

Kohärente optische Eigenschaften einzelner Halbleiter-Quantenpunkte

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

vorgelegte

Dissertation

von

Stefan Stufler

Paderborn, November 2005

Zusammenfassung

Kohärente optische Manipulationen einzelner Halbleiter-Quantenpunkte gewinnen zunehmend an Bedeutung, nicht nur aus Sicht der Grundlagenforschung sondern auch mit Blick auf mögliche Anwendungen in festkörperbasierter Quanten-Informationsverarbeitung. Als Grundlage zahlreicher Experimente dient dabei das theoretische Modell eines Zwei-Niveau-Systems, welches hier konkret durch An- bzw. Abwesenheit eines einzelnen Exzitons im Grundzustand eines InGaAs/GaAs-Quantenpunkts definiert ist.

Übergänge zwischen den beiden Niveaus werden durch resonante optische Anregung induziert. Da die Quantenpunkte in eine Diodenstruktur integriert sind, kann die Detektion elektrisch über Messung des Photostroms erfolgen. Dieser Detektionsmechanismus ist nicht nur sehr empfindlich sondern erlaubt unter gewissen Bedingungen auch eine quantitative Messung des Besetzungszustands. Darüber hinaus können die Energieniveaus des Quantenpunkts aufgrund des Stark-Effekts durch Variation einer extern angelegten Spannung sehr präzise gegenüber einer festen Laserenergie abgestimmt werden. Der Ein-Exziton-Übergang erscheint dabei im Photostrom als extrem schmale Resonanz von nur wenigen μeV Breite.

Im Fall von kontinuierlicher, resonanter Anregung zeigt die Besetzungswahrscheinlichkeit des oberen Niveaus bei hohen Intensitäten ein charakteristisches Sättigungsverhalten. Als direkte Folge dieser Sättigung wird, in exakter Übereinstimmung mit der theoretischen Erwartung, eine Verbreiterung der Absorptionslinie beobachtet. Durch die vorgestellten Messungen wird einerseits die theoretische Beschreibung des Quantenpunkts als Zwei-Niveau-System experimentell bestätigt, andererseits können grundlegende Systemparameter wie Tunnelzeiten und Feinstrukturaufspaltung bestimmt werden.

Zur Untersuchung kohärenter Wechselwirkungen zwischen Quantenpunkt und Lichtfeld erfolgt die Anregung mit ps-Laserpulsen, also auf Zeitskalen deutlich kürzer als die Dephasierungszeit. Das grundlegende Experiment in diesem Zusammenhang ist die Beobachtung von Rabi-Oszillationen, mit denen jeder beliebige Überlagerungszustand der beiden Niveaus gezielt eingestellt werden kann. In dieser Arbeit wurden erstmals an einem Halbleitersy-

stem Rabi-Oszillationen mit geringer Dämpfung bis zu einer Pulsfläche von fast 9π nachgewiesen.

In Hinblick auf Quanten-Computing besonders interessant sind Quanten-Interferenzexperimente. Dabei wird zunächst durch einen ersten Puls eine Überlagerung der beiden möglichen Zustände erzeugt, deren kohärente Entwicklung dann mit Hilfe eines zweiten Pulses abgefragt werden kann. In Abhängigkeit von der Verzögerungszeit des zweiten Pulses beobachtet man einen exponentiellen Abfall der Interferenzamplitude entsprechend der Dephasierungszeit des Systems. Je nach Polarisierung der Anregung ist diese exponentielle Abhängigkeit noch mit einer Schwebung aufgrund der Feinstrukturaufspaltung des Exzitons moduliert. Trotz eines Unterschieds von mindestens fünf Größenordnungen in der Anregungsleistung stimmen alle Ergebnisse aus kohärenten, gepulsten Messungen quantitativ mit den zuvor im stationären Grenzfall bestimmten Systemparametern überein. Insbesondere kann die Dephasierungszeit über die Probenspannung variiert werden und erreicht Werte bis zu einigen hundert Pikosekunden.

Die phasensensitive Messung in Doppelpuls-Experimenten ist äußerst empfindlich gegenüber einer Verstimmung zwischen Laser und Quantenpunkt-Resonanz. Bei Variation der Quantenpunktenergie über den Stark-Effekt beobachtet man Ramsey-Interferenzen, deren Periode umso schmaler wird, je größer der Zeitabstand zwischen den beiden Pulsen ist, im Extremfall sogar schmaler als die natürliche Linienbreite des Übergangs. Bei Anregung mit zeitlich überlappenden Pulsen kann darüber hinaus schon eine Abweichung zwischen Quantenpunkt- und Laserenergie von nur wenigen Prozent der spektralen Breite der Anregungspulse nachgewiesen werden.

Der gebundene Zustand aus zwei Exzitonen in einem Quantenpunkt (Biexziton) kann über einen resonanten, kohärenten Zwei-Photon-Prozess kontrolliert werden. Im Gegensatz zur konventionellen kohärenten Entwicklung eines Zwei-Niveau-Systems zeigt die Rabi-Oszillation des Biexzitons eine komplexere Abhängigkeit nicht nur von der Laserleistung sondern auch von der genauen Form der Pulse. Experimentelle Ergebnisse werden durch eine theoretische Rechnung gut beschrieben, welche einzig auf grundlegenden Systemparametern basiert. Die Dephasierungszeit des Biexzitons liegt im selben Bereich wie die des einzelnen Exzitons.

Insgesamt bietet die Verwendung eines elektrisch kontaktierten Quantensystems nicht nur wichtige experimentelle Vorteile, sondern könnte in Zukunft auch eine Verbindung zwischen klassischer Halbleitertechnologie und neuartigen, kohärenten Bauelementen im Bereich der Quanten-Informationsverarbeitung darstellen.

Abstract

Coherent optical manipulations of semiconductor quantum dots (QDs) are currently receiving a lot of attention, not only for their fundamental interest but also in view of possible applications in quantum information technology. For a large number of experiments, a QD can be described as a two level system, defined by the presence (upper state) or absence (lower state) of a single exciton. Transitions between these two levels are induced via resonant optical excitation.

In the present work, the QDs are incorporated in a diode structure so that the internal electrical field of the device can be controlled via a bias voltage. This allows for very sensitive and, under certain conditions, quantitative electrical detection of the QD occupancy via the photocurrent. In addition, the QD energy levels can be varied very precisely via Stark-shift tuning. The single exciton transition is observed in the photocurrent as an extremely narrow resonance with a linewidth of only a few μeV .

In the case of cw-excitation, the QD occupancy exhibits a characteristic saturation behavior at high excitation power. This saturation is accompanied by a broadening of the homogeneous linewidth in exact quantitative accordance to theoretical predictions. We thereby verify the theoretical description of the QD as a two-level system. Furthermore, important system parameters like tunneling times and an energy splitting of different polarization states are determined with high precision.

For coherent investigations of the quantum dot we apply picosecond laser pulses. The optical excitation then is considerably faster than the dephasing time of the system. The fundamental experiment in this context is the observation of Rabi oscillations, demonstrating the ability to prepare arbitrary coherent superpositions of the two QD states. In the present work we present weakly damped Rabi oscillations up to pulse areas of almost 9π , previously not attainable in semiconductor systems.

Double pulse experiments are used to gain information on the phase of coherent excitations. In these experiments the time evolution of a superposition state, generated by a first pulse, is detected via the interaction with

a second pulse at a well defined delay time. The amplitude of interference fringes exhibits an exponential decay which is used to infer the dephasing time of the QD system. In our device we are able to vary the tunneling rate and therefore the dephasing time via the bias voltage. Coherence times of several hundred picoseconds are reached at low bias voltage. In addition to the exponential decay, the interference amplitude is usually modulated by quantum beats originating from the asymmetry splitting of the QD. The quantum beats can be fully suppressed, though, by applying an appropriate polarization of the excitation light. All fundamental system parameters determined in cw experiments are quantitatively reproduced in the coherent (pulsed) measurements, even though the excitation power typically differs by at least five orders of magnitude.

Based on quantum interference effects we are able to obtain an extremely high sensitivity on the relative detuning of the QD transition with respect to the laser energy. At excitation with double pulses, a variation of the QD resonance via the Stark effect results in Ramsey fringes. The spectral width of the fringes decreases directly proportional to the temporal pulse separation and can get even smaller than the homogeneous linewidth of the transition. In addition, under certain measurement conditions with overlapping pulses, we are able to detect deviations from exact resonance of only a few percent of the laser linewidth.

Coherent control experiments on the biexciton are performed via resonant two-photon excitation. In contrast to single exciton Rabi oscillations the measured population oscillation of the biexciton is not purely sinusoidal in excitation pulse area. The experimental results are well reproduced by a theoretical calculation which relies only on the pulse shape and the biexciton binding energy. Dephasing times of the biexciton state are similar to those of the single exciton, under the applied measurement conditions reaching up to 220 ps.

In conclusion, by placing an InGaAs QD in a diode structure we obtain a single quantum system with electrical contacts. Voltage-based control and electrical detection not only open up a whole range of new possibilities for quantum optical experiments but also might provide a link between classical semiconductor technology and novel, coherent devices in the field of quantum information technology.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	5
1.1	Halbleiter-Quantenpunkte	5
1.2	Quanten-Informationsverarbeitung	6
1.3	Inhalt dieser Arbeit	8
2	Grundlegendes zu Quantenpunkten	11
2.1	Arten von Quantenpunkten	11
2.2	Strukturelle Eigenschaften	12
2.3	Optische und elektronische Eigenschaften	14
2.3.1	Einteilchenbild	14
2.3.2	Mehrteilchen-Wechselwirkungen	16
2.3.3	Feinstrukturaufspaltung	19
2.3.4	Stark-Effekt	20
2.4	Messmethoden	21
2.4.1	Photo- und Elektrolumineszenz	21
2.4.2	Anregungs-Photolumineszenz (PLE)	23
2.4.3	Photostrom	23
3	Experimenteller Aufbau	25
3.1	Laser	25
3.1.1	HeNe-Laser	25
3.1.2	Ti:Saphir-Laser	25
3.1.3	Pulsanalyse	27
3.2	Optischer Aufbau	29
3.2.1	Anregungsseite	29
3.2.2	Tiefemperatur-Probenstab	31
3.2.3	Detektion	34
3.3	Elektrische Messung	35

4	Proben	37
4.1	Einzel-Quantenpunkt-Photodioden	38
4.1.1	Aufbau	38
4.1.2	Optische Eigenschaften	40
4.2	Nano-LEDs	45
4.3	GaAs/AlGaAs-Quantenpunkte	47
4.3.1	Herstellung	48
4.3.2	Optische Eigenschaften	49
5	Theorie: Optik an Zwei-Niveau-Systemen	55
5.1	Einführung	55
5.1.1	Zwei-Niveau-Systeme	55
5.1.2	Wechselwirkung mit dem Strahlungsfeld	56
5.2	Lebensdauer und Dephasierung	57
5.3	Sättigungsphänomene	59
5.3.1	Sättigung	59
5.3.2	Power broadening	61
5.4	Rabi-Oszillationen	62
5.4.1	Blochkugel	62
5.4.2	Resonante Anregung	63
5.4.3	Verstimmte Anregung	64
5.5	Mehrfachpulse und Ramsey-Interferenzen	65
6	cw-Messungen	69
6.1	Messmethode und Auflösungsvermögen	69
6.2	Sättigungsspektroskopie	71
6.2.1	Sättigung	71
6.2.2	Power broadening	73
6.2.3	Experimentelle Details	75
6.3	Feinstrukturaufspaltung	77
7	Rabi-Oszillationen	81
7.1	Resonante Messung	81
7.2	Leistungsabhängige Dämpfung	85
7.3	Einfluss von Verstimmung	86
8	Quanten-Interferenz-Experimente	91
8.1	Dephasierungszeiten	91
8.2	Quantum Beats	94
8.3	Vergleich zu cw-Messungen	95
8.3.1	Feinstrukturaufspaltung	95

8.3.2	Dephasierungszeiten	96
8.3.3	Loch-Tunneln	97
8.3.4	Oszillatorstärke	98
8.4	Ramsey-Interferenzen	100
8.5	Überlappende Pulse	104
8.6	Experimente mit 4 bis 6 Pulsen	111
9	Biexziton Rabi-Oszillationen	115
9.1	Grundlagen und Motivation	115
9.2	Theorie	116
9.3	Experimentelle Ergebnisse	123
9.4	Dephasierungszeiten	125
10	Ausblick	129
	Symbole und Abkürzungen	133
	Literaturverzeichnis	137
	Publikationsliste	147
	Danksagung	149

Kapitel 1

Einleitung

1.1 Halbleiter-Quantenpunkte

Die rasante Entwicklung in der Halbleitertechnologie führte in den vergangenen Jahren zu immer kleineren Strukturgrößen. Dabei behält das viel zitierte Moorsche Gesetz, wonach typische Strukturgrößen alle 18 Monate um die Hälfte kleiner werden, nun schon seit Jahrzehnten eine erstaunlich genaue Gültigkeit. Nachdem in der Vergangenheit wiederholt ein Ende dieser Entwicklung vorhergesagt und anschließend widerlegt wurde, wird nun eine ultimative, physikalische Grenze aufgrund von Quanten-Effekten prognostiziert. Die heutige Rechnertechnologie beruht ausschließlich auf klassischer Physik, d.h. an jedem Schaltvorgang sind viele Elektronen beteiligt, die als eine kontinuierliche Ladungsverteilung angesehen werden. Die Tatsache, dass jeder elektrische Strom aus einzelnen Elementarladungen besteht, die Ladungsträger auch Welleneigenschaften besitzen und dünne Barrieren durch Tunneln überwinden können, wird dabei weitgehend vernachlässigt. Mit fortschreitender Verringerung der Strukturgröße (derzeit typischerweise 50 nm) gewinnen diese Quanten-Eigenschaften jedoch immer größere Bedeutung und werden damit in der klassischen Halbleitertechnologie im Allgemeinen als Hindernis aufgefasst (siehe z.B. [57]).

Vor diesem Hintergrund hat sich das Interesse wissenschaftlicher Forschung zunehmend auf niedrig-dimensionale Halbleiterstrukturen konzentriert, d.h. Strukturen, in denen in mindestens einer Raumdimension quantenmechanische Längenskalen erreicht werden. Im einfachsten Fall sind dies zweidimensionale Strukturen, so genannte Quantenfilme (engl.: *quantum wells*), die schon bald nach ihrer Entwicklung den Weg zu alltäglicher Anwendung fanden. Quantum-Well-Laser werden heute in vielen Heimgeräten wie CD-Spielern oder Laserdruckern eingesetzt und dienen ebenso als Sender

zur optischen Datenübertragung. Durch eine vollständige Einschränkung von Strukturgrößen in allen drei Raumrichtung, also durch Entwicklung „nulldimensionaler“ Quantenpunkte, erhofft man sich einerseits weitere Verbesserungen von Bauelementeigenschaften, z.B. besonders niedrige Schwellströme in Quantenpunktlasern [50, 66]. Andererseits sind diese Systeme auch aus Sicht der Grundlagenforschung besonders interessant, da eine vollständige Quantisierung in allen drei Dimensionen zur Ausbildung diskreter Energieniveaus führt. Man erhält dadurch quantenmechanische Modellsysteme ähnlich einzelnen Atomen, wobei jedoch in diesen künstlich definierten Halbleiterstrukturen grundlegende Parameter gezielt über die Herstellung kontrolliert werden können. Nach umfangreichen Untersuchungen zu strukturellen und spektralen Eigenschaften rücken nun zunehmend kohärente Manipulationen an Quantenpunkten ins Zentrum des Interesses, bei denen nicht nur die Energiequantisierung sondern auch die Phase der Wellenfunktionen von Bedeutung ist. Die Ausnutzung kohärenter Eigenschaften wird heute intensiv als Ausgangspunkt einer möglichen zukünftigen Quanten-Informationstechnologie diskutiert.

1.2 Quanten-Informationsverarbeitung

Die Quanten-Informationsverarbeitung ist ein Oberbegriff für eine Reihe von Techniken, in denen jeweils grundlegend quantenmechanische, klassisch nicht beschreibbare Effekte für neuartige Bauelemente ausgenutzt werden sollen. Die Verbindung bisher hauptsächlich theoretisch diskutierter Vorhersagen der Quantenmechanik mit einer Anwendung gerade in dem Technologiebereich, der in den letzten Jahrzehnten wie kein anderer Einzug ins tägliche Leben erfahren hat, fasziniert dabei Forscher aus unterschiedlichsten Bereichen der Physik.

Der einfachste und bezüglich erster Anwendungen fortgeschrittenste Teilbereich ist die Quanten-Kryptographie. Diese beruht darauf, dass Quantenzustände nicht exakt kopiert werden können und damit das Abhören einer Datenübermittlung mit einzelnen Quantenteilchen (hier Photonen) in jedem Fall festgestellt werden kann. Dies erlaubt die absolut sichere Übertragung von Schlüsseln und damit letztlich auch von entsprechend verschlüsselten Daten. Erste Geräte für die Quantenkryptographie sind mittlerweile schon kommerziell erhältlich¹. Die Bereitstellung einzelner Photonen geschieht in diesen Geräten allerdings durch Abschwächung von Lasern, sodass das gleich-

¹MagiQ Technologies: <http://www.magiqtech.com/>
id-Quantique: <http://www.idquantique.com>
Toshiba: <http://www.toshiba-europe.com/research/crl/QIG/quantumcryptography.html>

zeitige Auftreten mehrerer Photonen aus rein statistischen Gründen weitgehend unterdrückt ist. Die Datenübertragung könnte verbessert werden durch Verwendung von einzelnen Quantensystemen als Emitter, die grundsätzlich nicht mehrere Photonen gleichzeitig aussenden können.

Ein quantenmechanischer Effekt, der in der kryptographischen Datenübermittlung zusätzliche prinzipielle Vorteile bringt [12, 33], ist die so genannte Verschränkung zweier Zustände. Dieser Effekt wurde lange Zeit hauptsächlich aus theoretischer Sicht kontrovers diskutiert, da er der „natürlichen Anschauung“ scheinbar völlig widerspricht. Das bekannteste Beispiel dieser Diskussion ist die Formulierung des Einstein-Podolsky-Rosen- (EPR-)Paradoxons, welches schließlich 1964 mathematisch in Form der Bellschen Ungleichung ausgedrückt wurde [11]. Im Zuge neuer Entwicklungen im Bereich der Lasertechnologie konnte erst vor wenigen Jahren nachgewiesen werden, dass die in den 20er und 30er Jahren aufgestellten Vorhersagen der Quantentheorie tatsächlich auch experimentell Gültigkeit behalten. Heute nutzt man verschränkte Photonen oder so genannte EPR-Paare als Grundlage für eine Technik, die unter dem Begriff Quanten-Teleportation bekannt wurde [25, 41].

Die vermutlich anspruchvollste Anwendung, basierend auf einer Verschränkung vieler Zustände, stellt der so genannte Quantencomputer dar. Analog zur klassischen digitalen Datenverarbeitung, in der ein einzelnes Bit den Wert 0 oder 1 besitzen kann, bilden quantenmechanische Zwei-Niveau-Systeme oder Qubits die kleinsten Einheiten eines Quantencomputers. Das Besondere eines Qubits besteht nun darin, dass es nicht entweder den Wert 0 oder 1 annehmen muss, sondern beide Werte gleichzeitig besitzen kann, in Form einer kohärenten Superposition der „reinen“ Zustände. In einem typischen Quanten-Algorithmus wird zunächst mittels einer Hadamard-Transformation eine Überlagerung aller möglichen Zustände erzeugt. Diese werden im Folgenden im Hauptteil des Algorithmus alle parallel verarbeitet und dann durch eine weitere Hadamard-Transformation auf einen reinen Ergebnis-Zustand projiziert. Aufgrund der parallelen Verarbeitung ergibt sich für eine bestimmte Klasse von Problemen ein grundlegender Vorteil für einen Quantencomputer gegenüber einem klassischen Rechner. Dieser äußert sich vor allem darin, dass die Rechenzeit bei einer Vergrößerung des entsprechenden Problems bei einem Quantencomputer erheblich langsamer ansteigt als bei einem klassischen Rechner, was letztlich in einer um Größenordnungen kürzeren Bearbeitungszeit resultieren kann. Andererseits stellt ein Quantencomputer, da er aus vielen kohärent gekoppelten Quantensystemen bestehen müsste, selbst eine äußerst komplexe Herausforderung für die wissenschaftliche Forschung dar. Derzeit wird in zahlreichen unterschiedlichen Bereichen der Physik an möglichen Grundlagen für einen Quantencomputer geforscht. Dabei ist heute noch nicht abzusehen, welcher der teils völlig unterschiedli-

chen Ansätze sich möglicherweise einmal durchsetzen wird. Bisher am weitesten fortgeschritten sind NMR-basierte Quantencomputer, bei denen 2001 der Shor-Algorithmus auf einem 7-Qubit-System demonstriert werden konnte [87]. Eine Erweiterung auf hunderte oder gar tausende Qubits scheint aber gerade mit diesem Ansatz besonders schwer. Einen guten Überblick über das gesamte Gebiet der Quanten-Informationsverarbeitung findet man in [1, 26].

1.3 Inhalt dieser Arbeit

Ziel dieser Arbeit ist es, die kohärenten Eigenschaften einzelner Quantenpunkte zu untersuchen. Dazu werden zahlreiche grundlegende Experimente der Quantenoptik, die bisher hauptsächlich aus der Atomoptik bekannt waren, auf Halbleiterproben übertragen. Am Ende der jeweiligen Kapitel und in der Zusammenfassung der Arbeit wird ein Ausblick auf die mögliche Relevanz der Ergebnisse in Hinblick auf die Quanten-Informationstechnologie gegeben.

Der größte Teil der Arbeit bezieht sich auf die Untersuchung eines einzelnen Halbleiter-Quantenpunkts, welcher in eine Diodenstruktur integriert ist. Die Verwendung von Festkörperstrukturen bietet dabei gegenüber einzelnen Atomen den Vorteil, dass wichtige Eigenschaften in der Herstellung gezielt beeinflusst werden können und fertige Proben erheblich einfacher zu handhaben sind². Eine weitere, im Vergleich zu anderen Quantensystemen einzigartige Eigenschaft der hier untersuchten Quantenpunkte, besteht in der elektrischen Kontaktierung mit Hilfe der Diodenstruktur. Diese bietet einerseits die Möglichkeit sehr präziser, quantitativer und gleichzeitig technisch einfacher elektrischer Detektion. Andererseits können über die angelegte Spannung wichtige Systemparameter wie Resonanzenergie und Tunnelzeit kontrolliert werden. Da die vorliegende Arbeit die erste umfassende Behandlung kohärenter Untersuchungen eines elektrisch kontaktierten Quantensystems bildet, werden in der Diskussion von Ergebnissen die damit verbundenen Kontrollmöglichkeiten besonders hervorgehoben.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich in folgende Bereiche:

In Kapitel 2 werden einige grundlegende Eigenschaften von Quantenpunkten vorgestellt, hauptsächlich bezüglich deren niedrigster Ein- und

²Für quantenoptische Experimente müssen einzelne Atome zunächst mittels Laserkühlung auf Temperaturen knapp über dem absoluten Nullpunkt abgekühlt werden. Zudem sind sie nicht fest in ein Matrixmaterial eingebaut sondern müssen mit Hilfe aufwendiger magneto-optischer Fallen an einem festen Ort gehalten werden.

Mehrteilchenzustände. Ebenso werden die wichtigsten Messmethoden vorgestellt und diskutiert, welche Eigenschaften der Quantenpunkte damit untersucht werden können.

In Kapitel 3 wird der grundlegende Versuchsaufbau zur orts aufgelösten Spektroskopie vorgestellt.

In Kapitel 4 werden die unterschiedlichen, im Rahmen dieser Doktorarbeit untersuchten Proben typen vorgestellt und deren grundlegende optische Eigenschaften anhand von Lumineszenzmessungen diskutiert. Sämtliche weiterführende Messungen (Kapitel 6 ff.) wurden dabei an den in Kapitel 4.1 vorgestellten Photodioden durchgeführt. Die in Kapitel 4.2 und 4.3 diskutierten Proben stellen die Grundlage für mögliche zukünftige Entwicklungen dar.

In Kapitel 5 wird das theoretische Konzept eines Zwei-Niveau-Systems eingeführt und dessen kohärente Entwicklung unter optischer Anregung mit Hilfe der Blochkugel dargestellt. Alle später diskutierten, experimentellen Ergebnisse können zumindest qualitativ sehr gut anhand dieses abstrakten Modells beschrieben werden.

In Kapitel 6 werden die Ergebnisse zu kontinuierlicher optischer Anregung des Quantenpunkts diskutiert. In Übereinstimmung mit den theoretischen Erwartungen beobachtet man eine Sättigung der Besetzungswahrscheinlichkeit bei hoher Anregungsintensität in Verbindung mit einer Verbreiterung der Absorptionslinie. Aus der Auswertung der Daten erhält man grundlegende Systemparameter wie die Tunnelzeiten unterschiedlicher Ladungsträger und die Feinstrukturaufspaltung orthogonaler Polarisationszustände.

In Kapitel 7 wird die grundlegende, kohärente Wechselwirkung des Quantenpunkts mit dem Lichtfeld in Form von Rabi-Oszillationen des 1-Exziton-Übergangs untersucht.

In Kapitel 8 findet sich eine Erweiterung kohärenter Experimente auf Anregung mit mehreren Pulsen. In einer ersten Serie von Experimenten werden die Auswirkungen von Dephasierung und Feinstrukturaufspaltung detektiert und mit den Ergebnissen aus Kapitel 6 verglichen. Danach werden die Experimente auf verstimmte Anregung erweitert, was so genannte Ramsey-Interferenzen zur Folge hat. Am Ende des Kapitels wird ein Ausblick auf komplexere Anregungsbedingungen gegeben.

In Kapitel 9 wird die kohärente Manipulation des Biexzitons über einen Zwei-Photon-Prozess diskutiert. Da dieser Fall über das Konzept eines Zwei-Niveau-Systems hinausgeht, erfolgt zunächst eine theoretische Behandlung des Problems. Aus einem Vergleich der experimentellen Daten mit theoretischen Berechnungen erhält man ein genaues Bild über die Zusammenhänge zwischen der kohärenten Entwicklung der 1-Exziton-Niveaus und des Biexzitons.

In Kapitel 10 werden die experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit in Zusammenhang mit möglichen zukünftigen Entwicklungen im Bereich der Quanten-Informationstechnologie gebracht und ein Ausblick auf weitere, bisher hauptsächlich theoretisch diskutierte Konzepte gegeben.

Kapitel 2

Grundlegendes zu Quantenpunkten

2.1 Arten von Quantenpunkten

Das wesentliche Merkmal aller Quantenpunkte (engl.: *quantum dots* - QDs) ist ein dreidimensionales Einschlusspotenzial, welches zur Ausbildung diskreter Energieniveaus führt. Da es verschiedenste Möglichkeiten gibt, dieses Einschlusspotenzial zu definieren, kennt man heute auch unterschiedlichste Formen von Quantenpunkten. Ein häufig verwendetes System für Transportmessungen wird beispielsweise über ein zweidimensionales Elektronengas (2DEG) mit geeigneten Gate-Strukturen definiert (siehe z.B. [45]). Als meistverwendetes System für optische Untersuchungen haben sich mittlerweile selbstorganisierte Quantenpunkte etabliert, da diese mit sehr geringer Defektdichte hergestellt werden können. Verschiedene Materialsysteme unterscheiden sich dabei im Wesentlichen in ihrer Bandlücke und damit den relevanten Energieskalen der Quantenpunkte. In den folgenden Kapiteln sollen hauptsächlich selbstorganisierte InAs- bzw. InGaAs-Quantenpunkte in GaAs Matrixmaterial diskutiert werden. Einen Sonderfall bilden die in Kapitel 4.3 diskutierten Quantenpunkte, bei denen die strukturellen Eigenschaften von InAs-Quantenpunkten auf das GaAs/AlGaAs Materialsystem übertragen werden. Ebenfalls erwähnt werden sollen so genannte Interface-Quantenpunkte, welche sich durch Monolagenfluktuationen in dünnen GaAs/AlGaAs-Quantenfilmen bilden [94]. Hier werden Exzitonen in Bereichen eines Quantenfilms lokalisiert, welche zufällig etwas dicker sind als ihre Umgebung. Dies führt zu Quantenpunkten mit relativ großer lateraler Ausdehnung und schwachem Einschlusspotenzial. Aufgrund großer Übergangsmatrixelemente lassen sich diese Quantenpunkte besonders gut mit rein

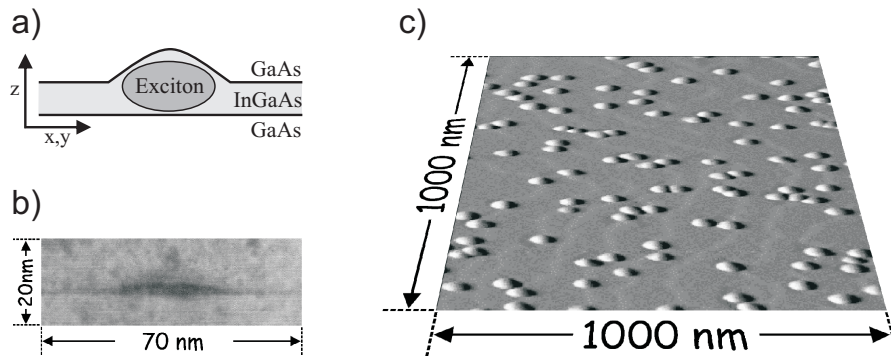


Abbildung 2.1: Struktureller Aufbau von Quantenpunktproben: a) Schematische Darstellung b) TEM-Aufnahme c) AFM-Aufnahme einer Oberfläche mit Quantenpunkten

optischen Methoden untersuchen. Im Bereich kohärenter Experimente sind hier vor allem die Arbeiten der Gruppe Gammon/Steel zu beachten (siehe z.B. [56]).

2.2 Strukturelle Eigenschaften

Selbstorganisierte InAs/GaAs-Quantenpunkte werden meist mit Hilfe der Molekularstrahl-Epitaxie (engl.: *molecular beam epitaxy* - MBE) hergestellt. Beim epitaktischen Wachstum übernimmt das abgeschiedene Material die Gitterstruktur des Substratmaterials. In einer MBE-Anlage können dabei Schichten mit atomarer Genauigkeit hergestellt werden. Scheidet man nun InAs auf GaAs ab, so bildet sich zunächst eine ebene Benetzungsschicht (engl.: *wetting layer* - WL). Aufgrund der größeren Gitterkonstante von InAs gegenüber GaAs baut sich in dieser Benetzungsschicht aber eine zunehmende Verspannung auf, welche ab einer Schichtdicke von knapp zwei Monolagen über die Bildung von InAs Inseln abgebaut wird. Diese Inseln werden dann wieder mit GaAs überwachsen, sodass sich die in Abbildung 2.1a) schematisch dargestellte Schichtfolge ergibt. Da InAs eine kleinere Bandlücke als das umgebende GaAs-Matrixmaterial besitzt, können Ladungsträger in diesen InAs-Inseln eingeschlossen werden, z.B. wie in Abbildung 2.1a) dargestellt ein einzelnes Exziton.

InAs-Quantenpunkte können nahezu defektfrei hergestellt werden, wodurch sie für optische Untersuchungen besonders gut geeignet sind. Die laterale Ausdehnung dieser Quantenpunkte liegt im Bereich von wenigen 10 nm, die vertikale Höhe bei typischerweise 5 - 8 nm. Da sich die Inseln spontan

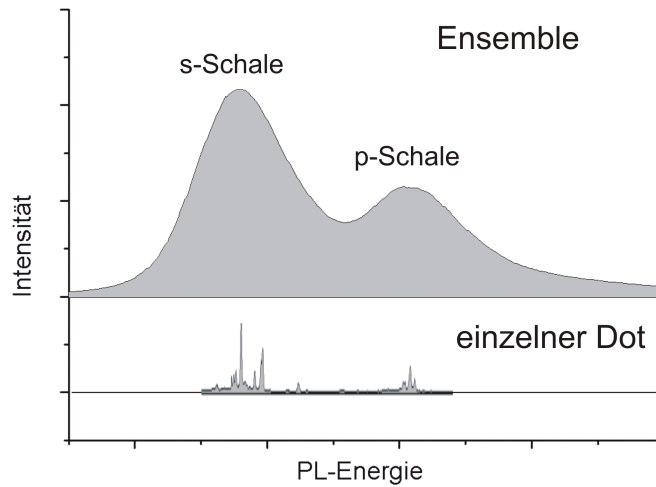


Abbildung 2.2: Vergleich der PL eines Ensembles von QDs (oben) mit der eines einzelnen QDs (unten). Das Ensemble ist aufgrund von statistischen Fluktuationen der Größe der Quantenpunkte stark inhomogen verbreitert.

selbst bilden, ist ihre Position ebenso wie ihre Größe statistischen Schwankungen unterworfen. Sowohl die Quantenpunktdichte als auch ihre Größenverteilung kann über die Wachstumsbedingungen nur indirekt beeinflusst werden. Da Unterschiede in der Form 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 ausschließlich Proben geringer Dichte mit etwa 1 bis 10 QDs pro μm^2 verwendet. In Verbindung mit geeignetem Probedesign (siehe Kapitel 4) und einem hochauflösenden optischen Aufbau (siehe Kapitel 3.2) gelingt damit die Selektion einzelner QDs.

Die Übergangsenergie des Grundzustands eines InAs-Quantenpunkts liegt typischerweise bei 1,1 eV entsprechend einer Wellenlänge von etwa 1100 nm. Sowohl von Seiten der Anregung (durchstimmbarer Ti:Saphir-Laser) als auch der Detektion (Si-Detektoren) sind die derzeit leistungsfähigsten Systeme auf einen etwas höheren Energiebereich beschränkt. Man versucht daher die Grundzustandsenergie der Quantenpunkte durch Beimischung von Gallium auf den Bereich über 1,25 eV bzw. unter 1000 nm zu verschieben. Dies kann zum einen direkt beim Wachstum durch Abscheidung von InGaAs statt InAs geschehen. Zum anderen können auch InAs-QDs nachträglich durch Tempern mit Gallium aus dem Matrixmaterial interdiffundiert werden. Diese In-

terdiffusion kann alternativ auch durch geeignete Wachstumsschritte schon in der MBE-Anlage herbeigeführt werden. Entsprechend der unterschiedlichen Möglichkeiten der Herstellung gibt es diverse verschiedene Formen von InGaAs-Quantenpunkten sowohl in Bezug auf deren räumliche Form als auch auf die Verteilung des Verhältnisses von Indium- zu Galliumgehalt. Dies führt zwar zu Unterschieden in den Zahlenwerten experimenteller Ergebnisse, alle für diese Arbeit wichtigen qualitativen Eigenschaften bleiben davon aber unberührt.

2.3 Optische und elektronische Eigenschaften

Eine theoretische Berechnung der Energieniveaus eines Quantenpunkts rein aus dessen strukturellen Eigenschaften ist aus mehreren Gründen nur sehr schwer möglich. Zum einen sind meist weder die Form des Quantenpunkts noch die Verteilung der Indiumkonzentration mit hinreichender Genauigkeit bekannt. Zum anderen muss zusätzlich auch die Verspannung und die damit verbundene Bandverbiegung berücksichtigt werden. Glücklicherweise hat sich allerdings gezeigt, dass für die Beschreibung vieler grundlegender Eigenschaften auch vereinfachte, zum Teil sogar analytisch berechenbare Modelle hinreichend genaue Ergebnisse liefern. Im Folgenden soll daher von einem möglichst einfachen Modell ausgegangen werden, welches nur dort erweitert wird, wo dies zur Beschreibung der Experimente notwendig ist. Eine umfassendere Behandlung des Gebiets findet man inzwischen in mehreren Lehrbüchern, z.B. [17, 28, 91]. Die Dissertation [34] bietet darüber hinaus einen guten Überblick über Ein- und Mehrteilchenzuständen speziell der in dieser Arbeit verwendeten Proben (InGaAs-Quantenpunkte). Einige der Abbildungen dieses Kapitels stammen ebenfalls aus [34].

2.3.1 Einteilchenbild

Sowohl GaAs als auch InAs sind direkte Halbleiter, da das Leitungsbandminimum und das Valenzbandmaximum beide im Γ -Punkt (Zentrum) der Brillouinzone liegen. Das Leitungsband ist dabei s-artig, das Valenzband p-artig. Dadurch sind die energetisch niedrigsten Übergänge optisch erlaubt, weshalb sich das gesamte InAs/GaAs/AlGaAs¹-Materialsystem für optische Bauelemente besonders gut eignet. Im Gegensatz zum Leitungsband ist das Valenzband aufgrund seines p-Charakters entartet und man erhält schwere und leichte Löcher. Da die Quantisierungsenergie eines lokalisierten Teilchens

¹Die fundamentale Bandlücke von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ wird ab einem Al-Gehalt von $x > 45\%$ indirekt.

umgekehrt proportional zu dessen Masse skaliert, sind für die niedrigsten Energieniveaus eines QDs allerdings nur die schweren Löcher relevant. Bei In(Ga)As-QDs handelt es sich zudem um so genannte Typ-I Quantenpunkte, welche sowohl für Elektronen als auch für Löcher ein Potenzialminimum darstellen. Im Einteilchenbild können daher Elektronen und Löcher analog beschrieben werden.

Im einfachsten theoretischen Modell eines QDs wird für das Einschlusspotenzial in lateraler Richtung ein symmetrischer harmonischer Oszillator angenommen. In z -Richtung wird nur das unterste, s-artige Energieniveau berücksichtigt, da hier die Quantisierungsenergien aufgrund der geringeren Abmessungen erheblich höher sind als in x - und y -Richtung. Das Niveauschema eines zweidimensionalen harmonischen Oszillators² ergibt sich zu $E_{nm} = \hbar\omega_0 (n + m + 1)$. Die Zustände werden dabei analog zur Atomphysik ihrem Bahndrehimpuls $l = m - n = 0, 1, 2, \dots$ entsprechend als s-, p-, d-, ... Schale klassifiziert. Die Hauptquantenzahl $N = n + m$ liefert in dieser Näherung äquidistante Energieniveaus. Unter Berücksichtigung der beiden möglichen Spineinstellungen erhält man insgesamt eine Entartung von $2(N + 1)$.

Die bekannte Auswahlregel $\Delta l = \pm 1$ für optische Übergänge wird im Halbleiter schon durch den p-Charakter der Blochwellen im Leitungsband gegenüber den s-artigen Blochwellen im Valenzband erfüllt. Die Quantenpunktorbitale bilden dabei die Einhüllende über die gitterperiodischen Blochwellen. *Interband*übergänge sind daher nur zwischen QD-Zuständen mit gleichem Bahndrehimpuls erlaubt, konkret gilt die Auswahlregel $\Delta m = \Delta n = 0$.

Zusätzlich muss für optische Übergänge noch der Spin berücksichtigt werden. Betrachtet man jeweils nur das unterste Niveau des Quantenpunkts, so ergeben sich für das Elektron die beiden Spineinstellungen $S_z = \pm 1/2$ und für das schwere Loch $J_z = \pm 3/2$. J bezeichnet dabei den Gesamtdrehimpuls, welcher sich aus der Kopplung von Spin und Bahndrehimpuls ergibt. Insgesamt erhält man die vier in Abbildung 2.3 dargestellten Übergänge. Aus dem Übergang $\pm 3/2 \rightarrow \mp 1/2$ resultiert ein Gesamtspin von ± 1 der durch ein σ^\pm zirkular polarisiertes Photon übertragen werden kann. Die Übergänge $\pm 3/2 \rightarrow \pm 1/2$ ergeben einen Gesamtspin von ± 2 und sind damit keine optisch erlaubten Übergänge.

²Die Schrödingergleichung eines zweidimensionalen harmonischen Oszillator lässt sich in die zweier eindimensionaler Oszillatoren separieren, deren Quantenzahlen hier mit n und m bezeichnet werden.

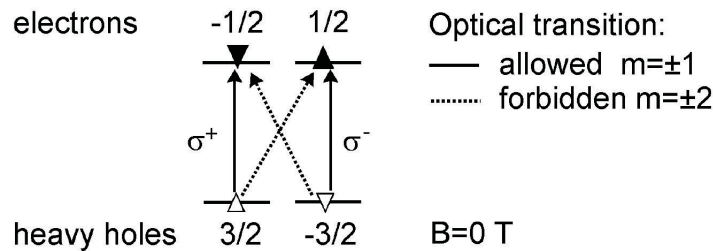


Abbildung 2.3: Spin-Einstellungen und mögliche Übergänge in der s-Schale eines Quantenpunkts. Nur die beiden senkrecht eingezeichneten Übergänge sind optisch erlaubt.

2.3.2 Mehrteilchen-Wechselwirkungen

Exziton

Der einfachste Fall eines Mehrteilchenzustands ergibt sich bei Besetzung des Quantenpunkts mit jeweils einem Elektron und Loch, d.h. einem einzelnen Exziton (im Folgenden auch mit $1X$ abgekürzt). Die Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektron und Loch führt bereits im Volumenhalbleiter zu einer Energieerniedrigung und damit zu einem gebundenen Zustand. Im Quantenpunkt ist die Coulomb-Wechselwirkung durch die stärkere Lokalisierung der Wellenfunktionen noch zusätzlich um etwa einen Faktor 5 erhöht [7]. 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 Photostrommessungen 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.

Geladenes Exziton

Als nächstes soll der Fall eines einfach geladenen Exzitons, d.h. eines Exzitons in Anwesenheit eines zusätzlichen Elektrons ($1X^-$) oder Lochs ($1X^+$), betrachtet werden. Für eine exakte Berechnung der entsprechenden Energieniveaus muss hier neben der Coulomb-Wechselwirkung auch die Austausch-

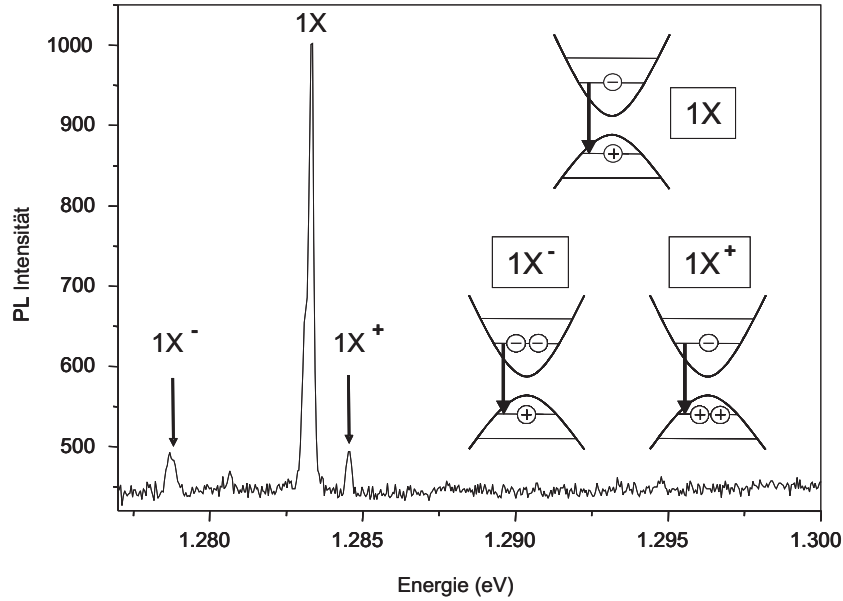


Abbildung 2.4: Neutrales und geladene Exzitonen im PL-Spektrum eines einzelnen Quantenpunkts. Alle Besetzungszustände des QDs sind aufgrund von Vielteilchen-Wechselwirkungen energetisch klar getrennt.

und Korrelationsenergie berücksichtigt werden. Die genannten Wechselwirkungen werden in jedem Fall zu einer Renormalisierung der Exziton-Bindungsenergie führen, wobei aber Vorzeichen und Stärke dieser Energieverschiebung nicht von vorneherein klar sind. Theoretische Berechnungen wie auch experimentelle Ergebnisse zeigen bei den hier verwendeten InGaAs-Quantenpunkten eine Erniedrigung der Übergangsenergie für einfach negativ geladene Exzitonen um etwa 5 meV [34,35]. Das einfach positiv geladene $1X^+$ liegt dagegen etwas über der Energie des neutralen Exzitons [34].

Biexziton

Ähnlich wie die Anwesenheit eines einzelnen zusätzlichen Ladungsträgers führt auch die Besetzung mit einem zusätzlichen Exziton zu einer Renormalisierung der Energieniveaus, in den meisten Materialsystemen zu einer Energieerniedrigung ΔE_B . Der dadurch erzeugte Komplex aus zwei miteinander wechselwirkenden Exzitonen wird Biexziton ($2X$) genannt. Für die strahlende Rekombination ergeben sich je nach Spineinstellung insgesamt vier Möglichkeiten (vgl. Abbildung 2.3), von denen allerdings nur zwei gemäß der optischen Auswahlregeln erlaubt sind. Der komplette strahlende Zerfall eines Biexzitons liefert dabei zwei Photonen unterschiedlicher Energie, ent-

sprechend der Rekombination erst eines Exzitons aus dem 2X-Zustand und danach des verbliebenen Exzitons 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. Dabei werden zwei gleichartige Photonen absorbiert, deren Energie jeweils um $\Delta E_B/2$ zur 1X-Resonanz erniedrigt ist. Dieser nichtlineare Effekt skaliert mit der Laserleistung zum Quadrat und ist daher nur bei hohen Intensitäten möglich. Neben der Selektivität in der Wellenlänge ergeben sich zusätzliche Auswahlregeln durch die Polarisation. Zumindest für einen vollkommen symmetrischen Quantenpunkt sind die beiden optisch erlaubten 1X-Übergänge zirkular polarisiert. Da linear polarisiertes Licht als Überlagerung zweier zirkular polarisierter Wellen dargestellt 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 es nur erzeugt werden kann, wenn auch in der Anregung beide Polarisationsrichtungen vertreten sind [27, 54]. Eine genauere theoretische Beschreibung der kohärenten Wechselwirkung des Biexzitons mit intensiven Laserpulsen findet sich in Kapitel 9.

Höhere Schalen

Der energetische Abstand zwischen s-, p- und d-Schale ist im Allgemeinen wesentlich größer als die oben diskutierten Renormalisierungsenergien innerhalb einer Schale. Bei den in dieser Arbeit vor allem verwendeten InGaAs-Quantenpunkten beträgt der Abstand von s- zu p-Niveaus typischerweise 20 meV (vgl. Abbildung 2.7). Die Relaxation von Ladungsträgern aus höheren Energieniveaus in den Grundzustand erfolgt meist deutlich schneller als die direkte optische Rekombination aus höheren Schalen. In Lumineszenzmessungen sind diese daher nur dann beobachtbar, wenn alle niedrigeren Zustände schon besetzt sind. Bei höheren Anregungsleistungen beobachtet man einerseits eine ganze Reihe von Linien aufgrund von Rekombination aus der p-Schale, andererseits erscheinen auch zusätzliche Strukturen im Bereich der s-Schale, welche sich durch die Renormalisierungsenergien bei Anwesenheit zusätzlicher Ladungsträger ergeben. In Absorptionsmessungen (PLE, Photostrom) detektiert man dagegen im Allgemeinen die optischen Übergänge im ansonsten leeren Quantenpunkt, also z.B. eine Resonanzlinie

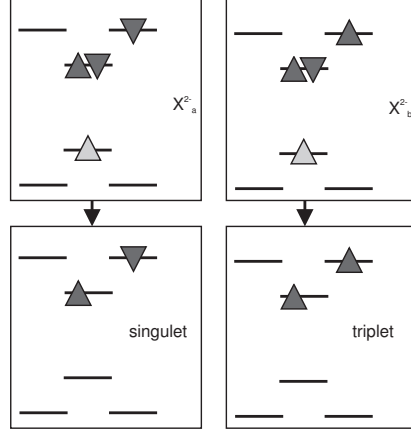


Abbildung 2.5: Das zweifach negativ geladene Exziton (X^{2-} , oben) erscheint im PL-Spektrum mit zwei Linien, da sich die Spinkonfigurationen im Endzustand (unten) energetisch unterscheiden.

der p-Schale ohne Anwesenheit zusätzlicher Exzitonen in der s-Schale.

Bei der Interpretation von Spektren ist zu beachten, dass die beobachteten Energien immer der Differenz zwischen Anfangs- und Endzustand entsprechen. Zur Veranschaulichung dieses Sachverhalts ist die Betrachtung des zweifach negativ geladenen Exzitons (X^{2-}) hilfreich. Geht man von einem Loch mit $J_z = +3/2$ und drei Elektronen aus, so ist nur die Rekombination mit dem $S_z = -1/2$ Elektron in der s-Schale optisch erlaubt. Dennoch beobachtet man zwei Linien unterschiedlicher Energie aufgrund der verschiedenen möglichen Spin-Konfigurationen des Endzustands (siehe Abbildung 2.5). Der Singulett-Zustand mit antiparallelen Spins liegt dabei energetisch etwa 4 meV tiefer als der entsprechende Triplet-Zustand [35]. Eine umfassende Übersicht über die verschiedenen Mehrteilchen-Zustände findet man in [46].

