Phononen-assistierte Anregungsprozesse und Hochanregungseffekte in positionierten einzelnen Quantenpunkten

vorgelegt von
Diplom-Physiker
Ole Hitzemann
geboren in Göttingen

von der Fakultät II – Mathematik und Naturwissenschaften
der Technischen Universität Berlin
zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor der Naturwissenschaften
– Dr. rer. nat. –

genehmigte Dissertation

Promotionsausschuss:

Vorsitzender:	Prof. Dr. Andreas Knorr
Gutachter:	Prof. Dr. Axel Hoffmann
Gutachterin:	Prof. Dr. Janina Maultzsch

Tag der wissenschaftlichen Aussprache: 18. 12. 2018

Berlin 2019

Wer immer strebend sich bemüht,
Den können wir erlösen.

Johann Wolfgang von Goethe,
Faust II

Für Elisabeth und Mattis

Zusammenfassung

Mit steigender Leistung moderner Rechner und der möglichen Entwicklung verbesserter Algorithmen sowie neuer Technologien wie dem Quantencomputer sind herkömmliche Kryptographieverfahren langfristig nicht mehr sicher. Abhilfe könnte die Quantenkommunikation schaffen, die physikalisch nachweisbar mathematisch sichere Schlüssel übertragen kann. Um nachweislich abhörsicher und mit hoher Effizienz Quantenschlüssel zu übertragen, sind jedoch idealerweise Einzelphotonenquellen erforderlich. Eine Möglichkeit diese zu realisieren sind einzelne Quantenpunkte (quantum dots, QDs). Bisher wurden hierfür geeignete QDs mit guten optischen Eigenschaften vor allem selbstorganisiert gewachsen, die damit einhergehende zufällige Positionierung erschwert jedoch die verlässliche Fertigung von Bauelementen und begrenzt stark die Fertigungsausbeuten. Bisher vorgestellte Positionierungsansätze erfordern Werkzeuge und Strukturierungstechniken mit Nanometer-Präzision, außerdem verursachen sie oft Defekte auf der Wachstumsoberfläche, die sich negativ auf die optische Qualität der QDs auswirken. Ein neuer Positionierungsansatz, der buried stressor approach, verwendet herkömmliche Lithographie- und Prozessierungsmethoden mit Mikrometer-Genauigkeit, kann jedoch über einen erzeugten verborgenen Stressor sehr zuverlässig einzelne Quantenpunkte positionieren. Mit diesem Ansatz wurden bereits erfolgreich Einzelphotonenquellen hergestellt.

Ziel dieser Arbeit ist nun die genaue Untersuchung der Lumineszenz eines so positionierten QDs, sowohl hinsichtlich seiner Eignung als Einzelphotonenquelle, als auch um über Anregungsverhalten und Wechselwirkung mit Phononen Rückschlüsse auf seine elektronische Struktur ziehen zu können. Mittels Mikrophotolumineszenz-Spektroskopie (μPL) wird die Lumineszenz eines einzelnen QDs bei resonanter und nicht-resonanter Anregung in Abhängigkeit von der Anregungsleistung untersucht. Hierbei werden mehrere Lumineszenzlinien beobachtet und dem Exziton (X) sowie Multiexzitonen (2X, 3X, 4X) und anderen Zuständen zugeordnet. Bei Hochanregung treten angeregte Zustände auf, unter anderem aus der p-Schalen-Lumineszenz. Bei resonanter Anregung wird Wechselwirkung mit Phononen beobachtet, die auch zeitaufgelöst untersucht wird. Dies erlaubt weitere Rückschlüsse für die Zuordnung der Lumineszenzlinien und die Unterscheidung von resonanter Ramanstreuung und phononenassistierter Fluoreszenz. Zudem kann die Rolle von Phononen für die Dephasierungszeiten im resonanten und nicht-resonanten Fall untersucht werden. Bei resonanter Raman-Anregung in angeregte Zustände kann eine Tripel-Resonanz beobachtet und durch die Relaxation über Multiphononen-Prozesse mit optischen sowie lokalisierten akustischen Phononen erklärt werden. An dieser Multiphononen-Relaxation sind jeweils ein longitudinal optisches (LO) Phonon sowie ein oder mehrere longitudinal akustische (LA) und transversal akustische (TA) Phononen beteiligt. Durch Autokorrelationsmessungen an X kann Einzelphotonenemission nachgewiesen

werden. Ein Transferprozess von angeregten Zuständen hin zu einer phononen-assistierten Lumineszenzlinie auf niederenergetischer Seite von X wird durch Kreuzkorrelationsmessungen nachgewiesen.
Mikrophotolumineszenz-Anregungsspektroskopie (μPLE) erlaubt die Untersuchung von Anregungskanälen. Dabei treten bei bestimmten relativen und absoluten Anregungsenergien gemeinsame Intensitätsmaxima bei mehreren Lumineszenzlinien auf. Solche Resonanzen bei der gleichen relativen Anregungsenergie lassen auf Wechselwirkung mit materialspezifischen Phononen schließen, die auch zuvor schon in Tip-Enhanced-Raman-Spectroscopy (TERS)-Messungen nachgewiesen wurden. Insbesondere LO und transversal optische (TO) Phononen von InAs und GaAs lassen sich nachweisen, es gibt auch noch Hinweise auf Phononen von AlAs sowie von tertiären Verbindungen dieser Halbleiter. Resonanzen bei gleichen absoluten Energien deuten auf angeregte Zustände hin. Diese werden identifiziert und mit Hilfe der Literatur interpretiert. Ein Termschema der angeregten Zustände und der beteiligten Übergänge wird aufgestellt und die Abstände zwischen den Elektronen- und Lochniveaus werden berechnet. Durch die Wechselwirkung mit Phononen treten bei den hier untersuchten positionierten Quantenpunkten hochangeregte Zustände auf, die bisher nur bei Zweiphotonenanregung nachgewiesen wurden.
Insgesamt zeigen die Ergebnisse, dass sich positionierte QDs nicht nur als Einzelphotonenquellen eignen, sondern auch die Untersuchung von Hochanregungseffekten und der Wechselwirkung mit Phononen erlauben. Insbesondere kann bei resonanter Ramananregung Tripel-Resonanz mit Relaxation über Multiphononenprozesse beobachtet werden.

Abstract

With increasing performance of modern computers and the possible development of improved algorithms and new technologies such as quantum computers, conventional cryptographic methods are no longer safe in the long term. Data transmitted today is vulnerable, as it could be recorded by an attacker and decrypted with future, more powerful technologies. One possible solution is quantum communication, which can transmit cryptographics keys secured by the laws of quantum mechanics. Ideally, single-photon sources are required to transmit quantum keys in securely and with high efficiency. One option to realize these are single quantum dots (QDs). Until now, suitable QDs with good optical properties have been grown self-organized, but the associated random positioning makes it difficult to reliably manufacture components and limits production yields. Most positioning approaches presented to date require nanometer-precision tools and patterning techniques, and they often cause defects on the growth surface that adversely affect the optical quality of the QDs. A new positioning approach, the buried stressor approach, uses conventional micron-precision lithography and processing techniques. It can reliably position individual quantum dots utilizing the strain induced in the growth surface due to the buried stressor. With this approach, single photon sources have been successfully produced.

The aim of this work is the detailed investigation of the luminescence of such a positioned QD, both in terms of its suitability as a single photon source, as well as to understand its electronic structure via excitation behavior and interaction with phonons. Using microphotoluminescence spectroscopy (μPL), the luminescence of a single QD is investigated under resonant and non-resonant excitation as a function of the excitation power. Several luminescent lines are observed and assigned to the exciton (X) as well as to multiple excitons (2X, 3X, 4X) and other states. Upon high excitation, excited states are observed, including p-shell luminescence. On resonant excitation, interaction with phonons is observed, which is also investigated with time-resolved μPL measurements. This allows further conclusions for the assignment of the luminescence lines and the distinction of resonant Raman scattering processes and phonon-assisted fluorescence. In addition, the role of phonons for the dephasing times in the resonant and non-resonant case can be investigated. Upon resonant Raman excitation into excited states, a triple resonance can be observed and is explained by relaxation via multi-phonon processes with optical as well as localized acoustic phonons. In each case, a longitudinal optical (LO) phonon and one or more longitudinal acoustic (LA) and transversal acoustic (TA) phonons are involved in the multi-phonon relaxation processes. Autocorrelation measurements of X prove single photon emission. Phonon-assisted transfer from excited states to an emission line on the lower energy side of X is indicated by cross-correlation measurements.

Microphotoluminescence excitation spectroscopy (μPLE) allows the investigation of excitation channels. At certain relative and absolute excitation energies, common intensity maxima occur at several luminescence lines. Such resonances at the same relative excitation energy suggest interaction with material-specific phonons, which have previously been demonstrated in tip-enhanced Raman spectroscopy (TERS) measurements. In particular, LO and transversal optical (TO) phonons of InAs and GaAs can be detected, and there are also indications of phonons of AlAs as well as of tertiary compounds of these semiconductors. Resonances at the same absolute energies indicate excited states. These are identified and interpreted in comparison with similar spectra described in literature. A term scheme of the excited states and the involved transitions is set up and the distances between the electron and hole levels are calculated. Due to the interaction with phonons, highly excited states occur in the investigated positioned QDs, which have before only been detected by two-photon excitation.
Overall, the results show that positioned QDs are not only useful as single-photon sources, but also allow the study of high-excitation effects and interaction with phonons. In particular upon resonant Raman excitation a triple resonance can be observed with relaxation via multi-phonon processes.

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis **XIII**

Tabellenverzeichnis **XVII**

1 Gliederung der Arbeit **1**
1.1 Anmerkungen zu Form und Sprache 1
1.2 Gliederung dieser Arbeit 1

2 Einleitung **5**
2.1 Warum brauchen wir Quantenkryptographie? 5
2.1.1 Herkömmliche Kryptographie 5
2.1.2 Quantenkryptographie 6
2.1.3 Erzeugung einzelner Photonen 7
2.1.3.1 Abgeschwächte Laserpulse 7
2.1.3.2 Photonenpaare aus parametrischer Fluoreszenz 8
2.1.3.3 Echte Einzelphotonenquellen 8
2.2 Physikalische Fragestellungen an einzelne Quantenpunkte 9

3 Theorie **11**
3.1 Elektronische Struktur von Quantenpunkten 11
3.1.1 Niedrigdimensionale Halbleiterstrukturen 11
3.1.2 Epitaktische Halbleiter Quantenpunkte 11
3.1.3 Elektronische Struktur einzelner Quantenpunkte 12
3.1.4 Energie von Mehrteilchenzuständen 13
3.1.5 Austauschwechselwirkung und Spins 15
3.1.6 Feinstruktur des Exzitons 17
3.1.7 Erzeugung verschränkter Photonen 18
3.2 Gitterschwingungen und Streuprozesse 19
3.2.1 Phononen 19
3.2.2 Streuprozesse 20

4 Untersuchungsmethoden **23**
4.1 Überblick über die Untersuchungsmethoden 23
4.1.1 Grundlagen der Photolumineszenz-Spektroskopie (PL) 23
4.1.2 Photolumineszenz-Anregungsspektroskopie (PLE) 24

4.1.3 Zeitaufgelöste Photolumineszenz-Spektroskopie (tr-PL) . . . 24
4.1.4 Raman-Spektroskopie und TERS . . . 25
4.1.5 Temperaturabhänginge Photolumineszenzspektroskopie . . . 26
4.2 Verwendete Versuchsaufbauten . . . 26
4.2.1 μ-PLE-Messplatz . . . 26
4.2.1.1 Anregungs-Lasersystem . . . 26
4.2.1.2 Laser-Scanning-Mikroskop . . . 28
4.2.1.3 Kryostat . . . 29
4.2.1.4 Spektrometer . . . 31
4.2.1.5 Hanbury-Brown-Twiss-Interferometer . . . 31
4.2.2 tr-μPL-Messplatz . . . 32
4.2.2.1 Anregungslasersystem . . . 32
4.2.2.2 Detektionsaufbau . . . 32
4.2.2.3 Zeitaufgelöste Detektion . . . 33
4.2.3 Kontakt-Nadel-Setup . . . 34
4.2.4 Variation und Bestimmung der Anregungsdichte . . . 34
4.3 Probenherstellung . . . 37

5 Motivation **39**
5.1 Einzelphotonenemitter auf Quantenpunktbasis . . . 39
5.1.1 Bisherige Einzelphotonenquellen auf Quantenpunktbasis . . . 39
5.1.2 Positionierung von QDs mittels eines verborgenen Stressors . . . 40
5.2 Optische Anregung positionierter QDs . . . 43
5.2.1 Ausblick auf die folgenden Kapitel . . . 44
5.2.2 Spektroskopische Fragestellungen bezüglich möglicher Anwendungen . . . 45

6 Vorcharakterisierung **47**
6.1 Übersichtscharakterisierung mittels μPL . . . 47
6.1.1 Ortsaufgelöste Messungen . . . 47
6.1.2 Energetische Position und Halbwertsbreite der QD-Emmissionslinien . . . 47
6.1.3 Vergleich mit anderen Positionierungsverfahren . . . 49
6.1.4 Position der im Folgenden untersuchten Mesa auf der Probe . . . 49
6.2 TERS-Untersuchung der Ramanmoden . . . 49

7 Optische Charakterisierung der exzitonischen Struktur **51**
7.1 Übersicht über die Photolumineszenz des positionierten Quantenpunkts . . . 51
7.1.1 Übersichtsspektren des Quantenpunkts . . . 51
7.1.2 Abhängigkeit der QD-Lumineszenz von der Anregungsenergie . . . 52
7.1.2.1 Resonante Anregung . . . 53
7.1.2.2 Nicht-resonante Anregung . . . 54
7.1.2.3 Weitere Lumineszenzlinien auf niederenergetischer Seite . . . 55

7.2 Identifikation der exzitonischen Lumineszenz 55
7.2.1 Autokorrelationsmessungen bei resonanter und nicht-resonanter Anregung . 55
7.2.2 Kreuzkorrelationsmessungen zwischen L1 und L7 56
7.2.3 Polarisationsabhängigkeit der Lumineszenz 58
7.2.4 Abhängigkeit der QD-Lumineszenz von der Anregungsleistung 59
7.2.4.1 Auswertung der intensitätsabhängigen Messungen mit Fitfunktionen 59
7.2.4.2 Identifikation der s- und p-Schalen-Lumineszenz 61
7.2.4.3 Interpretation der Intensitätsabhängigkeit 61
7.2.4.4 Intensitätsabhängigkeit bei nicht-resonanter Anregung 64
7.2.4.5 Intensitätsabhängigkeit bei resonanter Anregung 64
7.3 Diskrete spektrale Diffusion bei Hochanregung 66
7.4 Interpretation der Photolumineszenz mit Hilfe der Literatur 68
7.4.1 Identifikation der den Emissionslinien zugrunde liegenden Übergänge 68
7.5 Interpretation von L7 und L0 70

8 Elektronische und phononische Resonanzen 73
8.1 Anregungsabhängige Spektroskopie 73
8.1.1 Durchführung der energieabhängigen μPL-Messungen 73
8.1.2 Beschreibung der energieabhängigen μPL-Konturplots 74
8.2 Auswertung der μPLE-Spektren 76
8.3 Phononen-assistierte Übergänge 83
8.3.1 Zuordnung der Phononenmoden 83
8.3.2 Doppelresonanz 84
8.4 Zuordnung der elektronischen Übergänge im Vergleich mit der Literatur 85

9 Dynamik: Unterscheidung von Raman Streuung und Fluoreszenz 91
9.1 Zielsetzung und Durchführung der zeitaufgelösten Messungen 91
9.1.1 Experimentelle Herausforderungen bei Messung und Auswertung 92
9.2 Zeitaufgelöste Messungen bei nicht-resonanter Anregung 92
9.2.1 Intensitätsabhängigkeit der Zerfallszeiten bei nicht-resonanter Anregung . . . 92
9.2.2 Phononenseitenbande 94
9.2.3 Vergleich mit benachbartem QD B bei nicht-resonanter Anregung 94
9.3 Intensitätsabhängigkeit der Zerfallszeiten bei resonanter Anregung 99
9.3.1 Verhältnis der Zerfallszeiten der verschiedenen Lumineszenzen 100
9.4 Resonanter Ramaneffekt 109
9.4.1 Tripel-Resonanz durch Multiphononenrelaxation im resonanten Ramaneffekt 111
9.4.2 Vergleich der Zerfallszeiten im quasi-resonanten und nicht-resonanten Fall . 112
9.4.3 Resonanzüberhöhung beim resonanten Ramaneffekt 112
9.4.4 Temperaturabhängigkeit der Zerfallszeiten 115
9.4.5 Vergleich der Phononenlebenszeiten mit der Literatur 116

10 Zusammenfassung der Ergebnisse **119**

Literaturverzeichnis **125**

Danksagung **141**

Abbildungsverzeichnis

3.1 Elektronische Zustandsdichte für niederdimensionale Halbleiterstrukturen 11
3.2 Mehrteilchenkomplexe in Quantenpunkten 15
3.3 Aufspaltung des Exzitonen Grundzustands durch die Austauschwechselwirkung . . . 18
3.4 Feinstrukturaufspaltung in der X-XX-Kaskade 19
3.5 Streuprozesse 21

4.1 Schema PL und PLE 25
4.2 μPLE-Messplatz 27
4.3 Laser-Scanning-Mikroskop 30
4.4 Funktionsprinzip Laser-Scanning-Mikroskop 30
4.5 tr-μPL-Messplatz 33
4.6 Kontaktnadel-Setup 35
4.7 Wellenlängenabhängigkeit des Reflexionsgrads des Pellicle-Strahlteilers 36
4.8 Aufbau und Schichtfolge der QD-Probe 38

5.1 QD-LED 39
5.2 Optische Messungen an RCLED 40
5.3 Aufbau und Emission der QD-LED 41
5.4 QD-LED mit positioniertem QD 42
5.5 EL einer QD-LED mit positioniertem QD 43
5.6 Hochaufgelöste μPL-Mapscan der untersuchten Mesa 45
5.7 Hochaufgelöste μPL und Autokorrelation an dem positionierten QD A 46

6.1 AFM und μ-PL Maps von Mesen unterschiedlichen Durchmessers 48
6.2 Linienbreiten- und Energieverteilung nach QD-Position auf der Mesa 48
6.3 STM und TERS Maps von QDs auf Substrat 50

7.1 Übersichtsspektrum von QD A in der Mitte der untersuchten Mesa 52
7.2 Hochaufgelöste Spektren des QD 53
7.3 Autokorrelationfunktion von X0 56
7.4 Kreuzkorrelation von L1 und L7 57
7.5 Polarisationsabhängige Messungen zur Bestimmung der FSS 59
7.6 Anregungsintensitätsabhängige Spektren nicht-resonant und resonant 60
7.7 Auswertung intensitätsabhängiger Messungen an nicht-resonantem Beispielspektrum 62
7.8 Auswertung intensitätsabhängiger Messungen an resonantem Beispielspektrum . . . 63

7.9 Intensitätsabhängigkeit der integrierten Lumineszenz der s- und p-Schale 64
7.10 Auswertung der Intensitätsabhängigkeit 65
7.11 Intensitätsabhängige hochaufgelöste μPL-Spektra 67
7.12 Vergleich der μPL-Spektren mit Benny *et al.* 69

