valenzband (engl.: <i>Valence Band</i> , VB)
w	Inversion des Blochvektors (Besetzungswahrscheinlichkeit)
WL	Benetzungsschicht (engl.: <i>Wetting Layer</i>)

Publikationsliste

- [1] P. Ester, L. Lackmann, S. Michaelis de Vasconcellos, M. C. Hübner, A. Zrenner, and M. Bichler. Single photon emission based on coherent state preparation. *Appl. Phys. Lett.*, 91(11):111110, 2007.
- [2] P. Ester, L. Lackmann, M. C. Hübner, S. M. de Vasconcellos, A. Zrenner, and M. Bichler. p-shell rabi-flopping and single photon emission in an ingaas/gaas quantum dot. *Physica E*, 40(6):2004–2006, April 2008.
- [3] R. Schmidt, U. Scholz, M. Vitzethum, R. Fix, S. Malzer, C. Metzner, P. Kailuweit, D. Reuter, A. Wieck, M. C. Hübner, S. Stufler, A. Zrenner, and G. H. Döhler. Single quantum dot nano-LEDs – spectroscopy of an electrically controlled few-particle system. *Phys. Status Solidi C*, 2(8):2974–2977, 2005.
- [4] R. Schmidt, U. Scholz, M. Vitzethum, R. Fix, C. Metzner, P. Kailuweit, D. Reuter, A. Wieck, M. C. Hübner, S. Stufler, A. Zrenner, S. Malzer, and G. H. Döhler. Fabrication of genuine single-quantum-dot light-emitting diodes. *Appl. Phys. Lett.*, 88(12):121115, 2006.
- [5] R. Schmidt, M. Vitzethum, R. Fix, U. Scholz, S. Malzer, C. Metzner, P. Kailuweit, D. Reuter, A. Wieck, M.C. Hübner, S. Stufler, A. Zrenner, and G.H. Döhler. Electroluminescence of single-dot nano-LEDs – optical spectroscopy of an electrically tunable few-electron/hole system. *Physica E*, 26:110–114, 2005.
- [6] A. Zrenner, P. Ester, S. Michaelis de Vasconcellos, M. C. Hübner, L. Lackmann, S. Stufler, and M. Bichler. Coherent optoelectronics with single quantum dots. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 20(45):454210 (6pp), 2008.
- [7] A. Zrenner, S. Stufler, P. Ester, S. Michaelis de Vasconcellos, M. Hübner, and M. Bichler. Recent developments in single dot coherent devices. *Phys. Status Solidi B*, 243(14):3696–3708, 2006.

Literaturverzeichnis

- [Ale03] B. ALEN, F. BICKEL, K. KARRAI, R. J. Warburton und P. M. PETROFF. Stark-shift modulation absorption spectroscopy of single quantum dots. *Appl. Phys. Lett.*, **83**(11):2235–2237 (2003).
- [All75] L. ALLEN und J. H. EBERLY. *Optical Resonance and Two Level Atoms*. Wiley, New York (1975).
- [Ara82] Y. ARAKAWA und H. SAKAKI. Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current. *Appl. Phys. Lett.*, **40**(11):939–941 (1982).
- [Bay98] M. BAYER, S. N. WALCK, T. L. REINECKE und A. FORCHEL. Exciton binding energies and diamagnetic shifts in semiconductor quantum wires and quantum dots. *Phys. Rev. B*, **57**(11):6584–6591 (1998).
- [Bay99] M. BAYER, A. KUTHER, A. FORCHEL, A. GORBUNOV, V. B. TIMOFEEV, F. SCHAFER, J. P. REITHMAIER, T. L. REINECKE und S. N. WALCK. Electron and Hole g Factors and Exchange Interaction from Studies of the Exciton Fine Structure in $\text{In}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}\text{As}$ Quantum Dots. *Phys. Rev. Lett.*, **82**(8):1748–1751 (1999).
- [Bay02] M. BAYER und A. FORCHEL. Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in $\text{In}_{0.6}\text{Ga}_{0.4}\text{As}/\text{GaAs}$ self-assembled quantum dots. *Phys. Rev. B*, **65**(4):041308 (2002).
- [Beh03] E. BEHAM. *Photostromspektroskopie an einzelnen Quantenpunkten*. Dissertation, TU München (2003).
- [Ben00] O. BENSON, C. SANTORI, M. PELTON und Y. YAMAMOTO. Regulated and entangled photons from a single quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, **84**(11):2513–2516 (2000).
- [Bes01] L. BESOMBES, K. KHENG, L. MARSAL und H. MARIETTE. Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission. *Phys. Rev. B*, **63**(15):155307 (Mar 2001).