2.3.3 Feinstrukturaufspaltung

Nahezu alle selbstorganisierten Quantenpunkte zeigen eine leichte Asymmetrie zwischen der $[110]$ - und der $[1\bar{1}0]$ -Richtung. Aufgrund der Austauschwechselwirkung zwischen Elektron und Loch resultiert diese Asymmetrie in einer Aufspaltung der beiden optisch erlaubten Übergänge der s-Schale (senkrechte Pfeile in Abbildung 2.3). Diese Aufspaltung liegt meist im Bereich einiger zehn bis hundert μeV 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 [6, 42]. Im Rahmen dieser Arbeit wird diese

Tendenz zwar auch beobachtet, zumindest nominell sind die beiden 1X-Übergänge aber leicht elliptisch polarisiert (siehe Kapitel 6.3).

Eine genaue Berechnung der Feinstrukturaufspaltung ist äußerst 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 $[\bar{1}\bar{1}0]$ -Richtung zeigen, da die Zinkblendestruktur von III-V-Halbleiterkristallen ebenfalls nicht symmetrisch bezüglich dieser Richtungen ist [15].

2.3.4 Stark-Effekt

Als nächstes soll der Einfluss eines elektrischen Feldes \vec{E} in z -Richtung (Wachstumsrichtung) untersucht werden. Da die x - und y -Richtung des Quantenpunkts dabei in erster Näherung keine Rolle spielen, erfolgt die Beschreibung des Effekts analog zu einem Quantenfilm. Wie zu Anfang des Kapitels erläutert, wird hier auch weiterhin nur das unterste Quantisierungsniveau in z -Richtung betrachtet. In einem elektrischen Feld verschieben sich die Wellenfunktionen im Quantenpunkt etwa wie in Abbildung 2.6 skizziert. Dabei entsteht ein Dipolmoment $\vec{\mu}$ welches zu einer Reduzierung der Übergangsenergie um $\Delta E = -\vec{\mu} \cdot \vec{E}$ führt. Bei niedrigen elektrischen Feldern nimmt das Dipolmoment selbst in etwa proportional zur elektrischen Feldstärke zu und man erhält eine quadratische Erniedrigung der Übergangsenergie mit wachsendem \vec{E} -Feld. Bei hohen Feldern ist das Dipolmoment durch die Abmessung des Quantenpunkts auf einen festen Wert begrenzt und die quadratische Abhängigkeit geht in einen linearen Verlauf über.

Diese Beschreibung liefert nur eine grobe, allerdings qualitativ richtige Näherung des Stark-Effekts. Für eine genaue Beschreibung müsste zusätzlich eine Verringerung der Coulomb-Wechselwirkung aufgrund des im Mittel größeren Abstands zwischen Elektron und Loch sowie eine Änderung der Quantisierungsenergien berücksichtigt werden. Die feldabhängige Verringerung des Überlapps zwischen Elektron- und Lochwellenfunktion resultiert zudem in einer Abnahme des entsprechenden Übergangsmatrixelements.

Der Stark-Effekt bietet die Möglichkeit, die Übergangsenergien des Quantenpunkts mit Hilfe eines elektrischen Feldes abzustimmen. Der Bereich, innerhalb dessen die Energieniveaus variiert werden können, ist dabei zwar relativ klein, die Einstellgenauigkeit ist dafür aber nahezu beliebig hoch [48,80]. Bei den in Kapitel 6 beschriebenen Experimenten wird dieser Effekt benutzt, um Photostromspektren mit extrem hoher Auflösung zu erhalten.

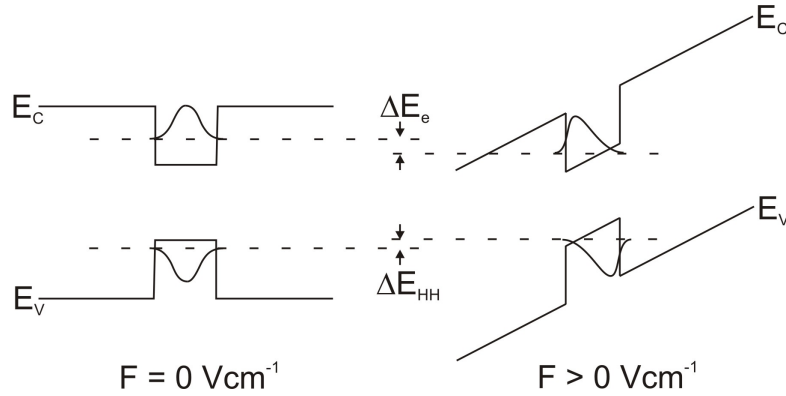


Abbildung 2.6: Ausrichtung der Wellenfunktionen im (eindimensionalen) quantenmechanischen Potenzialtopf bei Anlegen eines elektrischen Feldes. Die Energieerniedrigung der optischen Übergänge ist als Stark-Effekt bekannt.

2.4 Messmethoden

2.4.1 Photo- und Elektrolumineszenz

Photolumineszenz- (PL-)Messungen eignen sich besonders gut für eine erste Charakterisierung von Quantenpunktproben. 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. Je nach Anregungsleistung werden die Energieniveaus im Quantenpunkt sukzessive besetzt. Bei niedriger Leistung beobachtet man damit, im Fall eines ungeladenen Quantenpunkts, nur die 1-Exziton-Linie, bei steigender Leistung kommt dann die Biexziton-Linie sowie Rekombination aus höheren Schalen dazu (siehe Abbildung 2.7). Die relative Stärke unterschiedlicher Linien repräsentiert in diesen Messungen immer einen statistischen Mittelwert, welcher 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 [36].

Bei der Elektrolumineszenz (EL) werden Ladungsträger nicht optisch generiert, sondern aus elektrischen Kontakten der Probe injiziert. Man beob-

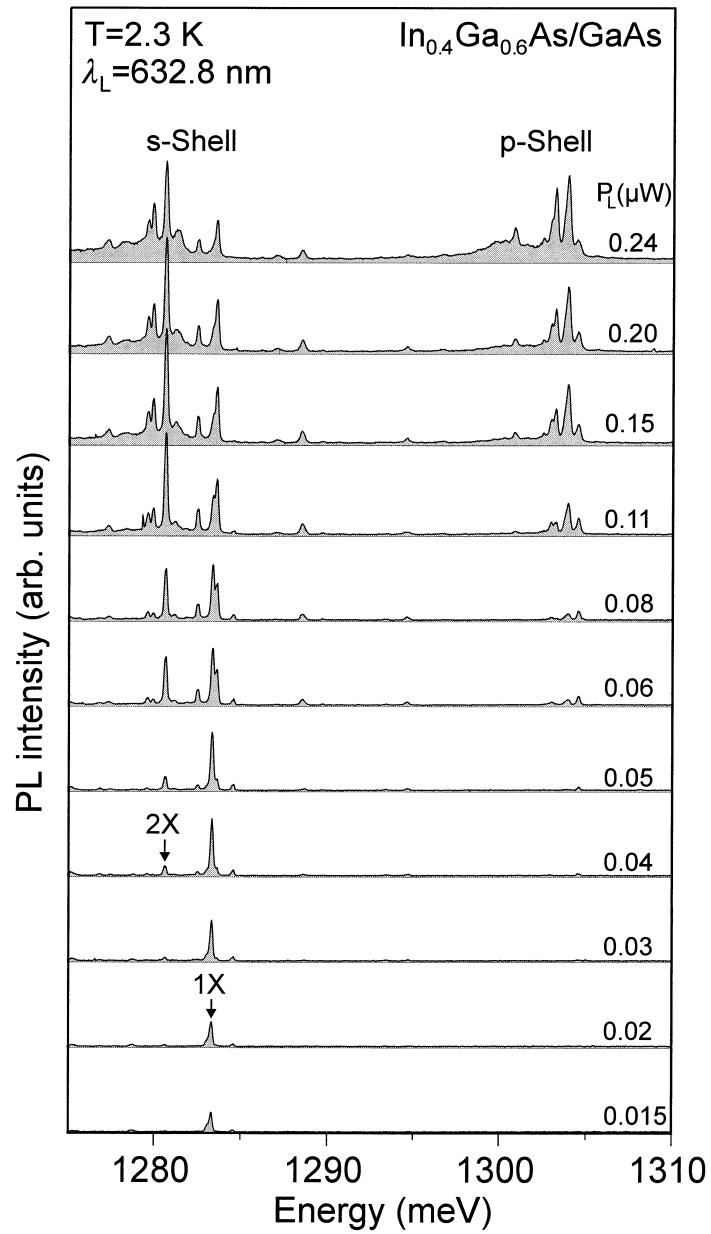


Abbildung 2.7: Leistungsabhängige PL-Spektren eines einzelnen Quantenpunkts. In der s-Schale sind die Linien des einzelnen Exzitons (1X) und des Biexzitons (2X) gekennzeichnet. Bei höheren Anregungsleistungen erscheinen zusätzlich Linien, die der p-Schale zugeordnet werden.

achtet sehr ähnliche Spektren wie in Photolumineszenz-Messungen, da die Ladungsträger ebenfalls nicht-resonant in das gesamte Volumen des Halbleiters injiziert werden. Eine Erhöhung der Anregungsleistung in der Photolumineszenz entspricht hier einer Erhöhung der Spannung an der Probe. Leistungs- und Feldabhängigkeit der Lumineszenz können bei daher in EL-Messungen nicht getrennt voneinander untersucht werden.

2.4.2 Anregungs-Photolumineszenz (PLE)

Bei der Anregungs-Photolumineszenz (engl.: *photoluminescence excitation* - PLE) wird die Lumineszenz des Grundzustands detektiert, während mittels eines durchstimmbaren Lasers der Bereich energetisch höher liegender QD-Zustände abgefahren wird. Stimmt die Laserwellenlänge mit einer Absorptionslinie des Quantenpunkts überein, so kann ein Exziton im entsprechenden QD-Zustand generiert werden. Dieses relaxiert anschließend im Allgemeinen nicht-strahlend in wenigen ps in den Grundzustand, von wo aus es strahlend rekombiniert. Das entsprechende Rekombinationslicht wird detektiert, wobei mit Hilfe eines Monochromators sichergestellt wird, dass kein Licht des Anregungslasers auf den Detektor fallen kann.

In einem PLE-Spektrum wird die Lumineszenz des Grundzustands in Abhängigkeit von der Wellenlänge des Anregungslasers aufgetragen. Man erhält damit eine spektral aufgelöste Absorptionsstärke des Quantenpunkts. Bei niedriger Anregungsintensität, d.h. wenn die mittlere Zeit zwischen zwei Absorptionsprozessen wesentlich größer ist als die strahlende Lebensdauer, ist die Stärke des PLE-Signals direkt proportional zur Oszillatorstärke der jeweiligen QD-Niveaus. Im Gegensatz zu PL-Messungen werden hier höhere Niveaus eines ansonsten unbesetzten Quantenpunkts untersucht. Bei der theoretischen Beschreibung entfallen daher Renormalisierungsenergien aufgrund von Vielteilchen-Wechselwirkungen. Da die Anregung bei PLE-Experimenten *resonant* erfolgt, kann die Wechselwirkung zwischen Quantenpunkt und Lichtfeld über die Theorie der Zwei-Niveau-Systeme beschrieben werden (siehe Kapitel 5).

2.4.3 Photostrom

Bei elektrisch kontaktierten Proben bietet sich zudem die Möglichkeit, Absorptionsprozesse über den Photostrom zu detektieren [8, 9, 29, 40, 64]. Die Anregung erfolgt dabei ebenfalls resonant, d.h. die spektrale Lage der QD-Niveaus wird über die Wellenlänge des Lasers ermittelt. An die Probe wird zusätzlich eine Spannung angelegt, sodass die optisch erzeugten Ladungsträger aus dem Quantenpunkt heraus tunneln können und einen Strom er-

zeugen. Je nach angelegter Spannung und damit internem elektrischen Feld kann die Tunnelzeit von < 1 ps 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 die Detektion bei Photostrommessungen elektrisch erfolgt, kann auch eine resonante optische Anregung des *Grundzustands* untersucht werden. Bei rein optischen Methoden ergeben sich hier Probleme hinsichtlich der Unterscheidung zwischen Anregungs- und Detektionslicht³.

Da im elektrischen Stromkreis alle Ladungsträger detektiert werden, ergibt sich zudem die Möglichkeit einer quantitativen Auswertung. Der Photostrom ist gegeben durch Tunnelrate mal Elementarladung ($I = e/\tau$, τ = Tunnelzeit), wobei unter geeigneten Voraussetzungen direkte Rückschlüsse aus der Tunnelrate auf die Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts möglich sind (siehe Kapitel 7).

³In der Gruppe von K. Karrai wird die Absorption des Grundzustands direkt in Transmission gemessen, wobei das Messsignal in einer Transmissionsänderung von nur wenigen Promille besteht [2, 48]. Eine andere rein optische Methode basiert auf Vier-Wellen-Mischung, bei der das Signal der Probe in eine andere Raumrichtung als das Anregungslicht emittiert wird, siehe z.B. [54].

Kapitel 3

Experimenteller Aufbau

3.1 Laser

3.1.1 HeNe-Laser

Zur nicht-resonanten Anregung über der Bandlücke des Matrixmaterials wird im Allgemeinen ein HeNe-Laser mit einer Emissionswellenlänge von 632,8 nm (1,96 eV) verwendet. Um eine Verwechslung der Quantenpunktlumineszenz mit Plasmalinien des Lasers zu verhindern, ist hinter dem Laser noch ein Interferenzfilter installiert, welches nur die eigentliche Laserlinie durchlässt.

3.1.2 Ti:Saphir-Laser

Zur resonanten sowie zur gepulsten Anregung wird ein Titan-Saphir-Laser verwendet (Modell Mira der Firma Coherent). Es handelt sich dabei um einen optisch gepumpten Festkörperlaser. Da der Titan-Saphir-Kristall eine sehr große Verstärkungsbandbreite besitzt, kann der hier verwendete Laser (auch dank eines geeigneten Spiegelsatzes) in einem Bereich von 700 nm bis 980 nm kontinuierlich durchgestimmt werden. Die Abstimmung der Wellenlänge erfolgt über ein doppelbrechendes Filter (Lyot-Filter). Um die Wellenlänge auch rechnergesteuert abstimmen zu können, wurde die ursprünglich zur Einstellung des Filters installierte Mikrometerschraube durch eine motorisierte Einheit ersetzt. Das zur Verfügung stehende System liefert Pulse im Bereich 2 bis 3 ps, bei einer maximalen Ausgangsleistung von etwa 1 Watt.

Modelocking

Die kürzesten technisch erreichbaren Laserpulse werden nach dem Prinzip der Modenkopplung (engl.: *Modelocking*) erzeugt. Dabei werden Resonator-

Moden unterschiedlicher Wellenlänge im Laser so überlagert, dass sie nur in einem sehr kurzen Bereich konstruktiv interferieren, während sie sich im gesamten Rest des Resonators gegenseitig auslöschen. Im hier verwendeten Lasersystem befindet sich immer nur ein Puls im Resonator. Die Resonatortlänge ist dabei so eingestellt, dass die Pulsfrequenz am Ausgang des Lasers 80 MHz beträgt.

Da das Modelocking wie erwähnt auf der Überlagerung vieler Wellenlängen basiert, wird zum Starten kurzfristig eine Störung (hier durch Vibration eines transparenten Plättchens) in den Laserresonator eingebracht, wodurch der Laser nicht nur auf einer sondern auf vielen Moden läuft. Um den modengekoppelten Betrieb gegenüber einer kontinuierlichen Emission zu bevorzugen wird im verwendeten System das so genannte Kerr-Lens-Modelocking benutzt. Eine Kerr-Linse beruht auf dem nichtlinearen optischen Effekt, dass der Brechungsindex vieler Materialien bei hoher Leistung intensitätsabhängig ist. Da die Intensität eines Laserstrahl zu dessen Rand hin abnimmt, ergibt sich ein räumlicher Brechungsindexunterschied, welcher zu einer Linsenwirkung führt. Im Laserresonator befindet sich nun zusätzlich ein Spalt, welcher den Strahl nur dann nahezu vollständig durchlässt, wenn er auf diese Weise fokussiert wurde. Da der Linseneffekt bei hohen Intensitäten, wie sie in ultrakurzen Pulsen auftreten, wesentlich stärker ist, wird ein gepulster gegenüber dem kontinuierlichen Betrieb des Lasers wie erwünscht bevorzugt. Um eine kontinuierliche (engl.: *continuous wave* - cw) Emission des Lasers zu erreichen, wird entsprechend einfach der Spalt auf seine maximale Breite gestellt.

Um ein zeitlich stabiles Modelocking zu ermöglichen muss noch ein weiterer Effekt, die Gruppenlaufzeitdispersion (engl.: *group velocity dispersion* - GVD), berücksichtigt werden. Nahezu alle Materialien weisen eine leichte Frequenzabhängigkeit des Brechungsindex auf. Die Laufzeiten verschiedener spektraler Komponenten eines kurzen Pulses im Laserresonator wären damit im Allgemeinen unterschiedlich. Zur Kompensation dieses Effekts wird ein Gires-Tournois-Interferometer (GTI) verwendet, welches, ähnlich einem Fabry-Perot-Interferometer, aus zwei planparallelen Platten besteht. Die eine Platte ist dabei hochreflektierend und dient gleichzeitig als Endspiegel des Laserresonators. Die andere Platte ist halbdurchlässig und muss in ihrem Abstand gegenüber der ersten Platte geeignet eingestellt werden, um vollständige GVD-Kompensation zu erreichen¹. Die entsprechende Einstellung erfolgt beim β -lock System von Coherent automatisch, sodass die Wellenlänge des

¹Die Dispersionskurve des GTI (und damit die GVD-Kompensation) ist periodisch in der Wellenlänge und im Plattenabstand, entsprechend den unterschiedlichen Ordnungen des Interferenzfilters. Die Länge der Laserpulse kann in begrenztem Umfang durch Variation von GTI und Spaltbreite beeinflusst werden.

Pulsform	$I(t)$	$\Delta t_P / \Delta t_{AK}$	$\Delta t_P \Delta \nu$
Rechteck	$I(t) = 1; \quad t \leq t_P/2$ $I(t) = 0; \quad t > t_P/2$	1	1
Gauß	$I(t) = \exp(-\frac{4 \ln 2 \cdot t^2}{\Delta t_P^2})$	0,707	0,441
Hyperbelsekans	$I(t) = \operatorname{sech}^2 \frac{1,76t}{\Delta t_P}$	0,648	0,315
Lorentz	$I(t) = \frac{1}{1+4t^2/\Delta t_P^2}$	0,5	0,221

Tabelle 3.1: Autokorrelationsfaktor und Zeit-Bandbreiten-Produkt für verschiedene Pulsformen. Δt_P ist die Halbwertsbreite (FWHM) der Intensitätseinhüllenden des Pulses, Δt_{AK} und $\Delta \nu$ die der Autokorrelationsfunktion bzw. des Spektrums des Pulses.

Lasers in einem gewissen Bereich ohne Unterbrechung des Modelockings variiert werden kann.

Pumplaser

Als Pumplaser dient ein diodengepumpter, frequenzverdoppelter Nd:YV0₄-Ringlaser (Coherent Verdi V6), der sich durch hohe Stabilität der Ausgangsleistung und eine hervorragende Strahlqualität aufgrund von Emission auf nur einer longitudinalen Mode auszeichnet. Die maximale optische Ausgangsleistung beträgt 6,5 Watt bei einer festen Wellenlänge von 532 nm.

3.1.3 Pulsanalyse

Ein Teil des Laserstrahls wird zu Analyse Zwecken mittels eines Strahlteilers in einen Autokorrelator gelenkt (Modell „Mini“ der Firma APE). Im Autokorrelator wird der Laserstrahl in einer interferometrischen Anordnung in zwei Teilstrahlen aufgeteilt, wobei ein Arm des Interferometers periodisch in der Länge variiert wird. Diese Längenänderung kann über die Lichtgeschwindigkeit in eine zeitliche Variation eines Teilpulses gegenüber dem anderen umgerechnet werden. Damit wird eine Zeitmessung im Pikosekundenbereich auf eine (wesentlich einfachere) Längenmessung im 0,1 mm Bereich übergeführt. Auf der Detektionsseite des Interferometers befindet sich ein nichtlinearer Kristall, in dem nur bei Überlagerung beider Teilpulse ein frequenzverdoppeltes Signal erzeugt wird. Da sich das Messsignal aus einer Abtastung eines Teilpulses mit Hilfe des anderen ergibt, erhält man als Ergebnis eine Faltung des Laserpulses mit sich selbst oder genauer gesagt eine Autokorrelations-

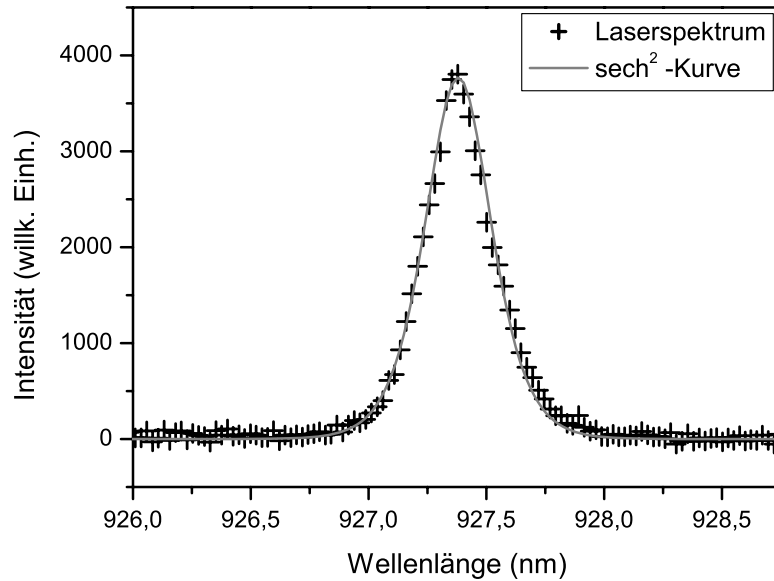


Abbildung 3.1: Spektrum des Ti:Saphir-Lasers im Pikosekundenbetrieb (Kreuze) und sech^2 -Fitkurve (Linie).

kurve.

$$I_{2\omega}(\tau) \propto \int I_{\omega}(t) \cdot I_{\omega}(t + \tau) dt$$

Diese ist im Allgemeinen breiter als das ursprüngliche Signal und muss daher mit einem entsprechenden Faktor multipliziert werden, um die tatsächliche Halbwertsbreite des Laserpulses zu erhalten (siehe Tabelle 3.1).

Ein weiterer Teil des Laserstrahls wird zur spektralen Analyse mittels einer Glasfaser in ein Spektrometer geführt. Abbildung 3.1 zeigt das Spektrum eines Laserpulses im Pikosekundenbetrieb (Kreuze). Die entsprechende sech^2 -Fitkurve (Linie) zeigt eine sehr gute Übereinstimmung mit den Messdaten². Dabei ist zu beachten, dass sich die sech^2 -Form auf die Intensitätsverteilung bezieht. Die physikalisch wichtige, im Allgemeinen aber nicht direkt messbare Amplitude des elektrischen Feldvektors wird durch eine einfache sech -Einhüllende beschrieben. Die zeitliche Pulsform, welche sich aus der Interferenz der unterschiedlichen spektralen Anteile ergibt, erhält man idealerweise direkt aus der Fourier-Transformation des Frequenzspektrums. Ein Vergleich gemessener Zeit-Bandbreiten-Produkte mit den in Tabelle 3.1 angegebenen Werten zeigt, dass diese Annahme beim verwendeten Lasersystem

²In theoretischen Veröffentlichungen werden häufig Gauß-Pulse angenommen. Diese unterscheiden sich nicht wesentlich von sech^2 -Pulsen, ergeben hier aber eine etwas schlechtere Übereinstimmung.

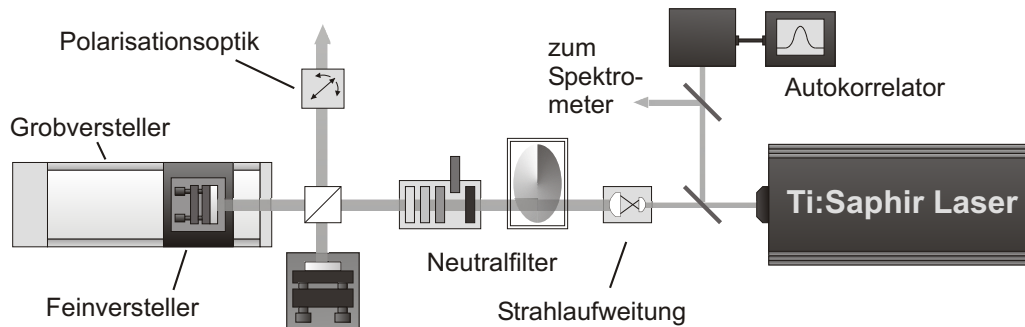


Abbildung 3.2: Typischer optischer Aufbau für kohärente Messungen. Durch eine interferometrische Anordnung, hier im linken Teil dargestellt, können Doppelpulse mit variabler Verzögerungszeit und kontrollierbarer gegenseitiger Phasenlage erzeugt werden.

in guter Näherung zutrifft. Sowohl für die zeitliche als auch für die spektrale Verteilung der Laserpulse wird im Folgenden also eine Hyperbel-Sekans-Form angenommen.

3.2 Optischer Aufbau

3.2.1 Anregungsseite

Für die erste Charakterisierung einer Quantenpunktprobe mittels Photolumineszenz wird ein HeNe-Laser verwendet. Um den Justieraufwand bei einem Wechsel der Probe möglichst gering zu halten, wird das Anregungslicht über eine Siglemode-Glasfaser zum Probenstab (Kapitel 3.2.2) geführt. Vor der Glasfaser befindet sich noch eine Filterkaskade mit mehreren Neutralfiltern unterschiedlicher Dichte, um die Anregungsleistung einstellen zu können.

In weitergehenden Untersuchungen mit resonanter Anregung des QDs durch den Ti:Saphir-Laser wird meist ohne Glasfaser gearbeitet. Eine typische Anordnung optischer Komponenten ist in Abbildung 3.2 schematisch dargestellt. Ein Teil des Laserstrahls wird, wie erwähnt, zur zeitlichen und spektralen Analyse abgeteilt. Danach wird der Strahl mittels zweier asphärischer Linsen unterschiedlicher Brennweite ($f_1 = 2 \text{ mm}$; $f_2 = 8 \text{ mm}$) aufgeweitet, um einerseits eine bessere Ausleuchtung des Objektivs zu gewährleisten und andererseits eine leichte Strahldivergenz auszugleichen. Die Anregungsleistung kann grob mit Hilfe einzelner Neutralfilter eingestellt werden und zusätzlich rechnergesteuert über ein Filterrads stufenlos variiert werden. Da die Rückseite des Filterrads, zumindest im nahinfraroten Spektralbereich,

nicht ausreichend entspiegelt ist, wird dieses zur Vermeidung von Fabry-Perot-Interferenzen schräg gestellt.

Zur Erzeugung von Doppelpulsen wird ein Aufbau in Form eines Michelson-Interferometers verwendet. Ein Teilstrahl wird dabei auf einen feststehenden Spiegel gelenkt und definiert in entsprechenden Experimenten den Referenzpuls. Der andere Teilstrahl trifft auf einen beweglichen Spiegel und definiert den Abtastpuls. Die zeitliche Verzögerung zwischen beiden Pulsen kann mit Hilfe zweier Verschiebetische eingestellt werden. Als Grobversteller wird ein motorisierter Verschiebetisch der Firma PI mit einem Verstellbereich von 200 mm verwendet. Mangels Zuverlässigkeit der eingebauten Positionssteuerung wurde dieser Tisch meist manuell verstellt. Die interne Verkrümmung des Verschiebetischs ist aber hinreichend klein, dass die optische Anregung der Probe über den gesamten Verstellbereich auf bis auf wenige Prozent konstant gehalten werden kann. Auf diesem Verschiebetisch ist noch ein weiterer, piezoelektrischer Versteller montiert, mit Hilfe dessen die relative Phase eines Pulses gegenüber dem anderen variiert werden kann. Bei aktivierter Regelungsschleife können an diesem Versteller Absolutpositionen im Bereich zwischen 0 und 100 μm mit einer Genauigkeit von 25 nm eingestellt werden. Dies entspricht etwa $1/40$ Wellenlänge bzw. einer Zeitauflösung von 0,17 fs. Die Ansteuerung dieses Verstellers erfolgt wahlweise manuell oder automatisiert aus einem Messprogramm heraus. Bei optimaler Justage aller Komponenten wird ein Kontrast zwischen konstruktiver und destruktiver Interferenz von etwa 100:1 erreicht.

Die an der Probe benötigte Leistung war bei allen Messungen in dieser Arbeit wesentlich kleiner als die Ausgangsleistung des Lasers. Eine Rückreflexion des Laserstrahls in den Resonator konnte daher durch Filter so weit abgeschwächt werden, dass die Stabilität des Modelockings nicht beeinträchtigt wurde. Wird eine höhere Leistung an der Probe benötigt, müsste zusätzlich ein optischer Isolator zwischen Interferometer und Laser installiert werden.

Der Ti:Saphir-Laser liefert einen horizontal polarisierten Strahl, dessen Polarisation nach Durchlaufen der bisher beschriebenen Komponenten erhalten bleibt. Mit Hilfe eines $\lambda/2$ -Plättchens kann diese lineare Polarisation um beliebige Winkel θ gedreht werden. Der Drehwinkel θ ist dabei doppelt so groß wie der Winkel zwischen Eingangspolarisation und optischer Achse des $\lambda/2$ -Plättchens. Ein zirkular polarisierter Strahl wird durch Verwendung eines $\lambda/4$ -Plättchens erreicht, wenn dessen optische Achse um 45° gegenüber der Eingangspolarisation gedreht ist. Durch eine Kombination aus $\lambda/2$ - und $\lambda/4$ -Plättchen kann jede beliebige (elliptische) Polarisation erreicht werden.

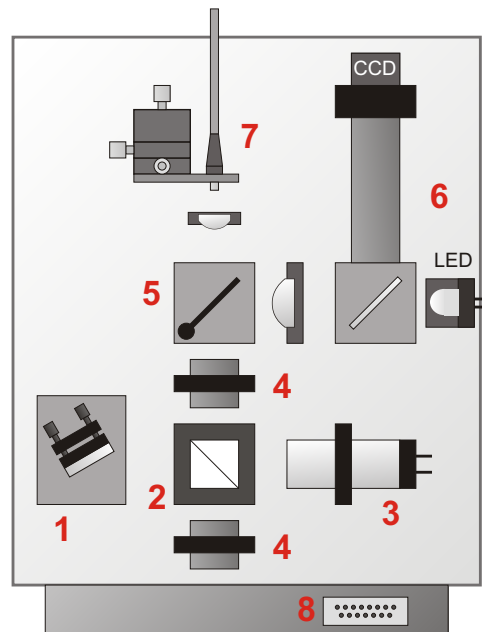


Abbildung 3.3: Optik-Platte am oberen Ende des Probenstabs; Beschreibung der Komponenten siehe Text.

3.2.2 Tieftemperatur-Probenstab

Nahezu alle in dieser Arbeit beschriebenen Untersuchungen erfordern eine hohe Ortsauflösung und Temperaturen von nur wenigen Kelvin. Um dies zu erreichen wird ein selbst konstruierter Probenstab verwendet, welcher in einer Heliumkanne abgekühlt werden kann. Der Probenstab selbst beruht ausschließlich auf Freistrahloptik, sowohl für den Anregungslaser als auch für das zu detektierende Lumineszenzlicht können aber Faserkoppler installiert werden. Am oberen Ende des Probenstabs (außerhalb der Heliumkanne) befindet sich eine Platte mit folgenden Komponenten:

1. Faserauskopplung bzw. Umlenkspiegel für den Anregungslaser.
2. Strahlteiler, der den Verzweigungspunkt zwischen Anregungs- und Detektionsseite darstellt.
3. Optional: Photodiode zum Messen der Anregungsleistung (rechnergesteuert).
4. Optional: Polarisationsoptik.
5. Motorisierter Klappspiegel zur Unterscheidung zwischen Detektion und optischer Abbildung der Probe.

6. Abbildungseinheit bestehend aus Linse, Strahlteiler, LED zur Probenbeleuchtung und CCD. Mit dieser Einheit kann ein Bild der Probe auf einen Videomonitor gegeben werden, um Fokus und Position des Laserspots auf der Probe zu kontrollieren.
7. Fasereinkopplung, mit Hilfe derer das Lumineszenzlicht zum Spektrometer geführt wird. (Wahlweise kann dies auch frei strahlend über Spiegel geschehen.)
8. Elektrische Anschlüsse.

Der untere Teil des Probenstabs wird von einem Außenrohr umschlossen, welches vor dem Abkühlen zunächst evakuiert und dann mit He-Austauschgas befüllt wird. Dadurch wird einerseits ein Beschlagen des Objektivs bei Temperaturen unterhalb des Kondensationspunkts von Luft verhindert, andererseits wird durch das Austauschgas ein guter Wärmeübertrag zwischen Probe und Heliumbad gewährleistet. Im Innenteil des Probenstabs werden verschiedene elektrische Leitungen zur Steuerung und Kontaktierung der Probe bis zum eigentlichen Tieftemperaturmikroskop heruntergeführt. Das Mikroskop selbst besteht aus einem Objektiv, unter dem die Probe in allen drei Raumrichtungen positioniert werden kann. Dadurch kann einerseits der Laser auf der Probe fokussiert werden und andererseits der Ort der optischen Anregung (und Detektion) in lateraler Richtung eingestellt werden. Die Verschiebetische verfügen über einen piezoelektrischen Trägheitsantrieb mit Sub-Mikrometer Auflösung bei einem Verstellbereich von einigen Millimetern. Für automatisierte x - y -Rasteraufnahmen kann optional noch ein bimorpher Scanner installiert werden. Der wesentliche Bestandteil dieses Verstellelements sind zwei zweikomponentige piezoelektrische Plättchen, die sich bei Anlegen einer Spannung verbiegen. Durch geeignete Montage erfolgt die Biegung des einen Plättchens in x -Richtung, die des anderen in y -Richtung, sodass durch eine Kombination der beiden Steuerspannungen beliebige Punkte in der x - y -Ebene angefahren werden können.

Bei der Wahl des Objektivs muss im Allgemeinen ein Kompromiss zwischen einfacher Handhabung und hoher Ortsauflösung getroffen werden. Die maximal erreichbare Auflösung ist dabei über die numerische Apertur des Objektivs bestimmt ($\Delta x \approx \lambda/NA$). Für alle detaillierten Untersuchungen werden daher Objektive hoher NA verwendet. Aufgrund der starken Vergrößerung muss dabei allerdings ein eingeschränktes Gesichtsfeld und ein schwächerer Kontrast bei der Abbildung der Probe auf die Monitor-CCD in Kauf genommen werden. Zudem ist mit einer hohen NA oft ein geringer Arbeitsabstand verbunden. Insbesondere bei elektrisch kontaktierten Proben erhöht dies die Gefahr einer Beschädigung der Probe bzw. einer Beein-

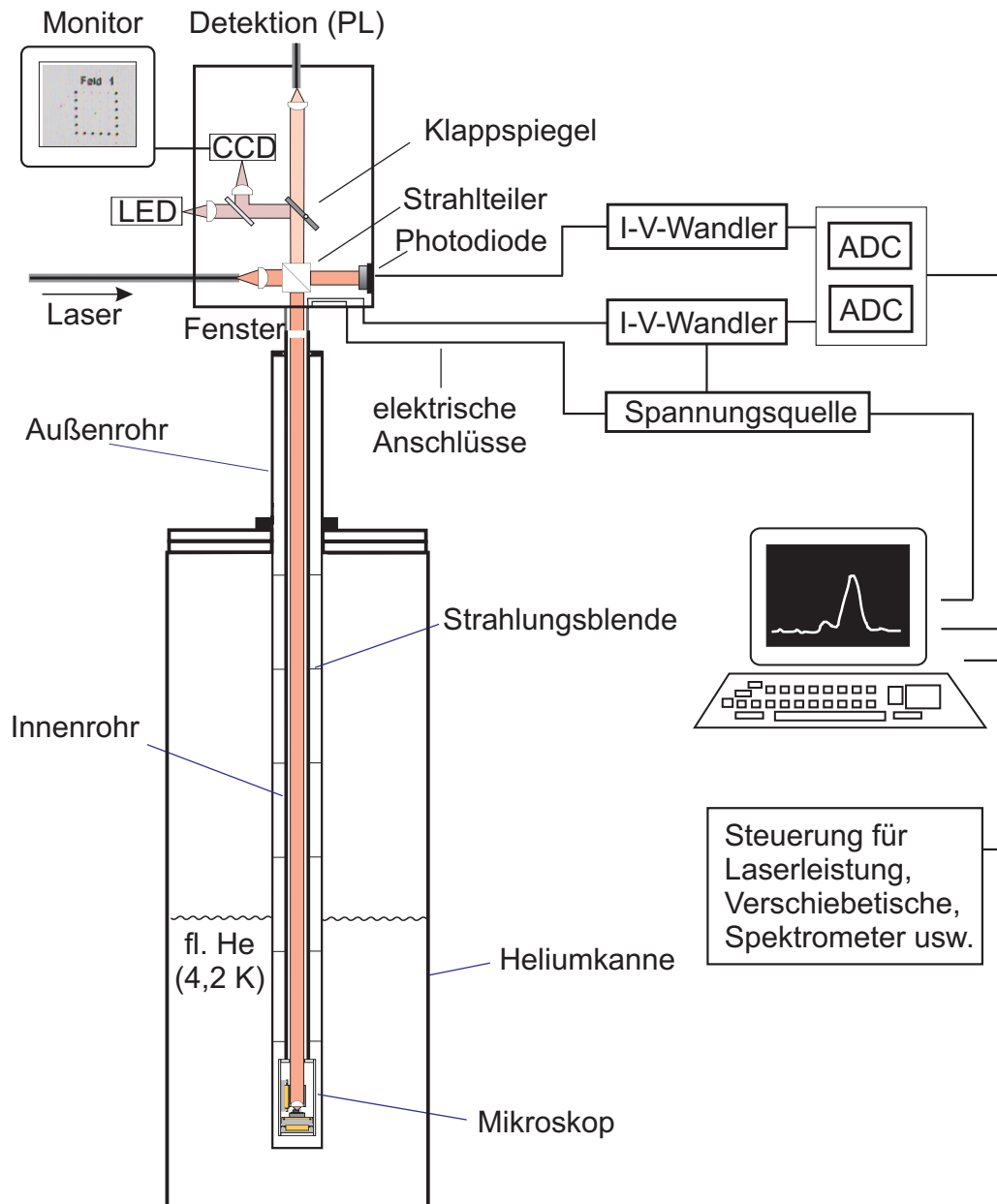


Abbildung 3.4: Schematischer Überblick über den Probenstab und die Ansteuerung der einzelnen Komponenten.

trächtigung der Messung durch einen elektrischen Kontakt des Objektivs mit einem Bonddraht. Für Photostrommessungen wird daher meist ein Zeiss-Objektiv („Epiplan“ 100x/0.75) verwendet, das trotz einer hohen NA von 0,75 noch einen relativ großen Arbeitsabstand von knapp einem Millimeter besitzt. Daneben stehen noch zwei Leica-Objektive („N-Plan“, NA 0.75 und NA 0.9) zur Verfügung, welche sich im Vergleich zum Zeiss-Objektiv durch eine wesentlich bessere Farbkorrektur auszeichnen, deren Arbeitsabstand aber nur bei etwa 0,3 mm liegt. Die gute Farbkorrektur ist vor allem in PL-Experimenten von Vorteil, da andernfalls Anregung (HeNe-Laser: 633 nm) und Detektion (InGaAs-QDs: 950 nm, InAs-QDs: 1150nm) nicht gleichzeitig optimal fokussiert sind. Für Voruntersuchungen werden wegen ihres großen Arbeitsabstands und der damit verbundenen einfachen Handhabung häufig kleine Laser-Kollimatoren von Melles-Griot mit einer $NA \leq 0,65$ eingesetzt.

3.2.3 Detektion

Die Lumineszenz der Probe wird in der Regel über eine Glasfaser zum Spektrometer gebracht. Achtet man darauf, dass das Anregungslicht zentral durch Probenhalter und Objektiv läuft, so erhält man durch Einkopplung des Laser-Rückreflexes schon einen sehr guten Ausgangswert für die weitere Justage. Auf der Detektionsseite werden Multimodefasern verwendet, da diese, verglichen mit Monomodefasern, eine erheblich einfachere Einkopplung erlauben. Einkoppelverluste können hier auch bei einem verhältnismäßig geringen Kerndurchmesser von 50 μm im Bereich unter 20% gehalten werden.

Für die spektrale Dispersion der Lumineszenz wird üblicherweise ein abbildendes Spektrometer mit einer Fokallänge von 0,5 m verwendet (Acton Research - Spectra Pro 500i). Es steht einerseits ein Gitter mit 300 Linien pro mm zur Verfügung, mit dem ein großer Spektralbereich auf die Detektoren abgebildet werden kann, andererseits ein Gitter mit 1200 Linien pro mm mit entsprechend höherer Dispersion und Energieauflösung, dafür jedoch eingeschränktem (in einer Einzelmessung abgebildetem) Spektralbereich. Zur Detektion wird, im Fall einer Emissionsenergie über 1,2 eV, eine mit flüssigem Stickstoff gekühlte Si-CCD verwendet. Die CCD besteht aus 400 Zeilen mit je 1340 Pixeln bei einer Pixelbreite von 20 μm . Mit dem 1200er Gitter wird im Energiebereich der InGaAs-Quantenpunkte ein etwa 47 meV breiter Spektralbereich abgebildet mit einem Abstand benachbarter Bildpunkte von 35 μeV . Für Messungen jenseits von 1,2 eV (InAs-QDs) wird ein InGaAs-Zeilendetektor bestehend aus 512 Pixeln mit einer jeweiligen Breite von 25 μm verwendet. Die maximale Empfindlichkeit dieses Detektors ist zwar um mehr als eine Größenordnung geringer als die der Si-CCD, reicht

aber bei optimaler Justage ebenfalls für Messungen an einzelnen Quantenpunkten aus (siehe Kapitel 4.2).

Die Energieauflösung des Spektrometers ist nicht nur durch die Dispersion des Gitters und den Pixelabstand des Detektors bestimmt, sondern auch durch den Durchmesser der Glasfaser auf der Eingangsseite. Um die Handhabung des Spektrometers möglichst einfach zu halten wird weder eine zusätzliche Abbildungsoptik noch ein Spalt verwendet. Das Faserende am Eingang wird also direkt auf den Detektor abgebildet. Die Abbildungseigenschaften des Spektrometers sind gut genug, dass eine spektral scharfe Linie aus einer 50 μm Glasfaser tatsächlich am Detektor nur zwei bis drei Pixel breit ist. Die erreichte Energieauflösung ist also umgekehrt proportional zum Kerndurchmesser der (Multimode-) Glasfaser und liegt im Bereich 100 μeV . Da zudem die transmittierte Gesamtintensität, d.h. die Fläche unter einer Lumineszenzlinie nicht wesentlich vom Faserdurchmesser abhängt, nimmt die Peakhöhe bei Verwendung einer Faser mit großem Kerndurchmesser deutlich ab. Zur Messung der Lumineszenz eines einzelnen Quantenpunkts empfiehlt sich daher immer die Verwendung einer möglichst dünnen Glasfaser. Eine Glasfaser mit großem Kerndurchmesser kann gegebenenfalls aufgrund der einfacheren Einkopplung für erste Voruntersuchungen verwendet werden.

Am Eingang des Spektrometers befindet sich grundsätzlich ein Kantenfilter, welches nur die Lumineszenz, nicht aber das Anregungslicht durchlässt. Dadurch wird verhindert, dass durch Streulicht des Lasers mögliche zusätzliche Linien im gemessenen Spektrum erscheinen. In PLE-Experimenten ist die Verwendung eines solchen Filters nicht möglich, da hier Anregungs- und Detektionsenergie sehr nahe beieinander liegen. Für diese Messungen wird ein 1 m Doppelmonochromator (Yobin Yvon U 1000) verwendet, dessen Streulichtunterdrückung um Größenordnungen höher ist als die des Einzelspektrometers. Die Detektion findet bei dieser Messung ohnehin nur auf einer Wellenlänge statt, sodass sich die Verwendung eines reinen Monochromators empfiehlt, an dessen Ausgang ein Einkanal-detektor angeschlossen ist. Als Detektor dient hier ein Einzel-Photon-Zähler basierend auf einer Silizium Avalanche Photodiode der Firma Perkin & Elmer mit einer maximalen Nachweiswahrscheinlichkeit von 73% bei 1,77 eV und einer Dunkelzählrate von < 20 Counts pro Sekunde.

3.3 Elektrische Messung

Für Photostrommessungen wird an die Probe rechnergesteuert eine Bias-Spannung im Bereich 0 bis 2 V angelegt und gleichzeitig ein Strom von meist nur wenigen pA gemessen. Um diese Funktionalität zu erhalten wurden ge-

eignete Schaltungen in einem selbstgebauten Messkästchen integriert. Als Spannungsquelle dient ein Digital-Analog-Wandler (DAC). Der Strom wird mittels eines I-V-Wandlers in eine Spannung konvertiert, welche mit Hilfe eines Analog-Digital-Wandlers (ADC) an der Messrechner gegeben wird (siehe Abbildung 3.4). Der I-V-Wandler ist mit einem $100\text{ M}\Omega$ Widerstand bestückt. In Verbindung mit einem 16 Bit ADC ergibt sich damit ein Messbereich von -5 nA bis $+5\text{ nA}$ bei einer Auflösung von $0,15\text{ pA}$. Es werden mehrere Maßnahmen zur Rauschunterdrückung kombiniert, um dieses Auflösungsvermögen experimentell tatsächlich erreichen zu können:

- Zur Vermeidung von Netzrauschen sind die elektrischen Schaltkreise batteriebetrieben, die Kommunikation zum Messrechner erfolgt über Glasfasern.
- Im Probenstab werden Koaxialkabel als Zuleitung zur Probe verwendet, alle ungeschirmten Kabel sind möglichst kurz gehalten und gegebenenfalls verdrillt. Alle Leitungen sind zusätzlich durch das Messkästchen selbst bzw. den Probenstab elektrisch abgeschirmt.
- Es werden extrem rauscharme Bauteile verwendet, der ADC integriert intern jeweils über eine 50 ms -Periode.
- Durch Verwendung von Tiefpassfiltern werden Rauscheffekte, z.B. beim „Sprung“ des DACs zwischen zwei benachbarten digitalen Werten, deutlich unterdrückt.

Die verwendete Schaltung kann zwei analoge Eingangskanäle gleichzeitig verarbeiten. Der erste Kanal wird wie beschrieben zur Messung des Stroms durch die Probe verwendet. An den zweiten Kanal wird das Signal einer Photodiode gegeben, mit Hilfe derer die Laserleistung gemessen wird (siehe Abbildung 3.4). In Messungen von Rabi-Oszillationen (siehe Kapitel 7) wird dieses Signal zur Definition der x -Achse verwendet, während der Photostrom der Probe als y -Wert aufgetragen wird.

Zur Messung der Elektrolumineszenz genügt im Grunde allein das Anlegen einer Spannung. Der Strom durch die Probe bietet allerdings auch hier einen häufig nützlichen weiteren Messparameter. Für EL-Messungen wie auch für alle weiteren, weniger empfindlichen Voruntersuchungen steht ein Aufbau ähnlich dem oben beschriebenen zur Verfügung. Die Unterschiede bestehen im Wesentlichen in einer geringeren Empfindlichkeit und Rauschunterdrückung, dafür aber der Möglichkeit eines einfacheren Wechsels zwischen verschiedenen Probenzuleitungen und Verstärkungsbereichen.

Kapitel 4

Proben

In diesem Kapitel soll ein Überblick über alle in dieser Arbeit untersuchten Probentypen gegeben werden.

Die Experimente zu kohärenter Kontrolle von Zwei-Niveau-Systemen (Kapitel 6 ff.) wurden an den im folgenden Unterkapitel beschriebenen Einzel-Quantenpunkt-Photodioden durchgeführt. Die Darstellung in diesem Kapitel gibt eine allgemeine Einführung in den Aufbau und die optischen Eigenschaften der Probe. Die vorgestellten Messungen beziehen sich speziell auf den Quantenpunkt, der auch in den weiterführenden Kapiteln untersucht wurde.

Die in Kapitel 4.2 und 4.3 vorgestellten Probentypen stellen gewissermaßen einen Ausblick auf zukünftige Entwicklungen dar. Der Hauptunterschied zwischen den Nano-LEDs und „konventionellen“ Photodioden besteht in der erheblich geringeren elektrisch aktiven Fläche. Dadurch sollten sich einerseits Hintergrundströme reduzieren lassen, andererseits eignen sich diese Strukturen aufgrund ihrer extrem kleinen Kapazität besonders gut für schnelle elektrische Schaltzeiten. Das Anwendungspotenzial zeitlich veränderlicher Probenspannungen wird im Ausblick dieser Arbeit näher erläutert.