8.1 Hochaufgelöster energieabhängiger μPL-Konturplot 74
8.2 Energieabhängige μPL-Konturplot Übersicht 75
8.3 Energieabhängiger μPL-Konturplot Bereich mit QD-Linien 76
8.4 Übersichts-PLE-Spektren über absoluter Anregungsenergie 79
8.5 Übersichts-PLE-Spektren über relativer Anregungsenergie 80
8.6 PLE-Spektren im nahresonanten Bereich 81
8.7 PLE-Spektren im nahresonanten Bereich in logarithmischer Skalierung 82
8.8 Vergleich der μPL und PLE-Spektren mit Benny *et al.* 88
8.9 Termschema der Energieniveaus 89
8.10 Termschema der Energieniveaus 90

9.1 Abhängigkeit der Anstiegs- und Zerfallszeiten des Exzitons X0 von der Anregungsleistung bei nicht-resonanter Anregung 95
9.2 SSPD-Transienten von X0 (L1), XX (L6), L8 und E1 bei nicht-resonanter Anregung 96
9.3 Spektren und SSPD-Transienten von X0 (L1) bei nicht-resonanter Anregung bei 40 und 50 K 97
9.4 Spektren und SSPD-Transienten von QD B bei 12 K 98
9.5 APD-Transienten von L0, L1, L6 und L7 bei resonanter Anregung in X2 bei 8 K . . 102
9.6 APD-Transienten von L0, L1, L6 und L7 bei resonanter Anregung in X1 bei 28 K . . 103
9.7 APD-Transienten von L0, L1, L6 und L7 bei variabler Anregung bei 16 K 104
9.8 SSPD-Transienten von X0 (L1), XX (L6) und L7 bei mittelstarker resonanter Anregung in X1 bei 4 K 105
9.9 SSPD-Transienten von X0 (L1), XX (L6) und L7 bei starker resonanter Anregung in X1 bei 8 K 105
9.10 SSPD-Transienten von X0 (L1), XX (L6) und L7 bei mittelstarker resonanter Anregung bei 12 K 106
9.11 Leistungsabhängigkeit der Anstiegs- und Zerfallszeiten bei resonanter Anregung . . 107
9.12 Anstiegs- und Zerfallszeiten sowie QD-Spektren in Abhängigkeit der Anregungsenergie 108
9.13 Resonanzprofil der Phononenlinien und Linienverbreiterung durch akustische Phononen 110
9.14 Spektrum bei nah-resonanter Anregung mit akustischen Phononen nahe der Laserlinie 111
9.15 Mulitphononen Relaxation 113
9.16 Termschema mit Mulitphononen Relaxation 114

9.17 Vergleich der Transienten von X0 in Resonanz mit dem Phonon und im quasi-resonanten Fall in Experiment und Theorie 114
9.18 Vergleich der zeitintegrierten Summe von Raman-Peak und Fluoreszenz im nicht-resonanten Fall und im resonanten Fall 115
9.19 Temperaturabhängigkeit der Zerfallszeiten von X0 in Resonanz mit dem Phonon . . 116
9.20 Temperaturabhängige Spektren bei resonanter Anregung 117

Tabellenverzeichnis

7.1 Positionen der Lumineszenzlinien 54

8.1 Wichtige Resonanzen in der Anregung 78
8.2 Abstände der Lumineszenzlinien 85
8.3 Resonanzen der Lumineszenzlinien von QD A und QD B in der Anregung 87

9.1 Anregungsabhängigkeit APD-Transienten 101

1 Gliederung der Arbeit

1.1 Anmerkungen zu Form und Sprache

Diese Arbeit ist in Deutsch verfasst, jedoch werden die viele Fachbegriffe und Abkürzungen aus dem Englischen verwendet, da diese geläufiger sind als die deutschen Übersetzungen. Dies soll gerade im Vergleich mit englischsprachigen Fachpublikationen das Verständnis erleichtern. Aus dem selben Grund werden in den Abbildungen durchgehend englischsprachige Beschriftungen verwendet. Ich bitte, diese sprachliche Durchmischung zu entschuldigen.

1.2 Gliederung dieser Arbeit

Diese Arbeit gliedert sich in folgende Teile:

Einleitung und Grundlagen

In Kapitel 2 **Einleitung** ab Seite 5 wird kurz dargestellt, welche Schwächen heutige Kryptographiemethoden haben und wie diese mit Hilfe von Quantenkryptographie umgangen werden können. Anschließend wird in Grundzügen erklärt, wie Quantenschlüsselverteilung funktioniert und welche Quellen einzelner Photonen dafür zur Verfügung stehen.
In Kapitel 3 **Theorie** ab Seite 11 werden die grundlegenden Begriffe erklärt, die notwendig sind, um Energiezustände einzelner Quantenpunkte (quantum dots, kurz QDs) und die Lumineszenz strahlender Übergänge zwischen diesen zu verstehen.
In Kapitel 4 **Untersuchungsmethoden** ab Seite 23 werden die verwendeten Untersuchungsmethoden kurz vorgestellt. Außerdem werden die Versuchsaufbauten inklusive relevanter technischer Details sowie die Probenherstellung erläutert.

Ergebnisse

In Kapitel 5 **Motivation** ab Seite 39 werden Einzelphotonenquellen (single photon sources, kurz SPS) auf Quantenpunktbasis vorgestellt und es wird erläutert, worin der Vorteil von positionierten QDs liegt. Die Positionierung von einzelnen QDs mittels eines verborgenen Stressors wird erklärt und eine erfolgreich realisierte SPS mit diesem Ansatz präsentiert. Um mehr über die mit diesem Ansatz gewachsenen QDs zu erfahren, werden optische Messungen vorgenommen. Eine ausgewählte Mesa wird mittels ortsaufgelöster Mikrophotolumineszenz (μPL) vermessen und die Lumineszenz mehrerer QDs gefunden. Ein durch die Stressor-induzierte Verspannung in der Mesamitte positio-

nierter QD mit scharfer Lumineszenz wird im Folgenden weiter mittels μPL untersucht. Dabei werden Unterschiede abhängig von der Anregungsenergie festgestellt: Bei nicht-resonanter Anregung oberhalb des Wetting Layers oder sogar oberhalb der GaAs Bandlücke treten andere Lumineszenzlinien auf als bei resonanter Anregung. In Autokorrelationsmessungen wird durch ein Antibunching beoabchtet und dadurch Einzelphotonenemission nachgewiesen. Dieses Antibunching ist jedoch bei resonanter Anregung deutlich ausgeprägter als unter nicht-resonanter.
In Kapitel 6 **Vorcharakterisierung** ab Seite 47 wird zunächst eine optische Übersichtscharakterisierung der untersuchten Probe vorgenommen. Dafür wird die Lumineszenz einer Vielzahl von Mesen auf der Probe untersucht. Je nach Größe der Mesa unterscheidet sich die Form des verborgenen Stressors und damit auch die Position der leuchtenden QDs. Die gefundenen QD-Lumineszenzlinien werden, geordnet nach Position auf ihrer Mesa, hinsichtlich Linienbreite und Emissionsenergie statistisch ausgewertet und die Ergebnisse mit anderen Positionierungsverfahren aus der Literatur verglichen. Die Untersuchungen zeigen, dass die positionierten QDs in ihren optischen Eigenschaften zufällig gewachsenen QDs sehr ähneln. Repräsentativ für die Vielzahl von Mesen wird eine Mesa mit punktförmigem Stressor ausgesucht, auf dem die QD-Lumineszenz im Folgenden genau untersucht wird. Außerdem werden lokale Phononenmoden hochgradig ortsaufgelöst mittels Tip-Enhanced-Raman-Spectroscopy (TERS) untersucht. Dabei können sowohl materialspezifische GaAs Phononenmoden als auch lokale QD Moden nachgewiesen werden.
In Kapitel 7 **Optische Charakterisierung der exzitonischen Struktur** ab Seite 51 wird die Lumineszenz des in der Mesamitte positionierten QDs näher untersucht. Seine spektrale Position wird durch μPL-Übersichtsspektren eingeordnet. Hochaufgelöste μPL-Spektren bei unterschiedlichen Anregungsenergien zeigen deutliche Unterscheide bei resonanter und nicht-resonanter Anregung mit einer Vielzahl von Lumineszenzlinien, die durch weitere Messungen identifiziert werden sollen. Es werden Autokorrelationsmessungen an der dominierenden Linie L1 des Spektrums durchgeführt, um Einzelphotonenemission nachzuweisen. Durch Kreuzkorrelationsmessungen der Linie L1 mit zweitstärksten Linie des Spektrums L7 werden beide Linien einem einzelnen QD zugeordnet. Gleichzeitig wird gezeigt, dass es sich nicht um Exziton (X) und Biexziton (XX) handelt, da bei diesen ein klarer Kaskadenprozess erkennbar wäre. Zur Identifikation der Lumineszenzlinien werden μPL-Messungen in Abhängigkeit von der Polarisation und der Anregungsintensität durchgeführt. Dabei können das Exziton L1 (X) und Multiexzitonen L6 (2X), L8 (3X) und L9 (4X) identifiziert werden. Weitere bei Hochanregung auftretende Linien L2-3 und L5 werden mittels diskreter spektraler Diffusion erklärt. Die Zuordnung der Linien L0, L4 und L7 wird im Vergleich mit der Literatur diskutiert. Die Linien L0 und L7 treten nur bei resonanter Anregung und dann auch stets mit einer intensiven Lumineszenz von L1 auf. Daraus wird geschlossen, dass es sich um Rekombinationskanäle eines gemeinsamen Zustands handelt, vermutlich eines angeregten Exzitons oder Trions oder um die Rekombination eigentlich verbotener Übergänge. Aufgrund der größeren energetischen Halbwertsbreite dieser Linien wird eine Beteiligung von Phononen am Rekombinationsprozess vermutet.
In Kapitel 8 **Elektronische und phononische Resonanzen** ab Seite 73 wird die QD-Lumineszenz in Abhängigkeit der Anregungsenergie untersucht. Anhand von Mikrophotolumineszenzanregungsspektroskopie (μPLE)-Messungen werden Anregungskanäle identifiziert. Durch den Vergleich von

relativer und absoluter Anregungsenergie bei verschiedenen Lumineszenzlinien lassen sich phononische und elektronische Anregungskanäle unterscheiden. Bekannte materialspezifische Phononenenergien werden mit Hilfe der Literatur zugeordnet. Ebenfalls im Vergleich mit der Literatur werden elektronische Resonanzen interpretiert und Übergänge bestimmten Energieniveaus zugeordnet. So kann ein Termschema zur Erklärung der meisten Übergänge aufgestellt werden.
In Kapitel 9 **Dynamik: Unterscheidung von Raman Streuung und Fluoreszenz** ab Seite 91 werden die Anstiegs- und Zerfallszeiten der QD-Lumineszenz in Abhängigkeit von Anregungsenergie und -intensität untersucht. Dies erlaubt weitere Rückschlüsse für die Zuordnung von L0 und L7. Die Überlagerung von resonanter Ramanstreuung und Fluoreszenz wird mittels zeitaufgelöster Messungen untersucht, die Ergebnisse werden mit Rechnungen aus der Theorie verglichen. Die Kopplungsstärke der Phononen wird bestimmt. In temperaturabhängigen Messungen werden Phononen- und Fluoreszenzlebenszeiten gemessen. Anhand der Ergebnisse wird die Rolle der Phononen bei der Dephasierung der exzitonischen Zustände diskutiert.
In Kapitel 10 **Zusammenfassung der Ergebnisse** ab Seite 119 werden die gesamten Ergebnisse abschließend zusammengefasst und diskutiert.

2 Einleitung

2.1 Warum brauchen wir Quantenkryptographie?

2.1.1 Herkömmliche Kryptographie

Sichere Datenübertragung erfordert Verschlüsselung, damit die übertragenen Daten nicht von Dritten abgehört werden können. Ein Großteil der heute z.B. im Internet verwendeten Verschlüsselungsmethoden setzt auf asymmetrische Verschlüsselung, bei der die Daten mit einem öffentlich zugänglichen Public Key verschlüsselt werden und nur mit dem geheimen Private Key entschlüsselt werden können. Die Verschlüsselung basiert dabei auf Einwegfunktionen, die also in eine Richtung einfach zu berechnen, aber schwer umzukehren sind. Ein Beispiel für eine Einwegfunktion ist die Multiplikation zweier Primzahlen, eine einfache Rechenoperation, während die Umkehrung, die Primfaktorzerlegung, schwierig ist.
Wenn jedoch neue leistungsfähigere Algorithmen oder Computer entwickelt werden, kann es passieren, dass bisher als sicher angenommene Verschlüsselungen in vergleichsweise kurzer Zeit geknackt werden können und damit unsicher werden. Auch heute übermittelte Daten sind gefährdet, da sie von einem Angreifer aufgezeichnet und mit zukünftigen leistungsfähigeren Technologien entschlüsselt werden könnten. Eine besondere Gefahr stellt dabei die Entwicklung des Quantencomputers (QC) dar, der auf Basis quantenmechanischer Zustände funktioniert und sich Prinzipien wie Superposition und Verschränkung zunutze macht und mit sogenannten Qubits rechnet. Ein solcher QC könnte die im obigen Beispiel erforderliche Produktzerlegung großer Zahlen mit Hilfe des Shor-Algorithmus [Sho97] sehr viel effizienter lösen als ein herkömmliche Computer. Bisher ist der QC überwiegend ein theoretisches Konzept, das in Laborversuchen erprobt wird. So wurde etwa bereits 2014 die Zahl 56153 faktorisiert mit einem QC, der 4 Qubit bei Raumtemperatur nutzt [Dat14]. Erste kommerzielle Implementationen, wie etwa der von Google und der NASA 2015 vorgestellte QC von D-Wave Systems mit mehr als 1000 Qubits, können Optimierungsprobleme sehr viel schneller bearbeiten als herkömmliche Computer, beherrschen aber beispielsweise nicht den Shor-Algorithmus [D-W15]. Sie stellen daher noch keine direkte Gefährdung der asymmetrischen Verschlüsselung dar. Es gibt jedoch Anzeichen, dass Geheimdienste wie etwa die NSA bereits an der Entwicklung eines kryptologisch nützlichen QCs arbeiten [Ric14].
Auch in Europa ist die Entwicklung von Quantentechnologien wie Quantencomputern und Quantenkryptographie ein aktuelles Thema: In den nächsten zehn Jahren soll im Rahmen des EU FET Flagship on Quantum Technologies und zahlreicher nationaler Forschungsprogramme eine Milliarde Euro Fördergelder für Forschung an Quantentechnologien ausgegeben werden, um Europa an die Spit-

ze der sogenannten zweiten Quantenrevolution zu bringen [Gib16, Man16, Rie17]. Die Aufbauphase hierzu ist mit einem ersten Förderaufruf 2018 mit 141 eingereichten Projekten gestartet [Cal18]

2.1.2 Quantenkryptographie

Die Gefährdung durch leistungsfähigere Algorithmen oder QC lässt sich durch eine Rückkehr zur symmetrischen Verschlüsselung umgehen. Dabei wird derselbe Schlüssel zur Verschlüsselung wie zur Entschlüsselung einer Nachricht verwendet. Es ist mathematisch erwiesen, dass ein solches Verfahren sicher ist, wenn der verwendete Schlüssel gleichverteilt zufällig aufgebaut ist, mindestens genauso lang ist wie die verschlüsselte Nachricht und nur ein einziges Mal verwendet wird. Dies ist ein sogenanntes One Time Pad, welches bereits seit der ersten Hälfte des 20. Jahrhunderts von Regierungen, Militärs und Geheimdiensten benutzt wurde.
Das Problem bei diesem Verfahren stellt die sichere Übertragung des Schlüssels dar. Dies geschieht traditionell durch den Austausch von Codebüchern oder Datenträgern, was jedoch sichere, verlässliche Kuriere voraussetzt. Die Methoden der Quantenkryptographie (QK) beziehungsweise genauer des Quantenschlüsselaustausch (Quantum key distribution, kurz QKD) machen sich wiederum die Gesetze der Quantenmechanik für die sichere Schlüsselübertragung zunutze: Es ist physikalisch nicht möglich, einen quantenmechanischen Zustand perfekt zu kopieren, dies wird als No-Cloning-Theorem bezeichnet. Daher ist es auch nicht möglich die in der QKD genutzten Qubits abzufangen und unbemerkt weiterzuversenden, ein Abhören einer quantenkryptographischen Leitung würde also stets bemerkt. Es existieren verschiedene Verfahren zum QKD, die für die Informationsübertragung entweder einzelne Photononen (wie z.B. das BB84-Protokoll [Ben14]) oder verschränkte Zustände nutzen (wie z.B: das E91-Protokoll [Eke91]).
In beiden Fällen existieren zwei komplementäre Basen aus je zwei orthogonalen Zuständen zur Übertragung von Informationen. Im BB84-Protokoll wird dies über die Polarisation einzelner Photonen realisiert: Eine Basis besteht in horizontaler (-) und vertikaler (|) Polarisation (0° und 90°), die andere in rechts- (/) und linksdiagonaler (\) Polarisation (45° und 135°). Die Absenderin Alice versendet Photonen mit einer von ihr gewählten Polarisation (-,|,/, \). Der Empfänger Bob misst diese Photonen mit einem Polarisationsfilter, entweder in gerader Orientierung (+) oder um 45° gedreht (x). Wenn Bob in gerader Orientierung (+) misst, kann er die Photonen in - und | Orientierung zweifelsfrei messen, für die / und \ Photonen erhält er ein zufälliges Ergebnis. Bei gedrehter Orientierung (x) verhält es sich umgekehrt, Bob kann / und \ eindeutig messen, aber erhält für - und | ein zufälliges Ergebnis.
Zur Erzeugung eines Quantenschlüssels schickt Alice Photonen mit von ihr zufällig gewählter Basis über einen Quantenkanal (z.B. eine Glasfaserleitung) zu Bob, er misst diese mit ebenfalls zufällig gewählter Basis, beide merken sich die gewählten Basen. Nach der Übertragung tauschen sich Alice und Bob auf einem öffentlichen Kanal über die gewählten Basen aus und verwerfen alle Messergebnisse, bei denen sie unterschiedliche Basen gewählt haben. Von den verbleibenden Messergebnissen vergleichen sie einen Teil um festzustellen, ob diese im Wesentlichen übereinstimmen oder ob sie eine erhöhte Fehlerrate haben, die auf einen Abhörer hinweist. Natürlich müssen sich Alice und

Bob über den öffentlichen Kanal sicher authentifizieren können, damit ein Angreifer sich dort nicht als Man-in-the-middle einschleusen kann. Hierfür gibt es verschiedene Ansätze, auf die hier jedoch nicht näher eingegangen wird.
Hört nämlich eine Angreiferin Eve die Verschlüsselung ab, kann sie die Photonen auch nur mit einer zufälligen Basis messen und weiterversenden. In der Hälfte der Fälle wird sie zufällig in der gleichen Basis wie Alice messen und das Photon weiterversenden, hier wird das Abhören nicht bemerkt. Misst sie jedoch in der anderen Basis, wird sie in der Hälfte dieser Fälle ein falsches Qubit weiterversenden, so dass statistisch gesehen Bob in einem Viertel aller Fälle ein anderes Qubit empfängt als von Alice versendet. Dieser Fehlerrate fällt beim Vergleich der Messungen auf: Ist sie zu hoch (25 %), wurde die Leitung wahrscheinlich abgehört und der übertragene Schlüssel wird nicht verwendet. Ist die Fehlerrate so gering, dass sie nur auf zufällige Fehler in Übertragung und der Messapparatur zurückzuführen ist, können die übrigen übertragenen Qubits für die Erzeugung eines One Time Pads genutzt werden. Bei vorhandenen geringen Fehlerraten werden ggf. noch Fehlerkorrekturverfahren und Hash-Funktionen zur Verbesserung des Schlüssels angewandt (Information reconciliation und Privacy amplification).
Das E91-Protokoll funktioniert ähnlich: Hier werden verschränkte Photonenpaare von einer Quelle erzeugt und je ein Photon an Alice und Bob verschickt. Diese werden von beiden in zufällig gewählten Basen gemessen. Die Photonen sind korreliert, so dass die Messung eines Photons den Zustand des anderen bestimmt. Diese Korrelation kann statistisch überprüft werden und eine Abweichung von der erwarteten Statistik entlarvt einen möglichen Angreifer.