- [Bes03] L. BESOMBES, J. J. BAUMBERG und J. MOTOHISA. Coherent spectroscopy of optically gated charged single InGaAs quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, **90**(25):257402 (2003).
- [Bes05] G. BESTER und A. ZUNGER. Cylindrically shaped zinc-blende semiconductor quantum dots do not have cylindrical symmetry: Atomistic symmetry, atomic relaxation, and piezoelectric effects. *Phys. Rev. B*, **71**(4):045318 (2005).
- [Bet44] H. A. BETHE. Theory of Diffraction by Small Holes. *Phys. Rev.*, **66**:163–182 (1944).
- [Bim99] D. BIMBERG, M. GRUNDMANN und N. N. LEDENTSOV. *Quantum Dot Heterostructures*. Wiley, Chichester [u.a.] (1999).
- [Bor01] P. BORRI, W. LANGBEIN, S. SCHNEIDER, U. WOGGON, R. L. SELLIN, D. OUYANG und D. BIMBERG. Ultralong dephasing time in InGaAs quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, **87**(15):157401 (2001).
- [Bor02] P. BORRI, W. LANGBEIN, S. SCHNEIDER, U. WOGGON, R. L. SELLIN, D. OUYANG und D. BIMBERG. Rabi oscillations in the excitonic ground-state transition of InGaAs quantum dots. *Phys. Rev. B*, **66**(8):081306 (2002).
- [Bor05] P. BORRI, W. LANGBEIN, U. WOGGON, V. STAVARACHE, D. REUTER und A. D. WIECK. Exciton dephasing via phonon interactions in InAs quantum dots: Dependence on quantum confinement. *Phys. Rev. B*, **71**(11):115328 (2005).
- [Bou50] C. J. BOUWKAMP. On Bethe's Theory of Diffraction by Small Holes. *Philips Res. Rep.*, **5**:321–332 (1950).
- [Bri07] E. BRION, K. MOLMER und M. SAFFMAN. Quantum computing with collective ensembles of multilevel systems. *Phys. Rev. Lett.*, **99**(26):260501 (2007).
- [Bru94] K. BRUNNER, G. ABSTREITER, G. BOHM, G. TRANKLE und G. WEIMANN. Sharp-line photoluminescence and two-photon absorption of zero-dimensional biexcitons in a GaAs/AlGaAs structure. *Phys. Rev. Lett.*, **73**(8):1138–1141 (1994).
- [Bry05] G. W. BRYANT und G. S. SOLOMON. *Optics of Quantum Dots and Wires*. Artech House Publishers (2005).