Die am Max Planck Institut in Stuttgart hergestellten GaAs/AlGaAs-Quantenpunkte zeichnen sich im Vergleich zu InGaAs-QDs durch höhere Übergangsenergien aus. Der Grundzustand liegt mit etwa 1,65 eV im Bereich der höchsten Quanteneffizienz von Si-Einzelphotondetektoren ($> 70\%$ von 1,65 eV bis 1,95 eV). Gleichzeitig sind sie sehr nahe am Verstärkungsoptimum von Ti:Saphir Kurzpulslasern. Diese Art von Quantenpunkten eignet sich damit besonders für optisch detektierte kohärente Messungen und mögliche Anwendungen als Einzelphotonquellen. Erste Voruntersuchungen zu kohärenten Eigenschaften dieser Quantenpunkte finden sich am Ende des Kapitels.

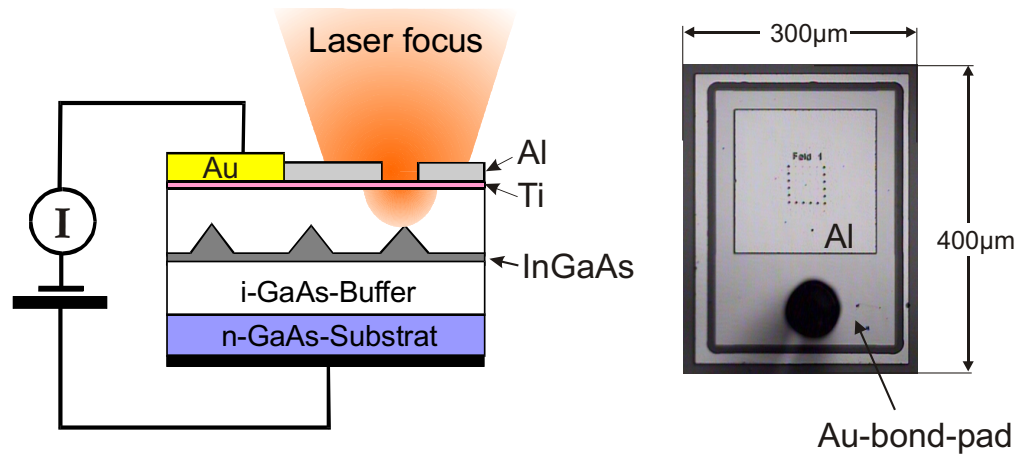


Abbildung 4.1: Schematischer Aufbau der Einzel-Quantenpunkt-Photodioden (links) und Aufnahme einer Mesa-Struktur mit Al-Schattenmaske (rechts). Bei den hier sichtbaren Strukturen der Schattenmaske handelt es sich nicht um die eigentlichen Aperturen sondern um Markierungspunkte. Der große schwarze Punkt unterhalb der Schattenmaske ist das Ende eines Bonddrahts.

4.1 Einzel-Quantenpunkt-Photodioden

4.1.1 Aufbau

Der Aufbau der Photodioden ist schematisch in Abbildung 4.1 dargestellt. Die Proben wurden 1999 am Walter Schottky Institut der TU München mittels Molekularstrahlepitaxie gewachsen und anschließend zu n-i-Schottky Dioden mit Nahfeld-Schattenmasken prozessiert. Eine ausführliche Beschreibung der einzelnen Herstellungsschritte und Probenparameter findet man in [34] (Probe 120799.2).

Den Rückkontakt der Probe bildet eine stark n-dotierte GaAs-Schicht. Darüber folgt eine intrinsische, d.h. undotierte Schicht. Im Abstand von 40 nm zum n-GaAs wurde eine einzelne Lage von InGaAs-Quantenpunkten gewachsen, gefolgt von einer weiteren intrinsischen GaAs-Schicht. Die Dicke der intrinsischen Schicht beträgt insgesamt 360 nm. Den Frontkontakt bildet ein semitransparentes Ti-Gate, welches eine homogene Feldverteilung über die gesamte Fläche der Diode gewährleistet. Auf dieser dünnen Ti-Schicht befinden sich einerseits ein Gold-Bondpad zur elektrischen Kontaktierung der Probe und andererseits ein Feld mit Al-Schattenmasken. Die Aperturen der Schattenmaske wurden über Elektronenstrahlolithographie definiert.

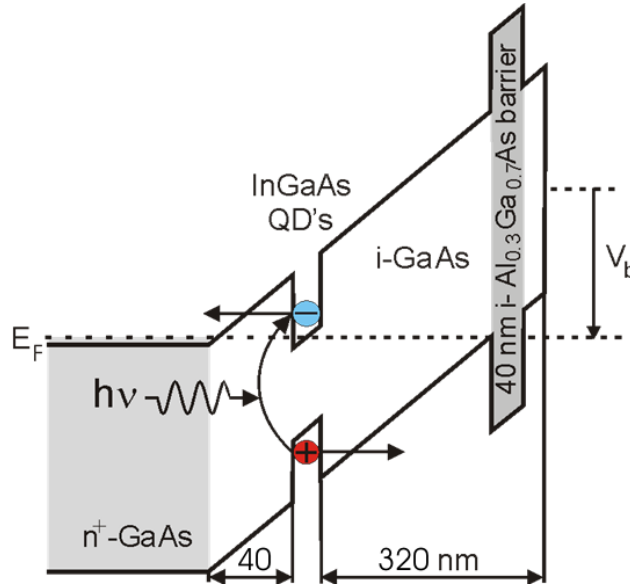


Abbildung 4.2: Bandverlauf der Photodioden unter Photostrom-Bedingungen (hohes elektrisches Feld). Das gesamte elektrische Feld fällt über die i-Schicht der Probe ab. Durch Verringerung des elektrischen Feldes kann man die untersten QD-Niveaus unter die Fermi-Energie des n-Kontakts bringen und damit den Quantenpunkt beladen. Da die Tunnelzeiten unter diesen Bedingungen sehr lang sind, kann das negativ geladene Exziton nur optisch detektiert werden.

Sie sind in 5 Reihen mit variierendem Öffnungsdurchmesser von 100 nm bis 500 nm angeordnet. Der in Kapitel 6 ff. untersuchte Quantenpunkt befindet sich in der mittleren Reihe, also unter einer Apertur mit einem Durchmesser von 300 nm.

Das elektrische Feld in der Probe kann über eine Bias-Spannung V_B eingestellt werden. Wie in Abbildung 4.2 skizziert, fällt das elektrische Feld ausschließlich über die i-Schicht der Diode ab. Bestimmt durch die Lage der Fermi-Energien von Front- und Rückkontakt ergibt sich auch ohne äußere Spannung ein internes elektrisches Feld im Bereich der Quantenpunkte. Insgesamt ist das elektrische Feld gegeben durch:

$$|\vec{E}| = 24,9 \cdot 10^3 \frac{1}{\text{cm}} \cdot V_B + 21,0 \frac{\text{kV}}{\text{cm}}$$

V_B bezeichnet hier die extern angelegte Spannung in Sperrrichtung der Diode.

Über die Bias-Spannung wird auch die Lage der Energieniveaus im Quantenpunkt bezüglich der Fermi-Energie des n-dotierten Rückkontakts bestimmt. Bei geringen Sperrspannungen und in Vorwärtspolung liegen die Quanten-

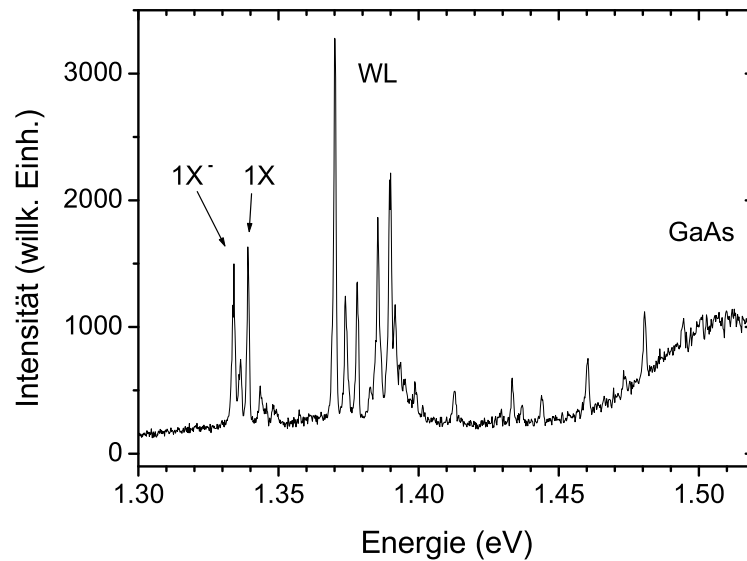


Abbildung 4.3: PL-Spektrum der Einzel-Quantenpunkt-Photodiode. Neben der Lumineszenz des Quantenpunkts sind auch der Wettinglayer (WL) und die GaAs-Bandkante zu sehen. Der Wettinglayer besteht offensichtlich nicht aus einer homogenen Schicht, sondern zeigt mehrere lokalisierte Zustände.

punktniveaus der Elektronen unter dem Fermi-Niveau des Rückkontakts. Unter diesen Bedingungen ist der Quantenpunkt im Gleichgewichtszustand mit einem oder mehreren Elektronen geladen. Bei höherer Sperrspannung (steilerer Potenzialverlauf in Abbildung 4.2) liegt das niedrigste Leitungsband-Energieniveau des Quantenpunkts über dem Fermi-Niveau des Rückkontakts. Der Quantenpunkt ist dann nicht geladen.

4.1.2 Optische Eigenschaften

Photolumineszenz

Die erste Vorcharakterisierung der Quantenpunkte erfolgt über PL-Messungen. Dabei wird zunächst für jede Apertur einer Schattenmaske ein Spektrum aufgenommen, um diejenigen Aperturen herauszufinden, unter denen nur genau ein Quantenpunkt liegt. Nach dieser Vorauswahl wird dann der Quantenpunkt ermittelt, der unter gleichen Anregungsbedingungen die höchste PL-Intensität zeigt. Da in Photolumineszenzmessungen sowohl Anregungs- als auch Detektionssignal die Schattenmaske passieren müssen, kann davon ausgegangen werden, dass der so ermittelte Quantenpunkt sehr zentral unter der Apertur der Schattenmaske liegt.

Abbildung 4.3 zeigt ein PL-Übersichtsspektrum, aufgenommen bei 0 V externer Spannung. Die Lumineszenz des Quantenpunkts liegt knapp unter 1,34 eV, die des Wettinglayers bei ca. 1,38 eV. Im Gegensatz zum idealisierten Fall einer homogenen zweidimensionalen Schicht besteht der Wettinglayer hier aus vielen verschiedenen Einzelniveaus mit einem besonders starken Peak bei 1,37 nm. Die Übergangsenergie des hier untersuchten Quantenpunkts liegt etwa 40 meV über der mittleren Energie des QD-Ensembles. Im PL-Spektrum ist zudem auch bei höherer Anregungsleistung keine p-Schale erkennbar. Dies legt die Schlussfolgerung nahe, dass der Quantenpunkt vergleichsweise klein ist. Beide Effekte sind allerdings für die in den weiteren Kapiteln beschriebenen kohärenten Experimente am *Grundzustand* des Quantenpunkts unerheblich. Hier ist vielmehr von entscheidendem Vorteil, dass die zur Anregung des Quantenpunkts benötigte Leistung im vorliegenden Fall besonders gering ist¹. Alle kohärenten Messungen wurden daher an ein und demselben Quantenpunkt durchgeführt. Dadurch werden zudem exakte Vergleiche zwischen unterschiedlichen Experimenten ermöglicht.

Spannungsabhängigkeit

In Abbildung 4.4 ist die Abhängigkeit der Quantenpunkt-Lumineszenz von der Bias-Spannung dargestellt. Negative Spannungswerte bezeichnen hier eine Polung der Diode in Sperrrichtung. Wie im vorigen Abschnitt beschrieben, kann der Quantenpunkt ab einer gewissen Vorwärtsspannung mit Elektronen beladen werden und die $1X^-$ -Linie (einfach negativ geladenes Exziton) erscheint. Im vorliegenden Fall fehlt allerdings die Signatur des zweifach negativ geladenen Exzitons, bei dem aufgrund des Pauli-Verbots auch ein p-Zustand beteiligt ist (Kapitel 2.3). Das oben schon festgestellte Fehlen einer p-Schale wird also noch einmal bestätigt. Der Abstand zwischen $1X$ - und $1X^-$ -Linie sowie deren relative Intensitäten entsprechen sehr gut den in diesen Quantenpunkten üblicherweise beobachteten Werten [35]. Der Übergang von $1X$ zu $1X^-$ findet allerdings erst bei etwas stärkerer Vorwärtspolung statt, da die Energieniveaus im hier untersuchten QD etwas höher liegen. Die (recht schwache) Linie, die bei 0,08 V zwischen geladenem und neutralem Exziton erscheint, kann dem Biexziton zugeordnet werden. Diese Zuordnung ergibt sich aus leistungsabhängigen Messungen. Das Auftreten der Linie selbst bei niedrigen Anregungsleistungen wird durch den zufälligen Einfang eines Lochs

¹Grund dafür ist vermutlich zum einen eine optimale geometrische Ausrichtung des Quantenpunkts bezüglich der Schattenmaske, zum anderen aber auch eine relativ hohe Oszillatorstärke des optischen Übergangs. Tatsächlich wird gerade bei Quantenpunkten, deren Übergangsenergie sehr nah am Wettinglayer liegt, eine besonders kurze optische Rekombinationszeit beobachtet [54].

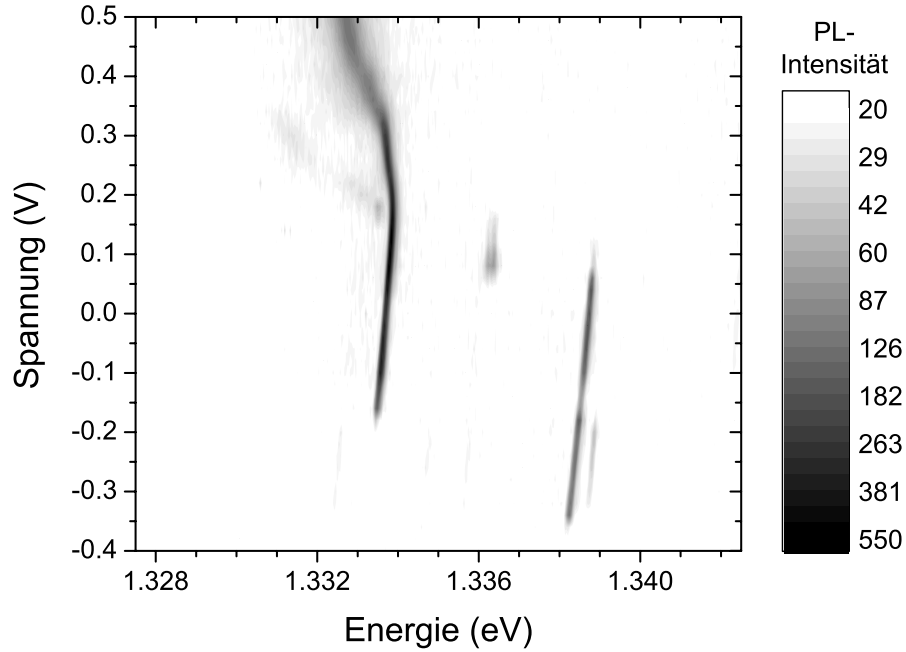


Abbildung 4.4: Graustufen-Darstellung der spannungsabhängigen PL eines einzelnen Quantenpunkts (logarithmische Skala). Bei negativer Spannung (Sperrpolung) beobachtet man zunächst nur Rekombination des neutralen einzelnen Exzitons ($1X$). Ab $-0,16$ V und zu positiven Spannungen kann der Quantenpunkt mit einem Elektron geladen werden und man beobachtet zusätzlich die $1X^-$ -Linie. Die Linien sind aufgrund des Stark-Effekts leicht verkippt.

in den Quantenpunkt erklärt, in dem sich bei dieser Spannung mit besonders hoher Wahrscheinlichkeit schon ein negativ geladenes Exziton befindet [34].

Die schwache Linie, die für $V_B < -0,18$ V rechts neben der $1X$ -Linie zu sehen ist, kann wahrscheinlich dem einzig noch verbleibenden Zustand der s-Schale, also dem $1X^+$, zugeordnet werden. Diese Linie verschwindet, sobald Elektronen aus dem n-Kontakt in den Quantenpunkt tunneln können. Die Verbreiterung und Verschiebung der $1X^-$ -Linie ab $0,2$ V Vorwärtsspannung kann durch das Beladen von Wettinglayerzuständen mit Elektronen aus dem n-Kontakt erklärt werden, die dann über Coulomb-Wechselwirkung die Energie der Übergänge im Quantenpunkt beeinflussen.

Man erkennt in Abbildung 4.4 einen weiten Spannungsbereich mit paralleler Emission des geladenen und neutralen Exzitons. Da der $1X^-$ -Zustand energetisch tiefer liegt, stellt das neutrale Exziton in diesem Bereich einen

Nicht-Gleichgewichtszustand dar. Dies deutet auf relative lange Tunnelzeiten zwischen QD und n-Kontakt hin. Tatsächlich wird eine solche parallele Emission in einer analogen Probe mit stärkerer Tunnelkopplung zum n-Kontakt nicht beobachtet [4]. Bei Letzterer konnten keine ähnlich schmalen Linienbreiten wie in Kapitel 6 beobachtet werden, wahrscheinlich weil der stärkere Kontakt zum n-Gebiet zu einer schnelleren Dephasierung der QD-Zustände führt.

Stark-Effekt

Die einzelnen Emissionslinien in Abbildung 4.4 verlaufen nicht ganz senkrecht, d.h. die Übergangsenergien verschieben leicht in Abhängigkeit von der Spannung. Die Verschiebung der Übergangsenergie ist Folge des Stark-Effekts (siehe Kapitel 2.3.4). Dieser lässt sich über den in Abbildung 4.4 gezeigten Bereich hinaus auch bei höherer Sperrspannung messen, wie in Abbildung 4.5 dargestellt. Ab einer Sperrspannung von etwa 0,4 V kann allerdings kein PL-Signal mehr gemessen werden, da dann die Tunnelwahrscheinlichkeit die optische Rekombinationsrate übersteigt. Im Bereich höherer Sperrspannungen wird die Energie des 1X-Übergangs daher über den Photostrom gemessen. In Abbildung 4.5 sind die beiden unterschiedlichen Messmethoden noch einmal 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. 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 bei einem Scan der Laserwellenlänge.

Im Fall des 1X-Übergangs sind die Absorptions- und Emissionsenergie gleich. Die Datenpunkte in Abbildung 4.5 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. Entsprechende Messungen (Kapitel 6) zeigen, dass die Auflösung hier hauptsächlich durch die Breite der Laserlinie bestimmt ist. Die Umrechnung von Spannungs- in Energiewerte

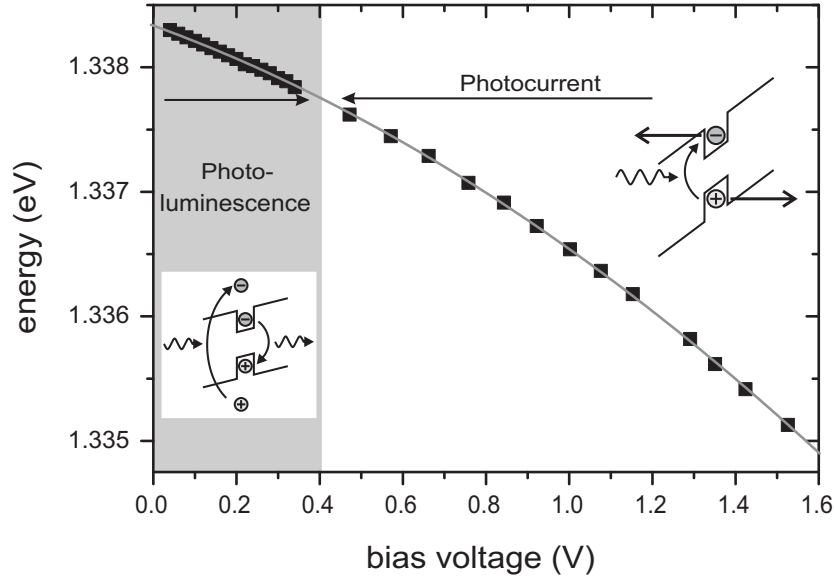


Abbildung 4.5: Übergangsenergie des QD-Grundzustands in Abhängigkeit von der Probenspannung. Aufgrund des Stark-Effekts ergibt sich bei hohem elektrischem Feld eine Energieerniedrigung, welche zur Feinabstimmung des Übergangs verwendet werden kann. Der Übergang in der Detektionsmethode vom PL- zum Photostromregime liegt etwas unter 0,4 V.

erhält man über die Fitkurve aus Abbildung 4.5:

$$E = 1.33833 \text{ eV} - 0.00121 \frac{\text{eV}}{\text{V}} \cdot V_B - 5.81615 \cdot 10^{-4} \frac{\text{eV}}{\text{V}^2} \cdot V_B^2 \quad (4.1)$$

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

$$\Delta E = \left(-1210 \pm 17 \frac{\mu\text{eV}}{\text{V}} - 1163 \pm 26 \frac{\mu\text{eV}}{\text{V}^2} \cdot V_B \right) \cdot \Delta V_B \quad (4.2)$$

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

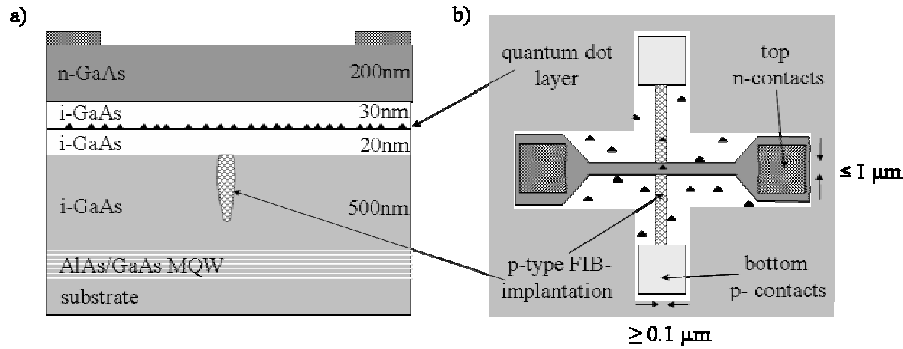


Abbildung 4.6: Schematischer Aufbau der Nano-LEDs a) Querschnitt und b) Draufsicht (aus [74]). Der elektrisch kontaktierte Bereich beschränkt sich auf den Kreuzungspunkt von n- und p-Streifen. Im Idealfall befindet sich dort genau ein Quantenpunkt.

4.2 Nano-LEDs

Bei den im vorigen Kapitel dargestellten Proben ist zwar der optisch aktive Bereich durch die Schattenmasken auf etwa $0,1 \mu\text{m}^2$ eingeschränkt, die elektrisch kontaktierte Fläche erstreckt sich aber über die gesamte Mesa-Struktur, also $300 \times 400 \mu\text{m}^2$. Bei den im Folgenden vorgestellten Nano-LEDs ist dagegen auch der elektrisch kontaktierte Bereich auf eine extrem kleine Fläche begrenzt. Dies wird durch einen relativ aufwendigen, mehrstufigen Herstellungsprozess erreicht:

Zunächst wird auf ein GaAs-Substrat mittels MBE ein GaAs/AlGaAs Übergitter und eine GaAs Zwischenschicht aufgewachsen. Die Probe wird dann im Ultrahochvakuum in eine andere Kammer überführt, in der mit einem fokussierten Ionenstrahl ein schmaler p-dotierter Streifen erzeugt wird². Nach Rücktransfer der Probe in die MBE-Kammer werden eine i-GaAs-Pufferschicht, die Quantenpunkte eine weitere i-GaAs-Schicht und eine n-dotierte Deckschicht gewachsen. Danach folgen photolithographische Schritte, in denen unter anderem die obere n-Schicht bis auf einen schmalen Streifen weggeätzt wird. Am Ende erhält man damit eine Quantenpunktprobe, bei der die elektrisch aktive Fläche auf den Kreuzungsbereich der beiden sehr schmalen ($< 1 \mu\text{m}$) p- bzw. n-Streifen beschränkt ist. Der Aufbau der Probe ist in Abbildung 4.6 schematisch dargestellt, eine genauere Beschreibung der Herstellungsschritte findet man in [74, 75].

Die fertige Probe wurde im Rahmen dieser Arbeit zunächst über Messung der Elektrolumineszenz (EL) charakterisiert. Sofern die elektrisch akti-

²Im Englischen wird diese Technik *focussed ion beam (FIB) implantation* genannt.

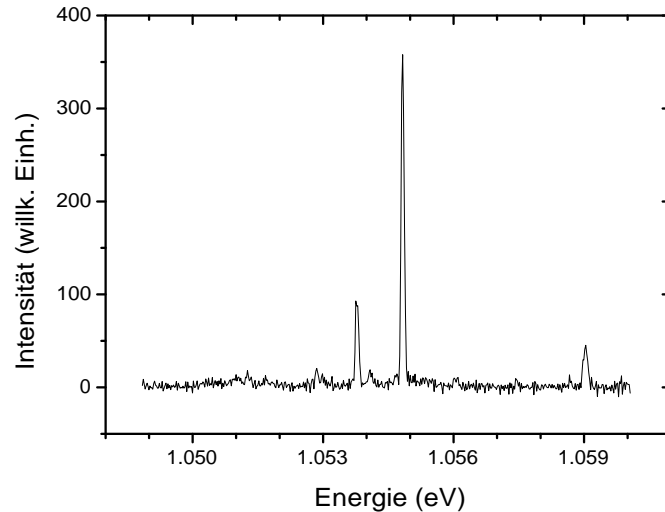


Abbildung 4.7: EL-Spektrum einer Nano-LED (Probenspannung 1,35 V). Das Spektrum zeigt wenige, scharfe Linien. Man kann davon ausgehen, dass sich nur ein einzelner Quantenpunkt im elektrisch aktiven Bereich der Probe befindet.

ve Fläche der Probe tatsächlich im Bereich $< 1 \mu\text{m}^2$ liegt, sollte bei dieser Messung nur Lumineszenz aus einem oder wenigen Quantenpunkten zu sehen sein. Die untersuchte Probe enthält InAs-QDs mit einer Grundzustandsenergie von ca. 1,05 eV. Zum Nachweis der Lumineszenz wird daher ein InGaAs-Zeilendetektor verwendet, da die sonst eingesetzte Si-CCD unter 1,25 eV einen starken Abfall der Empfindlichkeit zeigt.

Abbildung 4.7 zeigt das EL-Spektrum einer Nano-LED (Probe Bo-11150, Feld c14) bei einer Spannung von 1,35 V. Es sind nur wenige, sehr schmale Linien zu sehen. Die stärkste Linie in diesem Spektrum ist vor allem bei schwacher Injektion dominant und ist deshalb vermutlich dem einzelnen (möglicherweise geladenen) Exziton zuzuordnen. Zum genaueren Verständnis der Probe wurden auch Serien von EL-Spektren bei unterschiedlichen Spannungen aufgenommen, ähnlich den in Abbildung 4.4 gezeigten Messungen im vorigen Unterkapitel. Eine genaue Zuordnung aller Linien ist in diesem Fall schwierig, da sich bei EL-Messungen in Abhängigkeit von der Spannung nicht nur das elektrische Feld in der Probe, sondern auch die Injektionsbedingungen ändern. So entspricht eine niedrige Spannung einer schwachen Anregungsleistung in einem PL-Experiment. Bei großer Vorwärtsspannung wird nicht nur das elektrische Feld schwächer sondern es werden auch mehr

Ladungsträger im QD eingefangen, sodass man neben s-Zuständen auch p- und d-Zustände beobachtet. Eine weitere Komplikation bei der Interpretation der Spektren ergibt sich daraus, dass der Ladungszustand des Quantenpunkts nicht genau bekannt ist. Unabhängig davon wurde aber das Hauptziel dieser Untersuchungen erreicht, nämlich elektrisch induzierte Lumineszenz aus einem einzelnen Quantenpunkt nachzuweisen.

Die verwendeten Proben sind ursprünglich für Einzel-Photon-Emission konzipiert [75]. Bei Verwendung von InGaAs- statt reiner InAs-QDs ließe sich diese Art von Proben aber direkt für kohärente Untersuchungen verwenden³. Gegenüber den bisher verwendeten Proben (siehe Kapitel 6 ff.) erwartet man eine Reihe von Vorteilen:

- Aufgrund der geringen Fläche des Kreuzungspunkts zwischen p- und n-Streifen besitzen die Proben eine extrem kleine Kapazität und sind damit hervorragend für Messungen mit zeitlich schnell veränderlichen Spannungen geeignet (siehe Ausblick dieser Arbeit).
- Bei Photostrommessungen werden nur Ladungsträger aus der unmittelbaren Umgebung des Quantenpunkts nachgewiesen. Es wird daher ein deutlich geringeres Untergrundsignal erwartet (vgl. Kapitel 7.1).
- Da bei diesen Proben keine Schattenmasken verwendet werden, können zuverlässigere Angaben über die Intensitätsverhältnisse direkt am Ort des Quantenpunkts getroffen werden. Man kann zudem direkt überprüfen, wie gut der Quantenpunkt mit dem Kreuzungspunkt übereinstimmt⁴.

4.3 GaAs/AlGaAs-Quantenpunkte

Einen in gewisser Weise komplementären Ansatz zur Verbesserung von Probeneigenschaften stellen die am Max Planck Institut in Stuttgart gewachsenen GaAs/AlGaAs-Quantenpunkte dar. Stand im vorigen Kapitel die Optimierung der elektrischen Kontaktierung im Vordergrund, so besteht bei

³Mit einem geeigneten Lasersystem könnte man auch an InAs-Quantenpunkten resonante, kohärente Experimente durchführen. Der verwendete Ti:Saphir-Laser ist allerdings auf einen Energiebereich zwischen 1,27 eV und 1,77 eV beschränkt.

⁴Der Kreuzungspunkt ist bei starker Vorwärtspolung durch Elektrolumineszenz des GaAs deutlich sichtbar. Der QD befindet sich bei optimalem PL-Signal genau im Fokus des Laserspots. Beide Punkte kann man mit Hilfe der Abbildungseinheit am Probenstab vergleichen. Im Fall der hier untersuchten Probe war ein sichtbarer Versatz zwischen beiden Punkten zu beobachten.

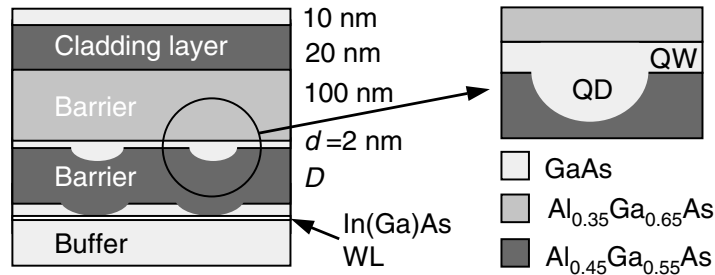


Abbildung 4.8: Schematischer Aufbau der GaAs/AlGaAs-Quantenpunkte. Der optisch aktive Bereich ist auf der rechten Seite noch einmal vergrößert dargestellt (aus [71]).

diesen Proben das Ziel, die Eigenschaften der Quantenpunkte selbst zu verbessern. Zum einen werden durch die Verwendung eines anderen Materialsystems höhere Übergangsenergien erreicht, die sowohl bezüglich der Anregung als auch der Detektion einen Vorteil gegenüber In(Ga)As-Quantenpunkten darstellt. Zum anderen bietet sich die Möglichkeit durch ein ähnliches Verfahren „Moleküle“ aus zwei oder mehr eng benachbarten QDs oder auch Felder mit regelmäßig angeordneten QDs zu herzustellen [47, 76].

4.3.1 Herstellung

Die hier diskutierten QDs werden ebenfalls in einer MBE-Anlage gewachsen. Ausgangspunkt bildet eine Lage selbstorganisierter InAs-QDs, analog zu den bisher diskutierten Proben. Diese werden mit einer dünnen GaAs-Schicht überwachsen. Die GaAs-Schicht wird dann *in situ*, d.h. in der MBE-Kammer, selektiv dort weggeätzt, wo sich InAs-QDs befinden. Der selektive Ätzprozess beruht dabei auf der Verspannung, die durch die Quantenpunkte hervorgerufen wird. Durch den Ätzschritt werden die ursprünglichen InAs-Quantenpunkte in kleine Löcher oder Mulden in der GaAs-Schicht überführt. Als nächstes wird eine AlGaAs-Schicht abgeschieden, welche aufgrund der geringen Diffusionslänge des Al die Oberflächenstruktur der GaAs-Schicht beibehält. Die Löcher werden dann durch eine GaAs-Schicht aufgefüllt, welche wiederum mit AlGaAs überwachsen wird. Dadurch bilden sich in den Löchern GaAs-Quantenpunkte, die von AlGaAs-Barrieren umgeben sind (siehe Abbildung 4.8). Eine genaue Beschreibung des Herstellungsprozesses, sowie eine Zusammenfassung der optischen Messungen und deren theoretischer Beschreibung findet man in [71].

Die genaue Struktur der Löcher kann mit Hilfe von AFM- oder STM-Messungen sehr gut bestimmt werden. Die Größe der Quantenpunkte lässt

sich sowohl über die Größe der ursprünglichen Löcher als auch über die Dicke der AlGaAs-Zwischenschicht beeinflussen. Die hier untersuchten QDs waren typischerweise 4 nm tief, 17 nm breit und 50 nm lang (Elongation entlang der [110]-Kristallrichtung). Die starke Asymmetrie in x - y -Richtung ergibt sich dabei vermutlich aus richtungsabhängigen Diffusionseigenschaften beim Wachsen der AlGaAs-Schicht.

Die Dichte der Quantenpunkte liegt im Bereich von ca. $1 \mu\text{m}^{-2}$. Damit können allein durch die optische Auflösung des Tieftemperatur-Messsystems einzelne Quantenpunkte selektiert werden. Um die Anregung mehrerer QDs noch weiter zu unterdrücken und auch um einen einmal untersuchten QD wieder finden zu können, wurden auf der Probe mehrere Felder mit $1 \mu\text{m}^2$ großen Mesen geätzt. In einer Mesa-Struktur befindet sich im Idealfall wieder genau ein Quantenpunkt.

4.3.2 Optische Eigenschaften

In Abbildung 4.9 sind leistungsabhängige PL-Spektren einer GaAs/AlGaAs-Probe (Probe 63593, Feld 55-23) dargestellt. Das Spektrum bei niedrigster Anregungsleistung ist um den Faktor 7 vergrößert. Alle Spektren wurden mit dem bekannten Tieftemperatur PL-System bei einer Temperatur von 4,2 K und einem Laserfokus von $< 1 \mu\text{m}$ aufgenommen. Bei sehr geringer Leistung ist nur die Linie des einzelnen Exzitons zu sehen. Mit steigender Laserintensität kommen dann die Biexziton-Linie sowie multiexzitonische Übergänge hinzu⁵. Auch bei hohen Anregungsleistungen sind rechts des 1X-Übergangs, d.h. bei höherer Energie, nur relativ schwache Linien zu sehen. Dies deutet darauf hin, dass die Relaxation aus der p-Schale in den Grundzustand sehr schnell ist, die strahlende Rekombination aus der p-Schale dagegen relativ langsam. Alle untersuchten Quantenpunkte dieser Probe zeigen qualitativ dasselbe Verhalten. Da im Spektrum keine weiteren Linien bei höherer oder niedrigerer Energie zu sehen sind, kann man davon ausgehen, dass sich in der untersuchten Mesa-Struktur nur ein einzelner QD befindet.

Aufgrund der starken Asymmetrie der QDs wird eine Energieaufspaltung zwischen Wellenfunktionen erwartet, die entlang bzw. senkrecht zur [110]-Richtung orientiert sind. Die Auflösung des Spektrometers reicht zwar nicht aus, um diese unterschiedlichen Linien tatsächlich trennen zu können. Man beobachtet allerdings eine polarisationsabhängige Verschiebung der 1X-Linie von etwa $90 \mu\text{eV}$. Darüber hinaus ist die Stärke des PLE-Signals stark polarisationsabhängig, was auf einen deutlichen Unterschied im Übergangsma-

⁵Diese Zuordnung ist nicht durch weitergehende Untersuchungen bestätigt, stellt aber die plausibelste Erklärung der leistungsabhängigen Spektren dar.

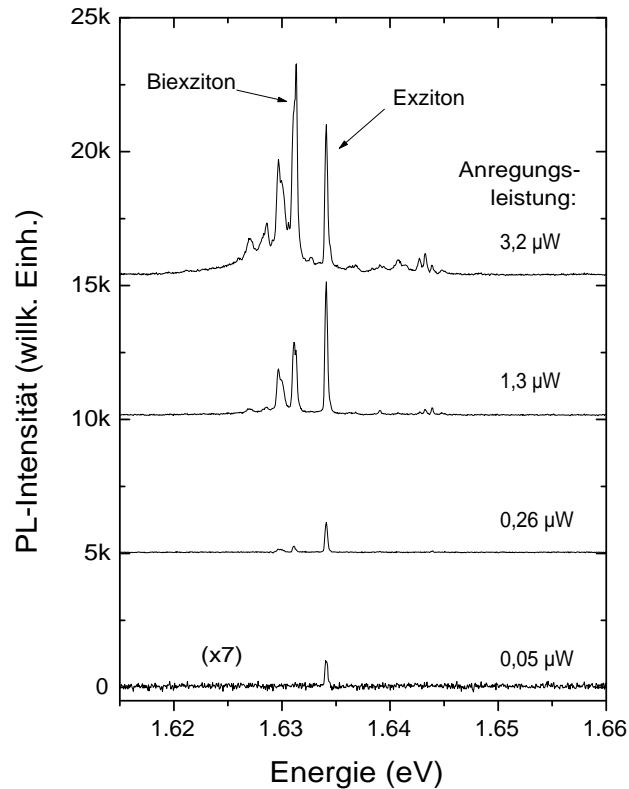


Abbildung 4.9: Leistungsabhängige PL-Spektren der GaAs/AlGaAs-QDs und wahrscheinliche Zuordnung der Exziton- und Biexziton-Linie. Das Spektrum bei niedrigster Anregungsleistung wurde um einen Faktor 7 vergrößert.

trixelement der jeweiligen Zustände schließen lässt.

Neben einzelnen Quantenpunkten wurden auch Moleküle aus zwei QDs untersucht, bei denen die anfangs erwähnten InAs-Moleküle [76] analog zu den Einzel-QDs auf das GaAs/AlGaAs-System überführt wurden. In Abbildung 4.10 ist eine AFM-Aufnahme der QD-Struktur sowie ein PL-Spektrum der Probe dargestellt. Die Spektren (inklusive deren Leistungsabhängigkeit) sind auch in dieser Probe alle sehr ähnlich, unterscheiden sich aber qualitativ von den Spektren der Einzel-Quantenpunkte. Die stärkste Emission wird insbesondere immer von einer ganzen Reihe benachbarter Linien beobachtet, die so nahe beieinander liegen, dass sie nicht einzeln aufgelöst werden können. Eine zuverlässige Zuordnung von Linien oder eine Aussage über die Kopplungsstärke zwischen den zwei QDs des Moleküls kann hier aufgrund der eingeschränkten Kontrollmöglichkeiten und der verfügbaren Auflösung nicht

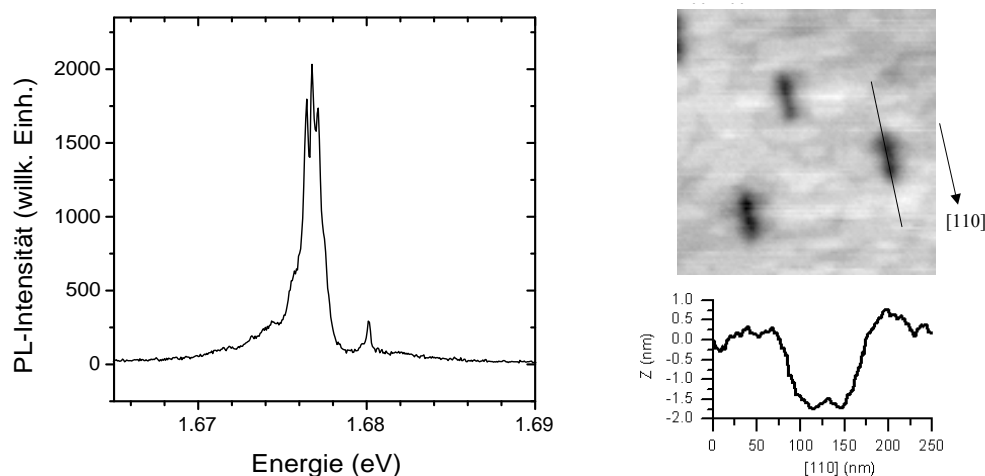


Abbildung 4.10: AFM-Aufnahme der zugrunde liegenden Nanolöcher für laterale QD-Moleküle (rechts) und dazugehöriges PL-Spektrum (links). Alle Spektren der Probe sehen qualitativ sehr ähnlich aus und zeigen insbesondere eine Reihe sehr eng benachbarter Linien, die nicht einzeln aufgelöst werden können. Eine Zuordnung der Linien ist zu diesem Zeitpunkt nicht möglich.

gegeben werden. Man bräuchte dafür wahrscheinlich Serien von Molekülen mit unterschiedlichem Inter-Dot-Abstand und einen Abstimmparameter für die Kopplung, beispielsweise über ein laterales elektrisches Feld.

Eine Besonderheit der GaAs/AlGaAs-Quantenpunkte besteht darin, dass man allein aus den strukturellen Eigenschaften mit Hilfe theoretischer Modelle relativ präzise Aussagen über die einzelnen Energiezustände treffen kann. Im vorliegenden Fall wurden theoretische Spektren von Andrei Schliwa mittels 1-Band und 8-Band $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ Methoden berechnet [71]. Bei In(Ga)As-Quantenpunkten wird dies durch Spannungsfelder sowie starke Interdiffusion zwischen Dot- und Matrixmaterial so weit erschwert, dass zuverlässige Aussagen nicht mehr möglich sind⁶. Zum Vergleich von Theorie und Experiment wurden PLE-Messungen durchgeführt. Da es sich hier um eine Absorptionsmessung handelt, werden nur 1-Exziton-Zustände detektiert. Damit kann in den theoretischen Berechnungen auf die meist sehr komplexe Beschreibung von Vielteilchen-Wechselwirkungen verzichtet werden.

Abbildung 4.11 zeigt PL- und PLE-Spektren im Vergleich zu theoretisch berechneten Übergängen von Probe 63593 (Einzel-Quantenpunkte). Die strukturellen Eigenschaften für die theoretische Berechnung wurden an einem ähnlichen, nicht jedoch am selben QD wie die PL(E)-Spektren gemessen.

⁶In diesem Fall wird im Allgemeinen ein effektives Einschlusspotenzial ohne atomistische Grundlage verwendet.

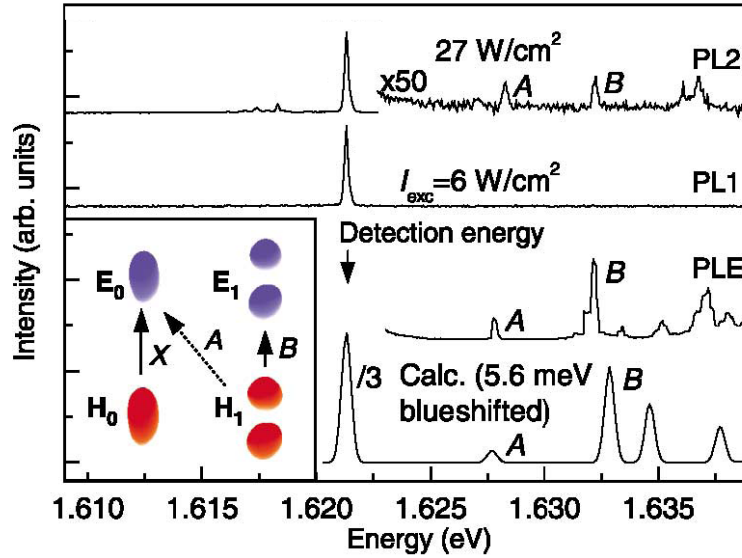


Abbildung 4.11: PL-, PLE- und berechnetes Spektrum für Probe 63593 (einzelne GaAs/AlGaAs-QDs), sowie den Übergängen A und B zugeordnete Wellenfunktionen. Die Detektion der PLE-Messung erfolgt auf der 1X-Linie. Die spektrale Lage und relative Intensität der angeregten Zustände A und B stimmt gut mit der theoretischen Berechnung überein. Beide Linien sind bei genügender Anregungsleistung auch (schwach) im PL-Spektrum erkennbar.

Um diesen Unterschied auszugleichen wurde das berechnete Spektrum um 5.6 meV blauverschoben, sodass der 1X-Übergang in Rechnung und Messung übereinstimmt. Die Detektion für die PLE-Messung fand auf der 1X-Linie statt. Die beiden mit A und B bezeichneten Übergänge stimmen sowohl bezüglich ihrer spektralen Lage, als auch bezüglich der relativen Intensitäten (Absorptionsquerschnitt) gut mit dem berechneten Spektrum überein. Linie B entspricht dabei dem p-Schalen-Exziton, Linie A entspricht der Rekombination eines Elektrons der s-Schale mit einem Loch der p-Schale. Die entsprechenden Wellenfunktionen sind ebenfalls in Abbildung 4.11 dargestellt. Es ist sehr schön zu erkennen, wie der schwächere Überlapp der Wellenfunktionen für Übergang A in einer geringeren Übergangsrate resultiert. Die Linien A und B sind bei entsprechender Anregungsleistung auch in PL-Messungen sichtbar, wenn auch nur relativ schwach.

Da PLE-Messungen eine resonante Anregung des Quantenpunkts beinhalten, kann dieser (unter gewissen Voraussetzungen) als Zwei-Niveau-System beschrieben werden (vgl. Kapitel 5). Stellt man den Laser auf Resonanz zu Übergang B, so besteht dieses Zwei-Niveau-System aus dem leeren QD und

dem p-Schalen-Exziton. Bei starker cw-Anregung beobachtet man hier eine Sättigung der PLE-Intensität. Im Fall gepulster Anregung sollten sich Rabi-Oszillationen nachweisen lassen. Tatsächlich beobachtet bei zunehmender Anregungsleistung nach einem anfänglichen Anstieg der Intensität auch wieder eine Abnahme, ähnlich wie man dies für eine Variation der Pulsfläche von 0 auf ca. $1,5\pi$ erwarten würde. Die Abnahme des PLE-Signals bleibt allerdings auch für erheblich höhere Anregungsleistungen bestehen, bei denen man eigentlich schon wieder einen Anstieg der Besetzungswahrscheinlichkeit erwarten würde. Eine Messung des PL-Spektrums zeigt, dass bei diesen Anregungsbedingungen neben der 1X-Linie auch das Biexziton und einige schwache, weitere Linien zu sehen sind. Da die Detektion allein auf die 1X-Linie beschränkt ist, spiegelt das PLE-Signal in diesem Fall nicht mehr die tatsächliche Besetzung des Quantenpunkts wider. Die Beobachtung mehrerer Linien (also mehrerer Exzitonen zur selben Zeit) zeigt darüber hinaus, dass die Annahme eines Zwei-Niveau-Systems, dessen Besetzung ja maximal den Wert eins erreichen kann, nicht mehr gültig ist. Im Gegensatz zu Messungen mit spektral extrem schmaler kontinuierlicher Anregung, kann bei gepulster Anregung nicht grundsätzlich ausgeschlossen werden, dass Renormalisierungsenergien aufgrund von Mehrfachbesetzung nicht innerhalb des Laserspektrums liegen. Bei Anregung in die p-Schale ergibt sich eine ganze Reihe von Möglichkeiten für eine solche Mehrfachbesetzung. Alle Messungen in Kapitel 6 ff. (InGaAs-QDs, Photodioden) wurden dagegen am QD-Grundzustand durchgeführt. Die einzig relevante Renormalisierungsenergie in diesem Fall ist die Biexziton-Bindungsenergie in der s-Schale, welche auch bei den GaAs/AlGaAs-Quantenpunkten größer als die spektrale Breite der Laserpulse ist.