2.1.3 Erzeugung einzelner Photonen

2.1.3.1 Abgeschwächte Laserpulse

Für den QKD nach BB84 oder ähnlichen Protokollen wird eine Quelle einzelner Photonen benötigt. Dafür gibt es verschiedene Ansätze: Der einfachste und in kommerziellen Systemen jetzt schon genutzte Ansatz besteht in stark abgeschwächten Laserpulsen [Gis02,Lou05]. Bei einer durchschnittlichen Photonenzahl μ pro Puls folgt die tatsächliche Anzahl n von Photonen pro Puls der Poisson-Statistik:

$$P(n,\mu) = \frac{\mu^n}{n!} e - \mu \tag{2.1}$$

Durch eine kleine Photonenzahl μ kann die Anzahl der Pulse, die mehr als ein Photon enthalten, sehr gering gehalten werden, sie beträgt ungefähr $P(n>1,\mu) \approx \frac{\mu}{2}$. Allerdings sind dann auch die meisten Pulse leer: $P(n=0,\mu) \approx 1-\mu$, was die nutzbare Bitrate erheblich verringert. Zwar könnte die Pulsrate des Lasers bis in den Gigahertz Bereich erhöht werden, jedoch ist die Detektionsrate des Detektors durch das Verhältnis von Signal zu Dunkelstrom begrenzt. Das Rauschen des Detektors nimmt zu, wenn er zu häufig geöffnet wird, um einen Puls zu empfangen, daher beschränkt sich die Detektionsrate meist auf wenige Megahertz. Aus diesem Grund wird meist eine mittlere Photonenzahl von μ=0,1 gewählt, was immerhin 5% Pulse mit mehr als einem Photon zur Folge hat, ein potentieller Angriffspunkt für einen Lauscher.

2.1.3.2 Photonenpaare aus parametrischer Fluoreszenz

Bei der parametrischen Fluoreszenz (spontaneous parametric down-conversion, kurz SPDC) wird in einem nichtlinearen optischen Kristall ein Primärphoton in zwei Sekundärphotonen umgewandelt, wobei die Summe der Frequenzen der Sekundärphotonen der Frequenz des Primärphotons entspricht. Dies ist gewissermaßen die Umkehrung der bekannten Frequenzverdopplung. Diese Erzeugung von Photonenpaaren ist sehr ineffizient, es werden etwa 10^{10} Photonen benötigt, um ein Photonenpaar zu erzeugen. Ein Photon des erzeugten Paares kann als Trigger für das zweite genutzt werden, so dass der zweite Detektor nur geöffnet wird, wenn ein Photon erwartet wird. Dadurch tritt bei diesem ein geringeres Rauschen auf. Mit gepulster Anregung und Detektion können Photonenzahlen von bis zu μ=2/3 erreicht werden bei nur 1% Pulse mit mehr als einem Photon [Rib01]. Auf parametrischer Fluoreszenz basierende Quellen von verschränkten Photonenpaaren können relativ kompakt gebaut werden, wie die in [Tit98] verwendete Box von 40 x 45 x15 cm^3 Volumen, die ohne weitere Kühlvorrichtungen zum Test der Bell'schen Ungleichung über 10 km verwendet wurde.

2.1.3.3 Echte Einzelphotonenquellen

Eine ideale Einzelphotonenquelle [Lou05] erzeugt genau ein Photon auf Knopfdruck, sie wird daher auch als *photon gun* bezeichnet. Dies lässt sich durch ein quantenmechanisches Zweiniveausystem realisieren, wofür es verschiedene Ansätze gibt:

- Einzelne Atome oder Ionen werden in einer optischen oder magnetischen Falle gefangen [Phi98, DPG00, Pey12, Far16], was jedoch technisch aufwändig ist und sich daher bisher nicht wesentlich miniaturisieren lässt.

- Farbstoffmoleküle in Lösungsmitteln [Kit98] oder Feststoffen [Bru99, Fle00] sind einfacher zu handhaben, sind aber nur begrenzt stabil bei Raumtemperatur.

- Fehlstellen in Diamant setzten optische Anregung voraus, was Schwierigkeiten bei der Einkopplung der erzeugten Photonen in eine Glasfaser mit sich bringen kann. Die Stickstofffehlstelle in Diamant wurde bereits vielfach genutzt [Bro00, Kur00], ist jedoch mit 12 ns Zerfallszeit recht langsam. Ein neuerer Ansatz ist die Nutzung von Silizium-Fehlstellen-Farbzentren in Diamant-Mikrostrukturen, die integrierte Quantennetzwerke auf einem Chip ermöglichen [Bec16].

- Einzelne Elektronen an mesoskopischen p-n-Übergängen zeigen bei sehr tiefen Temperaturen unter 50 mK Antibunching und könnten einzelne Photonen erzeugen, allerdings nur mit sehr geringer Effizienz [Ima94, Kim99].

- Halbleiter Quantenpunkte (quantum dots, kurz QDs) emittieren einzelne Photonen bei Rekombination von Elektronen-Loch-Paaren (Exzitonen). Wenn mehrere Exzitonen im QD vorhanden sind, rekombinieren sie nacheinander und emittieren Photonen unterschiedlicher Frequenzen. Durch spektrale Filterung erhält man eine Einzelphotonenquelle [Gér99, Mic00, San01].

QDs können in Mikrokavitäten integriert werden um die Auskoppeleffizienz zu erhöhen [Gér98] und können sowohl optisch als auch elektrisch gepumpt werden.

In den folgenden Kapiteln wird es um Einzelphotonenquellen auf Basis einzelner QDs gehen. Aktuelle Implementierungen dieses Ansatzes werden in Kapitel 5 **Motivation** ab Seite 39 vorgestellt und die zugrunde liegenden QDs anschließend näher untersucht.

2.2 Physikalische Fragestellungen an einzelne Quantenpunkte

Einzelne QDs sind nicht nur als Einzelphotonenquellen interessant, sondern auch um grundlegende physikalische Fragestellungen an ihnen zu untersuchen. Insbesondere die angeregten Zustände von QDs sowie die Wechselwirkung mit Phononen sind seit langem Untersuchungsgegenstand: Schon vor über 20 Jahren wurden an der TU Berlin anhand von Ensembles von InGaAs QDs charakteristische Phononenmoden sowie Anregungsprozesse auch mittels zeitaufgelöster Messungen untersucht [Hei96, Hei97, Hei99, Hei00a, Hei01, Wer11]. Auch Unterschiede an QDs je nach Größe, Zusammensetzung, Form und Herstellungsverfahren sowie der Einfluss von Verspannung und elektrischen Feldern wurden unter anderem mittel Photolumineszenzanregungsspektroskopie analysiert [Hei00b, Guf01, Guf03, Hei05]. Die Dephasierungszeiten exzitonischer Zustände wurde vor allem mittels Vierwellenmischung an Ensembles von QDs ermittelt [Bor99, Bor01, Bor03, Lan04, Bor06]. All diese Arbeiten wurden an Ensembles von QDs durchgeführt, da mit den damaligen experimentellen Techniken keine einzelnen QDs untersucht werden konnten. Spätere Arbeiten untersuchten einzelne QDs mit Hilfe von Schattenmasken, also aufgedampften Metallschichten mit kleinen Löchern, was jedoch Schwierigkeiten beim Wiederfinden der untersuchten QDs mit sich brachte [War09b, Sie09]. Erst die Strukturierung von Proben mit Hilfe von Mesen ermöglichte ein zuverlässiges Wiederfinden der untersuchten QDs und auch die Fertigung von Bauelementen wie Einzelphotonendioden. Da jedoch nicht auf jeder Mesa QDs vorhanden waren, mussten die Mesen relativ aufwändig abgesucht werden und die Fertigung von Bauelementen aus diesen so strukturierten Proben hatte nur eine sehr geringe Ausbeute [Sto11b]. Um eine höhere Ausbeute an Bauelementen zu erzielen und eine systematischere Charakterisierung der QDs zu ermöglichen, wurden Lösungen für die Positionierung von QDs gesucht. Diese werden in Abschnitt 5.1.2 auf Seite 40 vorgestellt. In dieser Arbeit wird die Physik einzelner QDs insbesondere hinsichtlich ihrer exzitonischen Struktur und der Wechselwirkung mit Phononen am Beispiel eines ausgewählten QDs untersucht.

3 Theorie

3.1 Elektronische Struktur von Quantenpunkten

3.1.1 Niedrigdimensionale Halbleiterstrukturen

Wenn die Bewegung von Ladungsträgern in einer oder mehreren Raumrichtungen eingeschränkt wird, etwa in einer Halbleiter-Nanostruktur, kommt es zu einer Änderung der elektronischen Struktur. Sind die Abmessungen in einer Nanostruktur kleiner als die DeBroglie-Wellenlänge $\lambda = h/p$ der Ladungsträger, kommt es zu einer Quantisierung der Energiezustände, die dann nicht mehr kontinuierlich verteilt sind. Bei einer Einschränkung in einer Dimension (1D confinement) erhält man eine konstante Zustandsdichte D(E), man bezeichnet dies als einen Quantenfilm (quantum well). Bei einer Einschränkung in zwei Raumrichtungen (2D confinement) erhält man eine $1/\sqrt{E}$ förmige Zustandsdichte, man spricht von einem Quantendraht (quantum wire). Sind alle drei Raumrichtungen eingeschränkt, erhält man eine deltafunktionsförmige Zustandsdichte $D(E) \sim \delta(E - E_{det})$, man bezeichnet dies als einen Quantenpunkt (englisch quantum dot, QD). Diese Zustandsdichteverteilung resultiert in diskreten elektronischen Energieniveaus, weshalb QDs gelegentlich auch als künstliche Atome beschrieben werden.

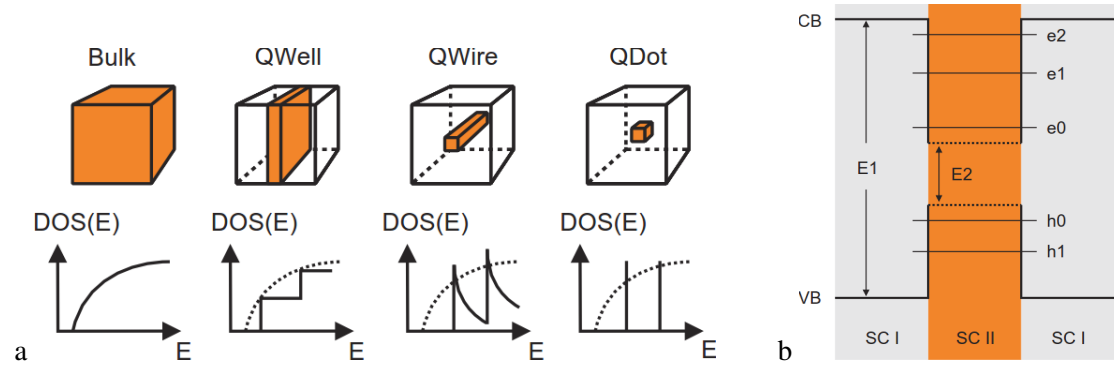


Abbildung 3.1 a) Elektronische Zustandsdichte für niederdimensionale Halbleiterstrukturen vom Volumenkristall bis hin zum Quantenpunkt b) Einfaches Termschema eines Quantenpunkts als eindimensionales Kastenpotential (aus [Seg08])

3.1.2 Epitaktische Halbleiter Quantenpunkte

Eine solche räumliche Einschränkung der Beweglichkeit der Ladungsträger lässt sich beispielsweise durch Halbleiter-Heterostrukturen realisieren: Umschließt ein Halbleitermaterial mit einer größeren

Bandlücke E_{g1} (Matrixmaterial) einen anderen Halbleiter mit der kleineren Bandlücke E_{g2}, so kommt es zu Diskontinuitäten im Valenzband (VB) und Leitungsband (englisch conduction band, CB), die sowohl für die Elektronen im CB als auch für die Löcher (Defektelektronen) im VB eine Potenzialbarriere darstellen, siehe Abb. 3.1 b. Im Falle der hier untersuchten Quantenpunkte handelt es sich um InAs QDs (E_{g2}=0,42 eV bei T=4K) in GaAs als Matrixmaterial (E_{g1}=1,52 eV bei T=4K).
Das Wachstum der QDs erfolgt in diesem Fall durch metallorganische Gasphasenepitaxie (MOCVD), welche die Monolagen-genaue Abscheidung von Halbleiterschichten ermöglicht. Da die einzelnen Halbleiter-Monolagen sich an der Kristallstruktur der darunter liegenden Schichten ausrichten, kommt es zu Verspannungen, wenn Halbleiterschichten mit unterschiedlichen Gitterkonstanten aufeinander gewachsen werden. Bis zu einer gewissen Schichtdicke können diese Verspannungen zum Wachstum nanoskaliger Inseln führen, den QDs. Die Ausdehnung dieser QDs beträgt üblicherweise einige zehn Nanometer in lateraler Ebene und nur wenige Nanometer in Wachstumsrichtung. Da es sich um einen selbstorganisierten Prozess handelt, unterliegen Form, Größe und genaue Materialzusammensetzung der QDs statistischen Schwankungen, die sich jedoch durch die Wachstumsparameter beeinflussen lassen.
Form, Größe und Materialzusammensetzung haben jedoch einen Einfluss auf die elektronischen Eigenschaften und damit auch auf die Energien der optischen Übergänge der QDs. Daher sind auch diese gewissen statistischen Schwankungen unterworfen, auch die lokale Verspannung am Ort des QD hat Einfluss auf seine elektronische Struktur. Wird ein Ensemble von QDs betrachtet, überlagern sich die vielen unterschiedlichen Einzelspektren zu einem breiten Lumineszenzpeak. Es ist in diesem Fall kaum möglich, Rückschlüsse auf die genaue elektronische Struktur der einzelnen QDs zu ziehen. Hierfür müssen die Spektren einzelner QDs betrachtet werden, etwa durch Abdeckung einer Probe mit einer metallenen Schattenmaske mit wenigen hundert Nanometer kleinen Löchern oder durch Untersuchung einer Probe mit QDs sehr geringer Dichte. In diesen beiden Fällen müssten die einzelnen QDs jedoch erst auf der Probe gefunden werden, eine genaue Positionierung der QDs ist nicht möglich. Bei der in dieser Arbeit untersuchten Probe hingegen wurden die QDs mit dem später beschriebenen „buried stressor approach“ positioniert und sind relativ zuverlässig in der Mitte der auf die Probe strukturierten Mesen zu finden. Weitere Informationen zum Wachstum der Probe finden sich in Abschnitt 4.3 **Probenherstellung** ab Seite 37. Im Folgenden soll nur auf einige wenige, zum Verständnis dieser Arbeit wichtige Eigenschaften von QDs eingegangen werden. Ausführlichere Informationen zur Herstellung und zu den Eigenschaften von QDs finden sich etwa in [Mic04, Bim08, Gru10].

3.1.3 Elektronische Struktur einzelner Quantenpunkte

Bei den hier untersuchten Quantenpunkten liegen sowohl Leitungs- als auch Valenzband der InAs-QDs innerhalb der Energielücke der GaAs-Matrix. Es liegt daher ein attraktives Potential für Elektronen und Löcher vor, dies bezeichnet man als QD vom Typ I. Die räumliche Ausdehnung des durch den QD gebildeten Potentialtopfes ist kleiner als die de-Broglie-Wellenlänge, was eine Lokalisierung der Ladungsträger und eine diskrete Zustandsdichte für Elektronen und Löcher zur

Folge hat. Die diskreten Energieniveaus des QDs können aufgrund der Spinentartung jeweils mit zwei Ladungsträgern besetzt werden. Das jeweils energetisch niedrigste Niveau wird als Elektron- bzw. Loch-Grundzustand bezeichnet, (e0, bzw. h0), die energetisch darüber liegenden Niveaus als angeregte Zustände, siehe Abb. 3.1 auf Seite 11. Die Energieniveaus eines Ladungsträgers im QD sind Eigenzustände eines Hamiltonoperators, in dem als Potential sowohl die Bulk-Bandkanten als auch die Größe des QDs sowie seine exakte Form, Symmetrie und Materialkomposition eingehen. Sie haben folgenden Einfluss auf die elektronische Struktur des QDs:
Je kleiner ein QD und damit auch je tiefer der Potentialtopf ist, desto stärker sind die Quantisierungseffekte, daher nehmen die Energie des Grundzustands und der Abstand zwischen den elektronischen Niveaus zu.
Die Form des Quantenpunktes bestimmt den Überlapp zwischen den Wellenfunktionen der Ladungsträger und damit sowohl die Stärke der Wechselwirkung zwischen diesen als auch die Oszillatorstärke optischer Übergänge. Von der Symmetrie des Quantenpunktes hängen zum einen die Symmetrie der Wellenfunktionen der elektronischen Zustände und zum anderen auch die optischen Auswahlregeln ab. Außerdem hängen Entartung, Aufspaltung und Durchmischung der elektronischen Niveaus entscheidend von der Symmetrie des Systems ab.
Durch die Materialkomposition werden die Bandkanten der Halbleiter und somit die Tiefe des Einschlusspotentials bestimmt. Bei stärkerer Durchmischung eines In(Ga)As/GaAs QDs mit Gallium steigt die Grundzustandsenergie an, die Höhe des einschließenden Potentialtopfes nimmt hingegen ab, wodurch die Quantisierungsenergie und damit der Abstand zwischen Grund- und angeregtem Zustand ebenfalls abnimmt [Hei00b].
Dies ist eine einfache Näherung, bei der etwa Einflüsse durch Verspannungen, piezoelektrische Felder oder durch die Benetzungsschicht (englisch wetting layer, WL) nicht berücksichtigt werden.