- [Cha00] W.-H. CHANG, T. M. HSU, C. C. HUANG, S. L. HSU, C. Y. LAI, N. T. YEH, T. E. NEE und J.-I. CHYI. Photocurrent studies of the carrier escape process from InAs self-assembled quantum dots. *Phys. Rev. B*, **62**(11):6959–6962 (2000).
- [Cha04] S. CHANG, M. ZHOU und C. GROVER. Information coding and retrieving using fluorescent semiconductor nanocrystals for object identification. *Opt. Express*, **12**(1):143–148 (2004).
- [Che01] P. CHEN, C. PIERMAROCCHI und L. J. SHAM. Control of exciton dynamics in nanodots for quantum operations. *Phys. Rev. Lett.*, **87**(6):067401 (2001).
- [Dem93] W. DEMTRÖDER. *Laserspektroskopie*. Springer-Verlag, Berlin, 3 Auflage (1993).
- [Est06] P. ESTER, S. STUFLER, S. MICHAELIS DE VASCONCELLOS, M. BICHLER und A. ZRENNER. High resolution photocurrent-spectroscopy of a single quantum dot. *Phys. Status Solidi C* (2006).
- [Est08] P. ESTER. *Coherent properties of single quantum dot states and single photon emission*. Dissertation, Universität Paderborn (2008).
- [Fey65] R. FEYNMAN, R. LEIGHTON und M. SANDS. *The Feynman Lectures on Physics, Vol. III: Quantum mechanics*. Addison-Wesley Publishing Co., Reading, U.S.A. (1965).
- [Fin00a] F. FINDEIS, A. ZRENNER, G. BÖHM und G. ABSTREITER. Optical spectroscopy on a single InGaAs/GaAs quantum dot in the few-exciton limit. *Solid State Commun*, **114**:227–230 (2000).
- [Fin00b] F. FINDEIS, A. ZRENNER, G. BÖHM und G. ABSTREITER. Phonon-assisted biexciton generation in a single quantum dot. *Physical Review B*, **61**(16):R10579–R10582 (2000).
- [Fin01a] F. FINDEIS. *Optical Spectroscopy on Single Self-assembled Quantum Dots*. Dissertation, TU München (2001).
- [Fin01b] F. FINDEIS, M. BAIER, A. ZRENNER, M. BICHLER, G. ABSTREITER, U. HOHENESTER und E. MOLINARI. Optical excitations of a self-assembled artificial ion. *Phys. Rev. B*, **63**(12):121309 (2001).

Literaturverzeichnis

- [Fli04] T. FLISSIKOWSKI, A. BETKE, I. A. AKIMOV und F. HENNEBERGER. Two-photon coherent control of a single quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, **92**(22):227401 (2004).
- [Fry00a] P. W. FRY, J. J. FINLEY, L. R. WILSON, A. LEMAITRE, D. J. MOWBRAY, M. S. SKOLNICK, M. HOPKINSON, G. HILL und J. C. CLARK. Electric-field-dependent carrier capture and escape in self-assembled InAs/GaAs quantum dots. *Appl. Phys. Lett.*, **77**(26):4344–4346 (2000).
- [Fry00b] 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. *Phys. Rev. Lett.*, **84**(4):733–736 (2000).
- [Gal05] E. J. GALVEZ, C. H. HOLBROW, M. J. PYSHER, J. W. MARTIN, N. COURTEMANCHE, L. HEILIG und J. SPENCER. Interference with correlated photons: Five quantum mechanics experiments for undergraduates. *American Journal of Physics*, **73**(2):127–140 (2005).
- [Gam96] D. GAMMON, E. S. SNOW, B. V. SHANABROOK, D. S. KATZER und D. PARK. Fine structure splitting in the optical spectra of single GaAs quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, **76**(16):3005–3008 (1996).
- [Ger05] C. GERRY und P. KNIGHT. *Introductory Quantum Optics*. Cambridge University Press, Cambridge (2005).
- [Gia91] P. GIANNOZZI, S. DE GIRONCOLI, P. PAVONE und S. BARONI. Ab initio calculation of phonon dispersions in semiconductors. *Phys. Rev. B*, **43**(9):7231–7242 (Mar 1991).
- [Gin99] F. GINDELE, U. WOGGON, W. LANGBEIN, J. M. HVAM, K. LEONARDI, D. HOMMEL und H. SELKE. Excitons, biexcitons, and phonons in ultrathin CdSe/ZnSe quantum structures. *Phys. Rev. B*, **60**(12):8773–8782 (1999).
- [GM31] M. GÖPPERT-MAYER. Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen. *Annalen der Physik*, **401**(3):273–294 (1931).