Kapitel 5

Theorie: Optik an Zwei-Niveau-Systemen

5.1 Einführung

5.1.1 Zwei-Niveau-Systeme

Zwei-Niveau-Systeme dienen häufig als Ausgangspunkt für grundlegende theoretische wie auch experimentelle Untersuchungen der Quantenmechanik, da sie das einfachste (nicht-triviale) Quantensystem darstellen. Die theoretischen Grundlagen zur Wechselwirkung von Licht und Zwei-Niveau-Systemen werden daher in zahlreichen Lehrbüchern behandelt. Einen ausführlichen Überblick bietet [3], viele Gebiete werden aber auch in anderen Büchern zur Quantenoptik und Laserspektroskopie behandelt [32, 60]. Das folgende Kapitel gibt eine Einführung in die für diese Arbeit relevanten Ergebnisse der theoretischen Behandlung. Herleitungen werden meist nur mittels kurzer qualitativer Argumente angedeutet, da eine komplette Einführung der nötigen Modelle den Rahmen dieser Arbeit übersteigen würde. Es wird versucht, bei allen Bezeichnungen die in aktuellen Veröffentlichungen gängigste Schreibweise zu verwenden.

Da ein Zwei-Niveau-System zunächst nur ein abstraktes theoretisches Modell darstellt, können grundsätzliche Aussagen auf viele unterschiedliche physikalische Systeme übertragen werden. Neben den hier behandelten Exzitonen in Quantenpunkten können auch einzelne elektronische Übergänge in Atomen und einzelne Spins als Zwei-Niveau-System behandelt werden. Es ist dabei unerheblich, ob das System tatsächlich aus mehreren Niveaus besteht, sofern sich die Wechselwirkung mit dem Lichtfeld nur auf genau zwei der möglichen Zustände beschränkt. Dies ist der Fall, wenn Übergänge zwischen beiden Niveaus resonant angeregt werden und die spektrale Breite des Lasers deutlich

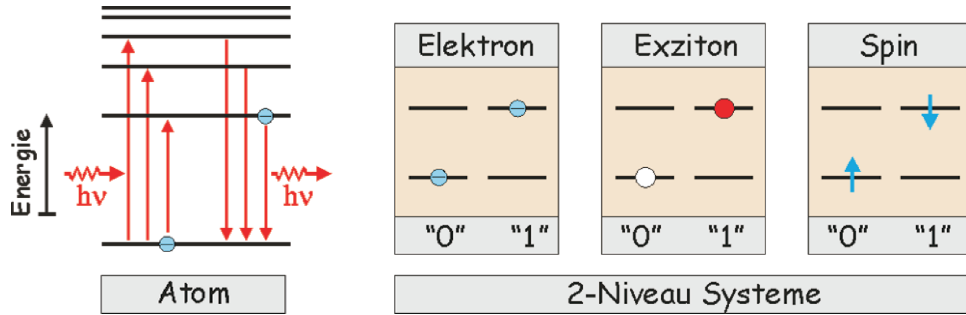


Abbildung 5.1: Verschiedene Arten von Zwei-Niveau-Systemen. Im hier behandelten QD-System (Mitte) besteht der untere Zustand in der Abwesenheit, der obere Zustand in der Anwesenheit eines einzelnen Exzitons. Das tatsächliche System kann auch aus mehreren Zuständen bestehen, sofern die Wechselwirkung mit dem Lichtfeld auf einen einzigen Übergang beschränkt ist.

geringer ist als der Abstand zum nächsten benachbarten optischen Übergang.

Im Fall einzelner Exzitonen im QD stellt der leere QD das untere Niveau und das einzelne Exziton das obere Niveau dar. Die energetisch nächstgelegenen Übergänge beinhalten die Erzeugung des Biexzitons, entweder aus dem schon besetzten QD ($1X \rightarrow 2X$) oder über einen Zwei-Photon-Prozess aus dem leeren QD ($0 \rightarrow 2X$, siehe Kapitel 9). Um eine möglichst schnelle und gleichzeitig spektral hinreichend schmale Anregung zu erreichen, wird ein Laser mit einer Pulsdauer von wenigen Pikosekunden verwendet.

5.1.2 Wechselwirkung mit dem Strahlungsfeld

Bei der theoretischen Beschreibung der Wechselwirkung zwischen Licht und Zwei-Niveau-Systemen werden im Allgemeinen einige vereinfachende Näherungen gemacht, welche im Folgenden kurz vorgestellt werden:

Man geht meist von einer *semiklassischen* Beschreibung aus, in der das Zwei-Niveau-System zwar quantenmechanisch behandelt wird, das Licht aber als klassische elektromagnetische Welle beschrieben wird. Darüber hinaus wird die *Dipolnäherung* verwendet, die zum Ausdruck bringt, dass das Quantensystem wesentlich kleiner ist als die Wellenlänge des Lichts (hier: $d_{QD} \approx 0,03 \mu\text{m}$ im Vergleich zu $\lambda \approx 1 \mu\text{m}$). Die räumliche Variation des elektrischen Feldes kann daher vernachlässigt werden. Die einzige Wechselwirkung eines homogenen elektrischen Wechselfelds mit dem Quantenpunkt erfolgt über dessen Dipolmoment, wodurch sich die Bezeichnung der Näherung erklärt.

Der Quantenpunkt besitzt zwar auch ein statisches Dipolmoment in z -

Richtung, für die Wechselwirkung mit dem Strahlungsfeld ist aber nur der dynamische Dipol des Übergangs in Polarisationsrichtung des Lichts von Bedeutung. Dieser Dipol $\vec{\mu}$ wird, je nach Schreibweise, über das Integral der Wellenfunktionen von Anfangs- und Endzustand (ψ_i bzw. ψ_f) oder das entsprechende Matrixelement ausgedrückt:

$$\vec{\mu} = \int \psi_i^*(\vec{r}) e\vec{r} \psi_f(\vec{r}) d^3r = \langle 0 | e\vec{r} | 1 \rangle$$

e bezeichnet hier die Elementarladung, im Fall der Matrixschreibweise ist $e\vec{r}$ der Dipoloperator. Die beiden Zustände des Zwei-Niveau-Systems werden im Allgemeinen mit $|0\rangle$ und $|1\rangle$ bezeichnet.

Im Gegensatz zum räumlichen Anteil, der allein durch das Dipol-Matrixelement beschrieben wird, muss die zeitliche Entwicklung des Quantensystems explizit berechnet werden. Sowohl für die anschauliche Vorstellung als auch für die theoretische Berechnung wird häufig ein dynamisches Bezugssystem gewählt, welches im Englischen als *rotating wave frame* bezeichnet wird. Man betrachtet dann nicht mehr die schnelle Oszillation des Lichtfelds und des Übergangs (hier: $\omega = E/\hbar \approx 2 \cdot 10^{15} \text{s}^{-1}$) sondern nur noch deren Frequenzunterschied $\delta = \omega_{\text{Laser}} - \omega_{\text{QD}}$. In dieser Betrachtungsweise ist implizit die Annahme eines monochromatischen Laserfelds enthalten, da nur dann die Rotationsgeschwindigkeit des Bezugssystems klar definiert ist. Für cw-Anregung ist diese Annahme sehr gut erfüllt. Bei gepulster Anregung ist die spektrale Breite des Lasers dagegen nicht immer vernachlässigbar. Für die exakte Beschreibung müsste hier eine numerische Lösung berechnet werden. Die im Folgenden dargestellten analytischen Lösungen bieten allerdings immer einen guten Anhaltspunkt für qualitative Erklärungen, in vielen Fällen sind sie darüber hinaus sogar quantitativ sehr genau.

In den folgenden Abschnitten wird die Lösung des zeitabhängigen Problems zunächst für Abwesenheit optischer Anregung, dann für den stationären Grenzfall kontinuierlicher Anregung und schließlich für starke Anregung in Kohärenz zum QD dargestellt.

5.2 Lebensdauer und Dephasierung

Ein angeregtes Zwei-Niveau-System kann bis zu einem gewissen Grad analog zu einem klassischen harmonischen Oszillator beschrieben werden. Ein elektrisch geladener Oszillator gibt Energie in Form von Strahlung ab, welche ihrerseits wieder die Bewegung des Oszillators beeinflusst. Es lässt sich zeigen, dass dieser Effekt wie ein Reibungsterm in der klassischen Bewegungsgleichung wirkt. Als Ergebnis erhält man eine exponentielle Abnahme sowohl

in der Oszillation (Anregung) des Quantensystems als auch in der Amplitude der abgegebenen Strahlung. Da die Amplitude des schwingenden Oszillators nicht konstant bleibt, ist auch die Frequenz der abgegebenen Strahlung nicht rein monochromatisch. Wie sich durch Fourier-Transformation leicht zeigen lässt, entspricht eine solche exponentiell gedämpfte Schwingung einer Lorentzverteilung im Spektrum der abgegeben Strahlung:

$$A(t) = A_0 \exp(-\gamma t) \exp(i\omega t) \rightarrow I(\omega) = I_0 \frac{\gamma^2}{(\omega - \omega_0)^2 + \gamma^2} \quad (5.1)$$

Die volle Halbwertsbreite (FWHM) der Lorentzlinie ist dabei durch 2γ gegeben, ihre Intensität im Maximum durch I_0 . Die Linienbreite wird häufig nicht als Frequenz- sondern als Energiespektrum angegeben: $\Delta E = \hbar \Delta\omega$ bzw. $\Gamma_0 = \hbar \cdot 2\gamma$.

In einer quantenmechanischen Behandlung wird diese Strahlungsdämpfung über die spontane Emission beschrieben. Im Teilchenbild spricht man dann nicht von einer Abnahme der Amplitude, sondern von der Lebensdauer T_1 eines Zustands, welche durch die Abnahme der Besetzungswahrscheinlichkeit auf $1/e$ definiert wird. Da die Besetzungswahrscheinlichkeit über das *Quadrat* der Wellenfunktion berechnet wird, erhält man eine Abnahme proportional zu $\exp(-2\gamma t)$. Damit ergibt sich als Beziehung zwischen Linienbreite und Lebensdauer:

$$\Gamma_0 = \hbar/T_1 \quad (5.2)$$

Diese Breite wird als *natürliche* Linienbreite des Übergangs bezeichnet und stellt eine untere Grenze für die tatsächlich beobachtbare Linienbreite dar. In Lehrbüchern zur Laserspektroskopie wird darüber hinaus häufig eine *inhomogene* Verbreiterung besprochen. Diese kommt zustande, wenn eine Überlagerung vieler Linien betrachtet wird, deren Maxima nicht alle bei derselben Frequenz liegen (z.B. Ensemble von QDs oder Dopplerverbreiterung bei bewegten Gasatomen). Da in dieser Arbeit ein *einzelnes* Zwei-Niveau-System untersucht wird, ist eine inhomogene Verbreiterung grundsätzlich ausgeschlossen.

Die Halbwertsbreite eines einzelnen Übergangs wird als *homogene* Linienbreite bezeichnet. Auch diese kann eine deutliche Verbreiterung aufweisen, wenn die Kohärenz, d.h. eine feste Zeitentwicklung der Phase des betrachteten Zustands, schneller zerstört wird als der Zustand selbst. Die Zeitkonstante, mit der eine feste Phasenlage des Quantenzustands abnimmt, wird mit T_2 bezeichnet. Für die Linienbreite erhält man:

$$\Gamma = 2\hbar/T_2 \quad (5.3)$$

Aus dem Vergleich mit Formel 5.2 erkennt man sofort, dass ohne reine Dephasierungsprozesse $T_2 = 2 T_1$ gelten muss. Der Faktor 2 erklärt sich dadurch, dass bei einer Untersuchung der Phase (T_2) die Amplitude der Wellenfunktion betrachtet wird, bei Untersuchung der Besetzungswahrscheinlichkeit (T_1) dagegen deren Quadrat. Reine Dephasierungsprozesse (engl: *pure dephasing*) ohne einen Übergang zwischen den Energieniveaus werden über die Zeitkonstante T_2^* charakterisiert. Insgesamt erhält man:

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2^*} \quad (5.4)$$

In vielen physikalischen Systemen ist die Dephasierungszeit T_2 erheblich kürzer als die Lebensdauer T_1 des Zustands. Bei selbstorganisierten Quantenpunkten werden dagegen sehr lange Dephasierungszeiten gemessen, was darauf schließen lässt, dass reine Dephasierung in diesem System nur eine geringe oder zumindest keine dominante Rolle spielt (siehe z.B. [55]).

Als Folge langer Dephasierungszeiten ist die Linienbreite der optischen Übergänge sehr schmal. Eine Bestimmung von T_2 aus der Linienbreite ist daher nur bei extrem hoher experimenteller Auflösung möglich. Eine andere Möglichkeit bietet hier die direkte Messung von T_2 über Doppelpuls-Experimente (siehe Kapitel 8). Dabei wird der QD durch den ersten Puls zunächst mit definierter Phase angeregt und dann die Phasenkohärenz über die Interferenzfähigkeit mit dem zweiten Puls detektiert. Nimmt die Amplitude der Interferenzen exponentiell mit der Zeit ab, so ist die entsprechende Zeitkonstante direkt durch T_2 gegeben. Bei den hier untersuchten Proben ist die Lebensdauer des Exzitons nicht nur durch Strahlung sondern auch durch Tunneln begrenzt. Für die prinzipielle Beschreibung des Systems bedeutet dies im Wesentlichen nur einen weiteren Beitrag zu T_1 in Form von

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{\tau_{opt}} + \frac{1}{\tau_{tunnel}}.$$

5.3 Sättigungsphänomene

5.3.1 Sättigung

Im Fall kontinuierlicher Anregung lässt sich das Zwei-Niveau-System am besten anhand von Rategleichungen beschreiben. Die Absorption wird dabei über den Einsteinkoeffizienten B_{01} , die stimulierte Emission über B_{10} und die spontane Emission über A_{10} beschrieben¹. In unserem Fall kommt noch

¹Die Indizes der Einstein-Koeffizienten bezeichnen jeweils Ausgangs- und Endzustand. In Konsistenz zu den anderen Kapiteln wird das untere Niveau mit „0“ und das obere mit „1“ bezeichnet.

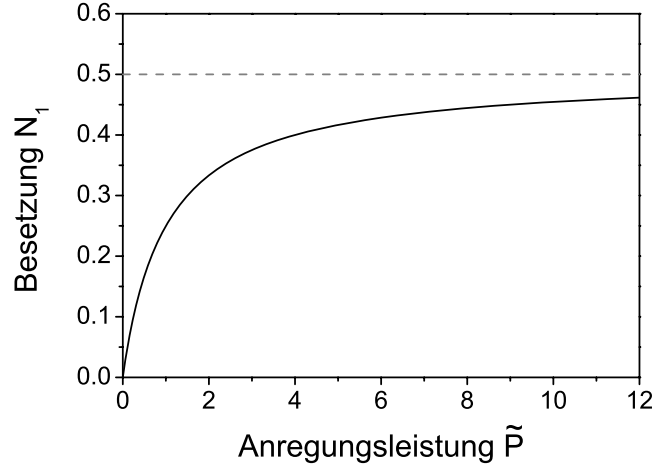


Abbildung 5.2: Besetzungswahrscheinlichkeit des oberen Niveaus eines Zwei-Niveau-Systems in Abhängigkeit von der normierten, dimensionslosen Anregungsleistung \tilde{P} . Bei hohen Anregungsleistungen nähert sich die Besetzung asymptotisch dem Wert $1/2$ an (Sättigung).

die Tunnelrate $1/\tau_{\text{tunnel}}$ hinzu. Für den Übergang vom oberen Niveau (Besetzungswahrscheinlichkeit N_1) in das untere Niveau (Besetzungswahrscheinlichkeit N_0) erhält man folgende Ratengleichung:

$$\frac{dN_1}{dt} = -A_{10}N_1 - B_{10}N_1\rho + B_{01}N_0\rho + \frac{N_1}{\tau_{\text{tunnel}}} \quad (5.5)$$

Hier bezeichnet ρ die Energiedichte des Strahlungsfeldes. Im Zwei-Niveau-System gilt darüber hinaus für die Besetzungswahrscheinlichkeit $N_0 + N_1 = 1$ und für die Einsteinkoeffizienten $B_{01} = B_{10}$. Im hier betrachteten stationären Fall ist außerdem $dN_1/dt = dN_2/dt = 0$.

Da nur die Absorption und stimulierte Emission, beide beschrieben über gleich große B -Koeffizienten, mit der Intensität des Strahlungsfeldes skalieren, erhält man im Limes sehr hoher Anregungsleistung gleiche Besetzungswahrscheinlichkeiten für das obere und untere Niveau. Insgesamt kann für die Besetzungswahrscheinlichkeit in Abhängigkeit von der Anregungsleistung folgende Beziehung hergeleitet werden:

$$N_1 = \frac{1}{2} \frac{\tilde{P}}{\tilde{P} + 1} \quad (5.6)$$

Dabei bezeichnet \tilde{P} eine dimensionslose, normierte Anregungsleistung². Diese

²In [3] wird diese mit I bezeichnet. Die Umbenennung auf \tilde{P} wurde vorgenommen, um

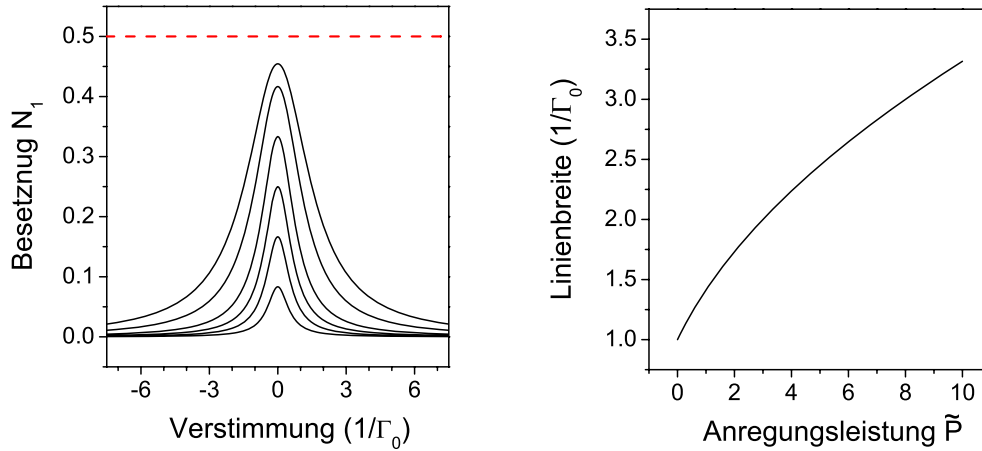


Abbildung 5.3: Links: Besetzungswahrscheinlichkeit N_1 in Abhängigkeit von der Verstimmung des Lasers gegenüber der Resonanz, aufgetragen für verschiedene Anregungsleistungen $\tilde{P} = 0, 2; 0, 5; 1; 2; 5; 10$. Rechts: Linienbreite in Abhängigkeit von \tilde{P} . Die Linienverbreiterung ist direkte Folge der leistungsabhängigen Sättigung.

ist ein grundlegender Parameter des Zwei-Niveau-Systems und kann auch über die Rabi-Frequenz Ω_0 (siehe nächstes Unterkapitel) ausgedrückt werden: $\tilde{P} = \Omega_0^2 T_1 T_2$.

5.3.2 Power broadening

Als direkte Konsequenz der Sättigung eines Übergangs ergibt sich die so genannte Sättigungsverbreiterung (engl.: *power broadening*) der Absorptionslinie bei hoher Anregungsleistung. Als Ausgangspunkt wird eine Lorentzlinie der homogenen Breite Γ_0 betrachtet. Bei niedriger Intensität steigt die Besetzungswahrscheinlichkeit des oberen Niveaus zunächst proportional zur Anregungsleistung. Bis auf die Amplitude (Höhe) ändert sich die Linienform dabei nicht. Geht man jedoch zu hohen Anregungsleistungen, so tritt der oben beschriebene Sättigungseffekt ein und eine Erhöhung der Laserintensität zeigt umso weniger Wirkung, je näher die Besetzungswahrscheinlichkeit am Maximalwert $1/2$ liegt. Dieser Effekt tritt natürlicherweise im Zentrum der Absorptionslinie früher ein als an deren Flanken. Während die Besetzung für exakte Resonanz also schon nahezu ihren Maximalwert erreicht hat, kann sie für leicht verstimmte Anregung noch weiter steigen. Dies resultiert in einer Verbreiterung der Absorptionslinie. Es lässt sich zeigen, dass die satti-

in späteren Kapiteln eine Verwechslung mit dem Photostrom (ebenfalls I) zu vermeiden.

gungsverbreiterte Linie wieder ein Lorentzprofil ergibt, allerdings mit einer größeren Halbwertsbreite Γ :

$$\Gamma = \Gamma_0 \sqrt{1 + \tilde{P}} \quad (5.7)$$

Die Besetzungswahrscheinlichkeit in Abhängigkeit von der Verstimmung des Lasers gegenüber der Resonanz des Zwei-Niveau-Systems ist in Abbildung 5.3 für mehrere Werte von \tilde{P} aufgetragen. Die Sättigungsverbreiterung erhöht die Linienbreite *unabhängig* von Dephasierungsprozessen. Für eine korrekte Bestimmung von T_2 -Zeiten aus einer Messung der Linienbreite muss dieser Effekt also immer berücksichtigt werden.

5.4 Rabi-Oszillationen

5.4.1 Blochkugel

Zur Beschreibung einer kohärenten Wechselwirkung des Zwei-Niveau-Systems mit dem Strahlungsfeld verwendet man die optischen Blochgleichungen. Die Blochgleichungen wurden ursprünglich zur Beschreibung eines Spin-1/2 Systems aufgestellt, sie lassen sich aber direkt auf das hier behandelte System übertragen. Aufgrund dieser Analogie erhält man auch eine anschauliche Darstellung des kohärenten Zustands über die so genannte Blochkugel, die ursprünglich die Orientierung des Spins darstellte (siehe Abbildung 5.4). Die w -Achse bezeichnet dabei die Besetzung des Zwei-Niveau-Systems, wobei in unserem Fall $w = 1$ dem einzelnen Exziton $|1\rangle$ entspricht und $w = -1$ dem leeren Quantenpunkt $|0\rangle$. Durch u - und v -Achse wird die Phase einer kohärenten Superposition der reinen Zustände $|0\rangle$ und $|1\rangle$ beschrieben. Jede Messung bedeutet eine Projektion des kohärenten Zustands auf die w -Achse (Messung der Besetzungswahrscheinlichkeit).

Die einzelnen Komponenten des Blochvektors sind im *rotating wave frame* definiert durch:

$$u = 2 \operatorname{Re}\{c_0^* c_1 \exp(-i\delta t)\} \quad (5.8a)$$

$$v = 2 \operatorname{Im}\{c_0^* c_1 \exp(-i\delta t)\} \quad (5.8b)$$

$$w = c_1^* c_1 - c_0^* c_0 \quad (5.8c)$$

Dabei stehen c_0 und c_1 für die komplexen Amplituden der Wellenfunktionen der Zustände $|0\rangle$ und $|1\rangle$, $c_i^* c_i$ ist also die Besetzungswahrscheinlichkeit

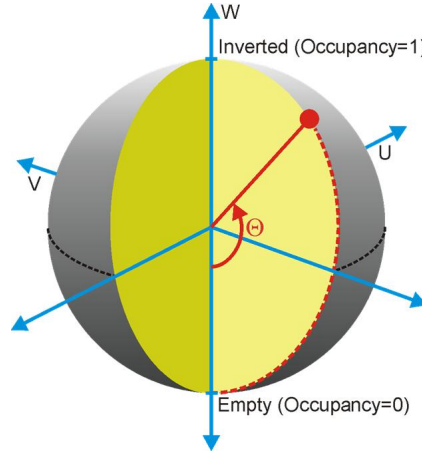


Abbildung 5.4: Die kohärente Anregung eines Zwei-Niveau-Systems kann anschaulich über die Blochkugel dargestellt werden. Die w -Achse beschreibt dabei die Besetzung des Systems, u - und v -Achse definieren die Phaselage.

des Zustands $|i\rangle$. Die Verstimmung des Lasers gegenüber dem Zwei-Niveau-System ($\omega_{\text{Laser}} - \omega_{QD}$) wird weiterhin mit δ bezeichnet. Führt man außerdem die Rabi-Frequenz $\Omega_0 = \vec{\mu}\vec{E}_0/\hbar$ ein, welche proportional zur Amplitude \vec{E}_0 des elektrischen Feldvektors des Strahlungsfelds ist, so lauten die optischen Blochgleichungen in Vektorschreibweise:

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} \Omega_0 \\ 0 \\ \delta \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix} \quad (5.9)$$

Im Fall ohne Dämpfung lässt sich zeigen, dass der Blochvektor sich immer auf der Oberfläche einer Kugel mit Radius Eins bewegt, d.h. $u^2 + v^2 + w^2 = 1$.

5.4.2 Resonante Anregung

Im Fall resonanter Anregung ($\delta = 0$) beschreiben die Bloch-Gleichungen eine einfache Drehung um die u -Achse mit der Winkelgeschwindigkeit Ω_0 . Aufgrund endlicher Dekohärenzzeiten ist diese Beschreibung im realen System aber nur für eine begrenzte Zeit gültig. Man verwendet daher kurze Pulse, in unserem Fall mit einer Pulslänge von zwei bis drei Pikosekunden, sodass die kohärente Wechselwirkung wesentlich kürzer ist als die Dephasierungszeit des Systems. Ein Rechteckspuls der Dauer t würde eine Drehung um den Winkel $\theta = \Omega_0 t = \vec{\mu}\vec{E}_0 t/\hbar$ bewirken. Die Erweiterung dieser Beziehung auf

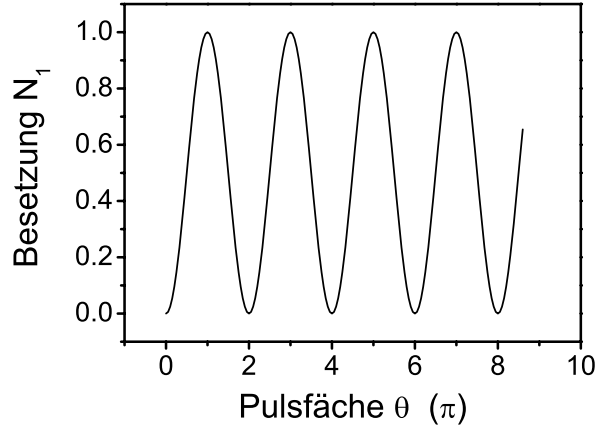


Abbildung 5.5: Rabi-Oszillation für resonante Anregung, ohne Berücksichtigung von Dephasierung. Der Drehwinkel θ (Pulsfläche) ist bei konstanter Laserleistung proportional zur Zeit, bei konstanter Pulslänge proportional zur Wurzel der Anregungsleistung.

Pulse beliebiger Form ist gegeben durch:

$$\theta = \frac{\vec{\mu}}{\hbar} \int \vec{E}_0(t) dt \quad (5.10)$$

Geht man von einem Zwei-Niveau-System im unteren Zustand aus, so ist nach dem Puls die w -Komponente des Blochvektors durch $w = -\cos(\theta)$ gegeben. Im Experiment ist das beobachtbare Messsignal proportional zur Besetzungswahrscheinlichkeit des oberen Zustands:

$$N_1 = \sin^2(\theta/2) \quad (5.11)$$

Die kohärente Oszillation eines Zwei-Niveau-Systems unter resonanter Anregung wurde erstmalig 1937 von I. I. Rabi für ein Spin-1/2 System beschrieben und ist daher unter dem Namen Rabi-Oszillation bekannt [69].

5.4.3 Verstimmte Anregung

Im bisher behandelten Fall war die u -Komponente des Blochvektors immer identisch gleich Null³. Das ist dadurch zu erklären, dass bei resonanter Anregung mit einem einzelnen Puls die Phasenbeziehung zwischen Laser und

³Diese Aussage gilt nur für den *rotating wave frame*. Im statischen Bezugssystem erhält man zusätzlich eine Rotation in der u - v -Ebene mit der Frequenz des Anregungslichts. Die Rabi-Oszillation entspricht dann einer Spiralbewegung auf der Blochkugel.

Zwei-Niveau-System immer konstant ist. Bei verstimmter Anregung ($\delta \neq 0$) erhält man zusätzlich eine Bewegung in der u - v -Ebene, da die zeitliche Entwicklung der Phase des Zwei-Niveau-Systems von der des Lichtfelds unterscheidet. Aus Gleichung (5.9) ist ersichtlich, dass es sich hier um eine Rotation um eine nach unten oder oben verkippte Achse handelt. Ausgehend von $w = -1$ kann so nicht mehr die volle Besetzungsinversion $w = 1$ erreicht werden. Darüber hinaus erhöht sich die Rabi-Frequenz auf $\Omega = \sqrt{\Omega_0^2 + \delta^2}$.

Diese Beschreibung gilt jedoch nur für einen monochromatischen Rechteckspuls. Die oben eingeführte Definition der Pulsfläche ist bei verstimmter Anregung nicht mehr exakt gültig. Eine vermutlich erheblichere Abweichung von der einfachen analytischen Beschreibung ergibt sich jedoch aus der spektralen Breite des tatsächlichen Pulses. Bei relativ schwacher Verstimmung erhält man dadurch im Experiment nicht nur um δ verstimmte Anregung aus dem Maximum des Pulses sondern auch einen (schwächeren) Anteil mit resonanter Anregung aus der Flanke der spektralen Verteilung. Experimentelle Ergebnisse zu verstimmter Anregung sowie eine entsprechende numerische Simulation sind in Kapitel 7.3 zu finden.

5.5 Mehrfachpulse und Ramsey-Interferenzen

Eine weitere Möglichkeit, den Blochvektor in u -Richtung zu drehen, ergibt sich durch Anregung mit Mehrfachpulsen. Die Phase des Systems wird dabei durch den ersten Laserpuls bestimmt. Ist der zweite Puls in Phase mit dem ersten, so wird die Rotation auf der Blochkugel einfach fortgesetzt, d.h. es ergibt sich eine weitere Drehung um die u -Achse oder, im verstimmten Fall, um die verkippte Rotationsachse. Ist die Phase des zweiten Pulses dagegen um den Winkel φ gegenüber dem ersten Puls verschoben, so ist auch die Rotationsachse der zweiten Anregung um den Winkel φ in der u - v -Ebene gedreht. Eine Anregung mit einem π -Puls, gefolgt von einem um 90° phasenverschobenen $\pi/2$ -Puls, würde also eine Rotation auf der Blochkugel zunächst von $w = -1$ auf $w = 1$ bewirken und anschließend von $w = 1$ auf $w = (-1)$ (siehe Abbildung 5.6).

Als nächstes sollen die Auswirkungen einer geringen Verstimmung in Doppelpulsexperimenten betrachtet werden. Die Verstimmung sei dabei deutlich kleiner als die spektrale Breite der Pulse: $\delta/\tau_{Puls} \ll 1$. Die beiden Pulse können daher näherungsweise als resonant angesehen werden. Auch in diesem Fall definiert der erste Puls wieder die Phase des Zwei-Niveau-Systems. Der Blochvektor rotiert im *rotating wave frame* nun aber mit der Winkelge-

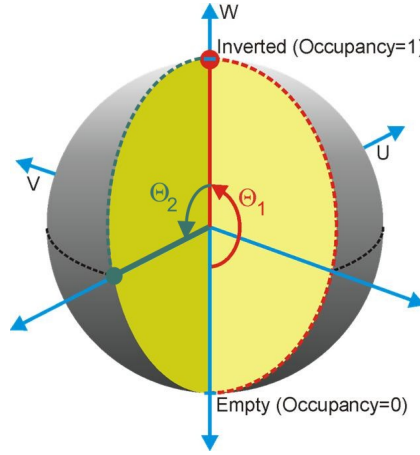


Abbildung 5.6: Anregung mit einem π -Puls und einem um 90° phasenverschobenen $\pi/2$ -Puls.

schwindigkeit δ um die w -Achse. Bei Ankunft des zweiten Pulses zum Zeitpunkt τ_{delay} ist der Blochvektor damit um den Winkel $\varphi = \delta \cdot \tau_{delay}$ in der u - v -Ebene gedreht.

Wir gehen im Folgenden davon aus, dass der zweite Puls genau in Phase mit dem ersten ist und beide Teilpulse eine Pulsfläche von $\pi/2$ besitzen. Der erste Puls dreht den Blochvektor von negativer u -Richtung gesehen gegen den Uhrzeigersinn auf $v = -1$. Für eine Verstimmung $\delta = n \cdot 2\pi/\tau_{delay}$ wird diese Rotation in Phase fortgesetzt und der Blochvektor hat am Ende den Wert $w = 1$. Für $\delta = (2n + 1)\pi/\tau_{delay}$ ist der Blochvektor dagegen vor dem zweiten Puls bei $v = +1$ und wird entsprechend durch die Rotation gegen den Uhrzeigersinn um die $-u$ -Achse wieder auf den Ausgangszustand $w = -1$ zurückgedreht. Für $\delta = (n + 1/2)\pi/\tau_{delay}$ ist der Blochvektor schließlich bei $u = \pm 1$ und wird durch den zweiten Puls, der ja eine Rotation um die u -Achse beschreibt, überhaupt nicht beeinflusst. Die Besetzungswahrscheinlichkeit nach beiden Pulsen oszilliert also in Abhängigkeit von δ und τ_{delay} gemäß:

$$N_1 = \cos^2(\delta\tau_{delay}/2) \quad (5.12)$$

Diese Art von Oszillationen ist als Ramsey-Interferenz bekannt [70]. Ihre besondere Relevanz erhalten diese Interferenzen dadurch, dass das System bei großem Pulsabstand τ_{delay} extrem sensitiv auf eine kleine Verstimmung δ reagiert. Es ist dabei grundsätzlich unerheblich, ob die Verstimmung wie im ursprünglichen Ramsey-Experiment durch eine Variation der Anregungsfrequenz oder wie in unserem Fall durch eine Variation der Übergangsenergie des Zwei-Niveau-Systems verursacht wird.

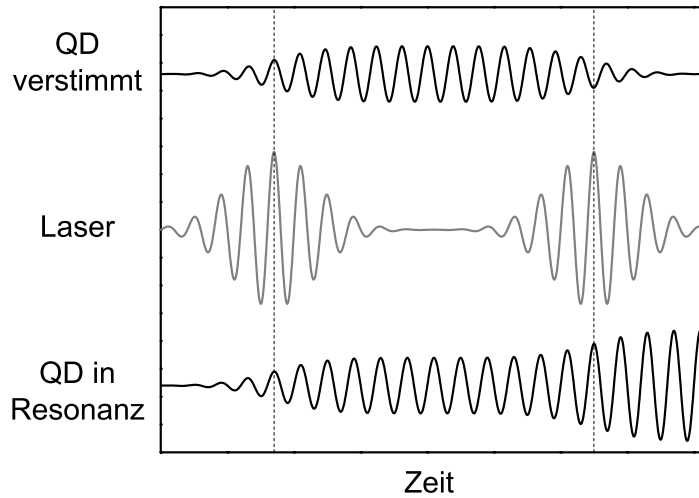


Abbildung 5.7: Phasenbeziehungen im Ramsey-Experiment. Im resonanten Fall ergibt sich konstruktive, im leicht verstimmten Fall destruktive Interferenz mit dem zweiten Puls.

Derselbe Sachverhalt lässt sich natürlich auch im „klassischen“ Bild eines wellenoptischen Interferenzexperiments betrachten. Die entsprechenden Phasenbeziehungen zwischen QD und Laserpuls sind schematisch in Abbildung 5.7 dargestellt. Da der erste Laserpuls die Phase der QD-Anregung erst definiert, sind beide zu diesem Zeitpunkt immer in Phase. Eine kleine Verstimmung des Quantenpunkts reicht allerdings schon aus, dass dieser bei Ankunft des zweiten Pulses genau außer Phase zum Laser ist (obere Kurve). In Abhängigkeit von der Verstimmung des QDs ergibt sich also ein Wechsel zwischen konstruktiver und destruktiver Interferenz mit dem zweiten Puls und man beobachtet letztlich in der Besetzungswahrscheinlichkeit genau die oben beschriebenen Ramsey-Interferenzen. Die Tatsache, dass der jeweilige Einzelpuls als nahezu resonante Anregung betrachtet werden kann, kommt in Abbildung 5.7 dadurch zum Ausdruck, dass die Phasenbeziehung zwischen Laser und QD für die Dauer eines einzelnen Pulses nahezu konstant ist.

Kapitel 6

cw-Messungen

6.1 Messmethode und Auflösungsvermögen

Die Linienbreite des Quantenpunkt-Grundzustands ist bei tiefen Temperaturen so klein, dass sie mit einem herkömmlichen Spektrometer nicht gemessen werden kann. Selbst bei Verwendung extrem hochauflösender Spektrometer ist die Bestimmung der Linienbreite nur durch Entfaltung mit der spektralen Auflösung des Versuchsaufbaus möglich [5]. Ein weiteres Problem stellen spektrale Fluktuationen während der oft sehr langen Integrationszeit einer Lumineszenz-Messung dar [18]. Für eine genaue Bestimmung der homogenen Linienbreite eines Quantenpunkts sind daher Absorptionsmessungen prinzipiell besser geeignet. Ein Absorptionsspektrum wird üblicherweise durch Abstimmen der Laserenergie durch den Bereich der Quantenpunktniveaus ermittelt. Die spektrale Auflösung ist allerdings nur dann durch die Laserlinie begrenzt, wenn sich der Laser modensprungfrei abstimmen lässt, d.h. bei Verwendung speziell dafür optimierter Systeme [78].

Eine technisch einfachere Möglichkeit, die relative Verstimmung von QD und Laser mit sub- μeV -Genauigkeit einzustellen, ergibt sich über den Stark-Effekt. Bei elektrisch abstimmbaren Quantenpunkten, z.B. in Form der hier verwendeten Photodioden, lässt sich die Übergangsenergie sehr genau über die angelegte Spannung variieren. Verwendet man Formel 4.2 zur Umrechnung von Spannungs- in Energiedifferenzen, so ergibt sich im üblichen Versuchsaufbau (16 Bit-DAC) eine Schrittweite von etwa $0,3 \mu\text{eV}$. Es ist zu beachten, dass diese Schrittweite zwar eine Grenze für die Einstellgenauigkeit angibt, die gemessene Absorptionslinie dadurch aber nicht verbreitert wird¹. Darüber hinaus wird das Ausgangssignal der Spannungsquelle mittels eines Tiefpassfil-

¹In einer optischen Messung würde dies einem Spektrometer mit beliebig hoher Auflösung, aber endlicher Schrittweite bei der Verstellung des Gitters entsprechen.

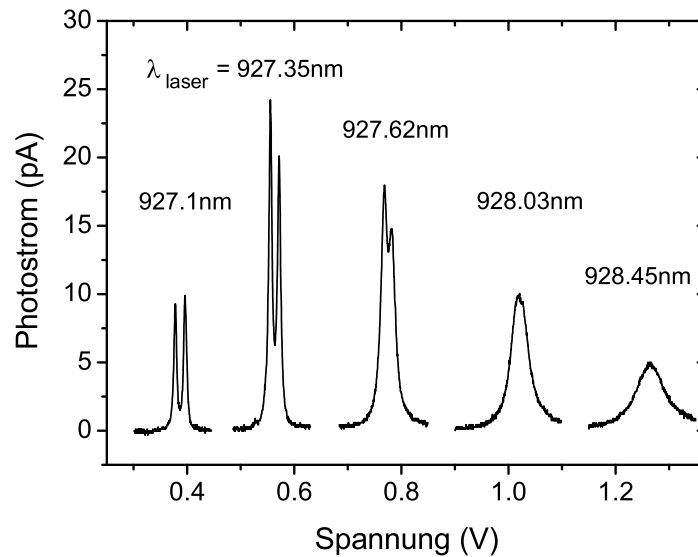


Abbildung 6.1: Photostromresonanz des 1-Exziton-Übergangs bei verschiedenen Laserwellenlängen. Die Übergangsenergie des Quantenpunkts variiert aufgrund des Stark-Effekts kontinuierlich mit der Probenspannung. Bei geringer Spannung (langer Tunnelzeit) beobachtet man sehr scharfe Linien, sodass die Feinstrukturaufspaltung des Quantenpunkts sichtbar wird.

ters geglättet, sodass sich tatsächlich sogar eine vollkommen kontinuierliche Variation der Übergangsenergie ergibt.

In Abbildung 6.1 ist die Photostromresonanz des 1-Exziton-Übergangs für verschiedene Anregungsenergien dargestellt. Jedes Einzelspektrum wurde durch Variation der Probenspannung bei einer festen Laserwellenlänge aufgenommen. Stellt man den Laser dann auf eine etwas höhere Wellenlänge, so verschiebt die Resonanz aufgrund des Stark-Effekts zu einer etwas höheren Spannung. In den abgebildeten Spektren sind zahlreiche charakteristische Eigenschaften des Systems zu erkennen, die in den folgenden Abschnitten noch einmal genauer behandelt werden:

- Die Spektren werden mit zunehmender Spannung aufgrund höherer Tunnelraten und damit kürzerer *Dephasierungszeiten* immer breiter.
- Bei niedrigen Spannungen ist die *Feinstrukturaufspaltung* des QDs deutlich erkennbar.
- Während die integrale Intensität der Absorptionslinie bei höherer Spannung konstant bleibt, ist sie im Fall des Spektrums bei 0,4 V deutlich

verringert. Die Intensität ist hier nicht mehr primär durch die Anregung sondern vielmehr durch die Tunnelzeit bestimmt (\rightarrow *Sättigung*).

Da die Spektren bei der hier verwendeten Methode nicht durch den Messaufbau verbreitert werden und da außerdem die Nachweiswahrscheinlichkeit der elektrischen Detektion bei 100% liegt², können diese Merkmale alle quantitativ auf grundlegende Systemgrößen zurückgeführt werden. Die so ermittelten Eigenschaften sind zudem in hervorragender Übereinstimmung mit kohärenten Messungen am selben Quantenpunkt (Kapitel 8.3). Es zeigt sich, dass die gemessene Linienbreite tatsächlich der natürlichen Breite des Übergangs entspricht und allenfalls durch „unsaubere“ Laseremission verbreitert werden kann (siehe Kapitel 6.2.3).

Umfangreiche Arbeiten zu hoch auflösender Spektroskopie auf Basis einer Energieabstimmung über den Stark-Effekt findet man auch in der Gruppe von K. Karrai [2,48]. Die Detektion erfolgt dort nicht elektrisch sondern über eine direkte Messung der Absorption.

6.2 Sättigungsspektroskopie

6.2.1 Sättigung

Im Folgenden soll die Leistungsabhängigkeit der Absorptionslinie näher untersucht werden. Im linken Teil von Abbildung 6.2 ist ein Photostromspektrum bei sehr geringer Anregungsleistung gezeigt. Die gemessenen Daten (offene Kreise) lassen sich sehr gut über zwei Lorentzlinien anpassen. Zur weiteren Analyse werden die Linienbreite sowie die Peakhöhe und -Position jeweils den entsprechenden Fitkurven entnommen.

Im rechten Teil von Abbildung 6.2 sind einige Spektren bei zunehmender Anregungsleistung dargestellt. Trägt man das jeweilige Maximum des Photostroms gegenüber der Anregungsleistung auf, so erhält man die in Abbildung 6.3 dargestellte Abhängigkeit (Punkte). Diese sollte sich gemäß der Theorie zur Sättigung eines Zwei-Niveau-Systems über Formel 5.6 beschreiben lassen. Die Besetzungswahrscheinlichkeit N_1 kann dabei direkt über den Photostrom gemessen werden:

$$I = N_1 \frac{e}{\tau_{\text{tunnel}}} \quad (e: \text{Elementarladung})$$

²Im geschlossenen Stromkreis geht keine Ladung verloren, sodass jeder Ladungsträger nachgewiesen wird, sofern er aus dem QD heraus tunnelt. Bei sehr langen Tunnelzeiten kann das Exziton allerdings auch strahlend rekombinieren. Das Verhältnis von Tunnelzerfall zu strahlender Rekombination lässt sich aus der Amplitude des Photostroms bei π -Puls-Anregung abschätzen (siehe Kapitel 7).

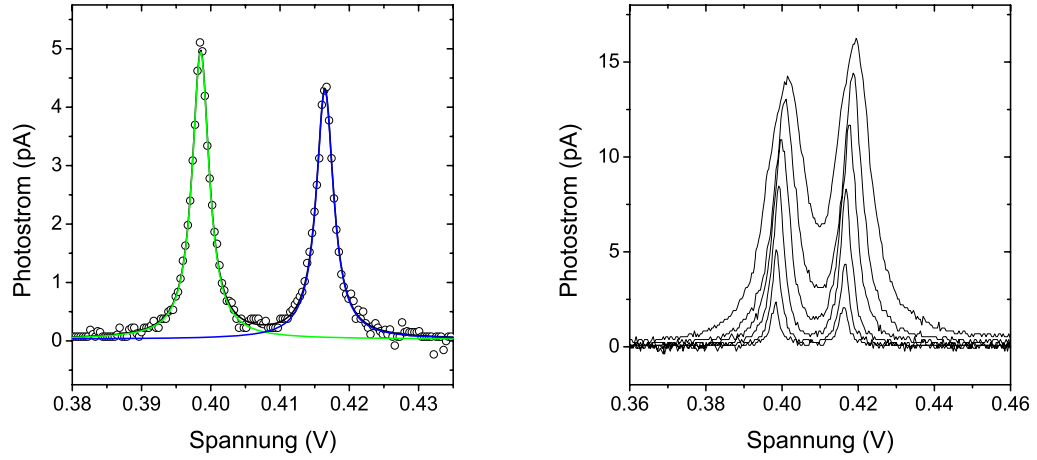


Abbildung 6.2: Photostrom-Spektrum des 1 Exziton-Zustands, links: im Vergleich zu Lorentz-Fitkurven, rechts: für wachsende Anregungsleistung.

Damit ergibt sich für das Maximum der Photostromlinien:

$$I = I_{sat} \frac{\tilde{P}}{\tilde{P} + 1} \quad \text{mit} \quad I_{sat} = \frac{e}{2 \tau_{tunnel}}$$

In Abbildung 6.3 erkennt man eine gute Übereinstimmung der Messdaten mit der theoretischen Fitkurve. Die Auswertung der Fitparameter ergibt eine Tunnelzeit von 5,3 ns und eine Zuordnung der dimensionslosen Anregungsleistung $\tilde{P} = 1$ zu einer tatsächlichen Laserleistung auf der Probe von nur 35 nW.

Da das Exziton aus Elektron und Loch besteht, treten im Allgemeinen zwei unterschiedliche Tunnelzeiten auf. Für die Sättigungsmessung entscheidend ist dabei die langsamere der beiden Tunnelzeiten. Der Ausgangszustand für eine weitere optische Anregung ist erst erreicht, wenn beide Ladungsträger aus dem QD heraus getunnelt sind. Der Zwischenzustand eines geladenen QDs ist dagegen spektral so weit gegenüber der Resonanz verstimmt, dass eine Wechselwirkung mit dem Lichtfeld vernachlässigt werden kann.

Insgesamt entspricht die Leistungsabhängigkeit also sehr gut dem theoretisch erwarteten Verhalten, wobei bei geringen Probenspannungen (hier 0,4V) schon bei relativ schwachen Anregungsleistungen < 100 nW eine deutliche Sättigung zu beobachten ist. Es wurden noch einige weitere Messreihen bei etwas höherer Spannung durchgeführt, welche qualitativ dasselbe Verhalten zeigen. Aufgrund kürzerer Tunnelzeiten nimmt der Sättigungswert des Photostroms bei höherer Spannung deutlich zu (37 pA bei 0,5 V und 75 pA bei 0,58 V). Einen guten Überblick über die leistungsabhängige Sättigung im

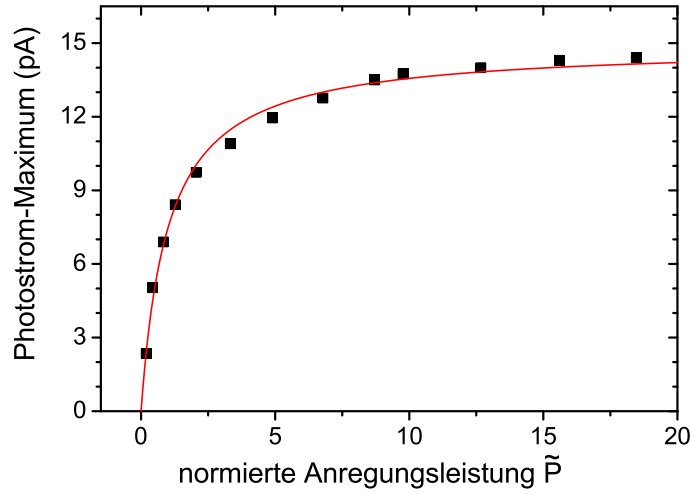


Abbildung 6.3: Photostrom-Maximum in Abhängigkeit von der Anregungsleistung. Die experimentellen Daten (Punkte) stimmen gut mit dem theoretisch erwarteten Sättigungsverhalten (Linie) überein. Der Wert $\tilde{P} = 1$ entspricht einer Laserleistung von 35 nW.

Photostrom eines einzelnen Quantenpunkts, einschließlich der theoretischen Beschreibung über Ratengleichungen findet man in [10].