3.1.4 Energie von Mehrteilchenzuständen

Wenn sich in einem QD mehrere Ladungsträger befinden, so besteht zwischen ihnen eine Coulombwechselwirkung. Ein Elektron und ein Loch im gleichen Quantenpunkt bilden ein Exziton (X), dessen Rekombinationsenergie um die Exzitonbindungsenergie erniedrigt ist gegenüber der Differenz der beteiligten Elektronen- und Lochenergien. Da die Wellenfunktionen der Ladungsträger aufgrund der Lokalisierung stark überlappen, existieren keine freien Elektron-Loch-Paare in QDs. Daher ist die Exzitonbindungsenergie nicht direkt experimentell zugänglich. Nach Modellierungen liegt sie für InAs/GaAs QDs zwischen 11 und 26meV [Sti99], ist also um ein Vielfaches größer als im GaAs Volumenmaterial mit 4,2meV [Stu62].
Wenn ein QD mit mehr als einem Elektron und Loch besetzt ist, bilden sich Mehrteilchenkomplexe: Ein Exziton (X) mit einem zusätzlichen Elektron oder Loch wird als Trion (X- oder X+) bezeichnet, zwei Elektronen und zwei Löcher als Biexziton (XX bzw. 2X). Existieren noch weitere ungepaarte Ladungsträger, spricht man von einem geladenen Biexziton (XX- oder XX+), auch mehrfach geladene Komplexe sind möglich. Bei mehr als zwei Elektronen-Loch-Paaren spricht man allgemein von Multiexzitonen oder speziell von Triexzitonen, Quadexzitonen usw. (3X, 4X, ...).

Bei der Rekombination eines Elektron-Loch-Paares kommt es zur Lumineszenz, die bei höheren exzitonischen Komplexen häufig in Kaskaden stattfindet. Wenn etwa ein Biexziton rekombiniert, so bleibt ein Exziton zurück, das ebenfalls rekombinieren kann. Aufgrund der Coulombwechselwirkung ist die Rekombinationsenergie für jeden dieser Komplexe unterschiedlich. Die Übergangsenergien der höheren exzitonischen Komplexe werden oft als Bindungsenergien relativ zu der Übergangsenergie des Exziton angegeben, da dieses der einfachste in optischen Experimenten beobachtbare Zustand ist, wobei die später beschriebene Feinstruktur des Exzitons meist vernachlässigt und als Übergangsenergie der Mittelwert der beiden Exzitonen bright-Zustände genutzt wird.
Die direkte Coulombwechselwirkung $C_{i,j}$ zwischen zwei Ladungsträgern mit den Ladungen $q_{i,j}$ und den Wellenfunktionen $\Psi_{i,j}$ in einem Quantenpunkt ist gegeben durch:

$$C_{i,j} = \int\int \frac{q_i q_j}{4\pi\varepsilon\varepsilon_0} \frac{|\Psi_i(\mathbf{r}_1)|^2 |\Psi_j(\mathbf{r}_2)|^2}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \tag{3.1}$$

Die Energie des Exzitons $E(X)$ ergibt sich aus der Summe der Einteilchenenergien für Elektron $E(e_0)$ und Loch $E(h_0)$ im Grundzustand und der Coulombwechselwirkung C_{eh} zwischen den beiden:

$$E(X) = E(e_0) + E(h_0) + C_{eh} \tag{3.2}$$

Wird im Falle eines Trions X- das System mit einem weiteren Elektron besetzt, so müssen zwei weitere Coulombterme berücksichtigt werden:

$$E(X-) = 2E(e_0) + E(h_0) + 2_{Ceh} + C_{ee} \tag{3.3}$$

Die Bindungsenergie des negativ geladenen Trions ist also die Differenz zur Energie des Exzitons und des Elektrons:

$$E(^{X-}_{bind}) = E(X-) - (E(X) + E(e_0)) = C_{eh} + C_{ee} \tag{3.4}$$

Die Trionbindungsenergie besteht also aus zwei Coulombtermen, von denen C_{eh} anziehend und C_{ee} abstoßend wirkt. Der Überlapp der Wellenfunktionen der beteiligten Ladungsträger bestimmt, welcher Term im Betrag größer ist und damit das Vorzeichen der Bindungsenergie. Im InAs/GaAs System sind die Löcher im Grundzustand überwiegend durch Schwerlöcher gegeben und haben damit eine deutlich größere effektive Masse als die Elektronen. Dadurch sind die Löcher im Quantenpunkt stärker lokalisiert als die Elektronen. Daher überwiegt beim negativen Trion die Elektron-Loch-Anziehung, die Bindungsenergie ist positiv, die des negativen Trions ist hingegen aufgrund der dominierenden Loch-Loch-Abstoßung negativ. Aufgrund des äußeren Confinement im Quantenpunkt sind im Gegensatz zum Volumenmaterial jedoch auch exzitonische Komplexe mit negativer Bindungsenergie stabil [Rod05]. Die Bindungsenergie für andere Komplexe kann analog berechnet werden.
Dies ist eine einfache Näherung zur Abschätzung der Bindungsenergie exzitonischer Komplexe, die unter anderem nicht die Korrelationswechselwirkung berücksichtigt. Diese bewirkt, dass sich die Wellenfunktionen der Ladungsträger anpassen, wenn man einen weiteren hinzufügt, wodurch eine

weitere Energieerniedrigung stattfindet. Ebenfalls noch nicht berücksichtigt wurde die Austauschwechselwirkung: Wenn man die Symmetrie des Systems und die Spinkonfiguration der ununterscheidbaren Ladungsträger in Betracht zieht, können Zustände, die ohne diese Berücksichtigung entartet sind, weiter aufspalten. Dies führt zur Feinstrukturaufspaltung, die sich in der Lumineszenz des Exzitons als Dublettstruktur zeigt. Der Hamiltonoperator, der den Austausch bestimmt, lässt sich aus Symmetrieüberlegungen gewinnen und wird im folgenden nur kurz hergeleitet. Eine ausführliche Herleitung der Austauschwechselwirkung findet sich etwa in [Seg08, War09a, Bay02b].

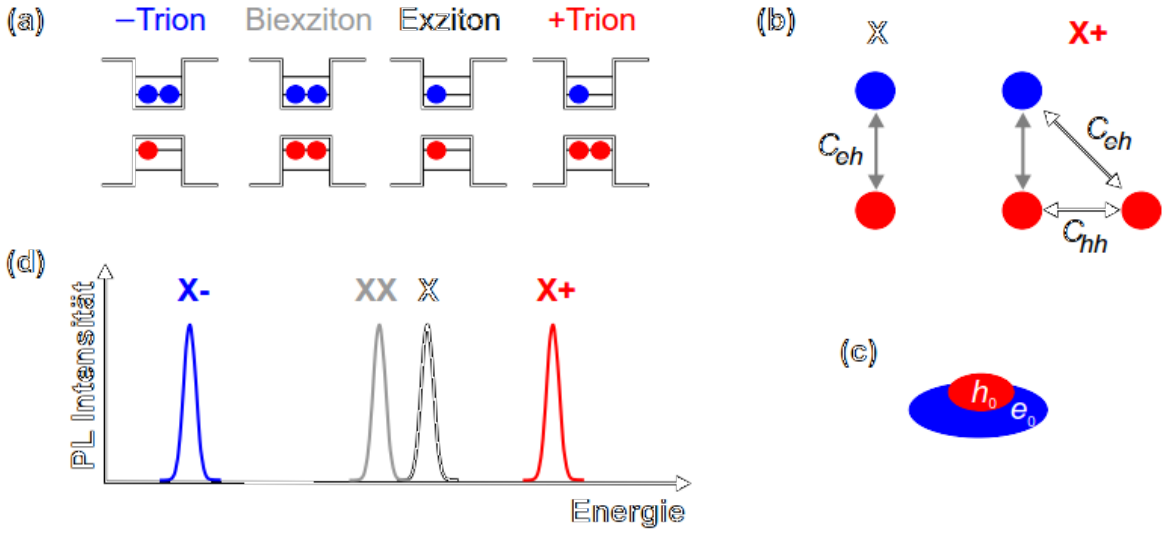


Abbildung 3.2 a) Die vier einfachsten Mehrteilchenkomplexe in QDs sind Exziton (X), Biexziton (XX) und positiv bzw. negativ geladenes Trion (X+ bzw. X-). b) Die Coulombwechselwirkung besteht aus anziehenden (C_{eh}) und abstoßenden (C_{hh} und C_{ee}) Anteilen. c) Aufgrund der größeren effektiven Masse sind bei den untersuchten QDs die Löcher stärker lokalisiert als die Elektronen, dies führt zu der dargestellten räumlichen Verteilung der Wellenfunktionen und hat Spektren für Mehrteilchenkomplexe zufolge wie in d) dargestellt. Abbildung aus [War09a]

3.1.5 Austauschwechselwirkung und Spins

Gemäß dem Pauli-Prinzip dürfen zwei Elektronen in einem Atom nicht in allen Quantenzahlen übereinstimmen oder, etwas abstrakter ausgedrückt, die Wellenfunktion eines Quantensystems muss bezüglich der Vertauschung von identischen Fermionen antisymmetrisch sein. Die Gesamtwellenfunktion Ψ^{12}_{ges} zweier wechselwirkender Fermionen im Quantenzustand $a,b = n,l,m$ (mit Hauptquantenzahl n, Drehimpulsquantenzahl l und magnetischer Quantenzahl m) am Ort $\mathbf{r}_{1,2}$ mit den Spins $s_{1,2} = 1/2$ und der Projektion des Spins auf die z-Achse (i. A. Wachstumsrichtung des QDs) $s_{z1,2} = \pm 1/2 = \uparrow,\downarrow$ und Gesamtspin $S = s_1 + s_2$ sowie $S_z = s_{z1} + s_{z2}$ kann durch das Produkt von Ortswellenfunktion ψ^{12}_{ab} und Spinwellenfunktion χ^{12} beschrieben werden:

$$\Psi^{12}_{ges} = \psi^{12}_{ab}(\mathbf{r}_1,\mathbf{r}_1) \cdot \chi^{12}(S,S_z) \tag{3.5}$$

Die Ladungsverteilung im System darf sich durch das Vertauschen der beiden Fermionen nicht ändern, also gilt:

$$|\psi_{ab}^{12}|^2 = |\psi_{ab}^{21}|^2 \Leftrightarrow \psi_{ab}^{12} = \pm\psi_{ab}^{21} \tag{3.6}$$

Dies wird von der symmetrischen Ortsfunktion $\psi_{ab}^S = +\psi_{ba}^S$ erfüllt sowie von der antisymmetrischen $\psi_{ab}^A = -\psi_{ba}^A$. Zwei Fermionen am gleichen Ort im gleichen Quantenzustand a werden durch die symmetrische Ortsfunktion $\psi_{aa}^S \neq 0$ beschrieben, die antisymmetrische Ortsfunktion ist $\psi_{aa}^A = 0$. Die beiden Fermionen unterscheiden sich in diesem Zustand nur noch durch die antiparallelen Spins. Bei der Gesamtwellenfunktion muss im Produkt aus Orts- und Spinwellenfunktion jeweils eine der beiden Funktionen symmetrisch, die andere antisymmetrisch sein:

$$\Psi_{ges} = \begin{cases} \psi_{ab}^S \cdot \chi^A \\ \psi_{ab}^A \cdot \chi^S \end{cases} \tag{3.7}$$

Die antisymmetrische Spinwellenfunktion mit Gesamtspin $S = 0$ beschreibt den sogenannten Singulett Zustand, die symmetrischen Spinfunktionen mit $S = 1$ die drei Triplett Zustände:

$$\chi^A = \frac{1}{\sqrt{2}}(\chi_1(\uparrow)\chi_2(\downarrow) - \chi_1(\downarrow)\chi_2(\uparrow)) \qquad |S, S_z\rangle = |0,0\rangle \tag{3.8}$$

$$\chi^S = \begin{cases} \frac{1}{\sqrt{2}}(\chi_1(\uparrow)\chi_2(\downarrow) + \chi_1(\downarrow)\chi_2(\uparrow)) & |S, S_z\rangle = |1,0\rangle \\ \chi_1(\uparrow)\chi_2(\uparrow) & |S, S_z\rangle = |1,+1\rangle \\ \chi_1(\downarrow)\chi_2(\downarrow) & |S, S_z\rangle = |1,-1\rangle \end{cases} \tag{3.9}$$

Der Grundzustand $n = 0$ eines Systems aus zwei Fermionen wird infolge des Pauli-Prinzips durch einen Singulett-Zustand gebildet, angeregte Zustände mit $n \geq 1$ spalten in einen Singulett und drei Triplett-Zustände auf. Hierbei liegt der Singulett-Zustand bei höheren Energien, da die Triplett-Zustände durch eine antisymmetrische Ortsfunktion beschrieben werden und die beiden Teilchen mit parallelem Spin einen größeren mittleren Abstand und somit eine geringere Coulomb-Energie haben.

Da die Gesamtwellenfunktion antisymmetrisch sein muss, ergibt sich unter Berücksichtigung der Spinwechselwirkung folgender Term zur Beschreibung der Austauschwechselwirkung (AWW) im Erwartungswert des Hamiltonoperators für die Coulombwechselwirkung zwischen zwei Fermionen:

$$\langle \psi_a^1 \psi_b^2 | H^{AWW} | \psi_a^2 \psi_b^1 \rangle \tag{3.10}$$

Durch Austauschwechselwirkung kommt es zum Aufspalten von Zuständen, die ohne Berücksichtigung der Spinkonfiguration entartet sind. Der Hamiltonoperator muss gegenüber allen Symmetrieoperationen invariant sein, unter denen das System invariant ist. Aus gruppentheoretischen Überlegungen erhält man für ein System der Symmetriepunktgruppe C_{2v} folgenden Austauschhamiltonoperator:

$$H^{AWW} = \underbrace{2\Delta_0 J_z S_z}_{H_0^{AWW}} + \underbrace{\Delta_1 (J_x S_x - J_y S_y)}_{H_1^{AWW}} + \underbrace{\Delta_2 (J_x S_x + J_y S_y)}_{H_2^{AWW}} \tag{3.11}$$

Hierbei stellen die Terme H_0^{AWW} und H_2^{AWW} die isotrope AWW dar, die für Symmetrien kleiner oder gleich C_{4v} oder D_{2d} ungleich null sind, der Term H_1^{AWW} beschreibt die anisoptrope AWW und ist nur für Symmetrien kleiner oder gleich C_{2v} ungleich null. Die Parameter Δ_0, Δ_1 und Δ_2 beschreiben die Stärke der Aufspaltung, $\mathbf{S} = (S_x, S_y, S_z)$ ist der Operator für den Gesamtspin der Elektronen und $\mathbf{J} = (J_x, J_y, J_z)$ für den der Löcher. Im Quantenpunkt werden nicht nur die Elektronen im Leitungsband, sondern auch die Löcher im Valenzband betrachtet und die AWW zwischen ihnen. Ausgehend von der Bandkonfiguration von InAs und GaAs Volumenhalbleitern gibt es zwei Bänder für die Elektronen mit der Spinkonfiguration $|s, s_z\rangle = |\frac{1}{2}, \pm\frac{1}{2}, \rangle$ und sechs für die Löcher mit $|j, j_z\rangle = |\frac{3}{2}, \pm\frac{3}{2}, \rangle$ für die Schwerlöcher, $|j, j_z\rangle = |\frac{3}{2}, \pm\frac{1}{2}, \rangle$ für die Leichtlöcher und $|j, j_z\rangle = |\frac{1}{2}, \pm\frac{1}{2}, \rangle$ für die Split-Off Löcher. Die Löcher im QD haben überwiegend Schwerloch-Charakter, da die Leichtlöcher aufgrund der Spin-Bahn-Wechselwirkung und der biaxialen Verspannung im QD um bis zu 200 meV abgespalten sind [Sti99].

3.1.6 Feinstruktur des Exzitons

Das Exziton (X) besteht aus einem Elektron (Spin $\pm\frac{1}{2}$) und einem (Schwer-)Loch (Spin $\pm\frac{3}{2}$). Die vier möglichen Spinkonfigurationen des Gesamtspins $\mathbf{F} = \mathbf{s} + \mathbf{j}$ in der Projektion auf die z-Achse $|F_z\rangle = |s_z + j_{z\rangle}$ sind $|-1\rangle$, $|+1\rangle$, $|-2\rangle$ und $|+2\rangle$. Ohne AWW ist der Grundzustand des Exzitons vierfach entartet, mit AWW wird diese Entartung teilweise aufgehoben. Die $|\pm 1\rangle$ Zustände können unter Absorption oder Emission eines Photons mit Spin ± 1 an das elektrische Feld koppeln, sie werden daher als bright-Zustände bezeichnet. Die Zustände mit Spin $|\pm 2\rangle$ können dies aufgrund der Drehimpulserhaltung nicht, sie werden daher als dark-Zustände bezeichnet. Erst in einem externen magnetischen Feld senkrecht zur Wachstumsrichtung kommt es zu einer Durchmischung der bright- und dark-Zustände, die eine spektroskopische Untersuchung der dark-Zustände zulässt. Mit einer Extrapolation für den Fall B=0 kann die Aufspaltung Δ_2 bestimmt werden [Bay02b].
Die Aufspaltung Δ_0 zwischen bright- und dark-Zuständen wird durch den Term H_0^{AWW} der isotropen AWW beschrieben, die Aufspaltung Δ_2 der beiden dark-Zustände durch den Term H_2^{AWW}. Die bright-Zustände werden nur bei C_{2v} Symmetrie oder geringer um den Wert Δ_1 durch den Term der anisotropen AWW H_1^{AWW} aufgespalten. Die Aufspaltung $\Delta_{1,2}$ kann durch Mischung von Leicht- und Schwerloch Zuständen beeinflusst werden [Aki05]. In einer $C2_v$ Symmetrie sind die reinen Spinzustände $|\pm 1\rangle$ keine Eigenzustände von $H^{AWW}(X)$ mehr, diese werden durch Linearkombinationen der Zustände $|+1\rangle$ und $|-1\rangle$ gebildet. Der energetische Abstand der bright-Zustände, also die Aufspaltung Δ_1 zwischen $|-1\rangle - |+1\rangle$ und $|-1\rangle + |+1\rangle$, wird als Feinstrukturaufspaltung (FSS) bezeichnet.
Zustände mit einem Gesamtspin von ± 1 würden unter Aussendung eines zirkular polarisierten Photons strahlend rekombinieren, durch die Superposition der $|\pm 1\rangle$ Zustände bei der Rekombination eines Exzitons im bright-Zustand ($|+1\rangle \pm |-1\rangle$) kommt es jedoch zur Emission linear polarisier-

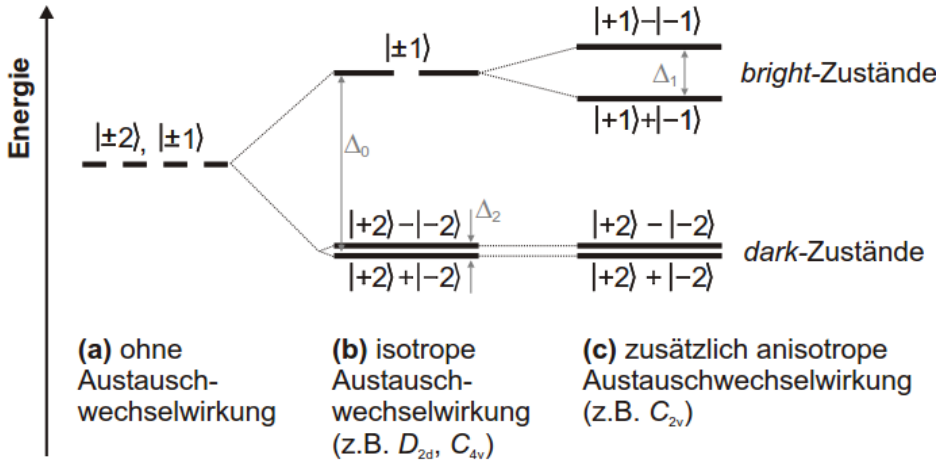


Abbildung 3.3 a) Ohne Austauschwechselwirkung (AWW) ist der Grundzustand des Exzitons vierfach entartet. b) Unter isotroper AWW bei Systemen in D_{2d} oder C_{4v}-Symmetrie kommt es sowohl zur Aufspaltung zwischen bright- und dark-Zuständen, als auch zur Aufspaltung innerhalb der dark-Zustände. c) Bei einer weiteren Symmetriereduktion auf C_{2v} spalten außerdem die beiden bright-Zustände durch anisotrope-AWW auf. Abbildung aus [War09a]

ter Photonen π^{+-} mit Polarisationsachse parallel bzw. senkrecht zur Anisotropieachse, also hier der [110] Kristallachse des Substrats. Die FSS lässt sich also als energetischer Abstand der beiden linear polarisierten Emissionslinien des Exzitons messen. Ist der QD mit zwei Elektronen und zwei Löchern besetzt, so spricht man von einem Biexziton (2X bzw. XX). Im Grundzustand des Biexzitons sind alle beteiligten Energieniveaus voll besetzt, daher existiert nur eine Spinkonfiguration und keine Aufspaltung. Der Zerfalls des Biexzitons ist ein Kaskadenprozess: Eines der beiden Elektronen-Loch-Paare im QD rekombiniert unter Emission eines linear polarisierten Photons, der QD befindet sich nun in einem der beiden exzitonischen bright-Zustände, dieser rekombiniert, falls kein Umklappprozess stattfindet, unter Emission eines weiteren genauso polarisierten Photons. Daher ist die FSS des Exzitons in der Lumineszenz des Biexzitons zu messen, die energetische Aufspaltung zeigt sich im Spektrum mit gleichem Betrag, aber umgekehrter Richtung. Dies ermöglichst eine Identifikation von Exziton und Biexziton im Spektrum eines QDs anhand polarisationsabhängiger Messungen.