- [Gro08] A. GRODECKA und J. FÖRSTNER. Zero-phonon line (ZPL) broadening - literature review (April 2008). Persönliche Mitteilungen/-Literaturrecherche.
- [Han05] R. HANSON, L. H. W. VAN BEVEREN, I. T. VINK, J. M. ELZERMAN, W. J. M. NABER, F. H. L. KOPPENS, L. P. KOUWENHOVEN und L. M. K. VANDERSYPEN. Single-shot readout of electron spin states in a quantum dot using spin-dependent tunnel rates. *Phys. Rev. Lett.*, **94**(19):196802 (2005).
- [He02] G. S. HE, P. P. MARKOWICZ, T.-C. LIN und P. N. PRASAD. Observation of stimulated emission by direct three-photon excitation. *Nature*, **415**(6873):767–770 (Februar 2002). ISSN 0028-0836.
- [Hog04] A. HOGELE, S. SEIDL, M. KRONER, K. KARRAI, R. J. WARBURTON, B. D. GERARDOT und P. M. PETROFF. Voltage-controlled optics of a quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, **93**(21):217401 (2004).
- [Hol02] C. H. HOLBROW, E. GALVEZ und M. E. PARKS. Photon quantum mechanics and beam splitters. *American Journal of Physics*, **70**(3):260–265 (2002).
- [Hto02] H. HTOON, T. TAKAGAHARA, D. KULIK, O. BAKLENOV, A. L. HOLMES, JR. und C. K. SHIH. Interplay of Rabi oscillations and quantum interference in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, **88**(8):087401 (2002).
- [Int07] INTEL. Processors on an Intel 45nm Hafnium-based High-k Metal Gate “Penryn“ Wafer photographed with a toothpick. Webseite der Firma Intel (2007). <http://www.intel.com>.
- [Kai61] W. KAISER und C. G. B. GARRETT. Two-Photon Excitation in $\text{CaF}_2: \text{Eu}^{2+}$. *Phys. Rev. Lett.*, **7**(6):229–231 (Sep 1961).
- [Kam01] H. KAMADA, H. GOTOH, J. TEMMYO, T. TAKAGAHARA und H. ANDO. Exciton Rabi Oscillation in a Single Quantum Dot. *Phys. Rev. Lett.*, **87**(24):246401 (2001).
- [Kar94] M. V. KARACHEVTSEVA, A. S. IGNAT’EV, V. G. MOKEROV, G. Z. NEMTSEV, V. A. STRAKHOV und N. G. YAREMENKO. Temperature dependence of the photoluminescence of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ quantum-well structures. *Semiconductors*, **28**:691–694 (Juli 1994).

- [Kir05] S. KIRAVITTAYA, A. RASTELLI und O. G. SCHMIDT. Self-assembled InAs quantum dots on patterned GaAs(001) substrates: Formation and shape evolution. *Applied Physics Letters*, **87**(24):243112 (2005).
- [Kon08] A. KONGKANAND, K. TVRDY, K. TAKECHI, M. KUNO und P. KAMAT. Quantum Dot Solar Cells. Tuning Photoresponse through Size and Shape Control of CdSe-TiO₂ Architecture. *J. Am. Chem. Soc.* (2008). ISSN 0002-7863.
- [Kow05] K. KOWALIK, O. KREBS, A. LEMAITRE, S. LAURENT, P. SENELLART, P. VOISIN und J. A. GAJ. Influence of an in-plane electric field on exciton fine structure in InAs-GaAs self-assembled quantum dots. *Appl. Phys. Lett.*, **86**(4):041907 (2005).
- [Krü05] A. KRÜGEL, V. M. AXT, T. KUHN, P. MACHNIKOWSKI und A. VAGOV. The role of acoustic phonons for Rabi oscillations in semiconductor quantum dots. *Appl. Phys. B: Lasers Opt.*, **81**:897–904 (November 2005).
- [Kru02] B. KRUMMHEUER, V. M. AXT und T. KUHN. Theory of pure dephasing and the resulting absorption line shape in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B*, **65**(19):195313 (May 2002).
- [Lac07] L. LACKMANN. *Kohärente Spektroskopie an einzelnen Quantenpunkten*. Diplomarbeit, Universität Paderborn (September 2007).
- [Lan04a] W. LANGBEIN, P. BORRI, U. WOGGON, V. STAVARACHE, D. REUTER und A. D. WIECK. Control of fine-structure splitting and biexciton binding in In_xGa_{1-x}As quantum dots by annealing. *Phys. Rev. B*, **69**(16):161301 (2004).
- [Lan04b] W. LANGBEIN, P. BORRI, U. WOGGON, V. STAVARACHE, D. REUTER und A. D. WIECK. Radiatively limited dephasing in InAs quantum dots. *Phys. Rev. B*, **70**(3):033301 (2004).
- [Li03] X. LI, Y. WU, D. STEEL, D. GAMMON, T. H. STIEVATER, D. S. KATZER, D. PARK, C. PIERMAROCCHI und L. J. SHAM. An All-Optical Quantum Gate in a Semiconductor Quantum Dot. *Science*, **301**:809 (2003).
- [Lid04] D. S. LIDKE, P. NAGY, R. HEINTZMANN, D. J. ARNDT-JOVIN, J. N. POST, H. E. GRECCO, E. A. JARES-ERIJMAN und T. M. JOVIN. Quan-