6.2.2 Power broadening

Obwohl in der Atom-Optik schon seit langer Zeit bekannt [3], wurde der Effekt der Sättigungsverbreiterung (engl.: *power broadening*) in der Spektroskopie von Quantenpunkten lange nicht beachtet. Eine erste Erwähnung des Effekts findet man in [8] und [63], die hier vorgestellte und in [80] veröffentlichte Arbeit stellt allerdings die erste ausführliche, quantitative Auswertung entsprechender Sättigungsmessungen dar.

Wie in Kapitel 5 beschrieben, erwartet man als direkte Folge der Sättigung eine Verbreiterung der Absorptionslinie gemäß $\Gamma = \Gamma_0 \sqrt{1 + \tilde{P}}$ (Formel 5.6). In Abbildung 6.4 ist die Linienbreite derselben Spektren dargestellt, die schon zur Analyse der Peakhöhe in Abbildung 6.3 verwendet wurden. Die Punkte entsprechen den gemessenen Linienbreiten, die Linie der theoretischen Fitkurve. Auch hier ist wieder eine klare Übereinstimmung mit der erwarteten Leistungsabhängigkeit zu sehen. Bemerkenswert ist dies vor allem, da die Normierung der x -Achse aus Abbildung 6.3 übernommen wurde. Der einzig freie Parameter zur Anpassung der Daten ist daher die Linien-

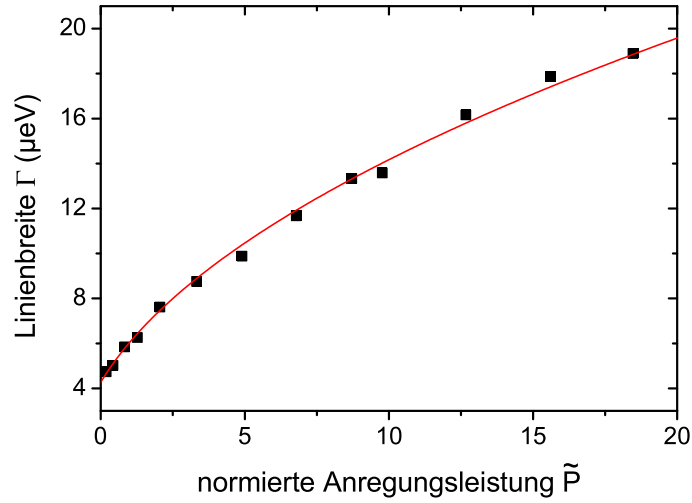


Abbildung 6.4: Verbreiterung der Absorptionslinie mit zunehmender Anregungsleistung. Der einzig freie Parameter der Fitkurve ist der y -Achsenabschnitt. Da Fitkurve und Daten gut übereinstimmen, ist die Linienverbreiterung offensichtlich allein durch die Sättigung bestimmt.

breite Γ_0 bei verschwindender Anregungsleistung, die in Abbildung 6.4 dem y -Achsenabschnitt entspricht. Die Steigung der Fitkurve ist dagegen über Formel 5.6 festgelegt, da die Umrechnung der Laserleistung in normierte Werte \tilde{P} aus der Sättigungsanalyse übernommen wurde.

Da die gemessenen Linienbreiten dennoch genau auf der Fitkurve liegen, kann man folgern, dass die Linienverbreiterung allein durch die Sättigung bestimmt ist. Andere leistungsabhängige Verbreiterungsmechanismen, insbesondere eine leistungsinduzierte Dephasierung, sind in diesen Messungen offensichtlich vernachlässigbar gering.

Man erkennt in Abbildung 6.4, dass die Sättigungsverbreiterung einen erheblichen Anstieg der Linienbreite bewirken kann. Schon eine Anregungsleistung von nur 100 nW resultiert in einer Verdopplung der Linienbreite und selbst die höchsten hier dargestellten Werte wurden noch bei deutlich unter $1 \mu\text{W}$ gemessen. Wie in Kapitel 5.3.2 beschrieben, ist die Sättigungsverbreiterung dabei allein durch die Änderung in der Besetzung N_1 bedingt, nicht jedoch durch Dephasierung. Zur korrekten Bestimmung der Dephasierungszeit T_2 ist es daher unbedingt notwendig, die Anregungsleistung auf ein extrem geringes Niveau zu beschränken oder besser noch, wie hier dargestellt, eine Messreihe mit einer Extrapolation zu verschwindender Anregungsleistung durchzuführen. In Abbildung 8.3 sind T_2 -Zeiten aus der Analyse der Linienbreite im Vergleich zu den entsprechenden Werten aus Doppelpulsexperimen-

ten dargestellt. Die Werte bei geringen Spannungen wurden dabei aus einer Extrapolation der Linienbreite auf Γ_0 gewonnen. Ab ca. 0,7 V liefern dagegen schon einzelne Spektren bei niedriger Leistung (ähnlich Abbildung 6.1) einen recht exakten Wert, da hier der charakteristische Wert $\tilde{P} = 1$ einer deutlich höheren tatsächlichen Laserleistung entspricht.

6.2.3 Experimentelle Details

Geht man zurück zu den ursprünglichen Spektren in Abbildung 6.2, so erkennt man einige weitere Details. Zum einen verändert sich mit zunehmender Anregungsleistung das Verhältnis der Höhe des rechten bezüglich des linken Photostrom-Maximums. Dies ist dadurch zu erklären, dass auch der kleine Spannungsunterschied von 0,40 V auf 0,42 V schon eine Änderung der Tunnelzeit und damit des Sättigungsstroms I_{sat} bewirkt³. Zum anderen beobachtet man auch eine leichte leistungsabhängige Verschiebung des Linienzentrums zu höheren Spannungen. In Abbildung 6.5 ist diese in Abhängigkeit von der Anregungsleistung dargestellt. Der Effekt wird vermutlich durch eine leichte elektrostatische Abschirmung des internen Feldes im Bereich der Quantenpunkte durch optisch generierte Ladungsträger hervorgerufen. Im Fall einer Aufheizung der Probe würde man dagegen eher eine lineare oder superlineare Variation der Übergangsenergie vermuten, die darüber hinaus wohl auch mit einer Verbreiterung der Absorptionslinie verbunden wäre.

In den bisher vorgestellten Messungen scheint, gerade wenn man die Übereinstimmung mit Dephasierungszeiten aus Doppelpuls-Experimenten bedenkt, eine experimentell bedingte Verbreiterung der Absorptionslinie vernachlässigbar gering zu sein. Es gibt daneben aber auch den Fall, dass die Linienbreite des Lasers mit zur gemessenen Breite des Photostrompeaks beiträgt. In Abbildung 6.6 ist eine Messung dargestellt, bei der der Laser zufällig zwischen schmalbandiger und etwas verbreiteter Emission hin und her springt. Nur die untere der beiden Kurven liefert dabei eine Dephasierungszeit in Konsistenz zu den anderen Experimenten. Die Emission des Lasers war bei der oberen Kurve wahrscheinlich mehrmodig, was hier eine zusätzliche Verbreiterung um ca. 1 μeV zur Folge hat. Bei noch stärkerer Verbreiterung des Laserspektrums wird zum Teil eine asymmetrische Linienform der Photostromresonanz beobachtet. Da eine solche Asymmetrie der Anregung unabhängig vom QD-Übergang ist, werden in diesem Fall immer beide Teile der Doppellinie in gleicher Weise verbreitert.

³Abbildung 6.3 und 6.4 beziehen sich jeweils auf den linken der beiden Peaks.

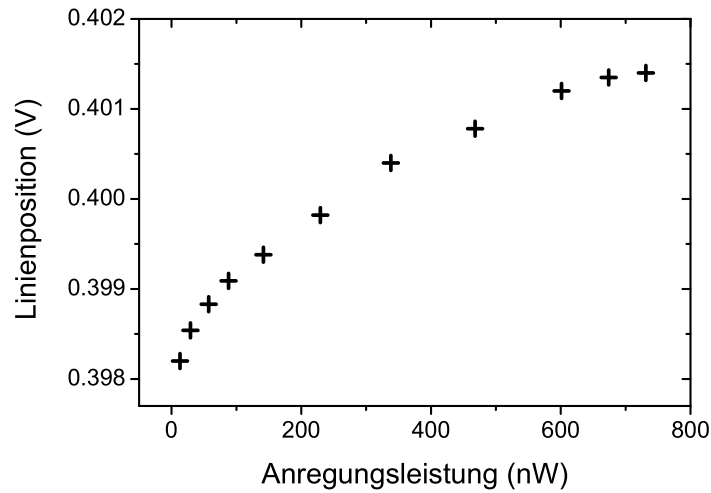


Abbildung 6.5: Verschiebung der Absorptionslinie bei zunehmender Anregungsleistung, vermutlich bedingt durch elektrostatische Abschirmung.

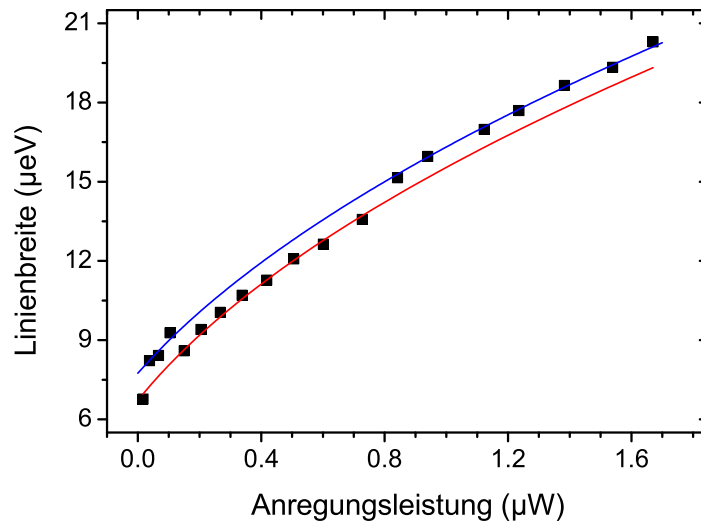


Abbildung 6.6: Messung der Linienbreite bei 0,5 V, analog zu Abbildung 6.4. In dieser Messung springt die Linienbreite zwischen zwei Kurven hin und her. Die zusätzliche Verbreiterung in der oberen Kurve ist vermutlich durch mehrmodige Laseremission bedingt.

6.3 Feinstrukturaufspaltung

In Abbildung 6.1 und 6.2 sieht man deutlich die Aufspaltung des 1X-Übergangs in zwei Linien. Die Umrechnung der Spannungsskala über den Stark-Effekt ergibt eine Energieaufspaltung von $30 \mu\text{eV}$. Wie in Kapitel 2.3.3 beschrieben, wird diese Aufspaltung einer Asymmetrie des Quantenpunkts bezüglich der unterschiedlichen Kristallrichtungen zugeschrieben. Tatsächlich lässt sich eine der Linien im Vergleich zur jeweils anderen deutlich unterdrücken, wenn die Anregung in $[110]$ - bzw. $[\bar{1}\bar{1}0]$ -Richtung polarisiert ist. Eine vollständige Unterdrückung erreicht man allerdings nur durch, zumindest nominell, elliptische Polarisation.

Es ist nicht ganz sicher, wie weit sich die Polarisation des Lichts am Ort des QDs möglicherweise vom nominell eingestellten Wert unterscheidet. Da z.B. Strahlteiler die Polarisation meist nicht vollständig erhalten, wurde versuchsweise die Polarisationsoptik zwischen dem letzten Strahlteiler und dem Objektiv angebracht. Auch hier konnte allerdings keine der beiden Linien bei linear polarisierter Anregung vollständig unterdrückt werden. Eine weitere Unsicherheit bezüglich der Polarisationserhaltung ergibt sich aus Verwendung der Nahfeld-Schattenmasken. Insgesamt könnten sich also durchaus leichte Unterschiede in der Transmission orthogonaler linearer Polarisationsrichtungen ergeben. Eine zusätzliche orientierungsabhängige Verzögerung der optischen Phase, die zur Erzeugung eines zirkular polarisierten Anteils nötig wäre, erscheint aber eher unwahrscheinlich.

Die Polarisationsabhängigkeit aus cw-Experimenten bleibt auch bei gepulster Anregung exakt erhalten (siehe Kapitel 8.2). Bei relativ geringer Probenspannung lässt sich über die Polarisation hervorragend kontrollieren, ob nur einer der beiden Exziton-Zustände angesprochen wird oder eine kohärente Überlagerung des Doublets. Bei Spannungen über $0,8 \text{ V}$ beobachtet man in Doppelpuls-Experimenten dagegen immer eine Mischung beider Zustände, in cw-Messungen ist dabei die Linienbreite so groß, dass eine klare Unterscheidung nicht mehr möglich ist. Der Grund für dieses Verhalten ist bisher noch nicht geklärt.

Ein weiteres interessantes Phänomen besteht in einer vorübergehenden Änderung der Feinstrukturaufspaltung des untersuchten Quantenpunkts. Während einiger Messphasen wurde eine Verringerung der Aufspaltung auf minimal $11 \mu\text{eV}$ beobachtet. Dieser Wert bleibt dann konstant, solange die Probe auf Heliumtemperatur abgekühlt ist und lässt sich in dieser Zeit auch durch intensive Beleuchtung oder höhere Spannung nicht ändern. Nach Erwärmen der Probe auf Raumtemperatur und erneutem Abkühlen stellt sich im Allgemeinen wieder die übliche Aufspaltung von $30 \mu\text{eV}$ ein.

Zusammen mit der Feinstrukturaufspaltung ändern sich beim untersuchten QD noch einige weitere Eigenschaften:

- Die (ebenfalls elliptische) Polarisierung, bei der nur eine der beiden Linien angeregt wird, ist um etwa 45° bezüglich der $[110]$ - bzw. $[\bar{1}\bar{1}0]$ -Richtung gedreht.
- Der 1X-Übergang ist um ca. 0,4 meV blauverschoben.
- Die Linienbreite ist geringer als unter vergleichbaren Bedingungen bei „gewöhnlicher“ Aufspaltung. In Abbildung 6.7 beträgt die Linienbreite bei 0,435 V trotz endlicher Anregungsleistung nur $3,5 \mu\text{eV}$. In Doppelpulsexperimenten wurde bei 0,4 V eine Dekohärenzzeit 440 ps gemessen, verglichen mit 320 ps bei $30 \mu\text{eV}$ Feinstrukturaufspaltung.
- Die Anregungsleistung für einen 1π -Rabiflop (vgl. Kapitel 7) ist um das Achtfache erhöht.
- Der erste messbare Photostrom setzt schon bei einer Spannung von 0,33 V statt bei 0,35 V ein.

Die hier beschriebenen Beobachtungen deuten auf einen verringerten Überlapp von Elektron- und Lochwellenfunktion hin. Das Übergangsmatrixelement ist dann geringer und man benötigt einerseits eine höhere Leistung zur Anregung eines optischen Übergangs, andererseits ist die strahlende Lebensdauer des Zustands höher. Gerade bei niedriger Spannung und damit langer Tunnelzeit bewirkt dies eine längere Dephasierungszeit. Zudem wäre bei geringerem Überlapp die Coulomb-Anziehung zwischen Elektron und Loch verringert, sodass der Übergang zu einer etwas höheren Energie verschiebt. Diese Energieerhöhung bewirkt ihrerseits wiederum eine geringere Tunnelbarriere zwischen Quantenpunkt und GaAs-Matrix, sodass schon bei etwas geringerer Spannung ein messbarer Photostrom einsetzen kann.

Noch ist nicht sicher, wodurch diese Veränderung hervorgerufen wird. Eine eindeutige Klärung wird aufgrund der Zufälligkeit des Phänomens sowie der fehlenden Kontrollparameter im Rahmen dieser Arbeit nicht möglich sein. Es gibt allerdings zwei unterschiedliche Erklärungsansätze:

- Der Effekt wird durch eine eingefrorene Ladung in einer Störstelle in der Nähe des QDs verursacht. Da Elektron und Loch aufgrund ihrer unterschiedlichen Ladung angezogen bzw. abgestoßen würden, ließe sich eine Verringerung des Wellenfunktionüberlapps erklären. Dasselbe Resultat sollte sich auch durch Anlegen eines lateralen elektrischen Feldes erzielen lassen. Vor kurzem konnte für diesen Fall erstmals eine kontrollierbare Variation der Feinstrukturaufspaltung nachgewiesen werden [52].

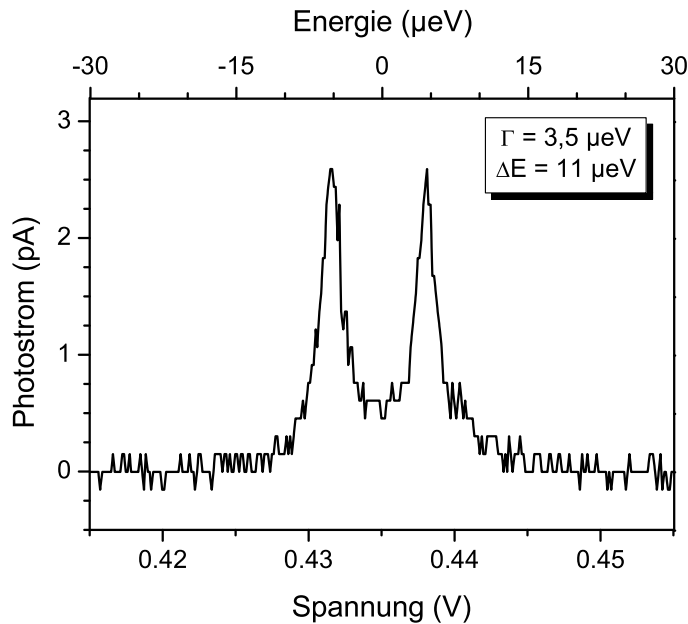


Abbildung 6.7: Verringerte Feinstrukturaufspaltung von nur $11 \mu\text{eV}$. Es handelt sich um denselben Quantenpunkt wie in Abbildung 6.2 ($30 \mu\text{eV}$ Aufspaltung). Gleichzeitig ändert sich noch eine Reihe von anderen optischen Eigenschaften des Quantenpunkts (siehe Text).

- Die Veränderungen werden durch eine Verspannung der Probe während des Abkühlvorgangs verursacht. Tatsächlich wird in der Gruppe von K. Karrai eine Veränderung der Feinstrukturaufspaltung in Abhängigkeit von einer extern angelegten Verspannung beobachtet.

Aus Diskussionen mit Mitgliedern dieser Gruppe sowie der Gruppe von D. Reuter, in der ebenfalls an Proben mit einstellbarem lateralem elektrischem Feld gearbeitet wird, erscheint es wahrscheinlicher, dass der Effekt durch eine eingefrorene Ladung verursacht wird. Eine Veröffentlichung der jeweiligen Ergebnisse lag bei Erstellung dieser Arbeit noch nicht vor.

Kapitel 7

Rabi-Oszillationen

Während sich bei cw-Anregung 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. Das grundlegende Experiment in diesem Bereich ist der Nachweis von Rabi-Oszillationen. Dabei wird die Besetzung in Abhängigkeit von der Anregungsdauer oder -Amplitude gemessen und man beobachtet, ganz im Gegensatz zum Sättigungsverhalten im stationären Grenzfall, eine Oszillation zwischen den beiden Extremwerten 0 und 1. Da Rabi-Oszillationen die Grundlage für nahezu alle weiterführenden Experimente im Bereich kohärenter Kontrolle bilden, sind mittlerweile allein auf dem Gebiet der Halbleiter-Quantenpunkte zahlreiche Veröffentlichungen zu diesem Thema bekannt [14, 21, 49, 51, 61, 65, 79, 85, 90, 93].

7.1 Resonante Messung

Eine grundlegende theoretische Beschreibung von Rabi-Oszillationen findet man in Kapitel 5.4, im Folgenden soll die experimentelle Umsetzung näher erläutert werden. Die Pulsfläche der Anregung und damit der Drehwinkel auf der Blochkugel wird in unserem Experiment über die Laserleistung gesteuert, da dies technisch erheblich einfacher ist, als die Länge der Pulse zu variieren. Da die Rabi-Oszillation mit der Amplitude des elektrischen Feldes der Anregung skaliert, ergibt sich eine quadratische Abhängigkeit von der *Laserleistung*. Um eine hohe Pulsfläche zu erzielen, muss die Anregungsleistung also auch im Vergleich zu π -Pulsen erheblich gesteigert werden.

Zunächst sollen die Zeitskalen aller relevanten Prozesse im Photostromexperiment betrachtet werden. Die gesamte kohärente Anregung des Systems erfolgt mit einem einzelnen Laserpuls und ist damit nach typischerweise 2,5 ps

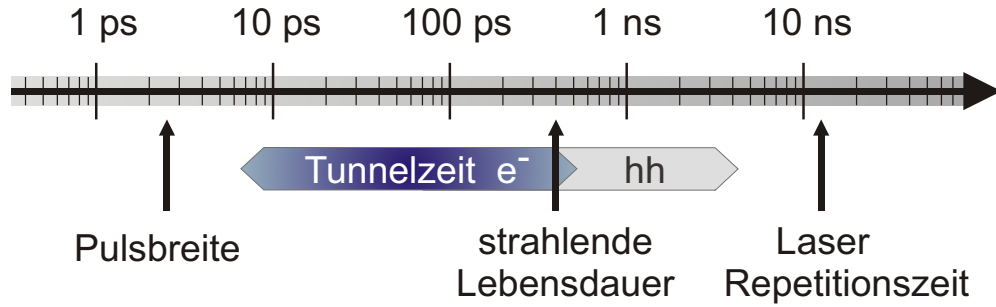


Abbildung 7.1: Relevante Zeitskalen für kohärente Photostrom-Experimente. Die Tunnelzeit des Elektrons (e^-) wird über die Probenspannung so eingestellt, dass sie deutlich länger ist als die Pulsbreite der Anregung aber kürzer als die optische Rekombinationszeit. Der Tunnelprozess des Lochs (hh) ist relativ langsam, erfolgt aber noch vor der nächsten Anregung.

abgeschlossen. Eine gute Kontrolle des Systems ergibt sich nur dann, wenn die Kohärenz während dieser Anregungsdauer vollständig erhalten bleibt. Der schnellste Dephasierungsprozess ist in unserem Fall meist durch das Tunneln des schnelleren Ladungsträgers gegeben und erfolgt je nach Spannung nach 10 ps bis 300 ps, also wesentlich langsamer als die Anregung. Da auch der langsamere der beiden Ladungsträger noch innerhalb weniger Nanosekunden aus dem Dot heraus tunnelt (vgl. Kapitel 6.2.1), ist der Quantenpunkt bei Eintreffen des nächsten Laserpulses nach 12,5 ns wieder im Ausgangszustand (leerer QD).

Im Idealfall würde man daher bei π -Puls-Anregung mit jedem Laserpuls genau ein Exziton erzeugen, welches dann alle 12,5 ns mit einer Elementarladung zum Photostrom beiträgt. Der Photostrom wäre damit gegeben durch [93]:

$$I = f_{\text{Laser}} \times e$$

wobei f_{Laser} die Repetitionsrate des Lasers bezeichnet. Dieser Maximalwert wird im Experiment aufgrund von Dekohärenz nicht ganz erreicht. Bei niedrigen Spannungen beobachtet man sogar eine deutliche Verringerung des maximalen Photostroms, da in diesem Fall die Tunnelzeit so lange ist, dass ein signifikanter Anteil der Exzitonen strahlend rekombinieren kann.

In Abbildung 7.2 ist die Rabi-Oszillation des 1X-Übergangs in Abhängigkeit von der Laseramplitude dargestellt. Die Messung wurde bei einer Spannung von 0,6 V mit zirkular polarisierter Anregung durchgeführt. Die Halbwertsbreite des Autokorrelationssignals war 3,45 ps bei einer spektralen Breite von ca. 0,6 meV. Unter der Annahme einer sech^2 -Pulsform erhält man

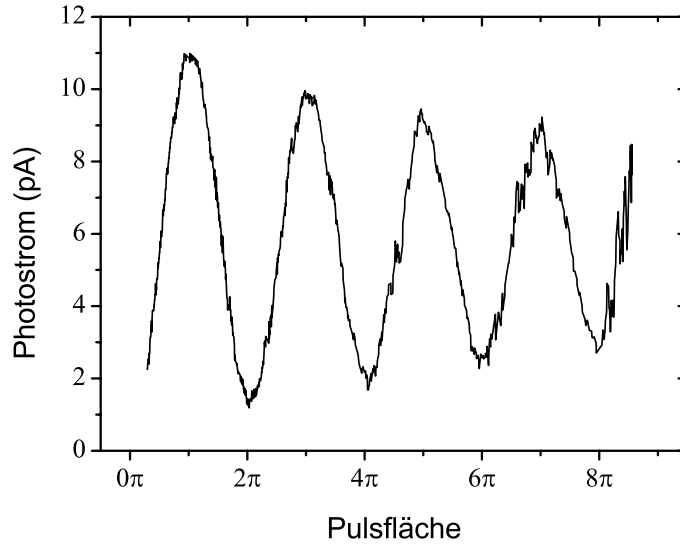


Abbildung 7.2: Rabi-Oszillation eines einzelnen Quantenpunkts. Der Photostrom ist direkt proportional zur Besetzungswahrscheinlichkeit des Zwei-Niveau-Systems mit einem einzelnen Exziton. Im Vergleich zu Publikationen anderer Gruppen wurde die Oszillation bis zu wesentlich höherer Pulsfläche gemessen und zeigt nur eine schwache Dämpfung.

eine Halbwertsbreite der Intensität von 2,25 ps bei einer minimalen, durch Fourier-Transformation begrenzten spektralen Breite. Die Pulsfläche von 1π entspricht einer Anregungsleistung von ca. $2 \mu\text{W}$ ¹. Erhöht man die Anregungsleistung, so erhält man neben dem kohärenten Signal auch einen stetig ansteigenden Hintergrundstrom, wie in Abbildung 7.3 dargestellt. In allen weiteren hier vorgestellten Messungen ist dieser Untergrund, ähnlich wie in Abbildung 7.2, schon subtrahiert.

Der Untergrund skaliert rein linear mit der Laserleistung und wird daher inkohärenten Absorptionsprozessen in der Umgebung des Quantenpunkts zugeschrieben. Im Grunde ist der inkohärente Anteil mit 6% bei π -Puls-Anregung sehr gering. Da das kohärente Signal aber nach oben beschränkt ist, 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

¹Alle Leistungsangaben beziehen sich auch bei gepulster Anregung auf eine kontinuierliche, also zeitlich gemittelte Messung der Laserleistung. Die Leistung kann nur am oberen Ende des Probenstabs gemessen werden. Da am Objektiv durch Überstrahlung und Reflexion gewisse Verluste auftreten, wird als tatsächliche Anregungsleistung immer die Hälfte des oben gemessenen Werts angegeben.

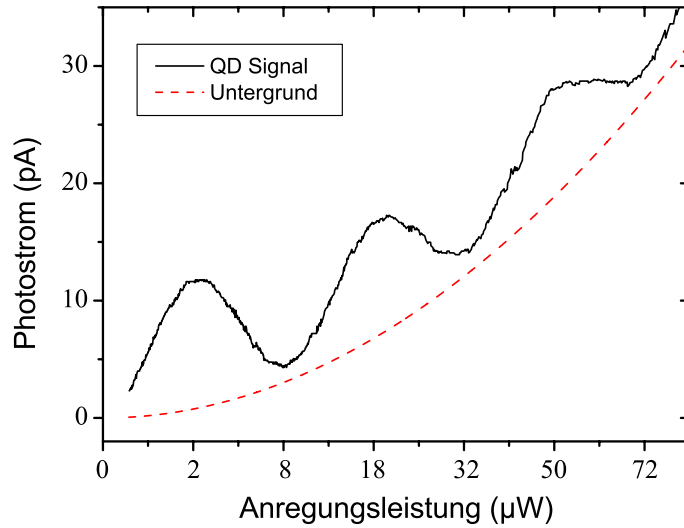


Abbildung 7.3: Ursprüngliches Photostromsignal der Rabi-Oszillation, einschließlich Untergrund. Vermutlich aufgrund von Streulichtabsorption in der Umgebung des Quantenpunkts ergibt sich ein inkohärentes Hintergrundsignal, welches rein linear mit der Laserleistung ansteigt.

untersuchten Probe wird der Laserstrahl zwischen Rückkontakt und Schattenmaske mehrfach hin und her reflektiert wobei immer ein Teil der Leistung absorbiert wird. Da sich der elektrische Kontakt über die gesamte Fläche der Mesa-Struktur ($300 \times 400 \mu\text{m}^2$) erstreckt, liefert aber jeder Absorptionsprozess einen Beitrag zum Photostrom und damit zum Untergrund der in Abbildung 7.3 dargestellten Messung.

Insgesamt könnte es also sein, dass das tatsächliche Photostromsignal der Rabi-Oszillation bei hohen Pulsflächen etwas über oder unter den in Abbildung 7.2 dargestellten Werten liegt. Da der Untergrund monoton ansteigt, sind Amplitude und Frequenz der Oszillation aber eindeutig bestimmbar. Im Vergleich zu anderen Publikationen fällt eine sehr geringe Dämpfung der Rabi-Oszillation auf, sodass diese bis zu wesentlich höheren Pulsflächen gemessen werden kann. Zudem ist die Oszillation fast exakt periodisch und die Dämpfung ist unter den hier gezeigten Bedingungen sehr gleichmäßig. Die deutliche Verbesserung gegenüber anderen, in den anfangs erwähnten Quellen publizierten Messungen, kann auf eine Reihe von Gründen zurückgeführt werden:

- Im Vergleich zu GaAs/AlGaAs Interface-Fluktuationen [79] besitzt der hier untersuchte QD ein wesentlich höheres und besser definiertes Ein-

schlusspotenzial. Daraus resultiert eine langsamere Dephasierung und damit die Möglichkeit besserer kohärenter Kontrolle.

- Effekte der inhomogenen Verbreiterung, die in Ensemble-Messungen [21] eine wesentliche Rolle spielen, sind bei Einzel-QD-Untersuchungen prinzipiell ausgeschlossen.
- Die Messungen wurden am Grundzustand des QDs durchgeführt, welcher eine längere Kohärenzzeit und bessere Trennung von anderen Energieniveaus aufweist als Zustände in der p-Schale [14, 49, 51, 61, 90].
- Im Vergleich zur prinzipiell ähnlichen Messung in [93] wurde der optische und elektrische Aufbau in zahlreichen Details verbessert. Zudem wurde mehr Zeit auf die Auswahl des Quantenpunkts verwendet, so dass der hier untersuchte QD wahrscheinlich zentraler unter der Apertur der Schattenmaske liegt und sich außerdem durch ein besonders hohes Übergangsmatrixelement auszeichnet.

7.2 Leistungsabhängige Dämpfung

Eine gleich bleibend niedrige Dämpfung der Rabi-Oszillationen wird im gesamten Spannungsbereich zwischen 0,4 V und 0,75 V beobachtet. Dies ist insofern erstaunlich, als die Dephasierungszeit in diesem Spannungsbereich zwischen 320 ps und 50 ps variiert (siehe Abbildung 8.3). Bei weiterer Erhöhung der Spannung, also noch kürzerer Tunnelzeit, ist der Anstieg des Photostroms zum ersten Maximum (π -Puls) noch ähnlich hoch, die Rückgang in den Minima wird aber immer schwächer (siehe Abbildung 7.4). Auch bei diesen Messungen könnte das tatsächliche Signal aufgrund der Subtraktion des inkohärenten Untergrunds bei hohen Pulsflächen etwas über oder unter den dargestellten Werten liegen. Die gezeigten Ergebnisse stellen aber erneut das plausibelste Verhalten dar, da die Einhüllende der Oszillation einem monotonen Verlauf gehorchen dürfte. Die gezeigten Ergebnisse sind zudem in guter qualitativer Übereinstimmung zu optisch gemessenen Rabi-Oszillationen an p-Zuständen, die ebenso auf einer relativ schnellen Zeitskala in den Grundzustand relaxieren (siehe z.B. [90]).

Insgesamt ist die Dämpfung der Rabi-Oszillationen also nur begrenzt von der Dephasierungszeit abhängig. Es ist dabei zu beachten, dass hier die *leistungsabhängige* Dämpfung während eines einzelnen Pulses von 2 - 3 ps diskutiert wird, während sich die Dephasierungszeiten auf Verlust der Kohärenz *nach* der Anregung auf einer Zeitskala von etwa 100 ps beziehen. Der Unterschied zwischen schnellen Dephasierungsprozessen während oder unmittelbar

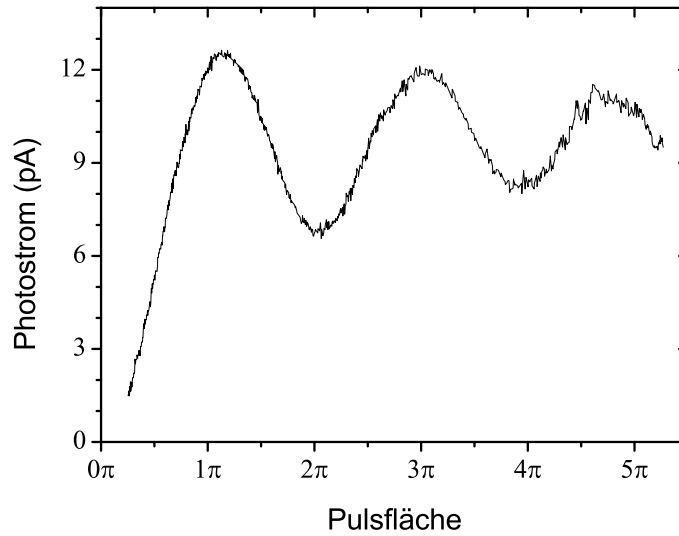


Abbildung 7.4: Rabi-Oszillation bei 1,2 V. Als Folge der kurzen Tunnelzeit von nur 10 ps ist die Oszillation deutlich stärker gedämpft. Es zeigt sich, dass vor allem die Minima schwächer ausgeprägt sind als im Fall langer Tunnelzeiten.

nach der Anregung und langsamer Dephasierung aufgrund der Lebensdauer des Zustands wird auch in Arbeiten anderer Gruppen diskutiert, siehe z.B. [20, 86]. Eine zuverlässige Identifikation der maßgeblichen Mechanismen, welche die leistungsabhängige Dämpfung verursachen, ist zum heutigen Zeitpunkt noch nicht möglich. In theoretischen Arbeiten werden sowohl phononische Prozesse [39, 58] als auch Auswirkungen einer Kopplung des Quantenpunkts an den Wettinglayer [88] diskutiert. Aufgrund des beschränkten experimentellen Datenmaterials konnten unterschiedliche theoretische Modelle bisher nicht mit hoher Genauigkeit überprüft werden. Die hier gezeigten Messungen bis fast 9π Pulsfläche an einem umfassend untersuchten System könnten dazu beitragen, die maßgeblichen Dephasierungsprozesse erheblich genauer zu identifizieren.

7.3 Einfluss von Verstimmung

In Kapitel 5.4 wird die analytische Lösung der Blochgleichungen für den Fall monochromatischer Anregung diskutiert. Bei verstimmter Anregung erhält

man [60]:

$$N_1 = \frac{\Omega_0}{\sqrt{\Omega_0^2 + \delta^2}} \sin^2\left(\frac{\sqrt{\Omega_0^2 + \delta^2} t}{2}\right) \quad (7.1)$$

Ist die Verstimmung δ größer als die Rabi-Frequenz Ω_0 für resonante Anregung, so erhält man eine deutliche Verringerung der Besetzung N_1 des oberen Niveaus zusammen mit einer Erhöhung der Rabi-Frequenz auf $\sqrt{\Omega_0^2 + \delta^2}$. Im Experiment wird die Rabi-Oszillation allerdings in Abhängigkeit von der Laseramplitude gemessen, welche proportional zu Ω_0 ist. Bei starker Anregung oder genauer gesagt für $\Omega_0 > \delta$ konvergiert die Besetzungswahrscheinlichkeit schnell zu den aus resonanter Anregung erwarteten Werten. Insbesondere erreicht die Besetzungswahrscheinlichkeit im Maximum fast 100%.

Diese Vorhersage kann im Experiment nicht verifiziert werden. Während das vereinfachte, analytisch berechenbare theoretische Modell in fast allen Bereichen eine qualitativ richtige Beschreibung liefert, hat hier scheinbar die spektrale Verbreiterung kurzer Pulse einen erheblichen Einfluss auf das Messergebnis. In Abbildung 7.5 ist die Rabi-Oszillation für unterschiedlich starke Verstimmung dargestellt. Die mittlere Kurve beschreibt den resonanten Fall, nach oben und unten steigt die Verstimmung in Schritten von 0,1 nm, also 0,144 meV bzw. 0,035 THz. Die Halbwertsbreite der Pulse lag in diesem Experiment bei ca. 0,4 nm, sodass die dargestellten Kurven in etwa die gesamte spektrale Breite des Pulses abdecken. Man beobachtet mit zunehmender Verstimmung im Wesentlichen eine gleichmäßige Dämpfung der Amplitude der Rabi-Oszillation. Entgegen der Erwartung aus dem vereinfachten theoretischen Modell nähert sich die Amplitude bei hoher Pulsfläche nur geringfügig an den Resonanzfall an. Eine deutliche Änderung in der Frequenz ist weder theoretisch zu erwarten, noch wird sie experimentell beobachtet, da die Verstimmung verglichen mit der Rabi-Frequenz nicht allzu hoch ist. Selbst in der Messung mit der höchsten Verstimmung ist im ersten Maximum $\delta = 0,23\Omega_0$ und man erwartet daher eine relative Verschiebung des Maximums um weniger als 3%.

Es ist nun interessant zu untersuchen, ob die Abweichung vom einfachen theoretischen Modell aus Dekohärenz beziehungsweise anderen probenspezifischen Eigenschaften resultiert oder ob ein ähnliches Verhalten auch für ein ideales Zwei-Niveau-System zu erwarten ist. Die experimentellen Ergebnisse werden dafür mit einer numerischen Simulation verglichen². Als Ausgangspunkt der theoretischen Berechnung dienen die optischen Blochgleichungen

²Die Entwicklung der Simulation wurde von Sven-Ake Wegner im Rahmen eines Praktikums begonnen und anschließend von Steffen Michaelis de Vasconcellos auf den hier verwendeten Umfang erweitert.

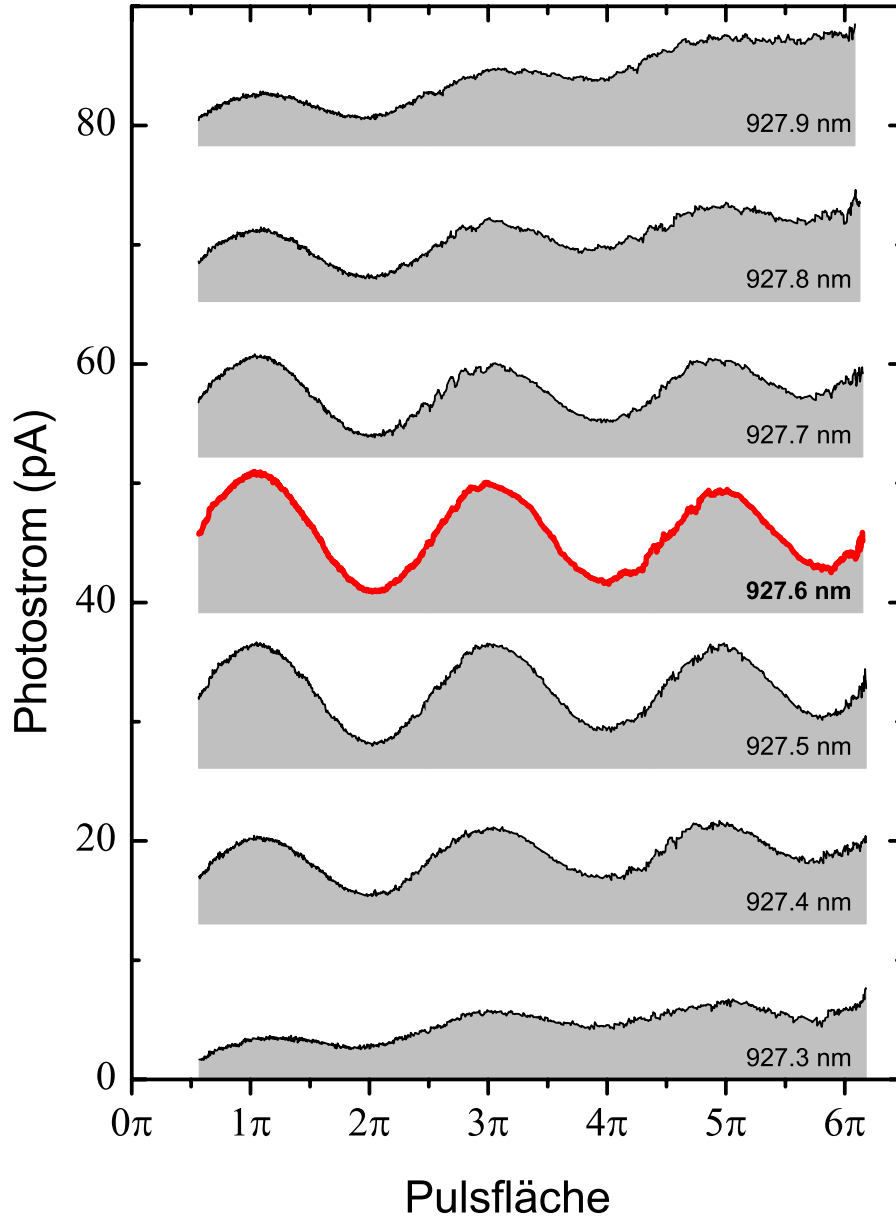


Abbildung 7.5: Rabi-Oszillation für unterschiedliche Verstimmung des Lasers bezüglich der Resonanz ($V_B = 0,7$ V). Die mittlere Kurve (927,6 nm) entspricht resonanter Anregung. Mit zunehmender Verstimmung nimmt die Amplitude der Oszillation deutlich ab und bleibt, entgegen einer vereinfachten theoretischen Rechnung, auch bei hohen Pulsflächen sehr niedrig.

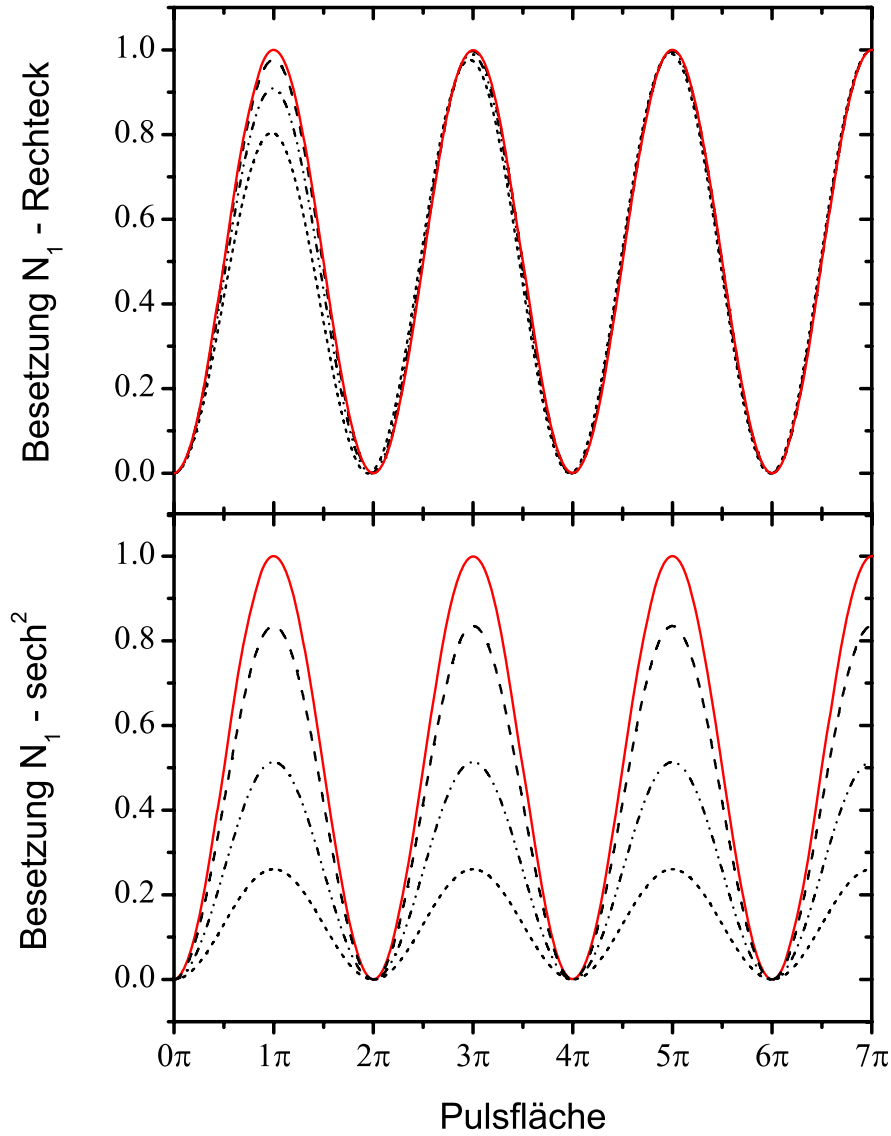


Abbildung 7.6: Theoretisch berechnete Besetzungswahrscheinlichkeit eines idealen Zwei-Niveau-Systems ohne Dephasierung für resonante Anregung (durchgezogene Linie) und verschieden starke Verstimmung entsprechend der Messung aus Abbildung 7.5. Der obere Graph stellt die vereinfachte, analytische Lösung dar, die Kurven im unteren Teil zeigen eine numerische Berechnung für sech^2 -Pulse. Das vereinfachte Modell ist für die Beschreibung verstimmter Anregung unzureichend, wohingegen die numerische Berechnung mit der experimentellen Beobachtung sehr gut übereinstimmt.

(5.9) im *rotating wave frame*, wobei die Verstimmung δ und der zeitliche Verlauf der Feldamplitude $|\vec{E}_0(t)|$ als Eingangsparameter frei wählbar sind.

Wählt man als Pulsform $|\vec{E}_0(t)|$ (monochromatische) Rechteckspulse, so erhält man dasselbe Ergebnis wie durch die vereinfachte Formel (7.1). Bei Verwendung von sech^2 -Pulse sollten dagegen die experimentellen Ergebnisse erheblich besser wiedergegeben werden. In Abbildung 7.6 ist die berechnete Rabi-Oszillation für verschiedene Werte von δ entsprechend der experimentellen Messungen aus Abbildung 7.5 dargestellt. Es ist klar zu erkennen, dass die Besetzung bei verstimmter Anregung im Fall realistischer Pulse auch für hohe Pulsflächen deutlich unter 100% bleibt, obwohl in der Simulation keine Dekohärenz enthalten ist. Die Abweichung der experimentellen Beobachtung von der vereinfachten theoretischen Rechnung ist also hauptsächlich durch die Form und die dadurch bestimmte spektrale Breite der Pulse bestimmt. Der einzige Unterschied zum idealen System besteht in der dekohärenzbedingten Dämpfung der Rabi-Oszillation vor allem bei hohen Pulsflächen, welche allerdings unter resonanter Anregung in ähnlicher Art beobachtet wird.

Kapitel 8

Quanten-Interferenz-Experimente

Im vorigen Kapitel wurde allein die Besetzung des Systems diskutiert, die in der theoretischen Beschreibung durch die w -Komponente des Blochvektors repräsentiert wird. Der nächste Schritt in Richtung vollständiger Kontrolle des Zwei-Niveau-Systems besteht in der Einbeziehung der u - und v -Komponente und damit der Phase der kohärenten Anregung. Da dem leeren Quantenpunkt als Ausgangszustand aller Experimente keine Phase zugeordnet werden kann, ist für diese Experimente immer eine Anregung mit zwei oder mehr Pulsen notwendig. Der erste Puls erzeugt eine kohärente Polarisation des QDs, welche dann je nach der relativen Phasenlage konstruktiv oder destruktiv mit dem zweiten Puls interferieren kann.