3.1.7 Erzeugung verschränkter Photonen

Liegt jedoch eine Symmetrie von C_{3v} oder höher vor, so ist $\Delta_1 = 0$ und das Exziton zeigt keine FSS. Der bright-Zustand des Exzitons ist zweifach entartet, seine Eigenzustände sind reine $|\pm 1\rangle$ Zustände und die emittierten Photonen bei Rekombination von Biexziton und Exziton sind zirkular polarisiert σ^{+-}. Die Polarisation des Exzitons ist umgekehrt wie die des Biexzitons, anders als bei einer FFS$\neq$0 ist die Polarisation des Photons jedoch nicht durch die Emissionsenergie vorgegeben: Die Polarisation des X Photons ist nicht definiert, hängt aber von der des XX Photons ab, die beiden Zustände sind quantenmechanisch verschränkt und stellen einen Bell-Zustand dar [Ben00]:

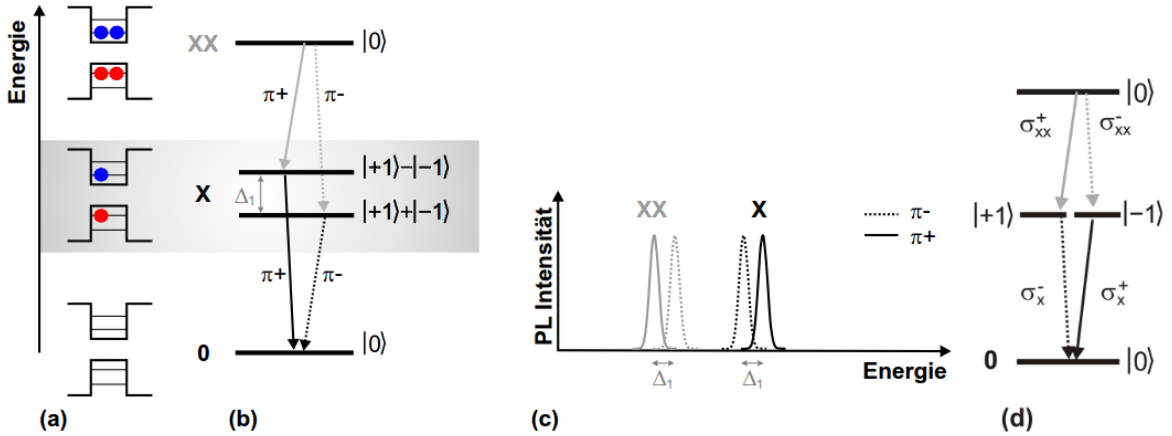


Abbildung 3.4 Obwohl nur der Exzitonen Grundzustand eine Feinstrukturaufspaltung (FSS) zeigt, tritt diese bei der Zerfallskaskade XX→X→0 (a) Besetzungsbild und b) Termschema) im Spektrum (c) gleich zweimal auf, bei den linear polarisierten Emissionslinien von Exziton (X) und Biexziton (XX). Liegt hingegen eine Symmetrie von C_{3v} oder größer vor, ist der Exzitonen-bright-Zustand nicht aufgespalten, bei der Zerfallskaskade wird zirkular polarisiertes Licht emittiert, dessen Polarisation nichts darüber aussagt, ob es von X oder XX stammt und daher verschränkte Photonen ermöglicht. Abbildung aus [War09a] angepasst.

$$\Psi = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\sigma^+_{XX}\rangle|\sigma^-_X\rangle) + (|\sigma^-_{XX}\rangle|\sigma^+_X\rangle) \tag{3.12}$$

Diese Art der Erzeugung verschränkter Photonen aus einzelnen selbstorganisierten QDs wurde 2006 unabhängig von den Gruppen von D. Gershoni [Ako06] und A. Shields [Ste06] demonstriert und wurde intensiv diskutiert [Lin06, Gil07, Ste07]. Einige Jahre später wurden verschränkte Photonen aus elektrisch gepumpten QDs demonstriert [Sal10]. Verschränkte Photonen können sowohl für bestimmte Protokolle der Quantenkryptographie als auch für einen Quantenrepeater genutzt werden [Gis02]. Ein anderer Ansatz zur Erzeugung verschränkter Photonen ist die Erzeugung von Exzitonen und Biexzitonen bei derselben Energie mit einer polarisationsabhängigen zeitlichen Unordnung zur Eliminierung der Welcher-Weg-Information [Avr08, Rei08, Tro08]. Die Emissionsenergie von Exziton und Biexziton ist eine Funktion der QD Größe [Rod05,Sch07b,Sch09a], zudem kann sie durch extern erzeugte Verspannung und elektrische Felder beeinflusst werden [Din10,Ras12,Tro12a, Tro12b] wodurch erfolgreich verschränkte Photonen erzeugt wurden [Tro14].

3.2 Gitterschwingungen und Streuprozesse

3.2.1 Phononen

Gitterschwingungen in einem Kristall werden quantenmechanisch mit Hilfe der Quasiteilchen Phononen beschrieben. Diese besitzen quantisierte Energien und werden nach ihrer Schwingungsrichtung in unterschiedliche Typen unterschieden: Schallwellen, die sich als gleichphasige Schwingungsbewegung aller Atome einer Einheitszelle durch das Kristallgitter bewegen, werden als akus-

tische Phononen bezeichnet. Bei mehreren Atomen je Einheitszelle kann es auch zu gegenphasigen Schwingungen kommen, die man als optische Phononen bezeichnet, da ihre Schwingungsfrequenzen meist im Bereich des infraroten Lichts liegen. Zusätzlich wird noch zwischen longitudinal und transversal schwingenden Phononen unterschieden: In einem dreidimensionalen Kristall mit N Atomen in der Einheitszelle gibt es für jeden durch die Kristallsymmetrie zulässigen Wellenvektor 3N mögliche Schwingungsmoden, nämlich 3 akustische (eine longitudinal und zwei transversal) und (3N-3) optische. In polaren oder ionischen Kristallen wie Indiumarsenid (InAs) oder Galliumarsenid (GaAs) tritt ein elektrisches Dipolfeld auf, welches eine Wechselwirkung der optischen Phononen mit Photonen ermöglicht. Der Einfluss dieses Dipolfeldes vor allem durch longitudinal-optische (LO) Phononen auf Elektronen und damit auch auf Exzitonen wird durch die Fröhlich-Wechselwirkung beschrieben [Car82]. Die Stärke der Kopplung von Exzitonen mit LO-Phononen wird durch den Huang-Rhys-Faktor S beschrieben [Hua50], der die Wahrscheinlichkeit angibt, dass während eines Elektronenüberganges ein optisches Phonon zusätzlich emittiert beziehungsweise absorbiert wird.

3.2.2 Streuprozesse

Es gibt verschiedene Streuprozesse zwischen Photonen und Phononen: Bei der elastischen Rayleigh-Streuung verliert ein gestreutes Photon keine Energie. Der Streuprozess ist kohärent, es sind keine Phononen beteiligt. Die Raman-Streuung hingegen ist eine inelastische Streuung von Licht. Dabei regt ein Photon im Festkörper oder auch im QD ein Exziton an, meist in einen virtuellen Zustand, wobei zusätzlich noch Energie in Form von optischen Phononen an das Kristallgitter abgegeben (Stokes-Prozess) beziehungsweise davon aufgenommen wird (Anti-Stokes-Prozess). Bei Raman-Streuung an QDs ist der Wirkungsquerschnitt und damit auch das Raman-Signal in PL-Spektren aufgrund der geringen aktiven Materialdichte meist sehr gering. Die Streuung an akustischen Phononen wird als Brillouin-Streuung bezeichnet.
Einen deutlich erhöhten Raman-Wirkungsquerschnitt erhält man, wenn reale Zustände am Streuprozess beteiligt sind, also ein Exziton in einen realen Eigenzustand angeregt oder in einen gestreut wird. Dies wird als resonante Raman-Streuung bezeichnet und ist nach wie vor ein kohärenter Prozess. Gleichzeitig kann es auch zu Phononen-assistierter Lumineszenz kommen, was jedoch ein inkohärenter Prozess ist. Beide Prozesse können durch zeitaufgelöste Messungen unterschieden werden, wie es etwa in [Wer12] beschrieben ist. Wenn die Energie des anregenden Photons der eines tatsächlichen, exzitonischen Überganges entspricht, bezeichnet man dies als eingehende Resonanz. Ausgehende Resonanz hingegen tritt auf, wenn das gestreute Licht der Energie eines exzitonischen Übergangs entspricht.
Ein weiterer phononischer Prozess ist die Relaxation über einen exzitonischen Zustand unter Aufnahme- oder Abgabe eines Phonons, was sich im PL-Spektrum als sogenannte Phononenseitenbande darstellt, eine Linie, die um eine oder mehrere Phononenenergien zur exzitonischen Lumineszenz verschoben ist. Eine ausführliche Darstellungen von Phononen-Streuprozessen finden sich etwa in [Wer12] oder in [Yu10], genauere Details finden sich in [Car75, Car82].

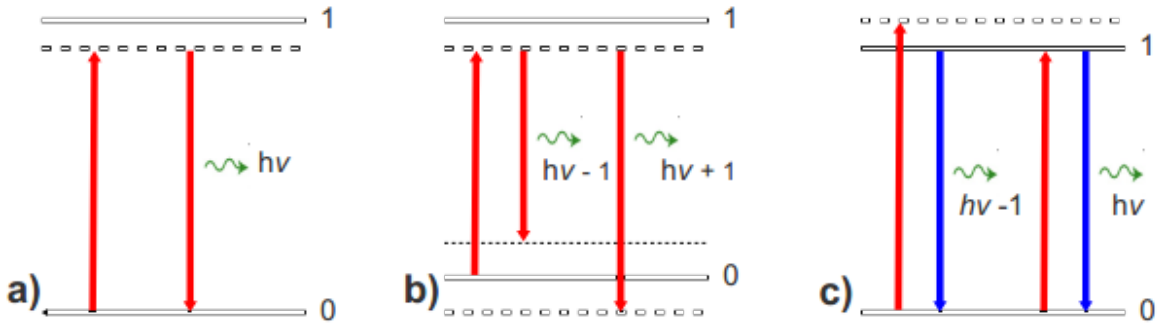


Abbildung 3.5 Schematische Darstellung unterschiedlicher Streuprozesse: a) Bei der elastischen Rayleigh-Streuung über ein virtuelles Energieniveau ist die Energie von einfallendem und ausfallendem Photon gleich. b) Bei der inelastischen Raman-Streuung unter Beteiligung eines virtuellen Energieniveaus kommt es zur Emission bzw. Absorption von Phononen (Stokes- und Anti-Stokes-Prozess). c) Die Phononen-assistierte Lumineszenz ist ein inkohärenter Prozess, der auf deutlich längeren Zeitskalen stattfindet als die Streuprozesse. Hierbei sind reale Zustände beteiligt, es gibt ausgehende (links) und eingehende (rechts) Resonanzen. Abbildung aus [Wer12]

4 Untersuchungsmethoden

4.1 Überblick über die Untersuchungsmethoden

Die Physik einzelner QDs wird in dieser Arbeit vor allem anhand ihrer Photolumineszenz untersucht. Dabei werden die folgenden Messmethoden eingesetzt:

- Mikrophotolumineszenzspektroskopie zur Untersuchung strahlender Rekombination der QDs
- Mikrophotolumineszenzanregungsspektroskopie zur Untersuchung der Anregungskanäle dieser Lumineszenzlinien
- Resonante Ramanspektroskopie zur Untersuchung der Kopplung zwischen Lumineszenz und Phononenmoden
- Autokorrelationsmessungen zum Nachweis von Einzelphotonenemission, die damit auch von einem einzelnen QD stammt
- Kreuzkorrelationsmessungen zum Nachweis von Kaskadenprozessen und davon, dass zwei Lumineszenzlinien vom gleichen Zustand desselben QDs stammen
- Zeitaufgelöste Mikrophotolumineszenzspektroskopie zur Untersuchung der Dynamik der Anregungs- und Zerfallsprozesse, zur Identifikation von Energietransferprozessen zwischen verschiedenen Zuständen und zur Unterscheidung von kohärenter Raman-Streuung und inkohärenter Fluoreszenz
- Temperaturabhängige Mikrophotolumineszenzspektroskopie zur Untersuchung von Dephasierungsprozessen und Phononenkopplung

4.1.1 Grundlagen der Photolumineszenz-Spektroskopie (PL)

Bei der Photolumineszenz-Spektroskopie (PL) wird eine Probe mit Licht einer festen Wellenlänge bzw. Energie bestrahlt, meist oberhalb der Bandkante. Dadurch werden in der Probe Ladungsträger generiert, die in ein Energienivau der Probe relaxieren und anschließend strahlend rekombinieren können. Das Emissionsspektrum wird gemessen und gibt Auskunft über die Energieniveaus der Probe. Im Falle einer Quantenpunktprobe findet die strahlungslose Relaxation schnell im Vergleich zur spontanen, strahlenden Rekombination statt. Daher relaxieren bei geringen Anregungsleistungen die Ladungsträger zunächst ins Grundniveau und kombinieren dann strahlend, dies ist die Grundzustandslumineszenz des QDs. Bei Anregung mit höherer Intensität können schneller Ladungsträger

erzeugt werden, als dass diese rekombinieren, in diesem Fall werden die Energieniveaus des QDs von unten nach oben aufgefüllt und es kann zu strahlender Rekombination aus angeregten Zuständen kommen [Hei00b].
Die Mikrophotolumineszenz-Spektroskopie (μPL) verwendet einen Mikroskopaufbau, um den Anregungs- und Detektionsspot auf Mikrometer-Größe zu reduzieren und so z.B. einzelne QDs untersuchen zu können. Eine verständliche Erklärung der μPL mit direktem Bezug zum verwendeten Versuchsaufbau findet sich in [Sto10], weitergehende Details beispielsweise in [Yu10].

4.1.2 Photolumineszenz-Anregungsspektroskopie (PLE)

Bei der Photolumineszenz-Anregungsspektroskopie (PLE) wird die die Detektionsenergie festgelegt, etwa auf die Grundzustandslumineszenz, und ein Spektrum über die variierte Anregungsenergie aufgenommen. Wenn die Energie des eingestrahlten Photons der Energiedifferenz zwischen einem besetzten Eingangs- und einem unbesetzten Zielzustand entspricht, so kann dieses Photon absorbiert werden und ein Exziton generiert werden. Dieses relaxiert in den Grundzustand und kann strahlend rekombinieren, was zu einem Peak im PLE-Spektrum führt. Auf diese Weise kann gemessen werden, bei welchen Energien die Probe absorbiert, woraus man auf die Lage der angeregten Zustände schließen kann. Wenn auf der Detektionsenergie bestimmter exzitonischer Komplexe gemessen wird, kann die Anregungsenergie dieser Komplexe bestimmt werden. Mit einem Flächen- oder Zeilendetektor (z.B. einer CCD) anstelle eines Punktdetektors können die PLE-Spektren verschiedener Lumineszenzlinien simultan gemessen werden. Weitere Erläuterungen zur Durchführung und Auswertung der μPLE-Messungen mit direktem Bezug zum verwendeten Versuchsaufbau findet sich in [Sie08, War09a], weitergehende Details beispielsweise in [Yu10].

4.1.3 Zeitaufgelöste Photolumineszenz-Spektroskopie (tr-PL)

Der dreistufige Prozess bei der Photolumineszenz aus Absorption, Relaxation und Rekombination findet auf sehr unterschiedlichen Zeitskalen statt. Üblicherweise sind Absorption und Relaxation sehr schnell im Vergleich zur Rekombination, die bei QDs üblicherweise zwischen wenigen 100 und einigen 1000 ps dauert. Diese Zeitkomponenten können in der zeitaufgelösten Photolumineszenz-Spektroskopie (time resolved, daher tr-PL) untersucht werden. Hierfür wird üblicherweise mit einer gepulsten Lichtquelle, z.B. einem modengekoppelten Laser, angeregt und mit schnellen Detektoren gemessen. Den Verlauf der Signalintensität über der Abklingzeit bezeichnet man als Transiente. Um diese zu messen wird eine Einzelphotonen-Zählkette (time-correlated single-photon-counting, TCSPC) verwendet, bei dem einzelne Photonen in Abhängigkeit von ihrem zeitlichen Auftreffen auf dem Detektor gemessen werden, wobei man als zeitliche Referenz den Anregungslaserpuls nutzt. Da die Anregung periodisch mit einer hohen Repetitionsfrequenz stattfindet (bei dem verwendeten Lasersystem 80 MHz), kann durch Akkumulation über viele Ereignisse der zeitliche Verlauf der Lumineszenzintensität dargestellt werden. Eine gut verständliche Beschreibung der dieser Messmethode zugrunde liegenden Physik findet sich beispielsweise in [Feu07], technische Details zum TCSPC in [Bec12] und Details über die zur Auswertung verwendete Software FluoFit in [Pic06].