- tum dot ligands provide new insights into erbB/HER receptor-mediated signal transduction. *Nat. Biotechnol.*, **22**(2):198–203 (Feb 2004).
- [Mac06] P. MACHNIKOWSKI. Change of decoherence scenario and appearance of localization due to reservoir anharmonicity. *Physical Review Letters*, **96**(14):140405 (2006).
- [ME82] S. MAKRAM-EBEID und M. LANNOO. Quantum model for phonon-assisted tunnel ionization of deep levels in a semiconductor. *Phys. Rev. B*, **25**(10):6406–6424 (May 1982).
- [Meh07] M. MEHTA, D. REUTER, A. MELNIKOV, A. D. WIECK und A. REMHOF. Focused ion beam implantation induced site-selective growth of InAs quantum dots. *Applied Physics Letters*, **91**(12):123108 (2007).
- [Mes66] A. MESSIAH. *Quantum Mechanics*. North-Holland, Amsterdam (1966).
- [Mey91] P. MEYSTRE und M. SARGENT. *Elements of Quantum Optics*. Springer-Verlag, Berlin, 2 Auflage (1991).
- [Moo65] G. E. MOORE. Cramming more components onto integrated circuits. *Electronics*, **38**(8) (April 1965).
- [Mul04a] E. A. MULJAROV und R. ZIMMERMANN. Dephasing in quantum dots: Quadratic coupling to acoustic phonons. *Phys. Rev. Lett.*, **93**(23):237401 (Nov 2004).
- [Mul04b] A. MULLER, Q. Q. WANG, P. BIANUCCI, C. K. SHIH und Q. K. XUE. Determination of anisotropic dipole moments in self-assembled quantum dots using Rabi oscillations. *Appl. Phys. Lett.*, **84**(6):981–983 (2004).
- [Mul07] E. A. MULJAROV und R. ZIMMERMANN. Exciton dephasing in quantum dots due to lo-phonon coupling: An exactly solvable model. *Physical Review Letters*, **98**(18):187401 (2007).
- [Ost06] A. OSTENDORF und B. CHICHKOV. Two-photon polymerization: a new approach to micromachining. *Photonics Spectra*, **40**(10):72–80 (Oct 2006).