8.1 Dephasierungszeiten

Wesentlicher experimenteller Bestandteil aller Doppelpulsmessungen ist eine zweifache Verzögerungsstrecke (siehe Abbildung 3.2). Mithilfe eines Grobverstellers kann damit die Verzögerungszeit des zweiten Pulses im Bereich zwischen Null und mehr als 1 ns eingestellt werden. Ein piezoelektrischer Feinversteller dient zur Kontrolle der Phase des zweiten Pulses, wobei eine Einstellgenauigkeit im Sub-Femtosekundenbereich erforderlich ist. In den meisten Experimenten wird nur ein Verstellweg des Feinverstellers von wenigen Mikrometern verwendet, entsprechend einiger Perioden der optischen Wellenlänge. Dies entspricht einem Zeitbereich von $2 \cdot 10^{-14}$ Sekunden und ist damit auf der Skala des Grobverstellers (10^{-11} s bis 10^{-9} s) vernachlässigbar

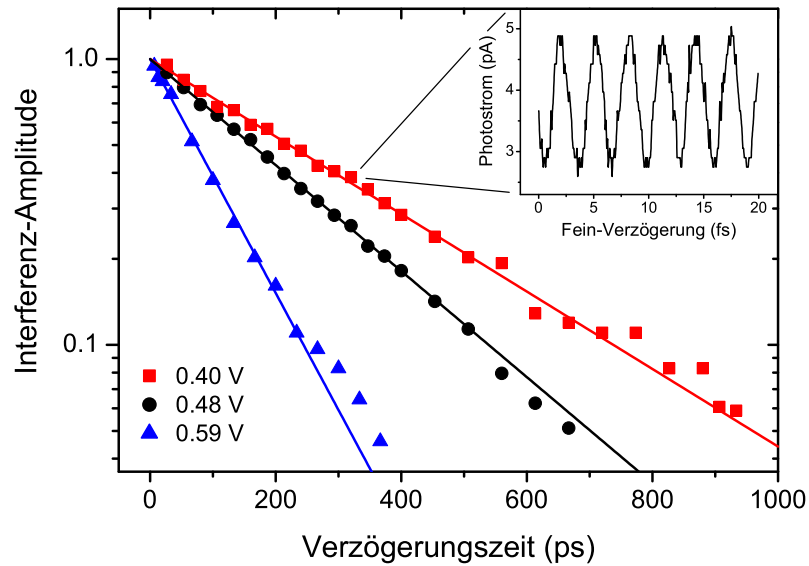


Abbildung 8.1: Quanten-Interferenz-Experiment für verschiedene Proben-spannungen. Im kleinen Bild ist die eigentliche Interferenzmessung dargestellt. In den Datensätzen für die verschiedenen Spannungen ist jeweils die Amplitude der Oszillation aus solchen Einzelmessungen aufgetragen. Diese Interferenz-Amplitude folgt einem rein exponentiellen Zerfallsgesetz, dessen Zeitkonstante bei zunehmender Spannung aufgrund steigender Tunnelwahrscheinlichkeit immer kürzer wird.

gering.

Ein typisches Experiment zur Untersuchung der Kohärenzeigenschaften des QDs besteht aus einer ganzen Serie von Einzelmessungen. In jeder Einzelmessung wird die Interferenzoszillation des Quantenpunkts in Abhängigkeit von der Phase des zweiten Pulses aufgenommen (siehe kleines Bild, Abbildung 8.1). Diese Messung wird unter sonst gleichen Bedingungen bei unterschiedlichen (Grob-)Verzögerungszeiten wiederholt, wobei jeweils die Amplitude der Photostromoszillation ausgewertet wird. In Abbildung 8.1 sind entsprechende Messergebnisse für unterschiedliche Spannungen dargestellt. Zur besseren Vergleichbarkeit ist die anfängliche Amplitude jeweils auf 1 normiert. Man erkennt einen rein exponentiellen Abfall der Interferenz, aus dem sich Dephasierungszeiten (Verringerung der Amplitude auf $1/e$) von 322 ps, 232 ps und 107 ps für eine Proben-spannung von 0,4 V, 0,48 V bzw. 0,59 V ermitteln lassen.

Die starke Spannungsabhängigkeit zeigt, dass die Dephasierung im hier untersuchten System hauptsächlich durch den Tunnelprozess bestimmt ist.

Aus Sicht grundlegender Untersuchungen stellt dies eine sehr interessante Eigenschaft dar, da die Tunnelzeit nahezu beliebig variiert werden kann. Eine obere Grenze ergibt sich allerdings aus der optischen Rekombinationszeit, welche nicht nur die Dephasierungszeit sondern auch den für elektrische Detektion zugänglichen Spannungsbereich limitiert. In Messungen an getemperten (interdiffundierten) InAs/GaAs-Quantenpunkten wird bei zunehmender Annäherung der Grundzustandsenergie an den Wettinglayer eine Abnahme der strahlenden Lebensdauer beobachtet [24, 54]. Eine direkte Übertragung dieser Abhängigkeit auf den hier untersuchten Quantenpunkt würde eine Lebensdauer von unter 200 ps ergeben. Dies ist bei einer Dephasierungszeit von 320 ps im Fall etwa gleicher Zeitskalen für Strahlungs- und Tunnelzerfall natürlich unrealistisch. Man kann eher von einer strahlenden Lebensdauer im Bereich von ungefähr 400 ps ausgehen.

Die Anregungsleistung und damit die absolute Amplitude des Photostromsignals ist für eine reine Messung der Dephasierungszeit unerheblich. Erste Doppelpuls-Experimente wurden im Regime linearer Anregung, d.h. mit Pulsflächen $\ll 1\pi$, durchgeführt [18–20]. Um zuverlässige Ergebnisse in Hinblick auf die Quanten-Informationstechnologie zu erhalten, ist allerdings eine Anregung mit definierter Pulsfläche nötig [49, 51, 58]. In den hier vorgestellten Messungen erfolgte die Anregung über zwei $\pi/2$ -Pulse, welche in Bezug auf Quanten-Computing als Hadamard-Transformation interpretiert werden können [16]. Im Fall eines einzelnen Zwei-Niveau-Systems ist dies die Rotation des reinen Zustands $|0\rangle$ oder $|1\rangle$ auf die kohärente Superposition $1/\sqrt{2}(|0\rangle \pm |1\rangle)$ bzw. die Rotation dieser Superposition auf einen der beiden reinen Zustände.

Neben einem durch die Lebensdauer begrenzten exponentiellen Zerfall der Kohärenz sind für die Quanten-Informationstechnologie auch zusätzliche Dephasierungsprozesse während oder unmittelbar nach der Anregung von Bedeutung [58], da diese letztlich die Qualität der Gesamtoperation entscheidend begrenzen können. Die schnelle, anfängliche Dephasierung lässt sich aufgrund des Untergrunds in unseren Messungen nicht exakt quantifizieren: Bei Verzögerungszeiten von weniger als fünf Pikosekunden beginnen die Pulse merklich zu überlappen, sodass man schon vor der Wechselwirkung mit dem QD eine rein optische Interferenz beobachtet. Dies hat zur Folge, dass bei geringem Pulsabstand nicht nur das QD-Signal, sondern auch der inkohärente Untergrund eine Variation in Abhängigkeit von der relativen Phase der beiden Pulse zeigt. Auch unter Berücksichtigung dieses Effekts wird generell ein zusätzlicher Abfall der Interferenz innerhalb der ersten Pikosekunden beobachtet, wobei die anfängliche Dephasierung in den besten Messungen aber im Bereich $\leq 4\%$ bleibt.

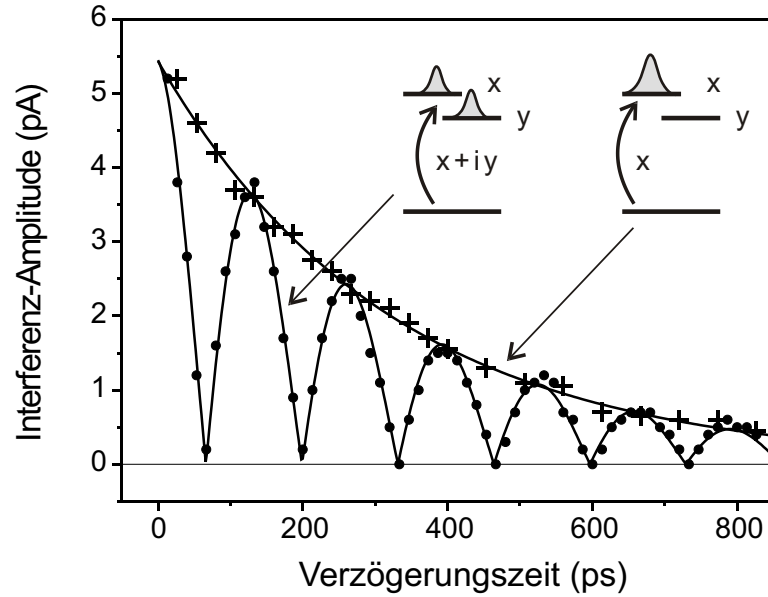


Abbildung 8.2: Quanten-Interferenz-Experiment für verschiedene Polarisationsrichtungen. Die Kreuze zeigen Messdaten bei Anregung nur eines der beiden Feinstrukturniveaus (entsprechend Abbildung 8.1, 0,4V). Bei Anregung einer Superposition der beiden Niveaus erhält man zusätzlich eine Schwebung, so genannte Quantum Beats (Punkte). Beide Datensätze lassen sich durch die theoretisch erwarteten Kurven (Linien) hervorragend anpassen.

8.2 Quantum Beats

Einen einfachen exponentiellen Abfall der Quanten-Interferenz wie in Abbildung 8.1 gezeigt, erhält man nur unter bestimmten Polarisationsbedingungen. Die oben dargestellten Experimente wurden alle mit einer Polarisierung durchgeführt, bei der nur eines der beiden Feinstruktur-Niveaus angeregt wird. Im Allgemeinen erhält man zusätzlich zum exponentiellen Zerfall noch eine Schwebung (engl.: *beat*), deren Frequenz genau der Energiedifferenz der Feinstrukturaufspaltung entspricht [38, 54, 62, 81]. In Abbildung 8.2 sind die beiden Extremfälle dargestellt, einerseits eine maximale Überlagerung beider Niveaus, andererseits die Anregung nur eines der beiden Energiezustände.

Wird nur eines der beiden Feinstrukturniveaus angeregt, so findet während der gesamten Lebensdauer des Zustands kein Übergang in das andere Niveau statt. Wird dagegen eine Überlagerung beider Niveaus angeregt, ergibt sich eine zeitliche Entwicklung der Gesamtpolarisation, da sich die Eigenfrequenzen der beiden Zustände genau um die Feinstrukturaufspaltung un-

terscheiden. Die Polarisation des Gesamtzustands oszilliert dadurch mit der Differenzfrequenz von einem Energie-Eigenzustand über eine Superposition der Zustände zum anderen Energie-Eigenzustand und zurück. Eine Wechselwirkung mit dem Lichtfeld findet nur für die Polarisationskomponente des QD-Zustands statt, welche parallel zur Anregungspolarisation ist. Insgesamt ist die Wechselwirkung mit dem zweiten Puls also periodisch in der Verzögerungszeit moduliert und es gibt bestimmte Pulsabstände, für die keine Wechselwirkung und damit keine Interferenz stattfindet.

Mathematisch wird diese Schwebung über die trigonometrischen Additionstheoreme beschrieben: $\sin(\omega_1 t) + \sin(\omega_2 t) \propto \cos((\omega_1 - \omega_2)t/2)$. Da im hier diskutierten Doppelpulsexperiment Phasensprünge von 180° nicht unterscheidbar sind, ergibt sich eine Modulation mit der Betragsfunktion $|\cos(\Delta\omega t/2)| = |\cos(\pi t/T)|$. Einschließlich des exponentiellen Zerfalls erhält man die Fitfunktion

$$N_1 = |\cos(\pi t/T)| \exp(-t/T_2)$$

t : Verzögerungszeit, T : Periode der Schwebung, T_2 : Dephasierungszeit.

Aus der oben dargestellten Fitkurve erhält man die Periode $T = 133$ ps und, wie schon im Fall ohne Schwebung, eine Dephasierungszeit von ca. 320 ps. Die Frequenz der Schwebung lässt sich in eine Energieaufspaltung von $\Delta E = \hbar\Delta\omega = h/T = 31 \mu\text{eV}$ umrechnen.

8.3 Vergleich zu cw-Messungen

8.3.1 Feinstrukturaufspaltung

Die über Messung von Quantum Beats ermittelte Feinstrukturaufspaltung stimmt, im Rahmen der Messgenauigkeit, exakt mit der in hochauflösenden cw-Messungen beobachteten Linienaufspaltung von $30 \mu\text{eV}$ überein. Da in cw-Messungen die beiden Energieniveaus einzeln gemessen werden können, ist eine sehr genaue Bestimmung der Polarisationsabhängigkeit möglich, welche sich direkt auf die Doppelpulsmessung übertragen lässt. Man erkennt in Abbildung 8.2, dass sich die Modulation über die volle Amplitude des Referenzsignals erstreckt, andererseits bei entsprechender Polarisation aber auch komplett unterdrückt werden kann. Aufgrund der cw-Untersuchungen wird also eine hervorragende Kontrolle über den Polarisationszustand des Exzitons ermöglicht. Die Doppelpulsmessungen zeigen darüber hinaus, dass der anfangs eingestellte Zustand über die gesamte Lebensdauer des Exzitons erhalten bleibt.

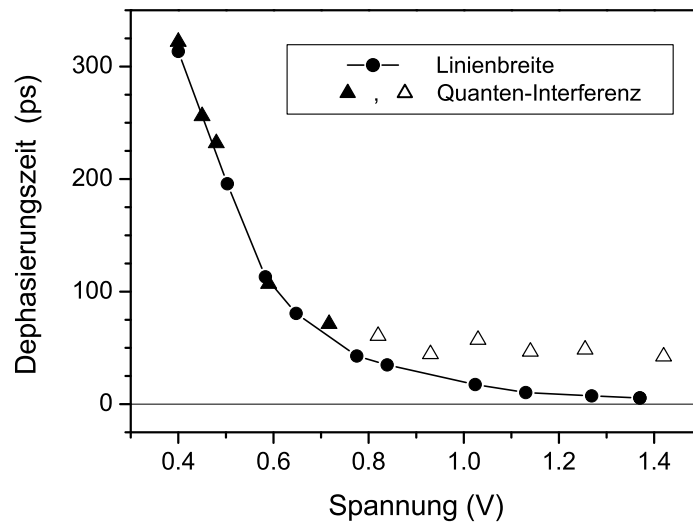


Abbildung 8.3: Vergleich der Dephasierungszeiten aus der Analyse von Linienbreiten (Punkte) mit den Werten aus Doppelpulsexperimenten (Dreiecke). Für Spannungen bis 0,7 V stimmen beide Datensätze sehr gut überein. Bei höherer Spannung können Quanten-Beats unabhängig von der Polarisierung nicht vollständig unterdrückt werden, wobei das erste Maximum immer höher liegt als erwartet (weiße Dreiecke).

8.3.2 Dephasierungszeiten

Eine weitere Vergleichsmöglichkeit zwischen cw-Messungen und Doppelpulsexperimenten bietet sich bei der Bestimmung der Dephasierungszeit. Auch hier stimmen die Ergebnisse unterschiedlicher Messmethoden sehr gut überein (siehe Abbildung 8.3). Allein bei Spannungen ab ca. 0,8 V liefern die Doppelpulsexperimente keine zuverlässigen Daten mehr, da hier Quantum Beats unabhängig von der Polarisierung der Anregung nicht mehr vollständig unterdrückt werden können. In diesem Fall lässt sich eine Dephasierungszeit überhaupt nur schwer zuordnen, da diese üblicherweise als Zeitkonstante eines rein exponentiellen Zerfalls definiert ist. Die Interferenz-Amplitude im ersten (und einzig messbaren) Maximum der Quantum Beats ist allerdings immer höher als man aus dem Vergleich mit cw-Messungen erwarten würde. Der Grund hierfür ist bisher ebenso wenig geklärt, wie die Ursache für das polarisationsunabhängige Auftreten der Beats bei höherer Spannung.

Viel wichtiger für weitergehende Experimente ist jedoch der Bereich langer Kohärenzzeiten, also von Probenspannungen zwischen 0,4V und 0,7V. Aus der Übereinstimmung beider Messmethoden in diesem Bereich kann man einerseits schließen, dass die gemessenen cw-Photostromlinien nicht aufgrund

eines beschränkten experimentellen Auflösungsvermögens verbreitert sind¹. Andererseits zeigt die Übereinstimmung aber auch, dass die Kohärenz bei Anregung mit signifikanter Pulsfläche (hier $2 \times \pi/2$) immer noch exakt genauso lang erhalten bleibt, wie im Grenzfall verschwindender Anregungsleistung. Für eine genaue Interpretation dieses Vergleichs ist auch hier wieder eine Unterscheidung zwischen der eigentlichen Wechselwirkung mit dem Lichtfeld und dem Zeitintervall zwischen beiden Pulsen notwendig. Für die Quanten-Interferenz-Messung ist der Verlust der Kohärenz in der Zeit zwischen dem ersten und zweiten Puls entscheidend, also einer Zeitspanne, in der die Anregungsleistung ebenfalls verschwindend gering ist. Der wesentliche Unterschied zur cw-Messung besteht darin, dass die Besetzung des Quantenpunkts im Fall der gepulsten Messung nicht vernachlässigt werden kann. Die Kohärenz des Systems ist also offensichtlich weitgehend unabhängig von dessen Besetzung. Außerdem zeigt sich, dass auch durch die vergleichsweise hohe Leistung eines $\pi/2$ -Pulses keine anderen langlebigen Anregungen generiert werden, welche die Kohärenz des QD-Zustands zerstören könnten.

8.3.3 Loch-Tunneln

Wie aus Abbildung 8.3 ersichtlich, wird die Dephasierungszeit maßgeblich durch Tunneln bestimmt und kann damit über die Spannung kontrolliert werden. Für die Kohärenz des Quantenzustands entscheidend ist dabei der erste der beiden Tunnelprozesse, welcher aufgrund der geringeren effektiven Masse dem Elektron zugeschrieben wird [63]. Die Tunnelzeit des Lochs kann über den Sättigungsstrom in cw-Experimenten bestimmt werden und ist um ca. eine Größenordnung länger als die des Elektrons (siehe Kapitel 6.2.1). In Doppelpulsexperimenten hat dieser Prozess zwar keinen Einfluss auf die (durch Kohärenz bestimmte) Interferenz-Amplitude, im Absolutwert des Photostroms sind aber Auswirkungen der Loch-Tunnelzeit beobachtbar. Der Effekt kann anhand des maximal zu erwartenden Photostroms in den beiden Extremfällen sehr kurzer bzw. sehr langer Pulsabstände verdeutlicht werden:

Bei kurzen Pulsabständen ist die Kohärenz noch vollständig erhalten und man erhält bei konstruktiver Interferenz zweier $\pi/2$ -Pulse genau ein Exziton pro Doppelpuls. Sind die Pulse dagegen zeitlich sehr weit getrennt, können sie als zwei Einzelereignisse betrachtet werden, wobei jeder Puls eine Anregung auf 50% Besetzungswahrscheinlichkeit bewirkt. Da bei sehr großen Abständen jedes optisch generierte Exziton vor Eintreffen des nächsten Pul-

¹Bei niedriger Probenspannung muss hier immer der Effekt der Sättigungsverbreiterung berücksichtigt werden (vgl. Kapitel 6.2.2)

ses aus dem QD heraus tunnelt, erhält man insgesamt wieder $2 \times 50\%$ also statistisch genau ein Exziton pro Doppelpuls. Gäbe es nur eine Art von Tunnelprozess, so wären alle Pulsabstände einfach als Übergang zwischen diesen beiden Extremfällen beschreibbar und der Photostrom bei konstruktiver Interferenz wäre für alle Pulsabstände konstant. Wegen der langen Loch-Tunnelzeit kann allerdings auch der Fall auftreten, dass der QD bei Eintreffen des zweiten Pulses gerade mit einem einzelnen Loch besetzt ist. Aufgrund der Renormalisierungsenergie ist der Übergang dann verstimmt und der zweite Puls bewirkt eine geringere Änderung der Besetzungswahrscheinlichkeit. Insgesamt ergibt sich damit eine Verringerung des Photostrom-Maximalwerts bei Pulsabständen im Bereich 10^2 Pikosekunden.

8.3.4 Oszillatorstärke

Neben Tunnelzeiten und Feinstruktur sollte auch die Leistungsabhängigkeit von Experimenten mit kontinuierlicher und gepulster Anregung in charakteristischer Art und Weise korreliert sein. Der grundlegende Systemparameter zur Beschreibung der Kopplungsstärke zwischen Quantenpunkt und Lichtfeld ist die Oszillatorstärke des untersuchten Übergangs. Da die tatsächliche optische Leistungsdichte beim hier untersuchten Quantenpunkt aufgrund der Nahfeld-Schattenmaske nicht genau bekannt ist, wird stattdessen im Folgenden ein probenspezifischer Proportionalitätsfaktor zwischen (Wurzel aus) Anregungsleistung P und Rabi-Frequenz Ω_0 bestimmt.

In cw-Messungen ist die charakteristische Leistungsabhängigkeit durch den dimensionslosen Parameter \tilde{P} gegeben. Der Wert $\tilde{P} = 1$ wird typischerweise bei einer kontinuierlichen Anregungsleistung zwischen 30 nW und 100 nW erreicht und variiert in Abhängigkeit von der Probenspannung (siehe Kapitel 6). Es lässt sich zeigen, dass \tilde{P} mit der Rabi-Frequenz Ω_0 über $\tilde{P} = T_1 T_2 \Omega_0^2$ zusammenhängt [3]. Da sich T_1 und T_2 aus Sättigung bzw. Linienbreite der cw-Spektren bestimmen lassen, erhält man bei Auswertung der Messreihen zu Sättigungsspektroskopie einen Proportionalitätsfaktor $C = \Omega_0 / \sqrt{\tilde{P}} = 0,19 \pm 0,04 \text{ THz} / \sqrt{\text{mW}}$.

Will man diesen Wert mit einer direkten Messung von Rabi-Oszillationen wie in Kapitel 7 vergleichen, so muss man zunächst eine Umrechnung zwischen der Laserleistung während eines Pulses und einer kontinuierlichen Anregung vornehmen. Unter Verwendung des Pulsflächen-Theorems erhält man für einen π -Puls:

$$\pi = \int_{-T/2}^{T/2} \Omega_0(t) dt = C \int_{-T/2}^{T/2} \sqrt{P(t)} dt$$

wobei T den Pulsabstand bezeichnet, im vorliegenden Fall also 12,5 ns. Zur

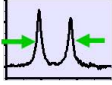

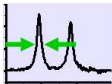
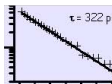
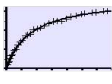
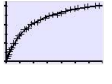
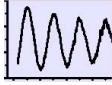
	cw		gepulst	
Asymmetrie	Aufspaltung		Quantum Beats	
Elektron-Tunneln	Linienbreite		Abfall der Interferenz	
Loch-Tunneln	Sättigung		Strom-Absolutwerte	
Oszillatorstärke			Leistungsabhängigkeit (x-Achse)	

Abbildung 8.4: Grundlegende Systemparameter und deren Einfluss auf cw-Experimente bzw. kohärente Messungen. Trotz komplementärer Messmethoden und eines Unterschieds von mindestens fünf Größenordnungen in der Anregungsleistung erhält man eine hervorragende quantitative Übereinstimmung der ermittelten Systemgrößen.

vollständigen Berechnung von C ist zusätzlich die Pulslänge τ_{Puls} , die gemessene mittlere Laserleistung \bar{P} und die Pulsform nötig. Es gilt:

$$\bar{P} = \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} P(t) dt \quad \text{mit} \quad P(t) \propto \text{sech}^2 \left(\frac{1,76 t}{\tau_{Puls}} \right)$$

Eine Pulsfläche von 1π wird typischerweise bei einer Anregungsleistung von $\bar{P} = 2 \mu\text{W}$ erreicht wobei die Pulslänge ca. 2,3 ps beträgt. Damit erhält man insgesamt einen Proportionalitätsfaktor $C = 0,25 \pm 0,03 \text{ THz}/\sqrt{\text{mW}}$. Die Laserleistung während eines Pulses ist hier über 5000 mal höher als die gemessene, mittlere Leistung \bar{P} und liegt damit im Bereich $P \approx 10 \text{ mW}$. Trotz eines Unterschieds in der Anregungsleistung von mehr als fünf Größenordnungen stimmt die ermittelte Leistungsabhängigkeit in cw-Experimenten erstaunlich gut mit den kohärenten Messungen überein.

Insgesamt kann das Zwei-Niveau-System also unabhängig von den experimentellen Bedingungen durch sehr wenige grundlegende Parameter vollständig beschrieben werden. Die in cw-Experimenten ermittelten Werte behalten auch unter der um Größenordnungen höheren Anregungsleistungen kohärenter Messungen quantitative Gültigkeit im gesamten interessanten Spannungsbereich. Eine Übersicht der Messmethoden und zugrunde liegenden Systemparameter ist noch einmal in Abbildung 8.4 dargestellt.

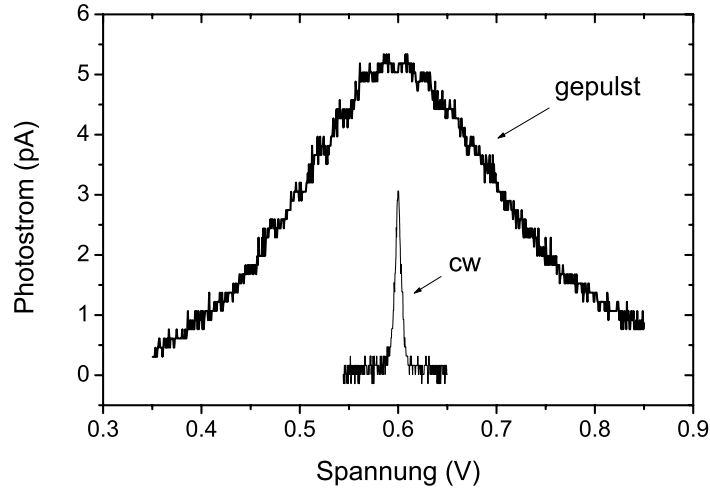


Abbildung 8.5: Photostrom-Spektrum bei Anregung mit einzelnen $\pi/2$ -Pulsen bzw. unter cw-Anregung. Im Fall gepulster Anregung spiegelt das Photostromsignal im Wesentlichen die spektrale Breite der Laserpulse wider. Die leichte Asymmetrie des Spektrums ist durch die verminderte Tunneleffizienz bei niedriger Spannung begründet.

8.4 Ramsey-Interferenzen

Bei kohärenter Anregung des Zwei-Niveau-Systems mit einzelnen Pulsen bewirkt eine Verstimmung des Lasers gegenüber der Resonanz im Wesentlichen eine Verringerung der maximal erreichbaren Besetzungswahrscheinlichkeit (siehe Kapitel 7.3). Verwendet man dagegen statt eines einzelnen π -Pulses zwei zeitlich getrennte $\pi/2$ -Pulse so erhält man zusätzlich so genannte Ramsey-Interferenzen. Die spektrale Breite pro Periode dieser Interferenzen nimmt dabei direkt proportional zum zeitlichen Abstand der beiden Pulse ab. Der Effekt wurde erstmals von N. F. Ramsey beschrieben und findet heute zahlreiche Anwendungen in Präzisionsmessungen, z.B. zur Verbesserung der Genauigkeit von Atomuhren [70].

Während man üblicherweise die Verstimmung durch Abstimmen eines Lasers oder Mikrowellenoszillators kontrolliert, wird in dieser Arbeit die Frequenz der Anregung konstant gehalten und stattdessen die Energie des Zwei-Niveau-Systems mithilfe des Stark-Effekt variiert. Wie in Kapitel 5.5 hergeleitet, erwartet man 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 8.5) überlagert.

In Abbildung 8.6 ist das Ramsey-Experiment für verschiedene Pulsab-

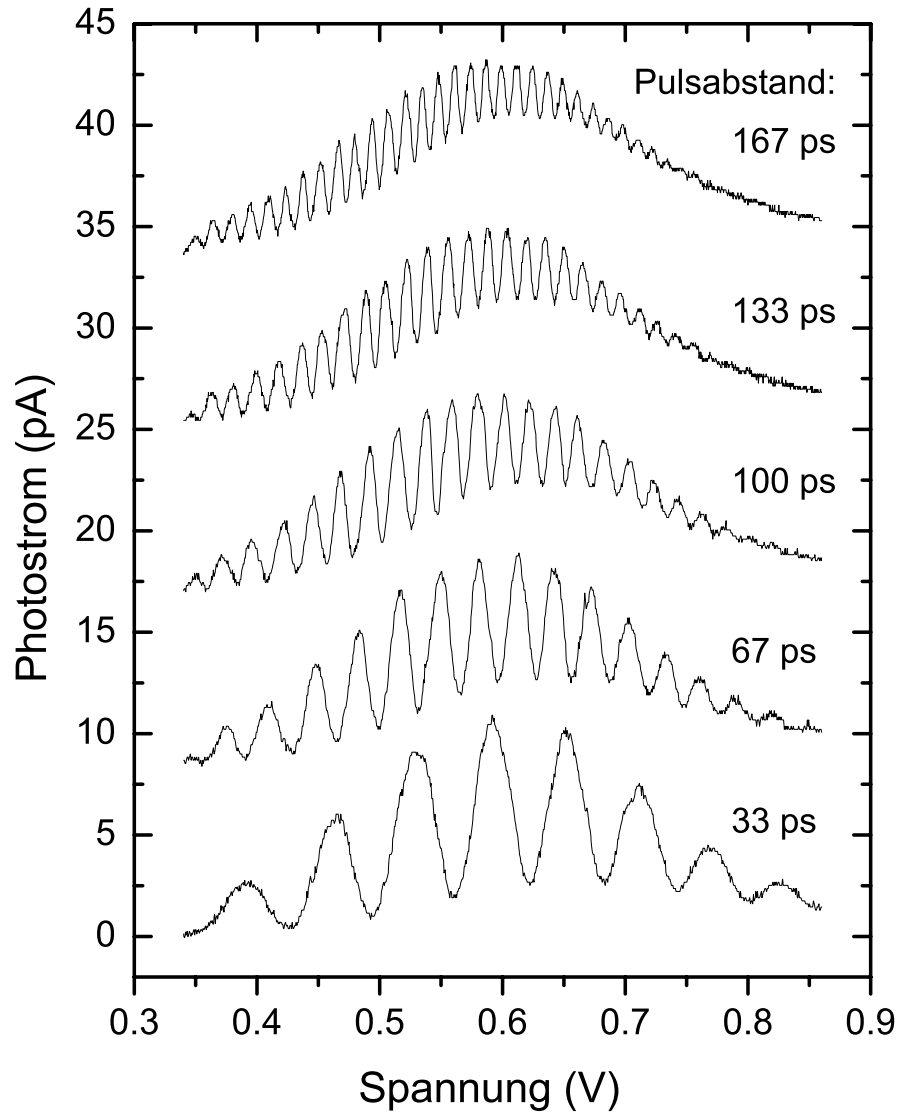


Abbildung 8.6: Ramsey-Experiment für verschiedene Pulsabstände. Je größer der zeitliche Abstand der Pulse ist, desto schmaler werden die Interferenzen. Die Einhüllende des Signals entspricht dem Spektrum einzelner Pulse (vergleiche Abbildung 8.5).

stände dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Interferenzen wie erwartet mit zunehmendem Pulsabstand immer schmaler werden. Darüber hinaus ist vor allem bei großen Pulsabständen eine starke Asymmetrie in der Amplitude der Interferenzoszillation zu sehen. Diese ist durch die Spannungsabhängigkeit der Dephasierungszeit bedingt. Je höher die Probenspannung desto kürzer ist die Tunnelzeit und desto schneller nimmt die Kohärenz zu großen Pulsabständen hin ab. Der Anteil des kohärenten (oszillatorischen) Signals am Gesamtsignal ist daher bei niedrigen Spannungen immer am höchsten. Ein Vergleich zwischen der Interferenzamplitude im Ramsey-Experiment und den anfangs des Kapitels beschriebenen „konventionellen“ Quanten-Interferenz-Experimenten ergibt eine gute Übereinstimmung der Dephasierungszeit.

Der inkohärente Teil des Signals (Untergrund) kommt zustande, wenn der erste Tunnelprozess erfolgt, noch bevor eine Wechselwirkung der QD-Anregung mit dem zweiten Puls stattfinden kann. Im Grenzfall sehr langer Pulsabstände sind die beiden Einzel-Anregungen völlig unabhängig voneinander und erwartet man wieder ein Spektrum ähnlich wie in Abbildung 8.5. Aufgrund der spannungsabhängigen Tunnelzeiten ist der Anteil des inkohärenten Untergrunds auf der rechten Seite der Spektren in Abbildung 8.6 immer höher als auf der linken Seite.

Bei genauer Betrachtung der Messung erkennt man zudem, dass die Periode der Ramsey-Interferenzen zu hohen Spannungen hin etwas schmaler wird. Dies ist auf die Nichtlinearität des Stark-Effekts (vgl. Abbildung 4.5) zurückzuführen, die bewirkt, dass eine feste Energiedifferenz $\hbar\delta$ im linken Teil der Spektren leicht höheren Spannungsdifferenzen ΔV entspricht als auf der rechten Seite.

Da die Ramsey-Interferenzen proportional zum 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, sodass die tatsächlich realisierbare Auflösung beschränkt bleibt. In Abbildung 8.7 ist eine Ramsey-Messung für einen Pulsabstand von 670 ps dargestellt, wobei hier eine Anregungsenergie in Resonanz zu 0,43 V gewählt wurde. Aufgrund des langen Pulsabstands sind in dieser Messung die Interferenzen sehr schmal. Die Halbperiode der Oszillation ist mit 3 μeV sogar kleiner als die natürliche Linienbreite des Systems bei dieser Spannung (5 μeV).

Mit einem geeigneten Doppelpuls-Experiment kann also ein höheres spektrales Auflösungsvermögen erreicht werden als in jeder denkbaren Einzelpulsmessung (die cw-Messung zu Bestimmung der Linienbreite kann dabei als

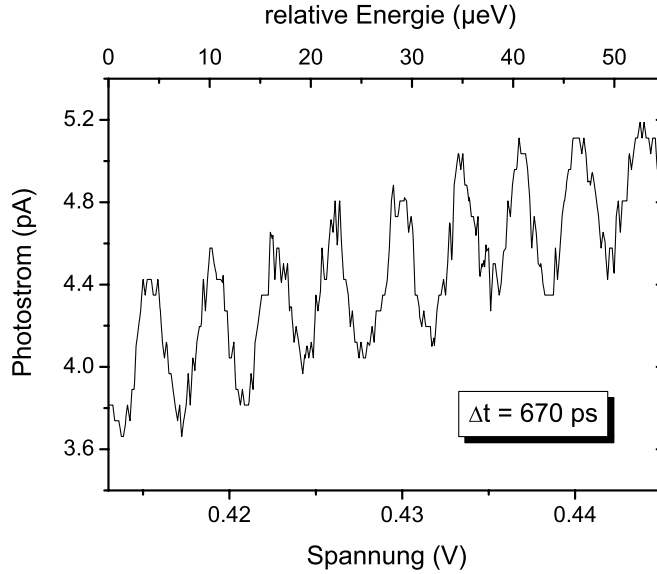


Abbildung 8.7: Ramsey-Interferenzen bei einem Pulsabstand von 670 ps und einer Anregungsenergie resonant zu 0,43 V. Die spektrale Breite einer Halbperiode beträgt nur $3 \mu\text{eV}$ und ist damit schmäler als die homogene Linienbreite.

unendlich langer Einzelpuls gesehen werden). Im Fall von Atomen mit einer festen Übergangsenergie wird dies, wie erwähnt, zur Verbesserung von Frequenzstandards in Atomuhren verwendet. In unserem System, dessen Energie über die Spannung kontrolliert werden kann, könnte der Effekt umgekehrt verwendet werden, um den Übergang sehr genau auf die Energie des Anregungslasers zu stabilisieren. Eine weitere Anwendungsmöglichkeit könnte sich aus der hohen Empfindlichkeit der phasensensitiven Messung gegenüber jeder Schwankung der Übergangsenergie ergeben. Denkbar wäre hier eine Anwendung als Sensor für beliebige Wechselwirkungen innerhalb des Zeitintervalls zwischen den beiden Laserpulsen.

In Hinblick auf mögliche Anwendungen im Bereich der Quanten-Informationstechnologie sind Pulsabstände kürzer als die Dephasierungszeit von Interesse. Wie oben gezeigt, bewirkt bei Anregung mit Doppelpulsen schon eine geringe, für Einzelpulse nahezu vernachlässigbare Verstimmung 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 1π 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 zu verändern.

Daneben ist der Effekt auch für Gatter-Operationen eines Quantencomputers interessant, in denen sowohl Ziel- als auch Kontroll-Bit auf kohärenten Zuständen basieren. Die erste experimentelle Demonstration eines quantenmechanischen Gatters in einem QD-System basiert auf der Wechselwirkung zweier Exzitonen in einem einzelnen GaAs/AlGaAs-QD, welche eine Renormalisierung der Energieniveaus (Biexziton-Bindungsenergie) von 3,6 meV zur Folge hat [56]. Besser skalierbare Ansätze beruhen auf gekoppelten Quantenpunktsystemen. Dabei hat sich allerdings gezeigt, dass die Dephasierungszeit vertikaler QD-Moleküle bei starker elektronischer Kopplung deutlich abnimmt [23]. 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 1π zu variieren. Im hier untersuchten System ist beispielsweise die Halbperiode der Ramsey-Interferenzen bei einem Pulsabstand von 80 Pikosekunden² nur 1/70 der oben erwähnten Biexziton-Bindungsenergie. Durch diese hohe Sensitivität auf geringe Energievariationen kommen auch deutlich schwächere Wechselwirkungsmechanismen, z.B. über Dipol-Dipol-Kopplung benachbarter QDs [85], 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.

Die meisten der hier vorgestellten Anwendungsmöglichkeiten sind zwar aus heutiger Sicht noch relativ weit von einer tatsächlichen Realisierung entfernt. Es wird jedoch verdeutlicht, dass sich durch Verwendung von Doppelpulsen in Kombination mit einer Variation der Resonanzenergie wichtige neue Möglichkeiten im Bereich kohärenter optischer Kontrolle ergeben.

8.5 Überlappende Pulse

Unabhängig von Dekohärenz ergibt sich immer ein prinzipieller Unterschied zwischen Experimenten mit zeitlich getrennten bzw. überlappenden Pulsen, da im letzteren Fall die beiden Pulse schon vor der Anregung des QDs optisch interferieren. Am einfachsten lässt sich dies anhand einer Anregung mit zwei $\pi/2$ -Pulsen diskutieren.

Im Fall zeitlich getrennter Pulse bewirkt der erste Puls eine Drehung des Blochvektors um die $-u$ -Achse vom Ausgangszustand $(u, v, w) = (0, 0, -1)$

²Dies entspricht 1/4 der gemessenen Dephasierungszeit bei 0,4 V und vermutlich etwa 1/10 der Dephasierungszeit bei 0 V.

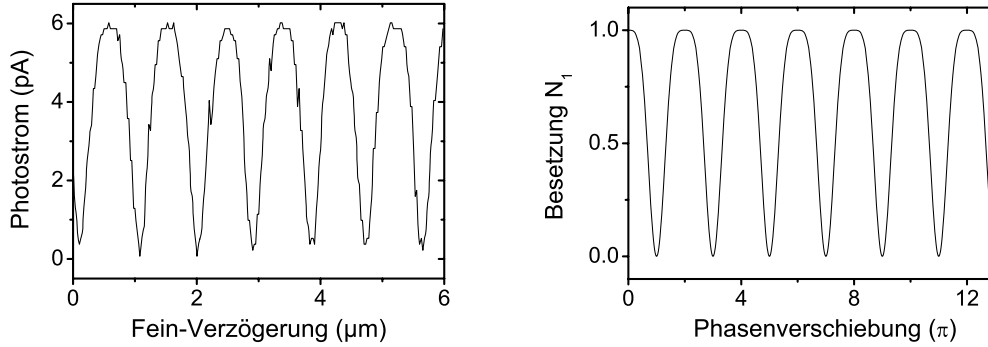


Abbildung 8.8: Besetzungswahrscheinlichkeit des Zwei-Niveau-Systems bei optischer Interferenz vollständig überlappender $\pi/2$ -Pulse. Die gemessene Oszillation im Photostrom (links) entspricht sehr gut der theoretischen Erwartung (rechts). Die Phasenvariation wird experimentell über eine Verzögerungsstrecke realisiert und ist daher periodisch in der Anregungswellenlänge ($0,93 \mu\text{m}$).

auf den Zustand $(0, -\sin \theta, \cos \theta)$, im Fall einer Pulsfläche $\theta = \pi/2$ also auf $(0, -1, 0)$. Abhängig von der Phasenverschiebung φ des zweiten Pulses ist die Rotationsachse der weiteren Anregung um den Winkel φ in der u - v -Ebene gedreht. Durch Rotation des Blochvektors um den Winkel $\pi/2$ bezüglich der neuen Drehachse $(-\cos \varphi, -\sin \varphi, 0)$ erhält man schließlich den Endzustand $(u, v, w) = (-\cos \varphi, -\sin \varphi, \cos \varphi)$. Insgesamt ergibt sich für die im Photostrom messbare Besetzungswahrscheinlichkeit N_1 eine gleichförmige Oszillation in Abhängigkeit von der Phasenverschiebung φ der beiden Pulse:

$$N_1 = 1/2 (w + 1) = 1/2 (\cos(\varphi) + 1) = \cos^2(\varphi/2)$$

Diese Vorhersage stimmt gut mit den experimentellen Beobachtungen der Quanten-Interferenz-Messungen aus Kapitel 8.1 überein.

Wird der „zweite“ Puls dagegen ohne Zeitverzögerung direkt mit dem ersten Puls überlagert, so erfährt der Quantenpunkt lediglich eine Modulation der Pulsfläche aufgrund der optischen Interferenz der Teilpulse. Da die Anregung aber letztlich über einen einzigen Gesamtpuls stattfindet, ist die Rotation auf der Blochkugel allein auf die v - w -Ebene beschränkt. Die optische Interferenz der Teilpulse in Abhängigkeit von der Phasendifferenz φ lässt sich über deren elektrischen Feldvektor \vec{E} beschreiben:

$$|\vec{E}| = E_0 (\sin(\omega t) + \sin(\omega t + \varphi)) = 2E_0 \sin(\omega t + \varphi/2) \cos(\varphi/2)$$

Die Feldstärke E_0 entspricht dabei einer Pulsfläche von $\pi/2$. Ohne die Modulation mit $\cos(\varphi/2)$ entspricht das Feld der Gesamtanregung einem π -Puls

$(2E_0)$. Aufgrund der optischen Interferenz ist die Pulsfläche θ allerdings von der Phasenverschiebung φ abhängig, sodass insgesamt für die Besetzungswahrscheinlichkeit N_1 gilt:

$$N_1 = \sin^2(\theta/2) = \sin^2(\pi \cos(\varphi/2)/2)$$

Im Vergleich zu einer gewöhnlichen Sinus-Oszillation sind die Maxima dieser Funktion breiter als die Minima. In Abbildung 8.8 ist sowohl die theoretisch berechnete Kurve als auch eine entsprechende Photostrommessung dargestellt.

Als Nächstes soll nun der Fall zweier Pulse mit einer Pulsfläche von jeweils mehr als $\pi/2$ betrachtet werden. Überlappen beide Pulse vollständig, so bedeutet dies, dass die Gesamtpulsfläche bei konstruktiver Interferenz mehr als 1π beträgt. Der Blochvektor wird damit über den Punkt $w = 1$ hinaus gedreht und die Besetzungswahrscheinlichkeit geht in den Bereich maximaler Anregungsleistung wieder auf Werte $< 100\%$ zurück. In einer Messung analog zu Abbildung 8.8 erhält man in diesem Fall statt eines einfachen, breiten Maximums jeweils Doppelpeaks mit einem lokalen Minimum in den Punkten konstruktiver Interferenz. Im speziellen Fall der konstruktiven Interferenz zweier Pulse mit jeweils $3\pi/4$ Pulsfläche geht die Besetzungswahrscheinlichkeit im Endzustand auf 50% zurück.

Genau derselbe Wert wird bei konstruktiver Quanten-Interferenz nach zwei zeitlich getrennten Pulsen der Fläche $3\pi/4$ erreicht. Variiert man die relative Phase φ der Pulse, so bleibt die Anregungsleistung in diesem Fall aber konstant. Im Gegensatz zu überlappenden Pulsen, die bei geeigneter Phasenverschiebung eine optische Leistung entsprechend 1π Pulsfläche erreichen können, geht die Besetzung im Fall getrennter Pulse kontinuierlich auf Null zurück, wenn φ zu destruktiver Interferenz hin variiert wird. Der Endzustand beschreibt dabei auf der Blochkugel eine 8-förmige Bahn, deren w -Komponente für diese spezielle Pulsfläche einer einfachen Sinus-Oszillation gehorcht:

$$w = 1/2 (\cos(\varphi) - 1) \implies N_1 = 1/2 \cos^2(\varphi/2)$$

In Abbildung 8.9 ist der Übergangsbereich zwischen den beiden eben beschriebenen Fällen dargestellt, d.h. eine Anregung mit zwei mal $> \pi/2$ Pulsfläche und zeitlich *teilweise* überlappenden Pulsen. Der Endzustand des Blochvektors erhält hier aufgrund der teilweisen Trennung der Pulse im Allgemeinen auch eine Komponente in u -Richtung, da die Pulse aber noch relativ stark überlappen, erscheint zusätzlich auch die Doppelpeak-Struktur im Bereich konstruktiver Interferenz.

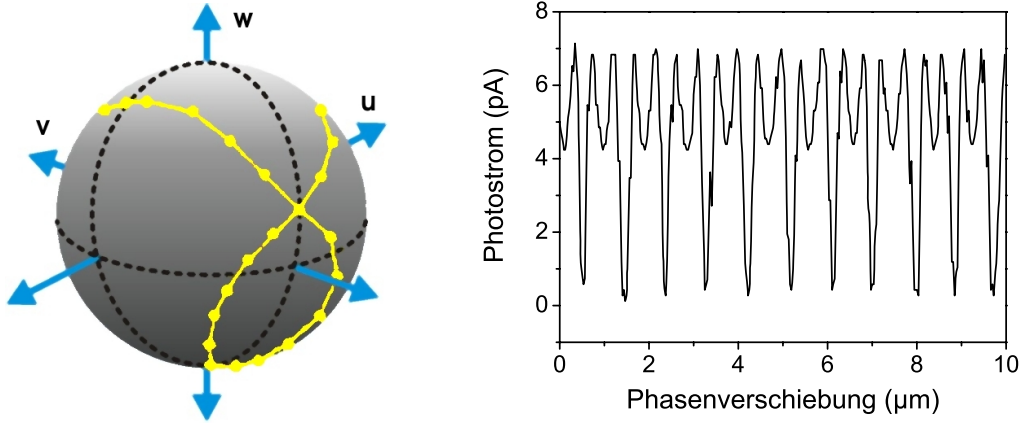


Abbildung 8.9: Anregung des Zwei-Niveau-Systems mit resonanten, überlappenden Pulsen einer Gesamtpulsfläche von mehr als 1π . Links: Endzustand des Blochvektors in Abhängigkeit von der Phasenverschiebung des zweiten gegenüber dem ersten Puls (qualitative Darstellung). Rechts: Messung der entsprechenden Besetzungswahrscheinlichkeit über den Photostrom.

Wie in Kapitel 5 erläutert, kann die Verstimmung des Lasers gegenüber der Resonanz durch eine Verkipfung der Rotation auf der Bloch-Kugel beschrieben werden. Die Drehachse erhält dabei eine Komponente in positiver bzw. negativer w -Richtung, je nachdem ob die QD-Resonanz höher oder niedriger als die Energie des Lasers liegt. Bezüglich des Doppelpuls-Experiments bedeutet dies, dass positive und negative u -Richtung und damit positive bzw. negative Phasenverschiebung nicht mehr äquivalent sind. Anschaulich gesprochen nähert sich die eine Seite der „Acht“ auf der Bloch-Kugel (siehe linker Teil von Abbildung 8.9) durch die Verkipfung an den Punkt $w = 1$ an, während die andere Seite in Richtung „Äquator“ nach unten verschoben wird. Für die Photostrom-Messung bedeutet dies, dass die Doppelmaxima bei endlicher Verstimmung nicht mehr symmetrisch sind.

Die entsprechenden experimentellen Daten sind in Abbildung 8.10 dargestellt. Obwohl das energetisch niedrigste Laserspektrum nur um etwa 6% der Halbwertsbreite gegenüber der Resonanz verschoben ist, zeigt die entsprechende Interferenzmessung (mittlerer Graph) schon eine deutlich sichtbare Asymmetrie. In der unteren Interferenzmessung ist die Verstimmung insgesamt größer und hat das umgekehrte Vorzeichen. Die Asymmetrie der unteren Kurve ist daher einerseits noch stärker und zeigt andererseits im Vergleich zur mittleren Kurve genau die umgekehrte Unterdrückung bzw. Verstärkung der einzelnen Maxima der Doppelstruktur.