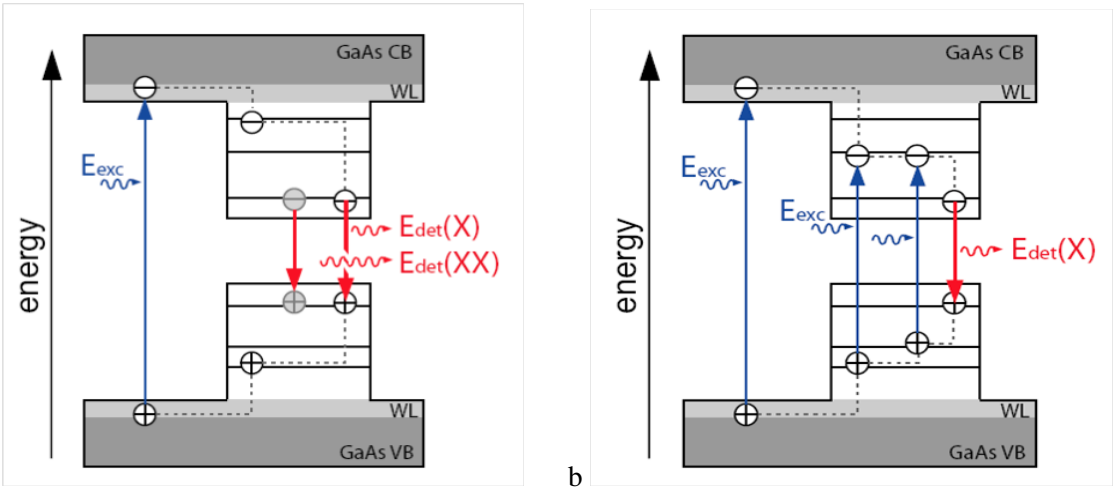


Abbildung 4.1 Schematische Darstellung der Funktionsweise von PL und PLE: a) In der Photolumineszenzspektroskopie (PL) wird mit einer bestimmen Anregungsenergie E_{exc} angeregt und die PL-Intensität über die Detektionsenergie E_{det} als PL-Spektrum aufgetragen. Auf diese Weise werden strahlende Rekombinationen gemessen. b) In der Photolumineszenz-Anregungsspektroskopie (PLE) wird die PL-Intensität an einer bestimmten Detektionsenergie E_{det} gemessen, während die Anregungsenergie E_{exc} variiert wird. Auf diese Weise werden Anregungskanäle gemessen. Abbildung aus [Sie08].

4.1.4 Raman-Spektroskopie und TERS

In der Raman-Spektroskopie werden materialabhängige Schwingungsmoden (Phononenmoden) gemessen, indem mit einem Laser eingestrahlt wird und das inelastisch gestreute Licht detektiert wird, also die Stokes- oder Anti-Stokes-Moden. Um eine höhere Ortsauflösung zu erhalten, kann ein Mikroskopaufbau verwendet werden, was dann als Mikro-Raman bezeichnet wird. Eine verständliche Einführung zur Raman-Spektroskopie finden sich beispielsweise in [Iba09], genauere Details in [Yu10].

Um eine höhere Ortsauflösung zu erhalten, als durch das Abbe-Limit für optische Mikroskopie gegeben ist, kann die Ramanspektroskopie mit der Rastersondenmikroskopie kombiniert werden. Dazu wird eine Probe mittels Rasterkraftmikroskopie (Atomic Force Microscopy, AFM) oder Rastertunnelmikroskopie (Scanning Tunneling Microscopy, STM) abgerastert, während durch ein Mikroskopobjektiv ein Laser auf die Sondenspitze gestrahlt wird. Durch das Abrastern der Probe und gleichzeitige Messung der Oberflächenkräfte (AFM) bzw. des Tunnelstroms (STM) erhält man topografische Informationen über die Probenoberfläche mit sub-Nanometer Auflösung. Durch die Laser-Bestrahlung der Metallatome der Sondenspitze bilden sich lokale Plasmonen, die an der Probenoberfläche zu einer starken Erhöhung der Raman-Streuung führen. Diese spezielle Form der Oberflächen-sensitiven Raman-Spektroskopie (Surface enhanced Raman-Spectroscopie, SERS) wird als Tip-enhanced-Raman-Spectroscopie (TERS) bezeichnet, eine genauere Beschreibung findet sich beispielsweise in [Pol13, Rep13].

4.1.5 Temperaturabhänginge Photolumineszenzspektroskopie

Für die Untersuchung der Lumineszenz einzelner InGaAs QDs sind tiefe Temperaturen notwendig. Daher wird in allen Messungen die Probe in einem Durchflusskryostat mit flüssigem Helium gekühlt. Über die Regulierung des Heliumsflusses und eine zusätzliche elektrische Heizung ist mittels eines Temperatur-Controllers die genaue Ansteuerung von Temperaturen von ca. 4 bis 400 K möglich. Da oberhalb von etwa 30 K die Intensität der Einzel-QD-Lumineszenz stark nachlässt und sich die Linien in den gemessenen Spektren deutlich verbreitern, liegen keine verwertbaren Messungen oberhalb dieser Temperatur vor.
Eine Schwierigkeit bei temperaturabhängigen Messungen stellt die starke Drift der Probe im Versuchsaufbau dar, welche es kaum zulässt, längere Temperaturserien zu messen, ohne manuell den Fokus auf den untersuchten QD nachzujustieren.

4.2 Verwendete Versuchsaufbauten

Die optischen Messungen werden an zwei verschiedenen Versuchsaufbauten durchgeführt: Am sogenannten μPLE-Messplatz kann hochaufgelöste Mikrophotolumineszenz-(Anregungs-)Spektroskopie (μPLE(E)) an einzelnen Quantenpunkten durchgeführt werden mit Anregung durch Dauerstrich-Laser (cw-Laser) und Detektion mittels eines Dreifach-Spektrometers. Die zeitaufgelösten μPL-Messungen werden am tr-μPL-Messplatz durchgeführt, wo die Anregung mittels eines gepulsten Lasers erfolgt und die Detektion über ein Einfach-Spektrometer mit zeitaufgelösten Detektoren möglich ist. Da die beiden Messplätze speziell für diese Messungen aufgebaut oder zumindest angepasst wurden, werden sie im Folgenden werden näher beschrieben:

4.2.1 μ-PLE-Messplatz

Der μPLE-Messplatz ist auf zwei schwingungsgedämpften optischen Tischen montiert, auf einem Tisch befinden sich das Anregungs-Lasersystem, auf dem anderen ein konfokales Laser-Scanning-Mikroskop (LSM) zur Untersuchung der Probe in einem Mikrokryostaten sowie das Spektrometer zur Detektion der Lumineszenz. Eine ausführliche Beschreibung dieses Messaufbaus findet sich in den Dissertationen von Till Warming und Erik Stock [War09a, Sto10], der dort beschriebene Aufbau wurde von mir weitergenutzt und teilweise angepasst und weiterentwickelt.

4.2.1.1 Anregungs-Lasersystem

Als durchstimmbare Anregungslichtquelle dient ein von einem frequenzverdoppelten Nd^{3+}:YVO_4-Laser gepumptes Titan:Saphir-Lasersystem (Ti:Sa). Der diodengepumpte Pumplaser *Spectra-Physics Millennia X* hat eine Ausgangsleistung von 10 W bei 532 nm. Der *Spectra-Physics Tsunami* Ti:Sa ist mit dem verwendeten Spiegelsatz von etwa 830-1020 nm durchstimmbar und hat eine Ausgangsleistung von bis zu 1,8 W, die jedoch zum Infraroten hin auf etwa 300 mW abfällt wie in der Bedienungsanleitung des Ti:Sa beschrieben. Die Wellenlänge des Ti:Sa wird über den Messrechner mit

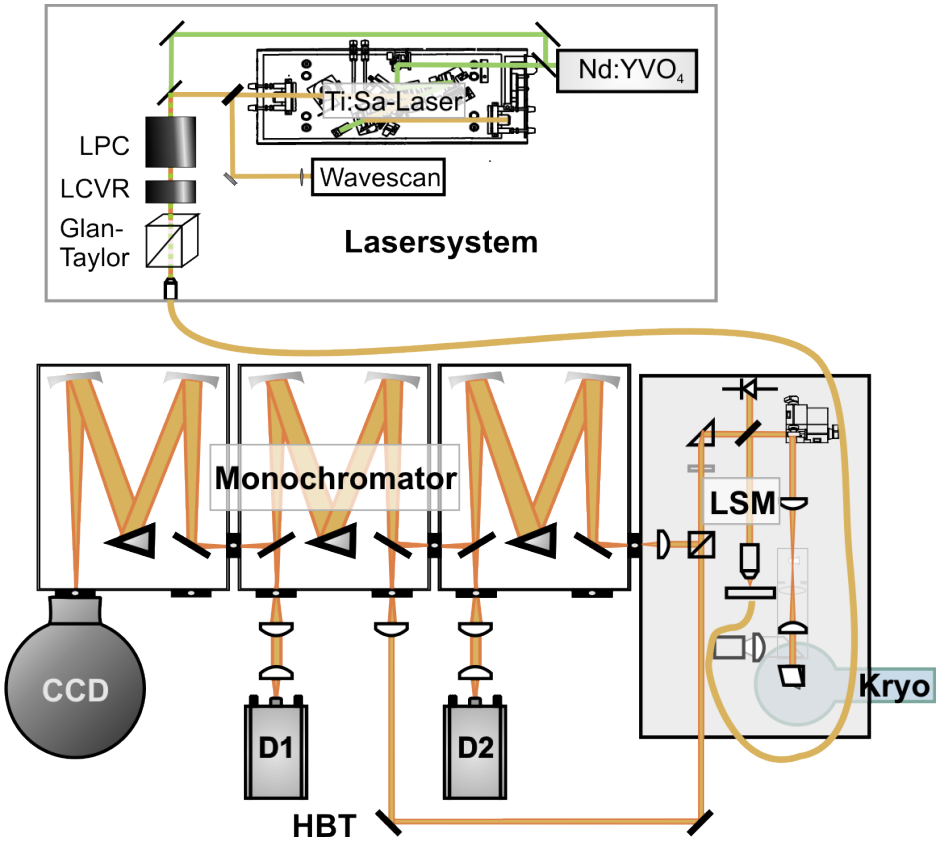


Abbildung 4.2 μPLE-Messplatz bestehend aus Anregungs-Lasersystem und Detektionsteil mit Laser-Scanning-Mikroskop (LSM), Kryostat, Spektrometer und Hanbury-Brown-Twiss-Interferometer (HBT) (Abbildung angelehnt an [Sto10])

einem motorgesteuerten Lyotfilter eingestellt. Ein kleiner Teil des Ausgangslichts wird mittels eines Glasplättchens ausgekoppelt und in ein einfaches Rotationsgitter-Spektrometer (*APE Wavescan*) eingekoppelt um die Laserwellenlänge zu bestimmen und an den Messrechner zu übermitteln. Da die Auflösung dieses Spektrometers mit 0,1 nm/Pixel nicht fein genug für hochaufgelöste PLE-Messungen ist, werden zusätzlich zur damit gemessenen Wellenlänge die Schritte des Schrittmotors (*PI M-230.25*) bei der Verstellung des Lyotfilters aufgezeichnet. Da der Zusammenhang zwischen Drehwinkel des Lyotfilters und der Wellenlänge linear ist, es allerdings durch die Mechanik zwischen Stellschraube und Lyotfilter zu einer Abweichung von der linearen Funktion kommen kann, wird die tatsächliche Anregungs-Wellenlänge über einen polynomischen Fit über alle Werte ermittelt.
Die Intensität des Lasers kann nicht nur über reflektierende neutrale Dichte Filter (OD Filter) reduziert werden, sondern auch durch einen Flüssigkristall (Liquid Crystal Variabel Retarder, LCVR) mit dahinter befestigten Glan-Taylor Polarisationsprisma geregelt werden. Der Flüssigkristall dient als variables Verzögerungsplättchen unter 45° und bewirkt je nach angelegter Spannung eine Verzögerung zwischen 0 und $\lambda/2$ und damit eine Drehung der Polarisation des Laserlichts. Das Polarisationsprisma lässt nur den in eine Richtung linear polarisierten Anteil durch, beides zusammen ergibt somit einen variablen Abschwächer. Dieser arbeitet absorptionsfrei und ist damit auch für die

hier verwendeten hohen Laserleistungen geeignet und erlaubt eine Regelung der Laserintensität um 6 Größenordnungen bei kurzen Schaltzeiten von etwa 40 ms. Dieses System wird zur Einstellung der Laserintensität bei allen PL und PLE Messungen verwendet, vor allem jedoch zur automatischen Durchstimmung der Laserintensität bei intensitätsabhängigen Messungen, den sogenannten *Laserpowerscans*.
Ein ähnliches System wird auch in dem noch vor dem LCVR verbauten *BEOC Laser Power Controller* (LPC) verwendet, der zusätzlich noch eine kalibrierte Photodiode zur Messung der Laserintensität und eine Regelelektronik enthält, um die Laserintensität auf eine bestimmte einstellbare Leistung zu stabilisieren. Dies beugt eventuellen temperaturbedingten Schwankungen der Laserintensität bei längeren Messungen vor und sichert insbesondere bei der Durchstimmung der Wellenlänge für PLE Messungen eine konstante Anregungsleistung.
Abschließend wird das Anregungslicht mittels eines *Zeiss CP-Achromat* 10x/0,25 Mikroskopobjektivs in eine single mode Glasfaser eingekoppelt und so auf den anderen optischen Tisch zum LSM geführt. Dies ermöglicht eine vom Anregungslaser unabhängige Justage des LSM bei immer gleich bleibenden Intensitätsprofil und ermöglicht auch die Einkopplung anderer Anregungslaser, etwa des 532 nm Nd^{3+}:YVO_4-Pumplasers oder eines 633 nm HeNe-Lasers. Jedoch begrenzt die Einkopplung in die single mode Faser die maximale Anregungsintensität auf unter 200 mW, da höhere Leistungen die Faser beschädigen könnten und je nach Justage der Einkopplung höchstens 20-50% des auf die Faser fallenden Lichts transmittiert werden.

4.2.1.2 Laser-Scanning-Mikroskop

Auf dem zweiten optischen Tisch befndet sich der Detektionsteil des Versuchsaufbaus bestehend aus Laser-Scanning-Mikroskop (LSM), Kryostat und Spektrometer. Im LSM wird das aus der Glasfaser ausgekoppelte Licht über einen Spiegelscanner durch ein Linsensysten auf ein Mikroskopobjektiv gelenkt und damit auf die Probe im Kryostaten fokussiert. Das Probenlicht wird mit demselben Objektiv eingesammelt und kollimiert und über mehrere Strahlteiler, Spiegel und Linsen ins Spektromter geleitet, wo es spektral zerlegt und mittels einer CCD oder mit APDs detektiert wird.
Das Licht des Anregungslasers aus der single mode Glasfaser wird durch ein gleichartiges Mikroskopobjektiv wie zur Einkopplung kollimiert und über einen Strahlteiler auf eine Si-Photodiode und auf den Spiegelscanner geleitet. Als Strahlteiler können je nach Anregungs- und Detektionswellenlänge ein dichroitischer Spiegel (bei Überbandanregung), ein 95:5 Strahlteiler (bei resonanter Anregung) oder ein 50:50 Strahlteiler (z.B. für Hochanregung) verwendet werden. Die Photodiode dient der Protokollierung der Anregungsintensität während der Messungen, insbesondere für die Intensitätsachse bei intensitätsabhängigen Messungen. Allerdings ist diese Photodiode nicht kallibriert und das genaue Teilungsverhältnis des Strahlteilers ist von der Polarisation des Lichts aus der Glasfaser abhängig, so dass hiermit keine quantitative Aussage über die Anregungsleistung getroffen werden kann. Eine quantitative Einordnung der Anregungsleistung erfolgt durch Kallibrationsmessungen mit einem Laser-Powermeter direkt vor dem Kryostaten.
Das LSM besteht aus dem Spiegelscanner, zwei Linsen und dem Mikroskopobjektiv, die so ange-

ordnet sind, dass der Spiegelscanner und das Mikroskopobjektiv in den äußeren Brennpunkten der Linsen stehen und deren innere Brennpunkte zusammenfallen. Das Anregungslicht verläuft als Parallelstrahl entlang der optischen Achse des Systemes und fällt auf den Spiegelscanner, wo es gemäß der Auslenkung der Spiegel abgelenkt wird. Da der Spiegelscanner im Brennpunkt der ersten Linse steht, verläuft nach dieser der Anregungsstrahl wieder parallel zur optischen Achse und wird in der Brennebene der Linsen fokussiert. Die zweite Linse parallelisiert den Anregungsstrahl wieder und lenkt ihn über ein Reflexionsprisma auf das Zentrum des Mikroskopobjektivs. Der Eintrittswinkel auf dem Objektiv bestimmt die Position auf der Probenoberfläche, wo der Anregungsstrahl fokussiert wird. Über die Ablenkung des Laserscanners wird also die untersuchte Position auf der Probe bestimmt. Das verwendete Mikroskopobjektiv (*Olympus LMPlan IR 100x/0.8*) besitzt eine große numerische Apertur (NA=0,8) und erlaubt trotzdem einen Arbeitsabstand von 3.4mm, der groß genug ist, um durch das Deckglas des Kryostaten hindurch auf die Probenoberfläche zu fokussieren. In den Strahlengang kann ein Pellicle-Strahlteiler eingebracht werden, um die Probenoberfläche mit einer Kamera zu beobachten und die Position des Laserspots auf der Probe zu kontrollieren. Dieser besteht aus einer wenige μm dünnen gespannten Nitrozellulose-Membran, die für ein 45:55 (R:T) Teilungsverhältnis dielektrisch beschichtet ist und zu keinem Strahlversatz beim Einfügen in den Strahlengang führt. Zur groben Positionierung der Probe kann zusätzlich eine LED-Weißlichtquelle in den Strahlengang eingebracht werden, welche nahezu den ganzen in der Kamera beobachteten Bildausschnitt auf der Probe beleuchtet. Für die grobe Positionierung ist der Kryostat auf Mikrometer-Stelltischen montiert, die eine manuelle Verschiebung von mehreren cm in jede Richtung mit bis zu 10 μm Präzision erlauben. Die Höhe des Mikroskopobjektivs über dem Kryostaten wird durch einen über den Computer gesteuerten feinen Schrittmotor (*PI M-230.25*) verstellt. Das Probenlicht wird vom Mikroskopobjektiv kollimiert und geht denselben Weg über das LSM zurück. Nach dem Strahlteiler wird es über ein weiteres Reflexionsprisma und einen Spiegel durch eine Linse in das Spektrometer eingekoppelt. Für polarisationsabhängige Messungen können zwischen Reflexionsprisma und Spiegel Polarisationsoptiken eingebaut werden. Diese bestehen aus einen Linear-Polarisator, der auf die maximale Durchlässigkeit des Monochromators eingestellt wird, und einem $\lambda/2$-Plättchen, das rotiert wird um die gemessene Polarisationsrichtung zu bestimmen. Auf diese Weise beeinflusst die Transmissions-Charakteristik des Monochromators nicht die polarisationsabhängigen Messungen. Bei Korrelationsmessungen können die ersten beiden Stufen des Spektrometers als getrennte Einfach-Monochromatoren verwendet werden, in diesem Fall wird der Spiegel vor dem Spektrometer-Eingang durch einen 50:50 Strahlteiler ersetzt und ein Teil des Lichts über zwei weitere Spiegel und eine Linse in den Seiteneingang des zweiten Monochromators eingekoppelt.