Literaturverzeichnis

- [Ota98] K. OTA, N. USAMI und Y. SHIRAKI. Temperature dependence of microscopic photoluminescence spectra of quantum dots and quantum wells. *Physica E Low-Dimensional Systems and Nanostructures*, **2**:573–577 (Juli 1998).
- [Pat00] A. PATANE, A. LEVIN, A. POLIMENI, L. EAVES, P. C. MAIN, M. HENINI und G. HILL. Carrier thermalization within a disordered ensemble of self-assembled quantum dots. *Phys. Rev. B*, **62**(16):11084–11088 (2000).
- [Pat05] B. PATTON, W. LANGBEIN und U. WOGGON. Transient four-wave mixing of single exciton states: Exciton-exciton interaction and Rabi oscillations. *AIP Conference Proceedings*, **772**(1):1232–1233 (2005).
- [Pau91] S. PAUL, J. B. ROY und P. K. BASU. Empirical expressions for the alloy composition and temperature dependence of the band gap and intrinsic carrier density in $\text{Ga}_x\text{In}_{1-x}\text{As}$. *J. Appl. Phys.*, **69**(2):827–829 (1991).
- [Pie02] C. PIERMAROCCHI, P. CHEN, Y. S. DALE und L. J. SHAM. Theory of fast quantum control of exciton dynamics in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B*, **65**(7):075307 (2002).
- [Pon79] D. PONS und S. MAKRAM-EBEID. Phonon assisted tunnel emission of electrons from deep levels in GaAs. *Journal de Physique*, **40**(12):1161–1172 (1979).
- [Rab36] I. I. RABI. On the process of space quantization. *Phys. Rev.*, **49**(4):324–328 (Feb 1936).
- [Rab37] I. I. RABI. Space quantization in a gyrating magnetic field. *Phys. Rev.*, **51**(8):652–654 (Apr 1937).
- [Ram90] N. F. RAMSEY. Experiments with separated oscillatory fields and hydrogen masers. *Rev. Mod. Phys.*, **62**(3):541–552 (1990).
- [Ras07] A. RASTELLI, A. ULHAQ, S. KIRAVITTAYA, L. WANG, A. ZRENNER und O. G. SCHMIDT. In situ laser microprocessing of single self-assembled quantum dots and optical microcavities. *Applied Physics Letters*, **90**(7):073120 (2007).

- [San02] C. SANTORI, D. FATTAL, M. PELTON, G. S. SOLOMON und Y. YAMAMOTO. Polarization-correlated photon pairs from a single quantum dot. *Phys. Rev. B*, **66**(4):045308 (2002).
- [Sch05] S. SCHULZ. *Kapazitäts- und Kapazitätstransientenspektroskopie an selbstorganisiert gewachsenen InAs-Quantenpunkten*. Dissertation, Universität Hamburg (2005).
- [Sch06] H. SCHUMACHER. Bandstruktur GaAs. Wikipedia (2006). http://de.wikipedia.org/w/index.php?title=Bild:Bandstruktur_GaAs.png&oldid=38235999.
- [Sti01] T. H. STIEVATER, X. LI, D. G. STEEL, D. GAMMON, D. S. KATZER, D. PARK, C. PIERMAROCCHI und L. J. SHAM. Rabi oscillations of excitons in single quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, **87**(13):133603 (2001).
- [Str] I. N. STRANSKI und L. KRASTANOW. Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von Ionenkristallen aufeinander. Sitzungsberichte der Akademie der Wissenschaften in Wien, Mathematisch-naturwissenschaftliche Klasse Abteilung Iib 146 (1-10), 797 (1937).
- [Stu05] S. STUFLER. *Kohärente optische Eigenschaften einzelner Halbleiter-Quantenpunkte*. Dissertation, Universität Paderborn (2005).
- [Stu06] S. STUFLER, P. MACHNIKOWSKI, P. ESTER, M. BICHLER, V. M. AXT, T. KUHN und A. ZRENNER. Two-photon Rabi oscillations in a single $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ quantum dot. *Phys. Rev. B*, **73**(12):125304 (2006).
- [Tro00] F. TROIANI, U. HOHENESTER und E. MOLINARI. Exploiting exciton-exciton interactions in semiconductor quantum dots for quantum-information processing. *Phys. Rev. B*, **62**(4):R2263–R2266 (2000).
- [Tsi97] E. TSIPER, P. WANG, J. MERZ, A. EFROS, S. FAFARD, D. LEONARD und P. PETROFF. Anomalous magnetophotoluminescence as a result of level repulsion in arrays of quantum dots. *Solid State Communication*, **104**:391–395 (1997).
- [Uno05] T. UNOLD, K. MUELLER, C. LIENAU, T. ELSAESSER und A. D. WIECK. Optical control of excitons in a pair of quantum