Insgesamt zeigt das hier beschriebene Experiment, dass auch komplexe-

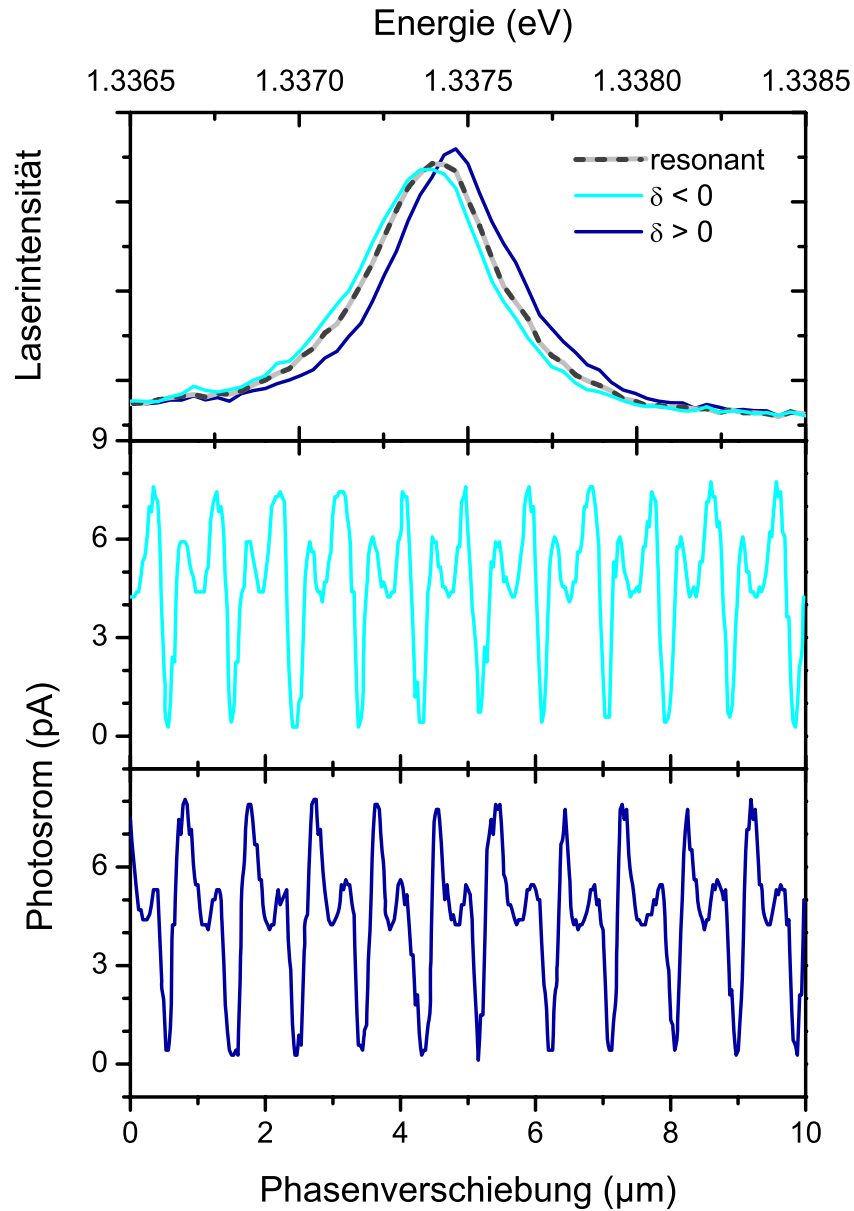


Abbildung 8.10: Anregung mit leicht verstimmten, überlappenden Pulsen einer Gesamtpulsfläche von mehr als 1π . Im oberen Graph sind die Laserspektren dargestellt. Je nach Vorzeichen der Verstimmung wird entweder der rechte oder der linke Peak der Doppelmaxima in der Interferenzmessung verstärkt bzw. unterdrückt (mittlerer und unterer Graph). Schon eine Verstimmung um wenige Prozent der spektralen Halbwertsbreite der Pulse resultiert in einer deutlich sichtbaren Asymmetrie des Interferenzmusters.

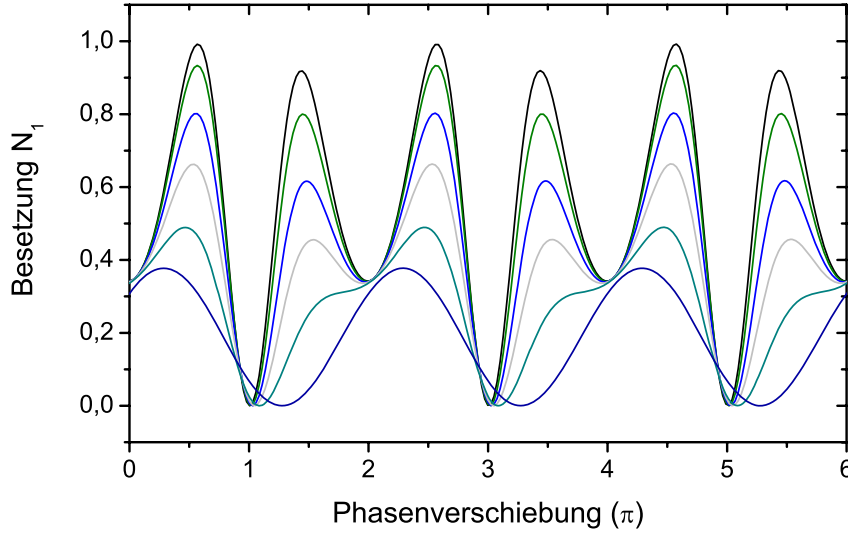


Abbildung 8.11: Theoretische Simulation zur verstimmten Anregung mit zeitlich überlappenden Pulsen. Mit zunehmendem Pulsabstand von $\tau = 0,6; 1,2; 2,0; 2,8; 4,2$ und $11,2$ ps sind die Doppel-Maxima immer weniger ausgeprägt. Die Pulsdauer beträgt $2,8$ ps, die restlichen Parameter entsprechen ebenfalls den experimentellen Bedingungen der mittleren Kurve in Abbildung 8.10.

re Oszillationen der Besetzungswahrscheinlichkeit noch relativ anschaulich anhand der Blochkugel erklärt werden können. Dass schon extrem geringe Abweichungen in der Anregungsenergie eine deutlich sichtbare Änderung des Messsignals bewirken, kann als Beweis für die hervorragende kohärente Kontrolle über das QD-System gesehen werden. Die Verstimmung im mittleren Teil von Abbildung 8.10 beträgt nur etwa $27 \mu\text{eV}$, die Grenze gerade noch nachweisbarer Verstimmung liegt bei noch kleineren Energieverschiebungen und damit deutlich unter dem spektralen Auflösungsvermögen des Spektrometers. Die hier beschriebene Methode wird daher verwendet, wenn der Laser auf exakte Resonanz zum Quantenpunkt gestellt werden soll. Eine ähnliche Einstellgenauigkeit könnte mit „konventionellen“ Methoden aufgrund der spektralen Auflösung rein prinzipiell nicht erreicht werden.

Neben der anschaulichen, qualitativen Beschreibung des Experiments kann die Oszillation der Besetzungswahrscheinlichkeit auch numerisch berechnet werden. Dafür wird erneut die in Kapitel 7.3 beschriebene Simulation verwendet. Die Abbildungen 8.11 und 8.12 zeigen jeweils die Ergebnisse der Rechnung für $\hbar\delta = 27 \mu\text{eV}$ und Anregung mit zwei sech^2 -Pulsen einer

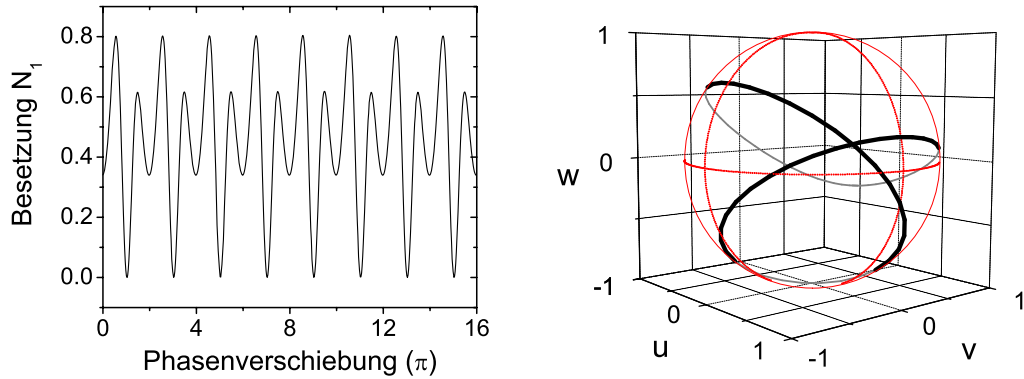


Abbildung 8.12: Simulierte Interferenz für $\tau = 2$ ps - links: Besetzung N_1 , rechts: Bahn des Endzustands auf der Blochkugel. Im Unterschied zu Abbildung 8.10 (Mitte) sind die lokalen Minima bei $2n\pi$ etwas tiefer, da in der Simulation weder der inkohärente Untergrund noch die Dekohärenz des QD-Systems berücksichtigt werden.

Pulsfläche von je $0,8\pi$. Die Parameter wurden so gewählt, dass sie den experimentellen Bedingungen möglichst gut entsprechen. In Abbildung 8.11 ist die Interferenz für verschiedene Pulsabstände zwischen 0,6 ps und 11,2 ps dargestellt. Bei einer Pulsdauer (FWHM) von 2,8 ps entspricht dies einer Verschiebung τ des zweiten Pulses um 0,21 bis 4 mal der Halbwertsbreite der Intensität, bzw. um 0,14 bis 2,7 mal der Halbwertsbreite der Amplitude.

Bei vollständig konstruktiver bzw. destruktiver Interferenz, d.h. in den lokalen bzw. globalen Minima der Oszillation ist die Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunkts weitgehend unabhängig davon, wie stark die Pulse überlappen. Die einzelnen Maxima der Doppelstruktur sind dagegen mit zunehmendem Pulsabstand immer weniger ausgeprägt, bis im Fall fast vollständig getrennter Pulse nur noch eine (nahezu) reine Sinus-Oszillation erwartet wird. Es fällt auf, dass letztere Kurve in Abbildung 8.11 sichtbar nach rechts verschoben ist. Dies liegt an der Verstimmung des Quantenpunkts gegenüber dem Laser. Auch wenn der zweite Puls genau in Phase mit dem ersten Puls ist, so hat sich die Phase des Quantenpunkts in der Zwischenzeit schon um $\delta\tau$ gegenüber dem Lichtfeld verändert und es findet keine vollständig konstruktive Interferenz mehr statt. Diese Situation entspricht genau dem in Kapitel 8.4 diskutierten Ramsey-Experiment.

In Abbildung 8.12 ist die Interferenz für einen Pulsabstand von 2 ps noch einmal gesondert dargestellt. Dieser Fall gibt die experimentell beobachtete Oszillation des Photostroms aus Abbildung 8.10 (Mitte) sehr gut wider. Der wesentliche Unterschied zum Experiment besteht darin, dass in der Simula-

tion sowohl der Untergrund als auch die Dekohärenz vernachlässigt werden. Dies bewirkt einen geringeren Abfall des Signals bei Anregung mit mehr als 1π Pulsfläche (vgl. Abbildung 7.3), d.h. die lokalen Minima sind in der Simulation etwas tiefer als in den Messkurven.

Ähnliche Experimente und Simulationen findet man auch in [49].

8.6 Experimente mit 4 bis 6 Pulsen

Für eine detaillierte Untersuchung verschiedener Dekohärenzprozesse wurden Experimente mit komplexeren Pulsfolgen durchgeführt. Ziel war dabei, den Einfluss der optischen Anregung auf die Dephasierung unabhängig von der (langsamen) zeitlichen Entwicklung aufgrund der Lebensdauer des Systems zu messen. Interessante Fragen in diesem Zusammenhang sind unter anderem:

- Wird die Dephasierung maßgeblich direkt durch die optische Anregung des Zwei-Niveau-Systems verursacht [39,88] oder vielmehr durch Wechselwirkung mit inkohärenten Anregungen der Umgebung?
- Wie stark ist die anfängliche Dephasierung des Systems innerhalb der ersten Pikosekunden?
- Ist die Dephasierung von der Verstimmung abhängig?
- Spielt die relative Phasenlage der Teilpulse für die Dephasierung eine Rolle, also der Unterschied welchen Weg der Blochvektor bei einer definierten Pulsfläche beschreibt?

Um diese Problemstellungen näher zu untersuchen, wurde ein optischer Aufbau zur Erzeugung von bis zu sechs Teilpulsen realisiert. Neben dem bekannten Michelson-Interferometer zur Erzeugung von Doppelpulsen wird hier ein Teil des Laserstrahls auf einen alternativen Strahlengang mit zwei weiteren Interferometern abgeteilt (siehe Abbildung 8.13). Die optischen Weglängen der Teilstrahlen sind so eingestellt, dass der Referenzpuls des Hauptinterferometers weiterhin die erste Anregung bestimmt. Dann folgen bis zu fünf weitere Pulse im Abstand von je 10 ps, wobei der Abtastpuls wie in den bisher beschriebenen Experimenten mit Hilfe der regelbaren Verzögerungsstrecke gesteuert wird (links unten in Abbildung 8.13). Zur Vermeidung von Mehrfachreflexionen sind die einzelnen Interferometer durch Abschwächfilter getrennt.

Um den Einfluss der optischen Anregung getrennt von anderen Dephasierungsmechanismen zu untersuchen, wird zunächst über den ersten und

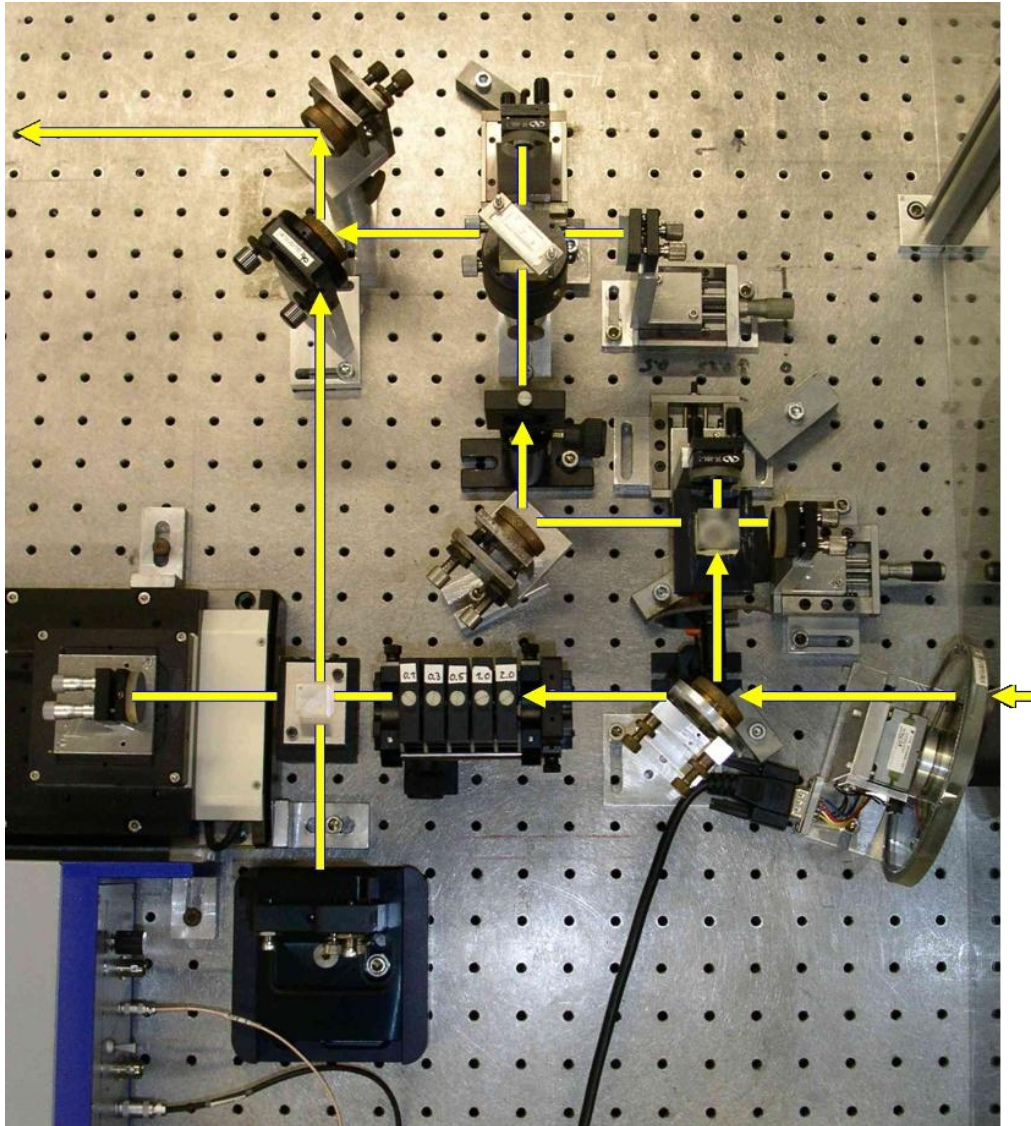


Abbildung 8.13: Experimenteller Aufbau zur Erzeugung einer Folge von bis zu sechs Teilpulsen. Links unten befindet sich das „übliche“ Michelson-Interferometer für Doppelpulsexperimente (vergleiche Abbildung 3.2). Rechts oben erkennt man zwei weitere Interferometer, die zur Erzeugung von vier zusätzlichen Pulsen dienen. Der Strahlengang ist durch Pfeile bzw. Linien angedeutet.

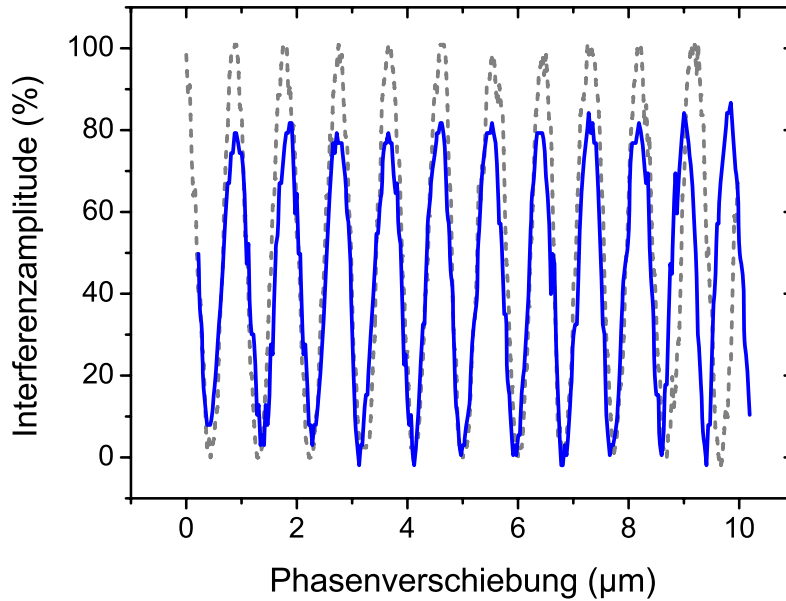


Abbildung 8.14: Interferenz-Messung mit zwei $\pi/2$ -Pulsen im Abstand von 50 ps. Die gestrichelte Kurve zeigt eine Referenzmessung, die durchgezogene Linie eine Messung mit vier zusätzlichen π -Pulsen zwischen den beiden $\pi/2$ -Pulsen. Die Dephasierung aufgrund dieser zusätzlichen Anregung beträgt etwa 20%. Die Messung zeigt im Vergleich zur Referenz eine etwas höhere Schwankung der Amplitude, gegen Ende tritt auch eine Abweichung in der Phase auf.

letzten Puls ein „übliches“ Quanten-Interferenz-Experiment mit zwei $\pi/2$ -Pulsen durchgeführt. Die gemessene Amplitude der Oszillation ohne zusätzliche Anregungspulse dient als Referenz. Anschließend wird untersucht, wie weit die Interferenzamplitude abnimmt, wenn zwischen den ursprünglichen Pulsen noch zwei oder vier weitere eingefügt werden. Für die zusätzlichen Pulse wird jeweils eine Pulsfläche von 1π gewählt, da die Besetzungswahrscheinlichkeit bei jeder geraden Anzahl von π -Pulsen unabhängig von deren relativer Phase (zumindest theoretisch) nicht verändert wird.

In Abbildung 8.14 ist das Ergebnis einer solchen Messung dargestellt. Die graue, gestrichelte Kurve zeigt die Interferenz bei Variation der Phase zwischen zwei $\pi/2$ -Pulsen mit einem Pulsabstand von 50 ps. Die Amplitude dieser Messung dient als Referenz und wird daher als 100% definiert. Die durchgezogene Linie entspricht einer Interferenzmessung, in der zusätzlich zwischen die $\pi/2$ -Pulse vier π -Pulse im Abstand von je 10 ps eingefügt wurden. Das tatsächliche Signal ist in dieser Messung aufgrund der insgesamt

höheren Anregungsleistung und des damit verbundenen inkohärenten Untergrunds um einige pA nach oben verschoben. Der in Bezug auf Dephasierung wichtige Parameter ist jedoch die Amplitude der Interferenz, welche hier ca. 80% des Referenzsignals beträgt. Dies entspricht einer Dephasierung pro π -Puls von etwas mehr als 5%.

Es hat sich gezeigt, dass die gemessene Dephasierung bei Verwendung von nur zwei Zusatzpulsen davon abhängt, wann innerhalb des 50 ps-Intervalls die entsprechende Anregung stattfindet. Bei den meisten Messungen war die Interferenz höher, wenn die Pulse 10 ps und 20 ps vor dem zweiten $\pi/2$ -Puls auftrafen als im Fall von 30 ps und 40 ps Abstand zum Abtastpuls. Außerdem konnte keine systematische Abhängigkeit von der relativen Phase der Pulse festgestellt werden. Beide Ergebnisse deuten darauf hin, dass ein wesentlicher Teil der Dekohärenz durch Wechselwirkung des Zwei-Niveau-Systems mit inkohärenten Anregungen in der Umgebung des QDs verursacht wird, deren Lebensdauer im Bereich 10 ps liegt.

Insgesamt wurden allerdings auch zwischen nominell gleichen Messungen scheinbar zufällige Schwankungen beobachtet, welche zum Teil nur wenig schwächer als die zu untersuchenden Differenzen in der Interferenzamplitude waren. Ein Grund dafür ist sicher, dass der Aufbau wegen der zahlreichen zusätzlichen optischen Komponenten insgesamt instabiler war und häufig justiert werden musste. Andererseits wurde aufgrund der höheren Gesamtleistung der Anregung und des zusätzlichen Filters zwischen den Interferometern eine erheblich geringere Abschwächung zwischen Laser und erstem Interferometer verwendet. Es ist daher möglich, dass auch die Stabilität des Lasers durch Rückkopplung in den Resonator beeinträchtigt wurde.

Eine Abhängigkeit von der Verstimmung des Lasers wurde, vermutlich auch aufgrund der relativ hohen Messunsicherheit, nicht festgestellt. Bei dieser Messung tritt allerdings zusätzlich noch das Problem auf, dass bei verstimmter Mehrfach-Anregung der Endzustand bei jeder beliebigen Pulsfläche immer abhängig von der relativen Phase der Pulse ist.

Um die hier vorgestellten Ergebnisse zu überprüfen und letztlich noch zuverlässigere Resultate zu den anfangs aufgeführten Problemstellungen zu erhalten, wäre es in zukünftigen Experimenten sinnvoll, zunächst nur einen oder zwei Zusatzpulse zu verwenden und deren Zeitabstand zum zweiten $\pi/2$ -Puls systematisch zu variieren. Danach könnte der Versuchsaufbau dann schrittweise auf komplexere Pulsfolgen ausgebaut werden, wobei eventuell eine Isolation des Lasers von Rückreflexen aus den Interferometern nötig ist.

Kapitel 9

Biexziton Rabi-Oszillationen

9.1 Grundlagen und Motivation

In den vorangegangenen Kapiteln wurde ausschließlich die kohärente optische Kontrolle des 1X-Übergangs und dessen zeitliche Entwicklung untersucht. Es hat sich gezeigt, dass der Quantenpunkt unter geeigneter Anregung als nahezu ideales Zwei-Niveau-System beschrieben werden kann. Weitere Niveaus können bei der grundlegenden Behandlung des optischen Übergangs vernachlässigt werden, allenfalls die Polarisationsabhängigkeit wird durch die Aufspaltung in Feinstruktur-Niveaus beeinflusst.

Im folgenden Kapitel sollen die bisher diskutierten Experimente nun erweitert werden auf das Biexziton (2X), also zwei Exzitonen, die gemeinsam einen gebundenen Zustand bilden. In der Beschreibung des QD-Systems müssen dabei neben den Niveaus „leerer QD“ und „Biexziton“ auch die beiden möglichen 1-Exziton-Zustände berücksichtigt werden. Ein weiterer Unterschied zu den vorangegangenen Kapiteln ergibt sich dadurch, dass die kohärente Erzeugung des Biexzitons über einen *Zwei-Photon-Prozess* stattfinden soll. Der inkohärente Fall dieser Anregung wurde schon 1994 an GaAs/AlGaAs- und 1999 an CdSe-Quantenpunkten untersucht [27, 43]. Bis heute sind aber nur sehr wenige Arbeiten zu kohärenter Anregung des Biexzitons bekannt [30, 37, 44, 56]. Die hier vorgestellte Arbeit stellt gewissermaßen eine Erweiterung von [37] dar: Es soll untersucht werden, wie das QD-System bei kohärenter Anregung mit hoher Pulsfläche reagiert, d.h. wie sich das Rabi-Experiment auf einen Zwei-Photon-Prozess, bei dem gleichzeitig zwei Exzitonen erzeugt werden, übertragen lässt.

Diese Erweiterung bekannter Experimente zur kohärenten Kontrolle ist allein aus grundlegender Sicht interessant, da, wie erwähnt, bisher nur wenige Arbeiten an Halbleiterproben bekannt sind, die untersuchten Prozesse

aber auch kein direktes Analogon in der Atom-Optik finden. In Bezug auf Quanten-Computing ist das Biexziton vor allem deshalb von Bedeutung, da es den einfachsten *gekoppelten* Zustand aus zwei Qubits (einzelnen Exzitonen) darstellt. Damit wird die Möglichkeit einer bedingten Quantenoperation eröffnet [31, 56, 68, 83]. Darüber hinaus wird das Biexziton zurzeit intensiv als Ausgangspunkt für die Erzeugung polarisationsverschränkter Photonen diskutiert, welche Anwendung im Bereich der Quantenkryptographie finden könnten (siehe z.B. [13]). Um tatsächliche Verschränkung zu gewährleisten, muss dabei die Feinstrukturaufspaltung so gering sein, dass sie auf der Zeitskala der optischen Rekombination keine Rolle spielt [72]. Derzeit beschäftigen sich mehrere Gruppen mit einer aktiven Kontrolle der Aufspaltung oder deren Minimierung schon bei der Herstellung der QD-Proben [52, 92]. In theoretischen Arbeiten wird dagegen auch die Kopplung der Quantenpunkte an die optischen Moden eines Mikroresonators diskutiert, wodurch auch bei endlicher Feinstrukturaufspaltung die Erzeugung polarisationsverschränkter Photonen ermöglicht werden soll [67, 77, 89].

Im Folgenden wird zunächst die grundlegende Zwei-Photon-Wechselwirkung des QD-Systems mit kurzen Laserpulsen aus theoretischer Sicht untersucht und anschließend mit experimentellen Ergebnissen verglichen. Die theoretische Beschreibung wurde dabei durch Paweł Machnikowski geleistet. Am Ende des Kapitels wird schließlich die Dekohärenzzeit des Zustands untersucht, welche für mögliche Anwendungen eine wichtige Rolle spielt. Sowohl theoretische als auch experimentelle Ergebnisse wurden in einer gemeinsamen Arbeit zur Veröffentlichung bei Physical Review B eingereicht.

9.2 Theorie

In der theoretischen Betrachtung des Systems müssen insgesamt vier Zustände berücksichtigt werden: Der Grundzustand $|g\rangle$, das Biexziton $|2X\rangle$ und die beiden Polarisationszustände des einzelnen Exzitons, hier mit $|+\rangle$ und $|-\rangle$ bezeichnet. Die 1-Exziton-Zustände 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 links- bzw. rechts-zirkularer Polarisation des Lichtfelds (σ^\pm). Der Übergang in die näherungsweise linear polarisierten Feinstrukturniveaus erfolgt auf einer Zeitskala von ca. 100 ps (siehe Kapitel 8.2) und kann daher für die Dauer der Anregung mit 2 - 3 ps Pulsen vernachlässigt werden. Dies bedeutet außerdem, dass bei zirkular polarisierter Anregung die Erzeugung des Biexzitons (ausgehend vom leeren QD) aufgrund des Pauli-Verbots unterdrückt ist [27, 54]. Für Zwei-Photon-Experimente wird daher immer linear polarisierte Anregung gewählt, welche eine Superposition zwei-

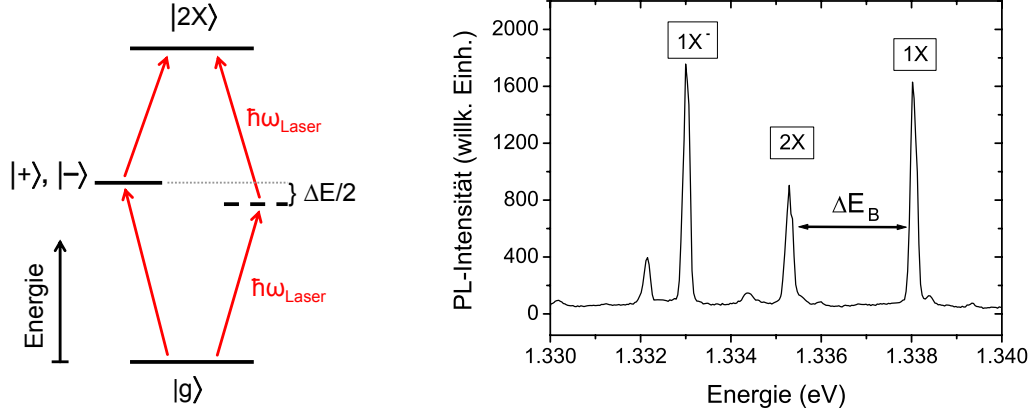


Abbildung 9.1: Energieniveaus in 2X-Experimenten. Links: Das Biexziton kann entweder über zwei energetisch unterschiedliche Anregungsprozesse mit dem Exziton als Zwischenzustand angeregt werden oder über einen Zwei-Photon-Prozess ohne realem Zwischenzustand. Rechts: Die Übergangsenergie zwischen Biexziton und Exziton liegt um $\Delta E_B = 2,75$ meV niedriger als der Übergang zwischen Exziton und leerem QD.

er gleich starker zirkular polarisierter Komponenten darstellt.

Die relevanten Energieniveaus sind einerseits durch den 1-Exziton-Übergang $E_0 = 1338$ meV gegeben und andererseits durch die Renormalisierungsenergie des Biexzitons $\Delta E_B = 2,75$ meV. Prinzipiell kann die Anregung des Biexzitons über zwei unterschiedliche Wege erfolgen (siehe Abbildung 9.1¹):

- Zunächst Erzeugung eines einzelnen Exzitons $|g\rangle \rightarrow |1X\rangle$ (Resonanzenergie E_0), danach Erzeugung des Biexzitons $|1X\rangle \rightarrow |2X\rangle$ bei $E = E_0 - \Delta E_B$.
- Gleichzeitige Erzeugung von zwei Exzitonen durch einen Zwei-Photon-Prozess bei $E = E_0 - \Delta E_B/2$.

Experimentelle Ergebnisse zu Biexziton-Rabioszillationen gemäß ersterem Anregungsweg findet man in [56]. Hier soll dagegen der Zwei-Photon-Prozess untersucht werden, daher wird die Laserenergie auf $E_0 - \Delta E_B/2$ eingestellt und eine lineare Polarisation gewählt. Da die Experimente mit kurzen Pulsen

¹Das negativ geladene Exziton, im rechten Teil der Abbildung mit $1X^-$ bezeichnet, spielt im Photostromregime keine Rolle (siehe Kapitel 4.1 bzw. Abbildung 4.4). Alle weiteren Linien stammen vermutlich von höheren Mehrfach-Exzitonen und können bei resonanter Anregung, wie schon in 1X-Experimenten, in guter Näherung vernachlässigt werden.

hoher Intensität erfolgen, kann allerdings eine nicht-resonante Anregung der 1X-Zustände nicht von vorneherein ausgeschlossen werden (vgl. Kapitel 7.3).

Die Wechselwirkung des Lichtfelds mit dem QD-System wird im *rotating wave frame* über folgende Hamilton-Funktion beschrieben:

$$H = \frac{\Delta E_B}{2} (|+\rangle\langle+| + |-\rangle\langle-|) + \frac{1}{2\sqrt{2}} f(t) (|g\rangle - |2X\rangle) (\langle+| - \langle-|) + \text{H.c.} \quad (9.1)$$

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

Die kohärente Entwicklung des Systems lässt sich einfacher beschreiben mithilfe der neuen Basiszustände:

$$\begin{aligned} |0\rangle &= \frac{|+\rangle+|-\rangle}{\sqrt{2}}, & |1\rangle &= \frac{|g\rangle+|2X\rangle}{\sqrt{2}}, \\ |2\rangle &= \frac{|+\rangle-|-\rangle}{\sqrt{2}}, & |3\rangle &= \frac{|g\rangle-|2X\rangle}{\sqrt{2}}. \end{aligned} \quad (9.2)$$

Die Zustände $|0\rangle$ und $|2\rangle$ entsprechen *linear* polarisierten 1X-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:

$$H = \begin{pmatrix} \Delta E_B/2 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \Delta E_B/2 & f(t)/\sqrt{2} \\ 0 & 0 & f(t)/\sqrt{2} & 0 \end{pmatrix} \quad (9.3)$$

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

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

Im Grunde könnte die kohärente Entwicklung des Systems unter Gleichung (9.3) 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, mit $f(t)$ als langsam variierendem Parameter des Hamiltonoperators. In Abbildung 9.2 ist die energetische Lage der einzelnen Zustände des Biexziton-Systems während

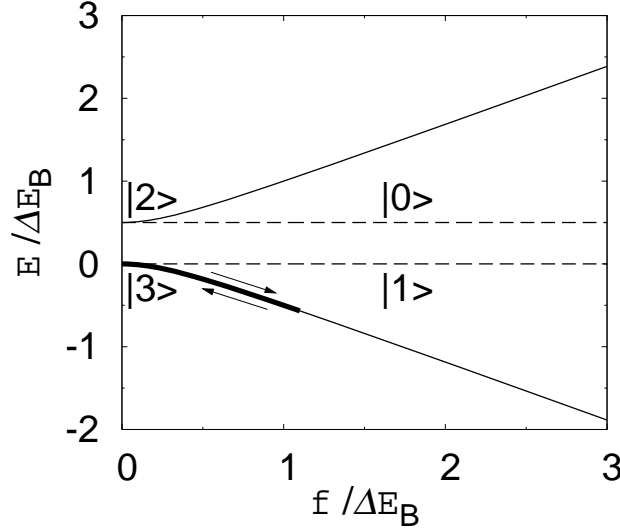


Abbildung 9.2: Adiabatische Zustände des Biexziton-Systems im kohärenten Lichtfeld der Stärke f . Während eines Laserpulses folgt der Zustand $|3\rangle$ der dick eingezeichneten Linie und akkumuliert dabei eine dynamische Phasenverschiebung gegenüber dem Zustand $|1\rangle$.

der Wechselwirkung mit einem kohärenten Lichtfeld der Stärke f dargestellt. Der Zustand $|3\rangle$ folgt während des Anstiegs und anschließenden Abfalls der Intensität im Verlauf eines Laserpulses der in Abbildung 9.2 dick eingezeichneten Linie. Durch den Energieunterschied der einzelnen Zweige im Verlauf der Anregung ergibt sich im Endzustand eine akkumulierte dynamische Phasenverschiebung, welche letztlich die Besetzung des Quantenpunkts bestimmt.

Da die Zweige der 1-Exziton-Zustände $|0\rangle$ und $|2\rangle$ energetisch immer mindestens um $\Delta E_B/2$ von den Zuständen $|1\rangle$ und $|3\rangle$ getrennt sind, lässt sich das System für eine hinreichend langsame Variation von $f(t)$ über den adiabatischen Grenzfall beschreiben [59]. In diesem Fall wird das System zu jeder Zeit t in guter Näherung durch den instantanen (adiabatischen) Eigenzustand des Hamiltonoperators (9.3) bestimmt. Diese Näherung gilt umgekehrt nicht mehr, wenn die Pulse so kurz sind, dass das Biexziton-System der optischen Anregung nicht sofort folgen kann ($\tau_0 \ll \hbar/\Delta E_B$). In Abbildung 9.3 ist ein Vergleich der exakten, numerischen Lösung von (9.3) mit der adiabatischen Näherung für verschiedene Werte von $\tau_0\Delta E_B/\hbar$ dargestellt. Da im Experiment $\tau_0\Delta E_B/\hbar \approx 10$ gilt, sollte die adiabatische Näherung sehr genaue Ergebnisse liefern.

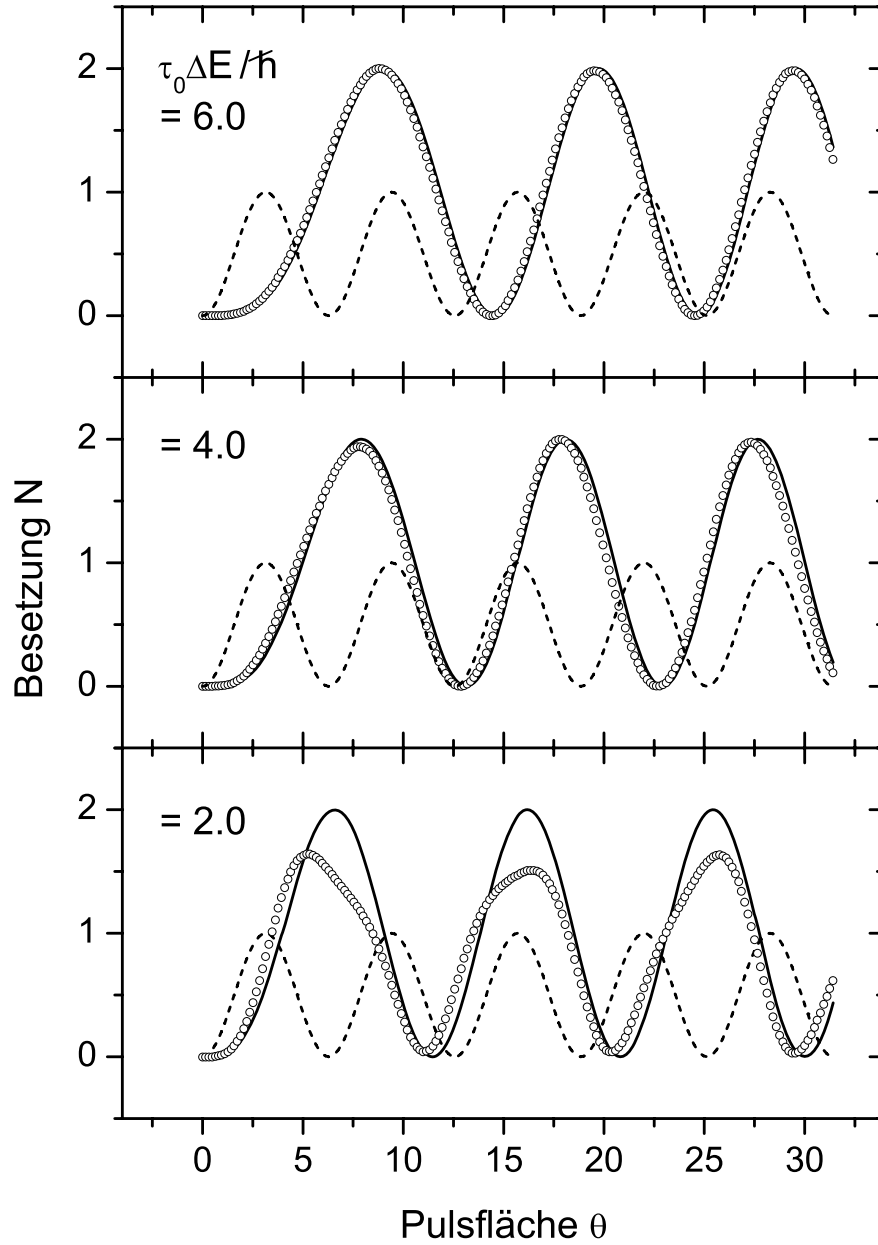


Abbildung 9.3: Vergleich der adiabatischen Näherung für die Zwei-Photon-Rabioszillation (Linie) mit der exakten Lösung (Kreise) für verschiedene Werte des dimensionslosen Parameters $\tau_0 \Delta E_B / \hbar$. Die Rabi-Oszillation des einzelnen Exzitons dient als Referenz (gestrichelte Linie). Um die experimentellen Messgrößen gut wiederzugeben wird die Besetzung mit einem Biexziton als $N = 2$ definiert.

Der Zustand wird dann beschrieben über:

$$|\psi(t)\rangle = \frac{|1\rangle + [c_2(t)|2\rangle + c_3(t)|3\rangle] e^{-i\Lambda(t)}}{\sqrt{2}} \quad (9.4)$$

mit

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

und

$$\Lambda(t) = \frac{1}{4\hbar} \int_{-\infty}^t d\tau \left(\Delta E_B - \sqrt{(\Delta E_B)^2 + 8f^2(\tau)} \right) \quad (9.5)$$

Nach Ende des Laserpulses lautet der Zustand

$$|\psi\rangle = \frac{|1\rangle + e^{-i\Lambda(\infty)}|3\rangle}{\sqrt{2}} = e^{-i\Lambda(\infty)/2} \left(\cos \frac{\Lambda(\infty)}{2} |g\rangle + \sin \frac{\Lambda(\infty)}{2} |2X\rangle \right) \quad (9.6)$$

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

$$N_{2X} = |\langle 2X | \psi \rangle|^2 = \sin^2 \frac{\Lambda(\infty)}{2} \quad (9.7)$$

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 (9.6) 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 9.4).

Wir wollen nun die Abhängigkeit der Besetzungswahrscheinlichkeit N_{2X} von der Anregungsintensität näher betrachten. Die Stärke der Anregung wird dabei über die Pulsfläche θ aus Rabi-Oszillationen des einzelnen Exzitons charakterisiert. Unter Verwendung von Gleichung (9.5) kann man relativ einfach zeigen, dass $\Lambda(\infty)$ und damit auch N_{2X} bei einer festen Pulsform nur von $\tau_0 \Delta E_B$ und der Pulsfläche θ abhängt.

In Übereinstimmung mit den oben eingeführten Gleichungen bzw. Schreibweisen wird ein sech-Puls durch

$$f(t) = \frac{2 \operatorname{Arcosh} \sqrt{2} \hbar \theta}{\pi \tau_0} \operatorname{sech} \frac{2 \operatorname{Arcosh} \sqrt{2} t}{\tau_0}$$

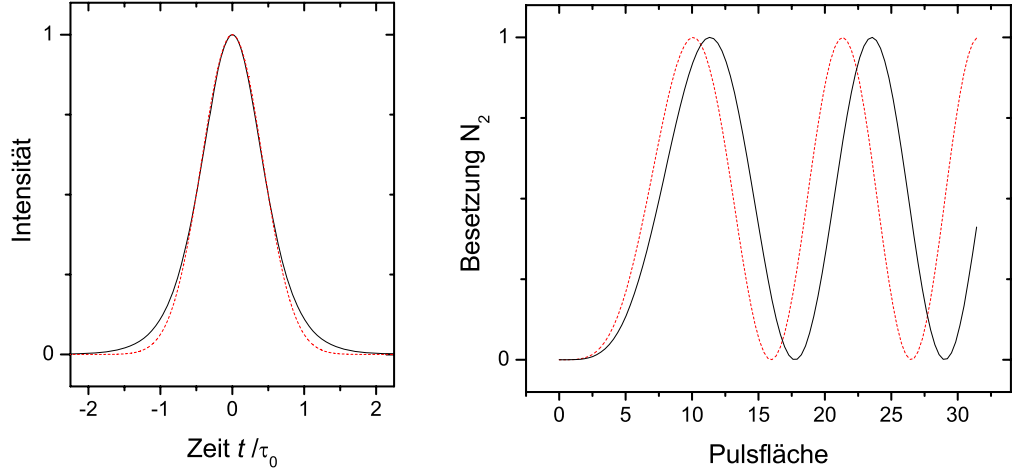


Abbildung 9.4: Links: Intensitäts-Profil von sech^2 -Pulsen (durchgezogene Linie) im Vergleich zu Gauß-Pulsen (unterbrochene Linie) jeweils gleicher Halbwertsbreite und Maximalintensität. Rechts: Besetzungswahrscheinlichkeit des Biexzitons für diese Pulsformen in Abhängigkeit von der jeweiligen (1-Exziton-) Pulsfläche θ .

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

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

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

Die Besetzungswahrscheinlichkeit N_{2X} 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.

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 $N_{2X} \approx \sin^2(\theta/(2\sqrt{2}))$. In diesem Grenzfall kann das Biexziton einfach als Summe der 1-Exziton-Zustände $|+\rangle$ und $|-\rangle$ gesehen werden, die unabhängig voneinander jeweils eine „gewöhnliche“ 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 Zwei-Niveau-Systems wird die Besetzung des 2X-Niveaus 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. Dies äußert sich beispielsweise in einer merklichen Verschiebung der adiabatischen Kurven in den unterschiedlichen Teilen von Abbildung 9.3. Zudem spielt die genaue Pulsform eine relativ starke Rolle. In Abbildung 9.4 (rechte Seite) ist die Zwei-Photon-Rabioszillation bei Anregung mit sech^2 -Pulsen im Vergleich zu Gauß-Pulsen gleicher Halbwertsbreite τ_0 dargestellt. In der kohärenten Entwicklung des Quantensystems ist ein deutlich stärkerer Unterschied erkennbar als im Intensitätsprofil der beiden Pulsformen (Abbildung 9.4, links²). Mathematisch gesehen sind diese komplexeren Abhängigkeiten deshalb zu erwarten, weil die Pulsform $f(t)$ in nicht-linearer Weise in Gleichung (9.5) eingeht.

9.3 Experimentelle Ergebnisse

Zum Vergleich von Theorie und Experiment müssen die Parameter θ , $\tau_0 \Delta E_B$ und $f(t)$ bestimmt werden, also die Kopplungsstärke zwischen QD und Lichtfeld, die Renormalisierungsenergie des Biexzitons und die Pulsform. Als Referenz für die Kopplungsstärke dient die „gewöhnliche“ Rabi-Oszillation des einzelnen Exzitons (siehe Kapitel 7.1 bzw. Abbildung 9.5(a)). Um auch geringe Anteile des 2X-Übergangs zu unterdrücken erfolgt diese Messung mit zirkular polarisierter Anregung. Da eine sehr regelmäßige Sinus-Oszillation beobachtet wird, erhält man eine einfache Umrechnung zwischen Anregungsleistung und Pulsfläche: $\theta = 2.2 \mu\text{W}^{-1/2} \sqrt{P}$.

Eine analoge Messung wird nun für den Fall der resonanten Zwei-Photon-Anregung des Biexzitons durchgeführt, d.h. die Laserenergie wird auf $E_0 - \Delta E_B/2$ verringert und statt zirkularer wird eine lineare Polarisierung verwendet. In Abbildung 9.5(b) ist das entsprechende Photostrom-Signal über der Pulsfläche der Anregung aufgetragen (durchgezogene Linie). Die Skalierung der x-Achse ist dieselbe wie in 9.5(a). Ebenso wie in den 1X-Rabi-Oszillationen wurde auch hier ein inkohärenter Untergrund, also eine in der Anregungsleistung rein lineare Kurve, abgezogen. Das Untergrundsignal entspricht in etwa dem von Messung 9.5(a), wurde allerdings aufgrund der veränderten Anregungsbedingungen leicht angepasst. Es könnte also, wie auch in Kapitel 7 diskutiert, sein, dass das tatsächliche kohärente Signal zu hohen Pulsflächen hin leicht über oder unter den dargestellten Werten liegt, die abgebildete Kurve stellt aber das plausibelste Ergebnis dar.

Als weitere experimentelle Parameter für den Vergleich zur Theorie erhält

²Dargestellt sind sech^2 - und Gauß-Pulse gleicher Maximalintensität. Dies entspricht zwar unterschiedlichen Pulsflächen im rechten Teil der Abbildung, aber veranschaulicht gut den Vergleich unterschiedlicher Fitkurven bei der Anpassung eines gemessenen Pulsprofils.