4.2.1.3 Kryostat

Der verwendete Mikrokryostat ist ein *Janis Research Kryostat Model ST 500*, ein Durchflusskryostat mit einem Kaltfinger, der bei Kühlung mit flüssigem Helium Temperaturen bis zu 4 K erreichen kann. Somit erreicht er niedrigere Temperaturen als der zuvor verwendete *Oxford Instruments* Kaltfingerkryostat und bietet dabei durch eine andere Geometrie des Kaltfingers eine höhere räumliche

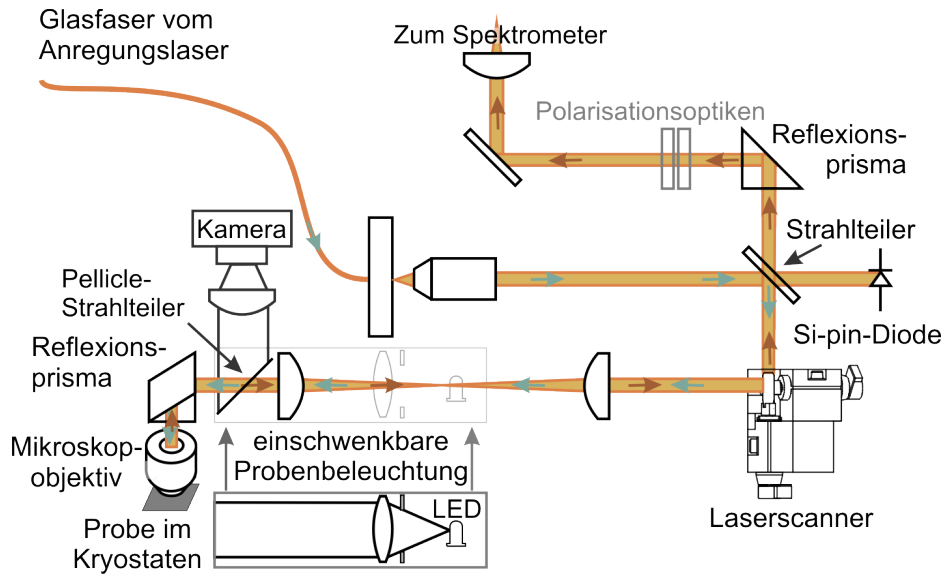


Abbildung 4.3 Aufbau des Laser-Scanning-Mikroskop (Abbildung angelehnt an [Sto10])

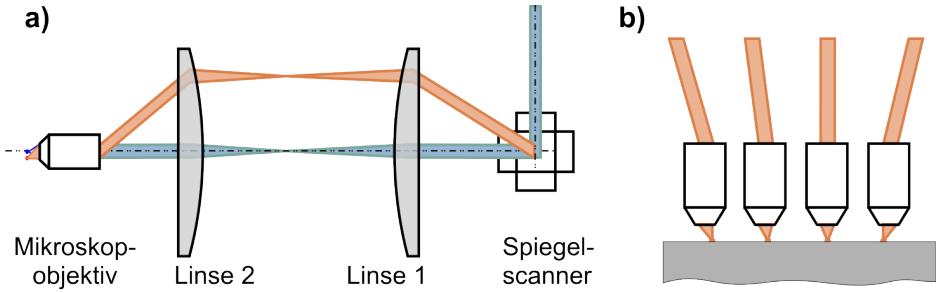


Abbildung 4.4 Funktionsprinzip des Laser-Scanning-Mikroskop: Das Anregungslicht verläuft als Parallelstrahl entlang der optischen Achse des Systemes und wird vom Spiegelscanner gemäß der Auslenkung der Spiegel abgelenkt. Da der Spiegelscanner im Brennpunkt der ersten Linse steht, verläuft nach dieser der Anregungsstrahl wieder parallel zur optischen Achse und wird in der Brennebene der Linsen fokussiert. Die zweite Linse parallelisiert den Anregungsstrahl wieder und lenkt ihn über ein Reflexionsprisma auf das Zentrum des Mikroskopobjektivs. Der Eintrittswinkel auf dem Objektiv bestimmt die Position auf der Probenoberfläche, wo der Anregungsstrahl fokussiert wird. Über die Ablenkung des Laserscanners wird also die untersuchte Position auf der Probe bestimmt. (Abbildung angelehnt an [Sto10])

Stabilität des untersuchten Bereiches. Die Probentemperatur wird zunächst über Nadelventile an Heber und Pumpe eingestellt und anschließend mittels PID Regelung über eine Heizung mithilfe des *Lakeshore 335* Temperaturkontrollers stabilisiert und geregelt. Um eine gute Temperaturstabilität zu erreichen, sollte ein möglichst laminarer Fluß des Heliums vom Dewar über den Heber in den Kryostaten eingestellt werden, wofür sich ein Druck von etwa 500 mbar im Kühlkreislauf bei eingestellter Temperatur bewährt hat. Die Probe wird mit Hilfe von Leitsilber auf den Kaltfinger geklebt, wobei ein passgenauer Kupferblock als Abstandhalter dient, um die Probe möglichst nahe unter dem Kryostatfenster zu montieren, damit sie sich noch innerhalb des Arbeitsabstands des Mikroskopobjektivs befindet.

4.2.1.4 Spektrometer

Das Spektrometer besteht aus einem Dreifach-Ramanspektrometer (S&I TriVista TR-555) mit einer Fokuslänge von 0,5 m pro Stufe. Die Stufen bestehen aus *Acton SP-2500i Czerny-Turner* Gittermonochromatoren und sind separat ansteuerbar, alle Spiegel und die drei möglichen Gitter pro Stufe sind per Computer verstellbar. Dadurch ermöglichst dieses Spektrometer viele mögliche Konfigurationen: Die drei Stufen können additiv mit 600 Strich/mm oder 1200 Strich/mm Gittern für maximale Auflösung betrieben werden, hiermit ist eine nominelle Auflösung von bis zu 12 pm FWHM bei 950 nm möglich, allerdings wird dann nicht mehr die gesamte CCD ausgeleuchtet und das untersuchte spektrale Fenster ist nur noch 6 nm breit. Alternativ können die ersten beiden Stufen subtraktiv mit 600 Strich/mm Gittern als Bandpassfilter zur Streulichtunterdrückung genutzt werden und die Dispersion wird nur mit der letzten Stufe mit 1200 Strich/mm erzielt. Hierbei ist die Auflösung geringer, aber das beoachtetete spektrale Fenster ist etwa 30 nm breit. Außerdem können die ersten beiden Stufen jeweils separat als Einfach-Monochromatoren verwendet werden, um mit Einzelphotonendetektoren an ihren Seitenausgängen Korrelationsmessungen durchzuführen.
Die verwendete CCD (charged couple device) (*Roper Scientific/Princeton Instruments Spec-10 100BR*) ist mit flüssigem Stickstoff gekühlt und für das nahe Infrarot (NIR) optimiert mit einer maximalen Detektionseffizienz von nominell 90% bei 800 nm. Sie besteht aus 100 Linien mit jeweils 1340 Pixels zu je 20 x 20 μm. Normalerweise werden die 100 Linien für ein Spektrum zusammengefasst (binned), zur Erhöhung der Ortsauflösung können jedoch auch weniger als 100 Linien zusammengefasst werden.

4.2.1.5 Hanbury-Brown-Twiss-Interferometer

Für Korrelationsmessungen an diesem Aufbau werden Silizium Avalanche Photodioden (APDs) als Einzelphotonendetektoren (single photon counter, SPC) in einem Hanbury-Brown-Twiss (HBT)-Interferometer verwendet. Dieses besteht aus einem 50:50 Strahlteiler, auf den das Probenlicht fällt, und je einem Einzelphotonendetektor an jedem Ausgang des Strahlteilers. Im einfachsten Aufbau würden sich die SPCs direkt hinter dem Strahlteiler befinden. Hier jedoch befindet sich der Strahlteiler vor dem Eingang des Spektrometers, so dass das Licht hinter dem Strahlteiler jeweils durch einen separaten Monochromator läuft und erst dann von einer Auskoppellinse kollimiert und anschließend mit einem Mikroskopobjektiv auf die APD fokussiert wird. Dies hat den Vorteil, dass nicht nur das Licht einer Spektrallinie in Autokorrelation untersucht werden kann, sondern auch die Korrelation verschiedener Linien zueinander (Kreuzkorrelation). Außerdem verhindert dieser Aufbau den sogenannten cross talk der APDs, bei dem während der Detektion eines Photons in der APD ein weiteres Photon erzeugt wird, was durch den Strahlteiler auf die andere APD reflektiert wird und so zu einem falschen Zählereignis führt.
Die APD-Module vom Typ *SPCM-AQRH-13* von *Perkin-Elmer* sind für das NIR optimiert und besitzen eine Quanteneffizienz von 23% bei 950 nm bei einer Zeitauflösung von 400 ps. Die Dunkelzählrate beträgt 200 counts/s, die maximale Zählrate 5 MHz und die Totzeit 35 ns. Die Signale der APDs werden mit einer *Picoquant PicoHarp 300* Zählelektronik registriert. Diese misst die Ankunftszeit

für Start- und Stop-Signal unabhängig auf einer internen Zeitskala und speichert die detektieren Ereignisse in einem Histogramm mit 65536 Kanälen von je 4 ps Breite, also für ein Zeitfenster von 262 ns Breite. Um negative Zeiten zu messen ist ein elektronisches Verzögerungskabel (delay line) vor den Stop Kanal geschaltet für Verzögerung bis zu 60 ns.
Eine genauere Beschreibung der Grundlagen der Korrelationsmessungen und des verwendeten Aufbaus findet sich in der Dissertation von Erik Stock [Sto10].

4.2.2 tr-μPL-Messplatz

4.2.2.1 Anregungslasersystem

Als Anregungslasersystem für die zeitaufgelösten Messungen dient ebenfalls ein *Spectra Physics Tsunami* Titan:Saphir Laser, der auch von einem *Spectra Physics Millenia X* Laser gepumpt wird. Im Gegensatz zu dem oben erwähnten Lasersystem ist dieser Ti:Sa jedoch modengekoppelt und erzeugt Pikosekunden-Pulse mit einer Pulsdauer von 1 bis 2 ps. Die maximale Ausgangsleistung beträgt 1,6 Watt cw-äquivalent mit Abfall zum Infraroten hin auf etwa 100 mW. Die Energie pro Puls beträgt bei einer Pulsdauer von 1,6 ps mit cw-Äquivalent 1,6 W etwa 20 nJ, die Peak-Power liegt bei etwa 11,74 kW. Die Modenkopplung des Lasers wird mittels eines APE Autokorrelators überwacht, außerdem werden die Laserpulse mit einer *Becker & Hickl* Photodiode aufgezeichnet und mit einem Oszilloskop dargestellt. Hierfür wird ein kleiner Teil des Laserlichts mit einem Glasplättchen als Strahlteiler aus dem Strahlengang ausgekoppelt und mit mehreren Spiegeln sowie einem weiteren Strahlteiler auf den Autokorrelator sowie auf die Photodiode gelenkt. Zur Einstellung der Anregungsleistung dienen mehrere reflektierende Neutraldichtefilter sowie ein reflektierendes Filterrad, welches die kontinuierliche Abschwächung des Laserlichts zulässt. Für leistungsabhängige Messungen mit dem gepulsten Laser kann ebenfalls der in Abschnitt 4.2.1.1 auf Seite 27 beschriebene LCVR mit Polarisations--Prisma eingebaut werden.

4.2.2.2 Detektionsaufbau

Die Probe befindet sich ebenfalls in einem *Janis Research Model ST500* Kryostaten. Die Einkopplung auf den Kryostaten geschieht mittels mehrerer Spiegel sowie eines unbeschichtetem Pellicle-Strahlteilers, der Anregungs- und Detektionslicht voneinander trennt. Das nominelle Teilungsverhältnis dieses Strahlteilers liegt bei 8:92 (R:T), hängt jedoch sehr stark von Wellenlänge und Einfallswinkel des Lichts ab. Das durch den Strahlteiler transmittierte Anregungslicht wird mit einem Laserpowermeter gemessen, um die Anregungsleistung zu bestimmen. In den Strahlengang vor dem Kryostaten können zusätzlich zwei Strahlteiler eingeklappt werden, um eine LED-Weißlichtquelle sowie eine *μEye* Kamera einzukoppeln. Die Ortsauflösung erfolgt in diesem Mikro-PL-Aufbau durch das Rastern des Mikroskopobjektivs auf einem *PI-611.3S NanoCube XYZ* Nanopositioniersystem über der Probe im Kryostaten. Dieses besteht aus einem in drei Richtungen über jeweils 100 μm verfahrbaren Piezo-Scanner mit Dehnungsmessstreifen zur Positionsbestimmung. Der Piezo-Scanner ist über ein *closed-loop*-System stabilisiert und kann über den Messrechner angesteuert werden. Der

NanoCube ist für die Grobverstellung des Fokus (Z-Richtung) zusätzlich auf einem manuellen Mikrometerstelltisch montiert, für die Grobverstellung der XY-Position des Mikroskopobjektivs dient ein auf dem Piezowürfel monierter XY-Mikroverstellhalter. Es wird dasselbe *Olympus LMPlan IR 100x/0.8* Mikroskopobjektiv wie im oben genannten Aufbau verwendet, auch der Kryostat ist das gleiche Modell wie im oben beschriebenen Aufbau.
Das detektierte Licht wird vom Mikroskopobjektiv kollimiert und wird nach dem Strahlteiler und über zwei hochreflektierende dielektrische Breitband-Spiegel zum Spektrometer gelenkt und mittels einer achromatischen Linse auf den Eingangsspalt fokusssiert. Das Spektromter besteht aus einem Monochromator mit 0,3 m Brennweite vom Typ *Acton SP-300i* und einer *Princeton Instruments Spec-10* CCD, sehr ähnlich wie die oben aufgeführte, jedoch zusätzlich mit einer Beschichtung für Messungen im UV-Bereich. Außerdem besteht die Möglichkeit, am Seitenausgang des Monochromators verschiedene Punktdetektoren für zeitaufgelöste Messungen anzubringen.
Zum Schutz vor Streulicht befindet sich der gesamte Detektionsaufbau in einem Gehäuse aus schwarzer Pappe. Vor dem Eingang des Pappgehäuses direkt vor dem Monochromator kann ein dielektrischer Kantenfilter eingesetzt werden, etwa ein RG 900, der Licht mit einer kürzeren Wellenlängen als 900 nm um den Faktor 10^6 abschwächt.

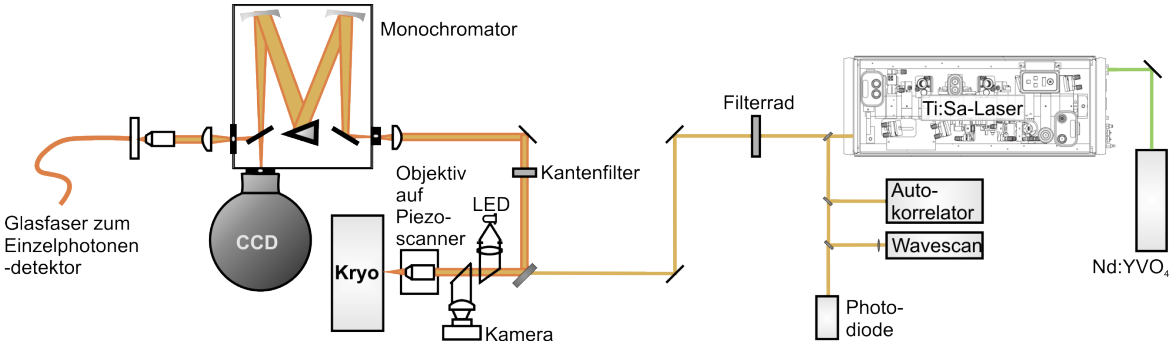


Abbildung 4.5 tr-μPL-Messplatz bestehend aus Anregungs-Lasersystem und Detektionsteil mit Kryostat, Spektrometer und Einzelphotonendetektoren für zeitaufgelöste Messungen

4.2.2.3 Zeitaufgelöste Detektion

Für zeitaufgelöste Messungen stehen verschiedene Detektoren zur Verfügung: Die oben verwendeten APDs von *Perkin-Elmer* könnten verwendet werden, jedoch ist die Zeitauflösung für diese Messungen nicht gut genug und die hohe Dunkelzählrate verhindert lange Integrationszeiten. Daher verwenden wir andere APD-basierte SPC-Module von *PicoQuant*, die über eine 50 μm Multimode Glasfaser angeschlossen werden: Die τ-SPAD 50 hat nur 24 counts/s Dunkelzählrate und eine Zeitauflösung von 324 ps und eine Quanteneffizienz von 41 % bei 890 nm (etwa 25 % bei 950 nm, zusätzlich Verluste durch die Glaserfaserkopplung. Eine Lasertransiente des Pikosekundenlasers gemessen mit dieser APD zeigt eine Abklingzeit von 160 ps. Die Einkopplung in die Multimodefaser erfolgt mit einem *Spindler & Hoyer* Mikroskopobjektiv x20/0,35. Eine noch bessere Zeitauflösung ist mit supraleitenden Einzelphotonendetektoren möglich (superconducting single photon detectors,

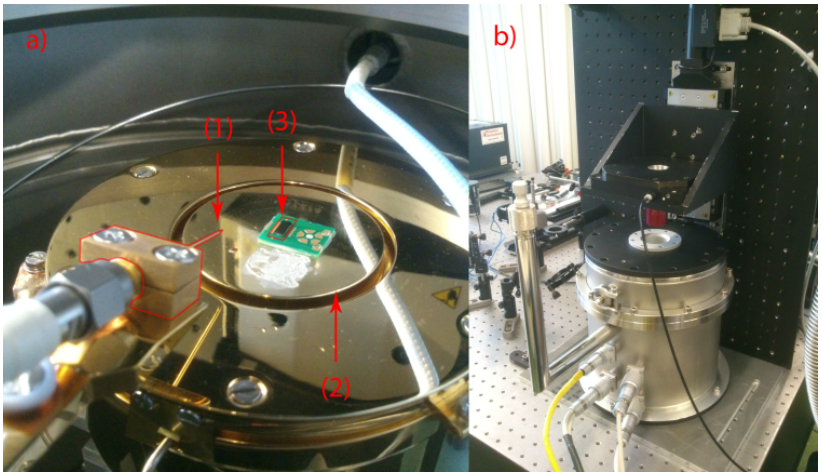
SSPDs), die jedoch etwas komplizierter zu bedienen sind, da sie mit flüssigem Helium bei Unterdruck auf etwa 2 K gekühlt werden müssen und die Einkopplung über eine Single Mode Glasfaser erfolgt. Dafür haben die SSPDs eine noch geringere Dunkelzählrate von kleiner 1 count/s und eine Zeitauflösung von etwa 45 ps FWHM. Eine genauere Beschreibung der verwendeten SSPDs der Firma *Scontel* findet sich in [Sto10]. Als Zählelektronik wird eine *Becker & Hickl Messkarte SPC-150* genutzt für time correlated single photon counting (TCSPC).