- dots coupled by the dipole-dipole interaction. *Phys. Rev. Lett.*, **94**(13):137404 (2005).
- [Usk00] A. V. USKOV, A.-P. JAUHO, B. TROMBORG, J. MØRK und R. LANG. Dephasing times in quantum dots due to elastic lo phonon-carrier collisions. *Phys. Rev. Lett.*, **85**(7):1516–1519 (Aug 2000).
- [Vag02] A. VAGOV, V. M. AXT und T. KUHN. Electron-phonon dynamics in optically excited quantum dots: Exact solution for multiple ultrashort laser pulses. *Phys. Rev. B*, **66**(16):165312 (Oct 2002).
- [Vag03] A. VAGOV, V. M. AXT und T. KUHN. Impact of pure dephasing on the nonlinear optical response of single quantum dots and dot ensembles. *Phys. Rev. B*, **67**(11):115338 (Mar 2003).
- [Wan05] Q. Q. WANG, A. MULLER, P. BIANUCCI, E. ROSSI, Q. K. XUE, T. TAKAGAHARA, C. PIERMAROCCHI, A. H. MACDONALD und C. K. SHIH. Decoherence processes during optical manipulation of excitonic qubits in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. B*, **72**(3):035306 (2005).
- [Wei95] C. WEISSMANTEL. *Grundlagen der Festkörperphysik*. Johann Ambrosius Barth Verlag, Heidelberg, Leipzig, 4 Auflage (1995).
- [Whe07] R. WHEELER. Kristallstruktur des Hämoglobins. Wikipedia (2007). http://upload.wikimedia.org/wikipedia/commons/3/3d/1GZX_Haemoglobin.png.
- [Wog97] U. WOGGON. *Optical properties of semiconductor quantum dots*. Springer-Verlag, Berlin (1997).
- [Woj96] A. WOJS, P. HAWRYLAK, S. FAFARD und L. JACAK. Electronic structure and magneto-optics of self-assembled quantum dots. *Phys. Rev. B*, **54**(8):5604–5608 (Aug 1996).
- [You07] T. YOUNG. *Lectures on Natural Philosophy*, Band I. Johnson, London (1807).
- [You05] R. J. YOUNG, R. M. STEVENSON, A. J. SHIELDS, P. ATKINSON, K. COOPER, D. A. RITCHIE, K. M. GROOM, A. I. TARTAKOVSKII und M. S. SKOLNICK. Inversion of exciton level splitting in quantum dots. *Phys. Rev. B*, **72**(11):113305 (2005).

- [Zre94] A. ZRENNER, L. V. BUTOV, M. HAGN, G. ABSTREITER, G. BOHM und G. WEIMANN. Quantum dots formed by interface fluctuations in AlAs/GaAs coupled quantum well structures. *Phys. Rev. Lett.*, **72**(21):3382–3385 (1994).
- [Zre02] 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).

Danksagung

Meiner Familie gebührt an erster Stelle ein besonders großer Dank für ihre Geduld, Liebe und Unterstützung während der Anfertigung dieser Arbeit.

Darüber hinaus möchte ich an dieser Stelle ganz bewusst auf die weitere namentliche Nennung und streng gereichte Aufführung derjenigen Personen verzichten, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Davon möge sich bitte niemand zurückgesetzt fühlen, vielmehr gab es so viele unterschiedliche, manchmal kleine, manchmal auch größere Beiträge zu meiner Arbeit während der letzten Jahre, dass ich gar nicht alle Beteiligten einzeln aufzählen kann und wegen der Gefahr, jemanden dabei ungewollt zu übersehen, auch nicht möchte.

Mein Dank gilt also allen, die mich privat, beruflich und fachlich beraten, mir geholfen, mir wenn nötig auf die Füße getreten oder mich sonstwie positiv beeinflusst haben.

AND NOW
FOR SOMETHING
COMPLETELY DIFFERENT.

Monty Python