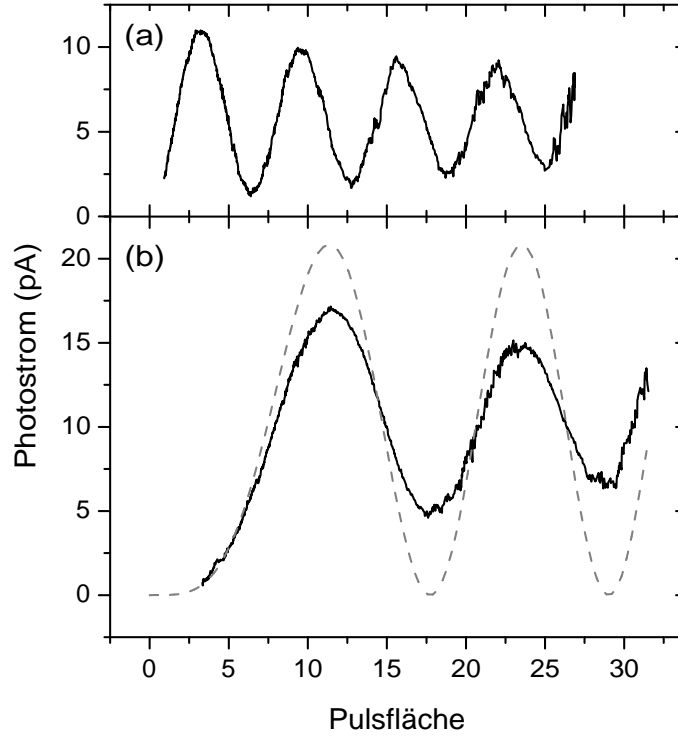


Abbildung 9.5: (a) Rabi-Oszillation des einzelnen Exzitons. Diese Messung dient als Referenz für die Kopplungsstärke zwischen Quantenpunkt und Lichtfeld. (b) Gemessene Rabi-Oszillation des Biexzitons bei Zwei-Photon-Anregung (durchgezogene Linie) und Vergleich zum theoretisch erwarteten Verhalten (unterbrochene Linie). Um eine gute Übereinstimmung zu erzielen, mussten die Parameter der Rechnung um wenige Prozent angepasst werden.

man $\tau_0 = 2,3 \pm 0,1$ ps und $\Delta E_B = 2,75 \pm 0,15$ meV. Für die Renormalisierungsenergie ΔE_B wird der Wert aus PL-Messungen (siehe Abbildung 9.1) verwendet, wobei jedoch nicht ausgeschlossen werden kann, dass sich bei den höheren elektrischen Feldern der Photostrommessung eine leichte Verschiebung dieser Energie ergibt. In Zwei-Photon-Experimenten beobachtet man ähnliche Werte, die geringere Energieauflösung dieser Messungen resultiert allerdings in der etwas höheren Unsicherheit von ΔE_B . Insgesamt erhält man also $\tau_0 \Delta E_B / \hbar = 9.7 \pm 0.7$, d.h. die adiabatische Näherung sollte die experimentellen Ergebnisse gut beschreiben. Es wird eine sech^2 -Intensitätseinhüllende angenommen, d.h. $f(t) \propto \text{sech}(t/\tau)$.

Der Vergleich der theoretisch errechneten zur experimentell gemessenen Biexziton-Rabioszillation ist in Abbildung 9.5(b) dargestellt. Beide Kurven

zeigen eine klare qualitative Übereinstimmung, am deutlichsten sichtbar im relativ langsamen Anstieg bei niedrigen Pulsflächen und der Annäherung an eine etwas schnellere, gleichmäßige Oszillation bei hohen Anregungsleistungen. Um eine gute Übereinstimmung zu erhalten, mussten die Parameter der theoretischen Rechnung leicht angepasst werden. In der dargestellten Kurve wurde $\tau_0\Delta E_B$ um 4% erhöht und eine auf 96% verringerte Kopplung zum Lichtfeld angenommen. Die Anpassung von $\tau_0\Delta E_B$ liegt klar innerhalb der angegebenen Messunsicherheit. Die Variation der Kopplungsstärke könnte durch eine geringfügige Änderung der optischen Justage, eine leicht verstimimte Anregung oder durch kleine Unterschiede in der Kopplungsstärke von $|+\rangle$ und $|-\rangle$ -Zustand liegen. Darüber hinaus könnte die genaue Entwicklung der QD-Besetzung auch durch eine leichte Abweichung in der Pulsform oder natürlich durch Kopplung an die Umgebung über Phononen und Wechselwirkungen mit anderen Energieniveaus oder Ladungsträgern beeinflusst sein. Letztere Prozesse sind sicher für die leistungsabhängige Dämpfung verantwortlich, die in ähnlicher Weise auch in den 1X-Rabioszillationen beobachtet wird (siehe Kapitel 7.2).

Abgesehen von diesen leichten Abweichungen beobachtet man aber eindeutig eine oszillatorische Entwicklung der QD-Besetzung, deren prinzipieller Verlauf durch das theoretische Modell hervorragend beschrieben wird. Nach bestem Wissen des Autors stellt dies die erste Arbeit zu Zwei-Photon-Rabioszillationen in Halbleiter-Quantenpunkten dar.

9.4 Dephasierungszeiten

Für mögliche Anwendungen spielt die Dephasierungszeit des 2X-Zustands oft eine entscheidende Rolle. Diese bestimmt die Anzahl und damit die Komplexität möglicher kohärenter Manipulationen des Systems. In bisherigen Arbeiten wurden Kohärenzzeiten bis maximal einige 10 ps gemessen [22, 30, 37, 44]. In einigen Messungen am einzelnen Exziton wurden dagegen Werte von mehreren hundert ps bis zu 2 ns beobachtet [5, 18, 20, 48, 55]. Dieser Unterschied ist in [22] auf nicht-resonante Injektion der Ladungsträger zurückzuführen. Das Biexziton bildet sich hier nur, wenn genügend Ladungsträger aus dem Matrixmaterial in den Quantenpunkt eingefangen werden können. Die Anwesenheit vieler Ladungsträger in der Umgebung des QDs bewirkt ihrerseits aber auch eine deutliche Reduktion der Dephasierungszeit, sodass lange Kohärenzzeiten allenfalls aus einer Extrapolation auf andere Anregungsbedingungen abgeleitet werden können. Die übrigen oben genannten Untersuchungen zum Biexziton wurden, im Gegensatz zu den erwähnten Messungen der 1X-Dephasierungszeit, nicht am Grundzustand von In(Ga)As-

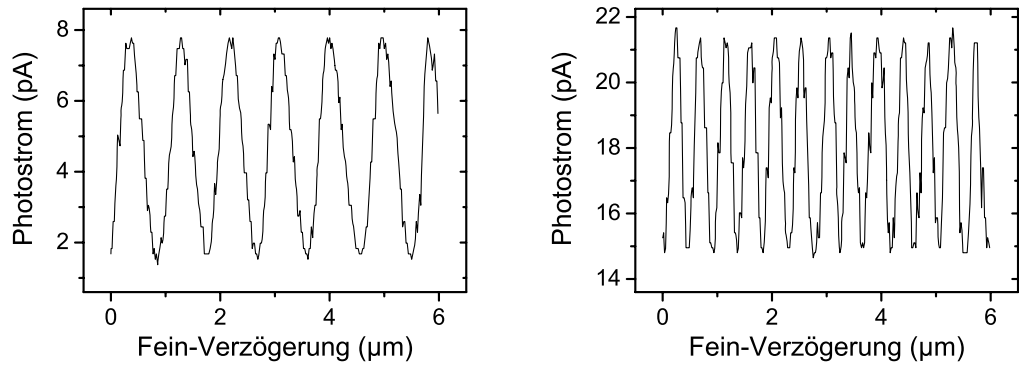


Abbildung 9.6: Quanten-Interferenz des Exzitons (links) und des Biexzitons (rechts) bei einem Pulsabstand von 80 ps. Die Frequenz der Biexziton-Interferenz ist aufgrund der Zwei-Photon-Anregung genau doppelt so hoch wie die des einzelnen Exzitons.

Quantenpunkten durchgeführt. Vor diesem Hintergrund ist die hier vorgestellte direkte Messung der Dephasierungszeiten und insbesondere der Vergleich zwischen 1X- und 2X-Kohärenz besonders interessant.

Die Messung der Dephasierungszeit erfolgt über ein Doppelpulsexperiment analog zu Kapitel 8.1. Die Anregungsleistung wird so gewählt, dass die zwei Teilpulse zusammen eine maximale Besetzung des Quantenpunkts hervorrufen können. In Abbildung 9.6 ist ein Vergleich der Quanten-Interferenz des einzelnen Exzitons (links) und des Biexzitons (rechts) dargestellt, jeweils bei einem Pulsabstand von 80 ps. Infolge des Zwei-Photon-Prozesses ist die Frequenz der Biexziton-Interferenz genau doppelt so hoch wie die des einzelnen Exzitons bzw. der optischen Interferenz [37].

Mit zunehmendem Pulsabstand beobachtet man einen exponentiellen Abfall der Interferenz-Amplitude, aus dem sich die Dephasierungszeit bestimmen lässt. Anhand einiger allgemeiner Überlegungen soll hier zunächst diskutiert werden, welche Werte im Vergleich zu 1X-Experimenten zu erwarten sind:

- Die Wahrscheinlichkeit eines einzelnen Tunnelereignisses steigt in erster Näherung direkt proportional zur Zahl der Ladungsträger im QD an. Da das Biexziton aus zwei einzelnen Exzitonen besteht, erwartet man eine Halbierung der Zeit bis zum ersten Tunnelprozess und damit auch der Dephasierungszeit.
- Da im Zwei-Photon-Experiment eine höhere Anregungsleistung verwendet wird, erwartet man eventuell eine weitere Verringerung der Dephasierungszeit.

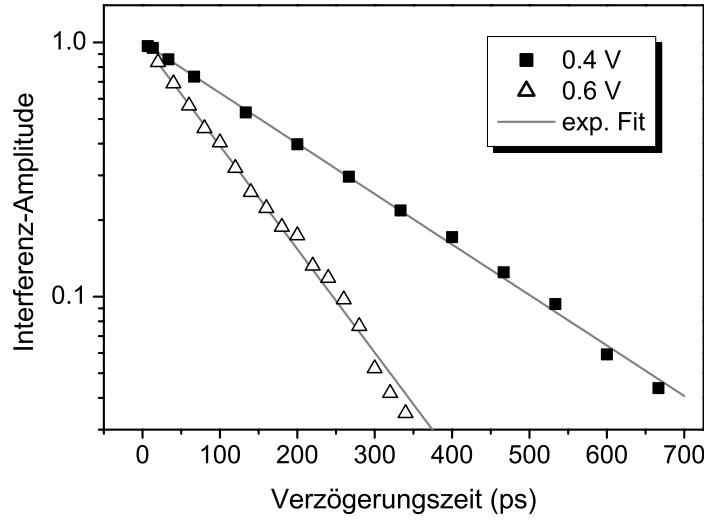


Abbildung 9.7: Normierte Amplitude der Biexziton-Quanteninterferenz in Abhängigkeit von der Verzögerungszeit im Doppelpuls-Experiment. Aus der exponentiellen Abnahme lassen sich Dephasierungszeiten von 107 ps bei einer Probenspannung von 0,6 V und 220 ps bei 0,4 V ermitteln.

- Aufgrund der Renormalisierungsenergie ist der Energieunterschied zwischen Biexziton und GaAs-Matrixmaterial höher als im Fall des einzelnen Exzitons. Die Tunnelrate pro individuellem Ladungsträger wird dadurch verringert.

Im Experiment beobachtet man bei einer Spannung von 0,6 V für Exziton und Biexziton die gleiche Dephasierungszeit von jeweils 107 ps. Der Effekt der höheren Tunnelbarriere scheint bei dieser Spannung die zuvor diskutierten Effekte zur Verkürzung der Dephasierungszeit also genau zu kompensieren. Bei einer Spannung von 0,4 V ist die Kohärenzzeit aufgrund der geringeren Tunnelrate generell länger. Die Lebensdauer ist hier allerdings neben dem Tunnelzerfall in zunehmendem Maße auch durch strahlende Rekombination begrenzt³. Da die optische Rekombinationszeit des Biexzitons in In(Ga)As-Quantenpunkten (unabhängig von der Tunnelbarriere) deutlich kürzer ist als die des Exzitons [73,82], beobachtet man im entsprechenden Experiment eine 2X-Kohärenzzeit von 220 ps im Vergleich zu 320 ps beim einzelnen Exziton.

Insgesamt entsprechen die experimentell beobachteten Kohärenzzeiten also in etwa dem maximalen aufgrund allgemeiner Überlegungen zu erwartenden Wert. Von der Lebensdauer unabhängige, *reine* Dephasierungsprozesse

³Der Photostrom im ersten Maximum der Rabi-Oszillation ist bei 0,4 V aufgrund strahlender Rekombination nur noch etwa halb so hoch wie bei 0,8 V.

spielen in den Zwei-Photon-Experimenten, wie schon in den zuvor betrachteten Untersuchungen am einzelnen Zwei-Niveau-System, nur eine untergeordnete Rolle. Die gemessene Dephasierungszeit liegt mit bis zu 220 ps um etwa eine Größenordnung höher als in Arbeiten an anderen QD-Systemen und bestätigt die Extrapolation zum Grenzfall verschwindender Injektion in [22]. Prinzipiell können damit innerhalb der Kohärenzzeit zahlreiche optische Manipulationen mit ps-Laserpulsen durchgeführt werden.

Kapitel 10

Ausblick

Kohärente Untersuchungen an Halbleiter-Quantenpunkten stehen ebenso wie das gesamte Gebiet der Quanten-Informationsverarbeitung noch ganz am Anfang ihrer Entwicklung. Gerade mit Blick auf Quanten-Computing sind die Herausforderungen äußerst hoch, sodass die Frage nach einer tatsächlichen, zukünftigen Realisierbarkeit heute noch nicht beantwortet werden kann. Das große Interesse an dieser neuen Art von Bauelementen und den damit verbundenen Experimenten ist sicher zu einem großen Teil dadurch begründet, dass die hier definierten Aufgabenstellungen oft auch aus Sicht rein wissenschaftlicher Grundlagenforschung eine äußerst interessante Verknüpfung zwischen Laborexperimenten und elementarer Quantentheorie mit sich bringen.

Am einfachsten zu realisieren sind Anwendungen, die nur eine einzelne kohärente Manipulation erfordern, also z.B. kohärent gepumpte Quellen einzelner oder verschränkter Photonen. In der vorliegenden Arbeit konnte gezeigt werden, dass die Erzeugung genau eines Exzitons oder Biexzitons mit Hilfe eines einzelnen Laserpulses inzwischen gut beherrscht wird. Die hauptsächlichen Herausforderungen liegen nun im Bereich des Designs und der Herstellung geeigneter Proben bzw. Bauelemente.

Durch einen Wechsel des Materialsystems zu GaAs/AlGaAs-Quantenpunkten erreicht man, wie in Kapitel 4.3 diskutiert, eine Übergangsenergie, die genau im Bereich der maximalen Empfindlichkeit von Silizium-Detektoren liegt. Im Vergleich zu den hier diskutierten InGaAs-Quantenpunkten erhält man dadurch eine zwei- bis dreifach höhere Nachweiswahrscheinlichkeit für einzelne Photonen. Für kommerzielle Bauelemente besonders interessant könnte der Wechsel zu CdSe/ZnSe-Quantenpunkten sein. In diesem Materialsystem ist nicht nur die fundamentale Bandlücke sondern auch der typische Energieabstand unterschiedlicher Niveaus innerhalb der QDs deutlich höher. Die optische Anregung könnte daher mit fs-Pulsen erfolgen, was möglicher-

weise kohärente Manipulationen bei Raumtemperatur erlaubt. Erste Arbeiten auf diesem Materialsystem werden momentan in Zusammenarbeit mit der Arbeitsgruppe von Prof. Lischka durchgeführt. Mit Blick auf die Erzeugung verschränkter Photonen-Paare ist die Verringerung der Feinstrukturaufspaltung von entscheidender Bedeutung (siehe Kapitel 9.1). In diesem Zusammenhang wurde kürzlich eine Kooperation mit der Gruppe um M. Bayer (Uni Dortmund) vereinbart.

Weiteres Entwicklungspotenzial liegt in der Integration der Quantenpunkte in eine geeignete Bauelement-Umgebung. Bei „konventionellen“ QD-Proben verlässt auch ohne Verwendung von Schattenmasken aufgrund interner Totalreflexion nur ein geringer Prozentsatz der emittierten Photonen die Oberfläche der Halbleiterprobe. Sofern das emittierte Licht ohnehin über Glasfasern zum Detektor geführt werden soll, bietet die Einbettung der Quantenpunkte in eine Wellenleiterstruktur ganz offensichtlich erhebliche Vorteile. Durch Integration der Quantenpunkte in Mikroresonatoren ließe sich zudem nicht nur eine gerichtete Emission erreichen, sondern man könnte auch optische Eigenschaften wie die strahlende Lebensdauer gezielt beeinflussen. Die in Kapitel 4.2 vorgestellten Proben verfolgen umgekehrt den Ansatz, mithilfe geeigneter elektrischer Ansteuerung eine zeitlich kontrollierbare Einzel-Photon-Emission ganz ohne optische Anregung zu verwirklichen.

Für komplexere Anwendungen in Richtung Quanten-Computing und ebenso aus Sicht der Grundlagenforschung besteht die nächste große Herausforderung in einer geeigneten kohärenten Kopplung mehrerer Quantenpunkte. Aus Gründen der Skalierbarkeit scheint hier eine Kopplung mehrerer QDs in einer definierten lateralen Anordnung der einzige langfristig Erfolg versprechende Weg zu sein. Die Frage nach der Art des Kopplungsmechanismus ist dabei noch nicht geklärt. Eine elektronische Kopplung mit nicht-verschwindenden Tunnelwahrscheinlichkeiten zwischen den einzelnen Quantenpunkten hat den Vorteil sehr hoher Wechselwirkungsstärke, resultiert aber vermutlich auch in einer Verminderung der Kohärenzzeit der beteiligten Zustände [23]. Mögliche Mechanismen mit geringerer Kopplungsstärke bestehen in der Wechselwirkung über ein statisches Dipolmoment (Coulomb-Wechselwirkung) oder über das optisch induzierte, dynamische Dipolmoment (Förster-Kopplung) [85]. Letzterer Effekt könnte mithilfe geeigneter Resonator-Strukturen z.B. in photonischen Kristalle noch zusätzlich gezielt beeinflusst werden. Aus Sicht der kohärenten optischen Manipulation ist dabei eine genaue Abstimmung der Anregung an die Kopplungsstärke erforderlich, entweder über Mehrfachpulse (siehe Kapitel 8.4) oder über Pulseshaping [31].

Darüber hinaus ist in jedem Fall eine Kontrollmöglichkeit der Kopplungsstärke von entscheidender Bedeutung. Der hier präsentierte Ansatz eines

elektrisch kontrollierbaren Quantensystems stellt in diesem Zusammenhang eine besonders viel versprechende Möglichkeit dar. Ähnlich wie bei der Ansteuerung einzelner Transistoren in einem konventionellen Computer, könnte in einem möglichen zukünftigen Quanten-Computer jedes Qubit synchron zur Taktfrequenz der optischen Manipulation über eine Gate-Elektrode zusätzlich elektrisch kontrolliert werden.

Ganz allgemein wird zur Realisierung komplexer, kohärenter Quantenoperationen immer eine Kombination von verschiedenen Wechselwirkungsmechanismen und eine Kontrolle über die Kopplungsstärke erforderlich sein. Unabhängig von der genauen experimentellen Umsetzung stellt sich immer das Problem, dass Systeme mit sehr schwacher Kopplung an die Umgebung zwar lange Kohärenzzeiten zeigen, umgekehrt aber aufgrund kleiner Wechselwirkungsstärke auch nur sehr langsam initialisiert, kohärent manipuliert und ausgelesen werden können. Elektrisch kontaktierte Quantenpunkte bieten nun die interessante Eigenschaft, dass die Tunnelzeit nahezu beliebig variiert werden kann. In der vorliegenden Arbeit wurden alle Experimente bei (verglichen mit der Kohärenzzeit) konstanten Spannungen durchgeführt. Verwendet man dagegen eine zeitabhängige (gepulste) Probenspannung, so könnte man den Initialisierungs- und Ausleseprozess, d.h. das Tunnelereignis, von den Zeitskalen der Dephasierung entkoppeln. Zudem wäre die Abstimmung der Energieniveaus über den Stark-Effekt nicht wie bisher zwangsläufig mit einer Variation der Dephasierungszeit verknüpft. Bei schneller und präziser elektrischer Ansteuerung könnte man sich letztlich neben der oben erwähnten Kontrolle über die Kopplung benachbarter Quantenpunkte auch eine Beeinflussung der strahlenden Lebensdauer durch räumliche Trennung von Elektron und Loch im elektrischen Feld sowie eine elektrische Kontrolle der Phase kohärenter Anregungen über kurzzeitige Variation der Übergangsenergien (siehe Kapitel 8.4) vorstellen.

Ein anderer stark diskutierter Ansatz in diesem Zusammenhang ist die Verknüpfung des Ladungszustands eines QDs mit Spin-Freiheitsgraden. Der Spin eines einzelnen Elektrons im Quantenpunkt hat eine sehr lange Lebensdauer [53] und damit potenziell auch eine sehr lange Kohärenzzeit. Eine direkte Manipulation des Spins erfolgt üblicherweise über ESR-Pulse (ESR = Elektron-Spin-Resonanz) auf einer Zeitskala von mehreren 10 ns. Stattdessen versucht man nun, den Spinfreiheitsgrad mittels schneller optischer Pulse zu beeinflussen, was einerseits über die Polarisierung geschehen kann und andererseits durch Verknüpfung mit dem Ladungszustand des QDs über das Pauli-Prinzip (siehe z.B. [84]).

Zusammenfassend ist festzustellen, dass heute eine Vielzahl theoretischer Konzepte besteht, deren experimentelle Umsetzung einerseits wissenschaft-

lich sehr interessant, andererseits aber aus technologischer Sicht oft extrem anspruchsvoll ist. Gerade die in dieser Arbeit behandelte Verbindung von kohärenter optischer Anregung mit der elektrischen Kontaktierung eines Quantensystems eröffnet eine Vielzahl neuer Kontroll-Möglichkeiten und bietet zudem eine sehr präzise und gleichzeitig technisch relativ einfache Messmethode.

Symbole und Abkürzungen

δ	Verstimmung des Lasers bezüglich der QD-Resonanz ($\delta = \omega_{Laser} - \omega_{QD}$)
φ	Phasenwinkel (Winkel in der u - v -Ebene der Blochkugel)
γ	Zerfallsrate
Γ	Linienbreite (Energie)
Γ_0	natürliche 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

SYMBOLS UND ABKÜRZUNGEN

$2X$	Biexziton
A_{10}	Einsteinkoeffizient spontane Emission
AFM	Rasterkraftmikroskop (engl.: <i>atomic force microscope</i>)
B_{01}	Einsteinkoeffizient resonante Absorption
B_{10}	Einsteinkoeffizient stimulierte Emission
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)
$ g\rangle$	Grundzustand des Zwei-Niveau-Systems, d.h. leerer QD (als Qubit-Zustand auch mit $ 0\rangle$ bezeichnet)
GVD	Gruppenlaufzeitdispersion (engl.: <i>group velocity dispersion</i>)
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
I_{sat}	Sättigungsstrom
J, J_z	Gesamtdrehimpuls (z -Komponente)
MBE	Molekularstrahlepitaxie (engl.: <i>molecular beam epitaxy</i>)
l	Bahndrehimpuls

N_1	Besetzungswahrscheinlichkeit des 1X-Zustands
NA	Numerische Apertur
P	(optische) Anregungsleistung
\tilde{P}	normierte, dimensionslose Anregungsleistung
PL	Photolumineszenz
PLE	Anregungs-Photolumineszenz (engl.: <i>photoluminescence excitation</i>)
QD	Quantenpunkt (engl.: <i>quantum dot</i>)
S, S_z	Spin (z -Komponente)
t	Zeit (Variable)
T	Zeitperiode
T_1	Lebensdauer
T_2	Dephasierungszeit
T_2^*	Zeitskala reiner, d.h. nicht lebensdauerbedingter Dephasierung
TEM	Transmissionselektronenmikroskop
u	dispersive Komponente des Blochvektors (Phaseninformation)
v	absorptive Komponente des Blochvektors (Phaseninformation)
V_B	Vorspannung der Photodiode (engl.: <i>bias voltage</i>)
w	Inversion des Blochvektors (Besetzungswahrsch. = $1/2(w + 1)$)
WL	Benetzungsschicht (engl.: <i>wetting layer</i>)

SYMBOLS UND ABKÜRZUNGEN

Literaturverzeichnis

- [1] G. Alber, T. Beth, M. Horodecki, P. Horodecki, R. Horodecki, M. Rötteler, H. Weinfurter, R. Werner, and A. Zeilinger, *Quantum information*, Springer-Verlag, Berlin, 2001.
- [2] B. Alen, F. Bickel, K. Karrai, R. J. Warburton, and P. M. Petroff, *Stark-shift modulation absorption spectroscopy of single quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **83** (2003), no. 11, 2235–2237.
- [3] L. Allen and J. H. Eberly, *Optical resonance and two level atoms*, Wiley, New York, 1975.
- [4] M. Baier, F. Findeis, A. Zrenner, M. Bichler, and G. Abstreiter, *Optical spectroscopy of charged excitons in single quantum dot photodiodes*, Phys. Rev. B **64** (2001), no. 19, 195326.
- [5] M. Bayer and A. Forchel, *Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in $\text{In}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}\text{As}/\text{GaAs}$ self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B **65** (2002), no. 4, 041308.
- [6] M. Bayer, A. Kuther, A. Forchel, A. Gorbunov, V. B. Timofeev, F. Schaffer, J. P. Reithmaier, T. L. Reinecke, and 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** (1999), no. 8, 1748–1751.
- [7] M. Bayer, S. N. Walck, T. L. Reinecke, and A. Forchel, *Exciton binding energies and diamagnetic shifts in semiconductor quantum wires and quantum dots*, Phys. Rev. B **57** (1998), no. 11, 6584–6591.
- [8] E. Beham, *Photostromspektroskopie an einzelnen Quantenpunkten*, Dissertation, TU München, 2003.
- [9] E. Beham, A. Zrenner, and G. Böhm, *STM-photocurrent-spectroscopy on single self-assembled InGaAs quantum dots*, Physica E **7** (2000), 359–362.

- [10] E. Beham, A. Zrenner, F. Findeis, M. Bichler, and G. Abstreiter, *Non-linear ground-state absorption observed in a single quantum dot*, Appl. Phys. Lett. **79** (2001), no. 17, 2808–2810.
- [11] J. S. Bell, *On the Einstein-Podolsky-Rosen paradox*, Physics **1** (1964), 195.
- [12] C. H. Bennett, G. Brassard, and N. D. Mermin, *Quantum cryptography without Bell's theorem*, Phys. Rev. Lett. **68** (1992), no. 5, 557–559.
- [13] O. Benson, C. Santori, M. Pelton, and Y. Yamamoto, *Regulated and entangled photons from a single quantum dot*, Phys. Rev. Lett. **84** (2000), no. 11, 2513–2516.
- [14] L. Besombes, J. J. Baumberg, and J. Motohisa, *Coherent spectroscopy of optically gated charged single InGaAs quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **90** (2003), no. 25, 257402.
- [15] G. Bester and 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** (2005), no. 4, 045318.
- [16] P. Bianucci, A. Muller, C. K. Shih, Q. Q. Wang, Q. K. Xue, and C. Piermarocchi, *Experimental realization of the one qubit Deutsch-Jozsa algorithm in a quantum dot*, Phys. Rev. B **69** (2004), no. 16, 161303.
- [17] Dieter Bimberg, Marius Grundmann, and Nikolai N. Ledentsov, *Quantum dot heterostructures*, Wiley, Chichester [u.a.], 1999.
- [18] D. Birkedal, K. Leosson, and J. M. Hvam, *Long lived coherence in self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **87** (2001), no. 22, 227401.
- [19] N. H. Bonadeo, Gang Chen, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, and D. G. Steel, *Nonlinear nano-optics: Probing one exciton at a time*, Phys. Rev. Lett. **81** (1998), no. 13, 2759–2762.
- [20] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang, and D. Bimberg, *Ultralong dephasing time in InGaAs quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **87** (2001), no. 15, 157401.
- [21] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang, and D. Bimberg, *Rabi oscillations in the excitonic ground-state transition of InGaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **66** (2002), no. 8, 081306.

- [22] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang, and D. Bimberg, *Relaxation and dephasing of multiexcitons in semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **89** (2002), no. 18, 187401.
- [23] P. Borri, W. Langbein, U. Woggon, M. Schwab, M. Bayer, S. Fafard, Z. Wasilewski, and P. Hawrylak, *Exciton dephasing in quantum dot molecules*, Phys. Rev. Lett. **91** (2003), no. 26, 267401.
- [24] P. Borri, W. Langbein, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, and A. D. Wieck, *Exciton dephasing via phonon interactions in InAs quantum dots: Dependence on quantum confinement*, Phys. Rev. B **71** (2005), no. 11, 115328.
- [25] D. Boumeester, J. Pan, K. Mattle, M. Eibl, H. Weinfurter, and A. Zeilinger, *Experimental quantum teleportation*, Nature **390** (1997), 575 – 579.
- [26] D. Bouwmeester, A. Ekert, and A. Zeilinger, *The physics of quantum information*, Springer-Verlag, Berlin, 2000.
- [27] K. Brunner, G. Abstreiter, G. Bohm, G. Trankle, and G. Weimann, *Sharp-line photoluminescence and two-photon absorption of zero-dimensional biexcitons in a GaAs/AlGaAs structure*, Phys. Rev. Lett. **73** (1994), no. 8, 1138–1141.
- [28] G. W. Bryant and G. S. Solomon, *Optics of quantum dots and wires*, Artech House Publishers, 2005.
- [29] W.-H. Chang, T. M. Hsu, C. C. Huang, S. L. Hsu, C. Y. Lai, N. T. Yeh, T. E. Nee, and J.-I. Chyi, *Photocurrent studies of the carrier escape process from InAs self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B **62** (2000), no. 11, 6959–6962.
- [30] Gang Chen, T. H. Stievater, E. T. Batteh, Xiaoqin Li, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, and L. J. Sham, *Biexciton quantum coherence in a single quantum dot*, Phys. Rev. Lett. **88** (2002), no. 11, 117901.
- [31] Pochung Chen, C. Piermarocchi, and L. J. Sham, *Control of exciton dynamics in nanodots for quantum operations*, Phys. Rev. Lett. **87** (2001), no. 6, 067401.
- [32] W. Demtröder, *Laserspektroskopie*, 3 ed., Springer-Verlag, Berlin, 1993.

- [33] Artur K. Ekert, *Quantum cryptography based on Bell's theorem*, Phys. Rev. Lett. **67** (1991), no. 6, 661–663.
- [34] F. Findeis, *Optical spectroscopy on single self-assembled quantum dots*, Dissertation, TU München, 2001.
- [35] F. Findeis, M. Baier, A. Zrenner, M. Bichler, G. Abstreiter, U. Höhn, and E. Molinari, *Optical excitations of a self-assembled artificial ion*, Phys. Rev. B **63** (2001), no. 12, 121309.
- [36] F. Findeis, A. Zrenner, G. Böhm, and G. Abstreiter, *Optical spectroscopy on a single InGaAs/GaAs quantum dot in the few-exciton limit*, Solid State Commun. **114** (2000), 227–230.
- [37] T. Flissikowski, A. Betke, I. A. Akimov, and F. Henneberger, *Two-photon coherent control of a single quantum dot*, Phys. Rev. Lett. **92** (2004), no. 22, 227401.
- [38] T. Flissikowski, A. Hundt, M. Lowisch, M. Rabe, and F. Henneberger, *Photon beats from a single semiconductor quantum dot*, Phys. Rev. Lett. **86** (2001), no. 14, 3172–3175.
- [39] J. Forstner, C. Weber, J. Danckwerts, and A. Knorr, *Phonon-assisted damping of Rabi oscillations in semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **91** (2003), no. 12, 127401.
- [40] P. W. Fry, J. J. Finley, L. R. Wilson, A. Lemaitre, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, G. Hill, and J. C. Clark, *Electric-field-dependent carrier capture and escape in self-assembled InAs/GaAs quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **77** (2000), no. 26, 4344–4346.
- [41] A. Furusawa, J. L. Sorensen, S. L. Braunstein, C. A. Fuchs, H. J. Kimble, and E. S. Polzik, *Unconditional quantum teleportation*, Science **282** (1998), no. 5389, 706–709.
- [42] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, and D. Park, *Fine structure splitting in the optical spectra of single GaAs quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **76** (1996), no. 16, 3005–3008.
- [43] F. Gindele, U. Woggon, W. Langbein, J. M. Hvam, K. Leonardi, D. Hommel, and H. Selke, *Excitons, biexcitons, and phonons in ultra-thin CdSe/ZnSe quantum structures*, Phys. Rev. B **60** (1999), no. 12, 8773–8782.

- [44] H. Gotoh, H. Kamada, T. Saitoh, H. Ando, and J. Temmyo, *Exciton absorption properties of coherently coupled exciton-biexciton systems in quantum dots*, Phys. Rev. B **71** (2005), no. 19, 195334.
- [45] R. Hanson, L. H. Willems van Beveren, I. T. Vink, J. M. Elzerman, W. J. M. Naber, F. H. L. Koppens, L. P. Kouwenhoven, and L. M. K. Vandersypen, *Single-shot readout of electron spin states in a quantum dot using spin-dependent tunnel rates*, Phys. Rev. Lett. **94** (2005), no. 19, 196802.
- [46] Pawel Hawrylak, *Excitonic artificial atoms: Engineering optical properties of quantum dots*, Phys. Rev. B **60** (1999), no. 8, 5597–5608.
- [47] H. Heidemeyer, U. Denker, C. Muller, and O. G. Schmidt, *Morphology response to strain field interferences in stacks of highly ordered quantum dot arrays*, Phys. Rev. Lett. **91** (2003), no. 19, 196103.
- [48] A. Hoge, S. Seidl, M. Kroner, K. Karrai, R. J. Warburton, B. D. Gerardot, and P. M. Petroff, *Voltage-controlled optics of a quantum dot*, Phys. Rev. Lett. **93** (2004), no. 21, 217401.
- [49] H. Htoon, T. Takagahara, D. Kulik, O. Baklenov, A. L. Holmes, Jr., and C. K. Shih, *Interplay of Rabi oscillations and quantum interference in semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **88** (2002), no. 8, 087401.
- [50] D. L. Huffaker, G. Park, Z. Zou, O. B. Shchekin, and D. G. Deppe, *1.3 μm room-temperature GaAs-based quantum-dot laser*, Appl. Phys. Lett. **73** (1998), no. 18, 2564–2566.
- [51] H. Kamada, H. Gotoh, J. Temmyo, T. Takagahara, and H. Ando, *Exciton Rabi oscillation in a single quantum dot*, Phys. Rev. Lett. **87** (2001), no. 24, 246401.
- [52] K. Kowalik, O. Krebs, A. Lemaitre, S. Laurent, P. Senellart, P. Voisin, and 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** (2005), no. 4, 041907.
- [53] M. Kroutvar, Y. Ducommun, D. Heiss, M. Bichler, D. Schuh, G. Abstreiter, and J. J. Finley, *Optically programmable electron spin memory using semiconductor quantum dots*, Nature **432** (2004), 81.
- [54] W. Langbein, P. Borri, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, and A. D. Wieck, *Control of fine-structure splitting and biexciton binding*

- in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ quantum dots by annealing*, Phys. Rev. B **69** (2004), no. 16, 161301.
- [55] W. Langbein, P. Borri, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, and A. D. Wieck, *Radiatively limited dephasing in InAs quantum dots*, Phys. Rev. B **70** (2004), no. 3, 033301.
- [56] Xiaoqin Li, Yanwen Wu, D. Steel, D. Gammon, T. H. Stievater, D. S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi, and L. J. Sham, *An all-optical quantum gate in a semiconductor quantum dot*, science **301** (2003), 809.
- [57] Mark Lundstrom, *APPLIED PHYSICS: Enhanced: Moore's Law Forever?*, Science **299** (2003), no. 5604, 210–211.
- [58] P. Machnikowski and L. Jacak, *Resonant nature of phonon-induced damping of Rabi oscillations in quantum dots*, Phys. Rev. B **69** (2004), no. 19, 193302.
- [59] A. Messiah, *Quantum mechanics*, North-Holland, Amsterdam, 1966.
- [60] P. Meystre and M. Sargent, *Elements of quantum optics*, 2 ed., Springer-Verlag, Berlin, 1991.
- [61] A. Muller, Q. Q. Wang, P. Bianucci, C. K. Shih, and Q. K. Xue, *Determination of anisotropic dipole moments in self-assembled quantum dots using Rabi oscillations*, Appl. Phys. Lett. **84** (2004), no. 6, 981–983.
- [62] K. Nishibayashi, T. Okuno, Y. Masumoto, and H. Ren, *Luminescence quantum beats of strain-induced GaAs quantum dots*, Phys. Rev. B **68** (2003), no. 3, 035333.
- [63] R. Oulton, A. I. Tartakovskii, A. Ebbens, J. Cahill, J. J. Finley, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, and M. Hopkinson, *Temperature-induced carrier escape processes studied in absorption of individual $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ quantum dots*, Phys. Rev. B **69** (2004), no. 15, 155323.
- [64] A. Patane, A. Levin, A. Polimeni, L. Eaves, P. C. Main, M. Henini, and G. Hill, *Carrier thermalization within a disordered ensemble of self-assembled quantum dots*, Phys. Rev. B **62** (2000), no. 16, 11084–11088.
- [65] B. Patton, W. Langbein, and U. Woggon, *Transient four-wave mixing of single exciton states: Exciton-exciton interaction and Rabi oscillations*, AIP Conference Proceedings **772** (2005), no. 1, 1232–1233.

- [66] M. Pelton and Y. Yamamoto, *Ultralow threshold laser using a single quantum dot and a microsphere cavity*, Phys. Rev. A **59** (1999), no. 3, 2418–2421.
- [67] J. I. Perea and C. Tejedor, *Polarization entanglement visibility of photon pairs emitted by a quantum dot embedded in a microcavity*, Phys. Rev. B **72** (2005), no. 3, 035303.
- [68] C. Piermarocchi, Pochung Chen, Y. S. Dale, and L. J. Sham, *Theory of fast quantum control of exciton dynamics in semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. B **65** (2002), no. 7, 075307.
- [69] I. I. Rabi, Phys. Rev. **51** (1937), 652.
- [70] Norman F. Ramsey, *Experiments with separated oscillatory fields and hydrogen masers*, Rev. Mod. Phys. **62** (1990), no. 3, 541–552.
- [71] A. Rastelli, S. Stuffer, A. Schliwa, R. Songmuang, C. Manzano, G. Constantini, K. Kern, A. Zrenner, D. Bimberg, and O. G. Schmidt, *Hierarchical self-assembly of GaAs/AlGaAs quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **92** (2004), no. 16, 166104.
- [72] C. Santori, D. Fattal, M. Pelton, G. S. Solomon, and Y. Yamamoto, *Polarization-correlated photon pairs from a single quantum dot*, Phys. Rev. B **66** (2002), no. 4, 045308.
- [73] C. Santori, G. S. Solomon, M. Pelton, and Y. Yamamoto, *Time-resolved spectroscopy of multiexcitonic decay in an InAs quantum dot*, Phys. Rev. B **65** (2002), no. 7, 073310.
- [74] R. Schmidt, U. Scholz, M. Vitzethum, R. Fix, S. Malzer, C. Metzner, P. Kailuweit, D. Reuter, A. Wieck, M. C. Hübner, S. Stuffer, A. Zrenner, and G. H. Döhler, *Single quantum dot nano-LEDs - spectroscopy of an electrically controlled few-particle system*, Phys. Status Solidi (c) **2** (2005), no. 8, 2974–2977.
- [75] R. Schmidt, M. Vitzethum, R. Fix, U. Scholz, S. Malzer, C. Metzner, P. Kailuweit, D. Reuter, A. Wieck, M.C. Hübner, S. Stuffer, 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** (2005), 110–114.
- [76] R. Songmuang, S. Kiravittaya, and O. G. Schmidt, *Formation of lateral quantum dot molecules around self-assembled nanoholes*, Appl. Phys. Lett. **82** (2003), no. 17, 2892–2894.

- [77] T. M. Stace, G. J. Milburn, and C. H. W. Barnes, *Entangled two-photon source using biexciton emission of an asymmetric quantum dot in a cavity*, Phys. Rev. B **67** (2003), no. 8, 085317.
- [78] T. H. Stievater, Xiaoqin Li, J. R. Guest, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, and D. Park, *Wavelength modulation spectroscopy of single quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **80** (2002), no. 11, 1876–1878.
- [79] T. H. Stievater, Xiaoqin Li, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi, and L. J. Sham, *Rabi oscillations of excitons in single quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **87** (2001), no. 13, 133603.
- [80] S. Stuffer, P. Ester, A. Zrenner, and M. Bichler, *Power broadening of the exciton linewidth in a single InGaAs/GaAs quantum dot*, Appl. Phys. Lett. **85** (2004), no. 18, 4202–4204.
- [81] A. I. Tartakovskii, J. Cahill, M. N. Makhonin, D. M. Whittaker, J.-P. R. Wells, A. M. Fox, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, K. M. Groom, M. J. Steer, and M. Hopkinson, *Dynamics of coherent and incoherent spin polarizations in ensembles of quantum dots*, Phys. Rev. Lett. **93** (2004), no. 5, 057401.
- [82] R. M. Thompson, R. M. Stevenson, A. J. Shields, I. Farrer, C. J. Lobo, D. A. Ritchie, M. L. Leadbeater, and M. Pepper, *Single-photon emission from exciton complexes in individual quantum dots*, Phys. Rev. B **64** (2001), no. 20, 201302.
- [83] F. Troiani, U. Hohenester, and E. Molinari, *Exploiting exciton-exciton interactions in semiconductor quantum dots for quantum-information processing*, Phys. Rev. B **62** (2000), no. 4, R2263–R2266.
- [84] F. Troiani, E. Molinari, and U. Hohenester, *High-finesse optical quantum gates for electron spins in artificial molecules*, Phys. Rev. Lett. **90** (2003), no. 20, 206802.
- [85] T. Unold, K. Mueller, C. Lienau, T. Elsaesser, and A. D. Wieck, *Optical control of excitons in a pair of quantum dots coupled by the dipole-dipole interaction*, Phys. Rev. Lett. **94** (2005), no. 13, 137404.
- [86] A. Vagov, V. M. Axt, and T. Kuhn, *Impact of pure dephasing on the nonlinear optical response of single quantum dots and dot ensembles*, Phys. Rev. B **67** (2003), no. 11, 115338.

- [87] L. M. K. Vandersypen, M. Steffen, G. Breyta, C. S. Yannoni, M. H. Sherwood, and I. L. Chuang, *Experimental realization of Shor's quantum factoring algorithm using nuclear magnetic resonance*, Nature **414** (2001), 883.
- [88] J. M. Villas-Boas, Sergio E. Ulloa, and A. O. Govorov, *Decoherence of Rabi oscillations in a single quantum dot*, Phys. Rev. Lett. **94** (2005), no. 5, 057404.
- [89] P. M. Visser, K. Allaart, and D. Lenstra, *Entangled photons from small quantum dots*, Phys. Rev. A **68** (2003), no. 5, 053805.
- [90] Q. Q. Wang, A. Muller, P. Bianucci, E. Rossi, Q. K. Xue, T. Takagahara, C. Piermarocchi, A. H. MacDonald, and C. K. Shih, *Decoherence processes during optical manipulation of excitonic qubits in semiconductor quantum dots*, Phys. Rev. B **72** (2005), no. 3, 035306.
- [91] U. Woggon, *Optical properties of semiconductor quantum dots*, Springer-Verlag, Berlin, 1997.
- [92] R. J. Young, R. M. Stevenson, A. J. Shields, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie, K. M. Groom, A. I. Tartakovskii, and M. S. Skolnick, *Inversion of exciton level splitting in quantum dots*, Phys. Rev. B **72** (2005), no. 11, 113305.
- [93] A. Zrenner, E. Beham, S. Stufler, F. Findeis, M. Bichler, and G. Abstreiter, *Coherent properties of a two-level system based on a quantum-dot photodiode*, Nature **418** (2002), 612.
- [94] A. Zrenner, L. V. Butov, M. Hagn, G. Abstreiter, G. Bohm, and G. Weimann, *Quantum dots formed by interface fluctuations in AlAs/GaAs coupled quantum well structures*, Phys. Rev. Lett. **72** (1994), no. 21, 3382–3385.

LITERATURVERZEICHNIS

Publikationsliste

1. A. Zrenner, E. Beham, S. Stuffer, F. Findeis, M. Bichler, G. Abstreiter
Coherent properties of a two-level system based on a quantum-dot photodiode
Nature **418**, 612 (2002)
2. E. Beham, A. Zrenner, S. Stuffer, F. Findeis, M. Bichler, and G. Abstreiter
Coherent and incoherent properties of single quantum dot photodiodes
Physica E **16**, 59 (2003)
3. E. Beham, A. Zrenner, S. Stuffer, F. Findeis, M. Bichler, and G. Abstreiter
Single quantum dot photodiode - a two-level system with electric contacts
Advances in Solid State Physics **43**, 287-300 (2003)
4. A. Rastelli, S. Stuffer, A. Schliwa, R. Songmuang, C. Manzano, G. Costantini, K. Kern, A. Zrenner, D. Bimberg, and O. G. Schmidt
Hierarchical self-assembly of GaAs/AlGaAs quantum dots
Phys. Rev. Lett. **92**, 166104 (2004)
5. O. G. Schmidt, A. Rastelli, G. S. Kar, R. Songmuang, S. Kiravittaya, M. Stoffel, U. Denker, S. Stuffer, A. Zrenner, D. Grützmacher, B.-Y. Nguyen, P. Wennekers
Novel nanostructure architectures
Physica E **25**, 280-287 (2004)
6. S. Stuffer, P. Ester, A. Zrenner, and M. Bichler
Power broadening of the exciton linewidth in a single InGaAs/GaAs quantum dot
Appl. Phys. Lett. **85**, 4202-4204 (2004)
7. R. Schmidt, M. Vitzethum, R. Fix, U. Scholz, S. Malzer, C. Metzner, P. Kailuweit, D. Reuter, A. Wieck, M.C. Hübner, S. Stuffer, 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)
8. S. Stufliker, P. Ester, A. Zrenner, and M. Bichler
Quantum optical properties of a single $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ - GaAs quantum dot two-level system
Phys. Rev. B **72**, 121301(R) (2005)
 9. A. Zrenner, S. Stufliker, P. Ester, and M. Bichler
Manipulations of a qubit in a semiconductor quantum dot
Advances in Solid State Physics **45**, 73-184 (2005)
 10. R. Schmidt, U. Scholz, M. Vitzethum, R. Fix, S. Malzer, C. Metzner, P. Kailuweit, D. Reuter, A. Wieck, M. C. Hübner, S. Stufliker, A. Zrenner, G. H. Döhler
Single quantum dot nano-LEDs - spectroscopy of an electrically controlled few-particle system
Phys. Status Solidi (c). **2**, 2974-2977 (2005)
 11. H. J. Krenner, S. Stufliker, M. Sabathil, E. C. Clark, P. Ester, M. Bichler, G. Abstreiter, J. J. Finley, and A. Zrenner
Recent advances in exciton-based quantum information processing in quantum dot nanostructures
New Journal of Physics **7**, 184 (2005)
 12. S. Stufliker, P. Ester, A. Zrenner, and M. Bichler
Ramsey fringes in an electric-field-tunable quantum dot system
eingereicht bei Phys. Rev. Lett. (2005)
 13. S. Stufliker, P. Machnikowski, P. Ester, M. Bichler, V. M. Axt, T. Kuhn, and A. Zrenner
Two-photon Rabi oscillations in a single InGaAs/GaAs quantum dot
eingereicht bei Phys. Rev. B (2005)

Danksagung

Abschließend möchte ich allen danken, die zum Gelingen dieser Doktorarbeit beigetragen haben. Mein besonderer Dank gilt:

- Artur Zrenner, der mir nicht nur die Möglichkeit gegeben hat, diese interessante Arbeit an seinem Lehrstuhl durchzuführen, sondern durch große fachliche Kompetenz in wirklich allen Bereichen entscheidend zur erfolgreichen Umsetzung beigetragen hat.
- Gerhard, Heike, Marc, Patrick, Reiner, Rüdiger, Steffen, Thomas, Vera und allen ehemaligen Mitgliedern der Arbeitsgruppe für eine wirklich angenehme Atmosphäre und gute Zusammenarbeit. Gleiches gilt für Armando, Markus, Paweł, Ralf, Richard und alle anderen, mit denen ich im Zuge von Kooperationen zusammenarbeiten durfte.
- Der WG, den Volleyballern und allen übrigen Paderborner Freunden, die entscheidend dazu beigetragen haben, dass ich mich hier von Anfang an wohl gefühlt habe.
- Allen „alten“ Münchner und Pfaffenhofener Freunden und vor allem meiner Familie, für besonders entspannte und schöne lange Wochenenden und dafür, dass sie mich in meinen Entscheidungen immer unterstützt haben.