4.2.3 Kontakt-Nadel-Setup

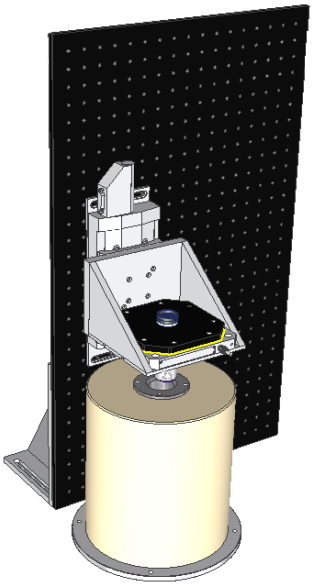
Da der buried-stressor approach eine relativ zuverlässige Positionierung von QDs für die Herstellung von SPSs mit einer Skalierung auf Chipgröße ermöglicht, ist es notwendig, die erzeugten Diodenstrukturen vorzucharakterisieren, um die funktionierenden SPSs für eine weitere Prozessierung zu selektieren. Hierfür wurde ein Elektrolumineszenz-Setup mit einem Kontakt-Nadel-Kryostaten aufgebaut. Dieser erlaubt es, den Chip mit den Diodenstrukturen innerhalb des Kryostaten um 25 mm in jede Richtung zu verfahren und einzelne Strukturen mit einer Nadel elektrisch zu kontaktieren: Entweder mit einem einzelnen Kontakt durch die Nadel und einem Rückseitenkontakt an der Probe, oder mit einer Hochfrequenz-tauglichen Nadel mit mehreren Kontakten etwa in GSG (Ground-Signal-Ground) Konfiguration. Über der Probe ist ein Mikroskopobjektiv an einem Piezo-Scanner angebracht, mit welchem die Probe abgerastert werden kann, um ortsaufgelöst die Lumineszenz zu messen. Das Probenlicht wird mittels eines Spektrometers bestehend aus einem 2x 0,75 m *Acton* Doppelmonochromator und einer *Princeton Instruments* CCD analysiert. Für optische Anregung kann auch noch ein HeNe-Laser oder ein grüner Diodenlaser eingekoppelt werden. Da sowohl der Probenverstelltisch als auch der Piezo-Scanner des Mikroskopobjektivs per Computer ansteuerbar sind, kann über *Labview* die automatische Vermessung eines ganzen Chips mit Diodenstrukturen programmiert werden. Dies wurde unter anderem im Rahmen der Bachelorarbeit von Martin Kresse realisiert, die von mir experimentell mit betreut wurde [Kre13].

4.2.4 Variation und Bestimmung der Anregungsdichte

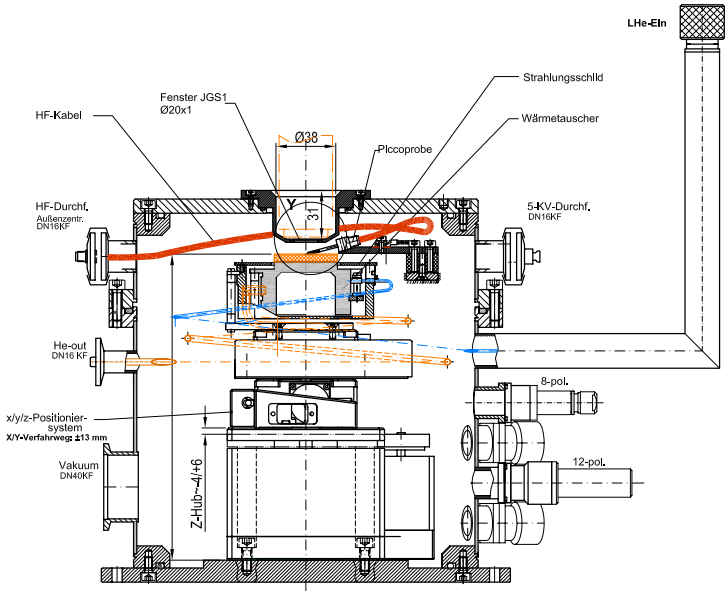
Es ist nicht trivial, die Anregungsintensität bzw. genauer die Leistungsdichte der Anregung quantitativ genau zu bestimmen. Sowohl die Bestimmung der eingestrahlten Laserleistung als auch die Größe des Laserspots auf der Probe lassen sich in den hier verwendeten Versuchsaufbauten nur ungenau realisieren.
Der Anregungslaser wird über einen Pellicle-Stahlteiler auf die Probe eingekoppelt, dessen Reflexionsgrad jedoch stark winkel- und wellenlängenabhängig ist. Der Winkel wird im Verlauf der Messungen selten geändert, wohl aber die Anregungswellenlänge. Laut Herstellerangaben variiert der Reflexionsgrad des Strahlteilers für den verwendeten Wellenlängenbereich von etwa 850 bis 950 nm zwischen 0 und 16 %, siehe 4.7. Zur Messung der auf die Probe reflektierten Leistung muss ein Laser-Powermeter-Messkopf in den Strahlengang eingebracht werden, was die Feinjustage auf die Probe stört. Daher wird diese Messung nur sporadisch vorgenommen und stattdessen die am Strahlteiler transmittierte Leistung gemessen. Bei einigen Wellenlängen wird das Verhältnis von Reflexion



c)



d)



e)

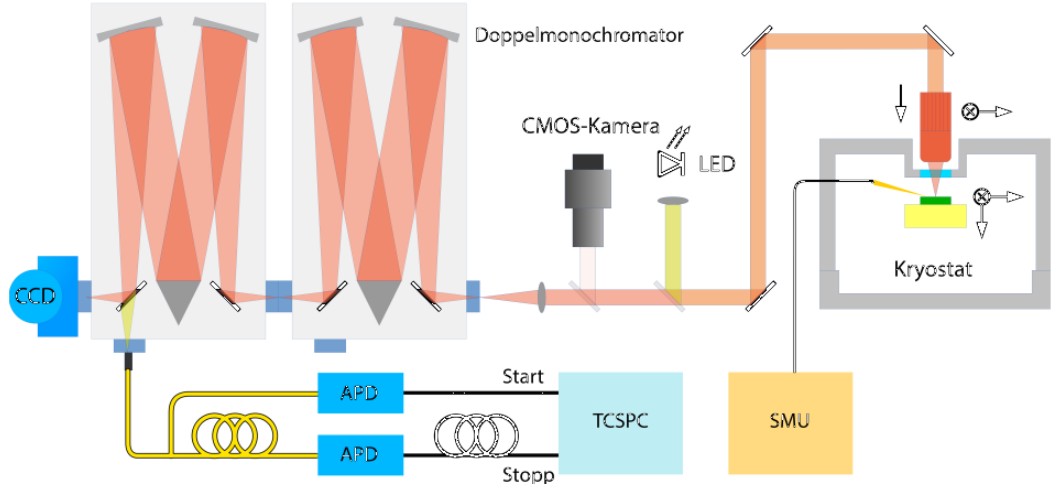


Abbildung 4.6 Kontaktnadel-Setup zur automatisierten Charakterisierung ganzer Chips mit Diodenstrukturen: Fotos des Kontaktnadel-Kryostaten a) Innenansicht mit Kontaktnadel (1), Kühlfinger (2) und eingebauter Probe (3), b) Außenansicht mit umgebenden Versuchsaufbau, insbesondere Mikroskopobjektiv auf Linearstage montiert, c) Schematischer Aufbau mit Mikroskopobjektiv zur Detektion auf Linearstage über dem Kryostaten montiert, d) Schematischer Querschnitt durch den Kontaktnadel-Kryostaten, e) Skizze des gesamten Vesuchsaufbaus mit Kryostat und Vorrichtungen zum Verfahren von Probe (grün) und Mikroskopobjektiv (rot), Kamera und LED zur visuellen Betrachtung der Probe, HBT-Aufbau mit Glasfaser-Strahlteiler, Verzögerungsstrecke, APDs und Messelektronik (TCSPC, time-correlated single photon counting), SMU (source-measure-unit) für die elektrische Kontaktierung, sowie Spektrometer bestehend aus Doppelmonochromator und CCD. Abbildungen a), b), e) aus [Kre13], d) vom Hersteller *CryoVac*

und Transmission bestimmt, bei den anderen durch Interpolation abgeschätzt. Nahe der resonanten Anregung wird ein Reflexionsgrad von ungefähr 4 % gemessen, bei nicht-resonanter Anregung im WL etwa 2,7 %. Die Absorption der Laserleistung im Glasfenster des Kryostaten wird hingegen als nicht relevant vernachlässigt.

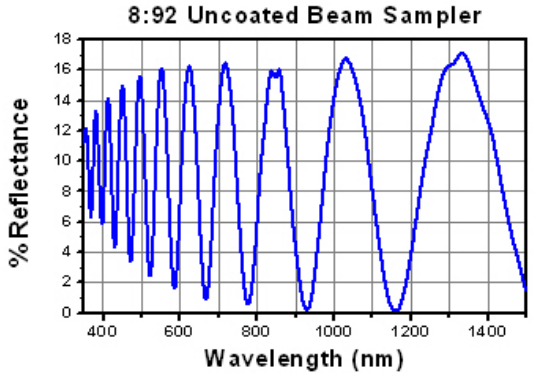


Abbildung 4.7 Laut Hersteller variiert der Reflexionsgrad des verwendeten Pellicle-Strahlteilers für den relevanten Wellenlängenbereich von etwa 850 bis 950 nm zwischen 0 und 16 % bei einem Einfallswinkel von 45° [Tho18].

Die Bestimmung der Größe des Laserspots erfolgt anhand eines μPL-Mapscans mit bekannter Größe und Schrittweite. Auf dem Mapscan wird der Bereich, in dem die Intensität des untersuchten Quantenpunkts auf die Hälfte des Maximums abgefallen ist, auf etwa 9 Pixel abgeschätzt. Bei einer Schrittweite von 1/3 μm pro Pixel ergibt dies einen Durchmesser 2r von etwa 3 μm. Diese Spotgröße ist deutlich größer als die nach dem Rayleigh-Kriterium gegebene Auflösungsgrenze des Mikroskopobjektivs von $d = \frac{0,61 \cdot \lambda}{NA} = \frac{0,61 \cdot 940nm}{0,8} \approx 717nm$. Der Spot ist kreisförmig und hat somit etwa eine Fläche von $A = \pi \cdot r^2 \approx 7\mu m^2$.
Bei Anregung mit einem gepulsten Laser muss außerdem beachtet werden, dass die auf dem Laser-Powermeter gemessene Leistung P_{avg} zeitlich gemittelt ist. Um die Spitzenleistung P_{Peak} und die Energie E pro Puls zu berechnen, müssen die Pulsdauer t und die Wiederholungsfrequenz f bekannt sein. Es gilt $P_{avg} = E \cdot f$ und $P_{Peak} = \frac{E}{t}$. Der verwendete TiSa hat eine Pulsdauer t=1,65 ps und eine Wiederholungsfrequenz f=80 MHz.
Für eine gemessene Laserleistung von 2 mW Transmission am Strahlteiler ergeben sich bei 4 % Reflexion 80 μW auf der Probe, was einer cw-Leistungsdichte von etwa $1,14kW/cm^2$ entspricht. Für den ps-gepulsten Laser entsprechen $P_{avg} = 80\mu W$ mittlere Leistung einer Energie von $E = 10^{-12}J$ pro Puls und einer Spitzenleistung von $P_{Peak} = 0,6kW$. Die Spitzenleistungsdichte entspricht dann $8,65 \cdot 10^9 W/cm^2$.
Die Variation der Laserleistung kann auf verschiedene Arten erfolgen: Zum einen kann die Leistung des Pumplasers variiert werden, dies ist beim durchstimmbaren TiSa jedoch nicht empfehlenswert, da dieser für eine bestimmte Pumpleistung optimiert ist. Zum anderen können Graufilter (ND-filter) in den Strahlengang eingebracht werden, um die Laserleistung auf der Probe zu verringern. Bei gepulsten Lasern sollten reflektierende ND-Filter verwendet werden, da absorbierende sich zu stark

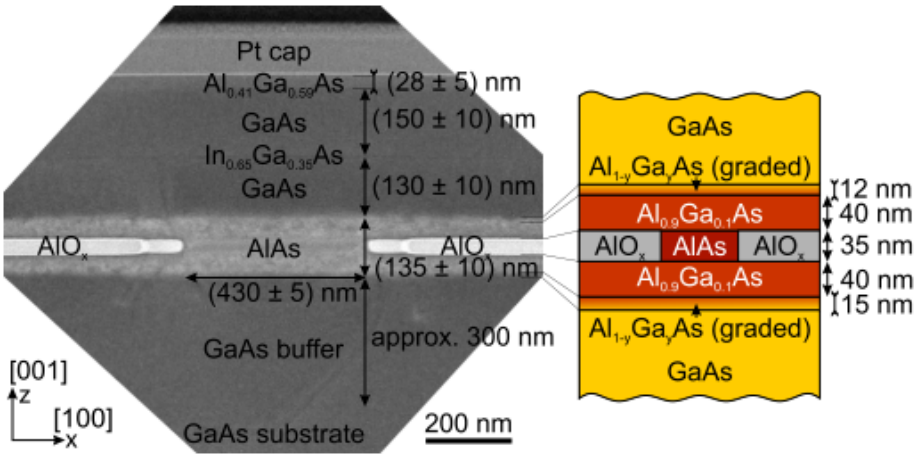
erhitzen und springen können. Beim Einbringen von Filtern in den Strahlengang oder auch beim Drehen von Filterrädern kann es jedoch zum Strahlversatz kommen, weshalb sich dieses Verfahren bei der μPL nur bedingt eignet, um während der Messung die Anregungsleistung zu variieren.
Zum feinen Durchstimmen der Leistung während der Messung kommt daher der schon in Abschnitt 4.2.1.1 auf Seite 27 beschriebene LCVR zum Einsatz. Mit diesem variables Verzögerungsplättchen auf Flüssigkristall-Basis lassen sich auch bei gepulster Laseranregung *Laserpowerscans*, also Leistungsserien mit vielen Messpunkten durchführen.

4.3 Probenherstellung

Der „buried stressor approach“ und das Probenwachstum sind detailliert in [Str12b,Str12a] beschrieben, in [Kie15] wird die Verspannung genau mittels TEM-Holographie untersucht. Daher gebe ich hier nur eine kurze Zusammenfassung des Wachstums der untersuchten Probe NP413 wieder:
Die Positionierung der QDs basiert auf dem sogenannten „buried stressor approach“, also auf einem verborgenen Stressor. Dies ist eine Verspannung in der Wachstumsoberfläche, die durch Oxidation einer tieferliegenden AlAs Schicht entsteht. Die Proben werden in einem kommerziellen horizontalen AIX-200/4 Reaktor mittels MOCVD (metallorganische Gasphasenepitaxie) in einem mehrstufigen Verfahren hergestellt: Zunächst wird eine Sandwichstruktur aus 40 nm $Al_{0.9}Ga_{0.1}As$ / 40nm AlAs / 40 nm $Al_{0.9}Ga_{0.1}As$ auf einem GaAs (001) Substrat gewachsen und von einer 50 nm dicken GaAs Deckschicht bedeckt. Aus diesen Schichten werden lithographisch Mesen von 300 nm Höhe mit einem variablen Durchmesser von 10 bis 25 μm trocken geätzt. Die Mesen sind in mehreren Feldern angeordnet, die wiederum aus jeweils 15 Reihen bestehen. Von Reihe zu Reihe erhöht sich der Durchmesser der Mesen um jeweils 1 μm, nach jeweils 5 Reihen folgt ein vertikaler Balken mit der Beschriftung des Durchmessers der Reihe links davon. Innerhalb der Reihe erhöht sich der Durchmesser der Mesen entsprechend um Bruchteile eines μm, so dass der Durchmesser insgesamt von 10 bis 25 μm variiert wird.
Die so strukturierte Probe wird anschließend in einem Ofen bei 425 °C in einer 50 ml Wasserdampf / 3 slpm (Standard-Liter pro Minute) Stickstoff-Atmosphäre oxidiert. Dabei oxidiert die AlAs Schicht zu AlO und reduziert sich dabei in der Dicke um etwa 12-13 %, die $Al_{0.9}Ga_{0.1}As$ Schicht etwas weniger um etwa 6-7 %. Dies führt zu einer Verspannung in der darüber liegenden GAs Schicht. Innerhalb von 10 min oxidiert die AlAs Schicht etwa 7 μm tief vom Rand der Mesen, so dass bei Mesen-Durchmessern von 15 bis 25 μm eine nicht oxidierte AlAs Apertur in der Mitte von unter 1 μm bis über 5 μm bleibt. Während dieses Prozesses wird die Oberfläche der Mesen in situ durch ein Mikroskop mit einer Kamera überwacht, so dass der Oxidationsprozess genau im richtigen Moment gestoppt werden kann. Dies ist mit einer Präzision von etwa 1 μm möglich, durch die Variation des Durchmessers der Mesen kann mindestens eine Mesa gefunden werden, bei der eine sub-Mikrometer AlAs Apertur in der AlO Schicht erreicht wird.
Nach der Oxidation wird die Probe wieder in den MOCVD Reaktor eingebracht, wo sie bei 720 °C annealed wird (ausgeheilt durch ausheizen). Anschließend wird nach üblichem QD-Wachstumsverfahren eine 50 nm GaAs-Pufferschicht bei 700 °C gewachsen. Danach werden bei 500°C etwa 2 Mo-

nolagen $In_{0.5}Ga_{0.5}As$ zum Wachstum der QD abgeschieden, entsprechend einer QD-Dichte von $5 \times 10^8 cm^{-2}$. Die QDs wachsen wie vorhergesagt bevorzugt in den Bereichen mit tensiler Verspannung, für eine sub-Mikrometer Apertur also genau in der Mesamitte, wie sich durch AFM-Messungen an Mesen mit verschiedenem Durchmesser nachweisen lässt. Für AFM Messungen werden die QDs mit einer nur 6 nm dünnen GaAs-Deckschicht fixiert. Für optische Messungen (wie in der verwendeten Probe) werden die QDs bei 615 °C mit einer 50 nm dicken GaAs-Deckschicht und einer 14 nm $Al_{0.6}Ga_{0.4}As$ / 11 nm GaAs Ladungsträger-Diffusionsbarriere überwachsen.

a



b

Schritt	Dicke (nm)	Schicht	Wachstumsrate (µm/h)	Zeit (s)	Druck (mbar)	Temperatur (°C)	V/III	Gesamtfluss
21	11.03	GaAs	0.662	60.0	100	615.0	367.1	15000.0
20	13.91	Ga(0.59)Al(0.41)As	1.113	45.0	100	615.0	282.1	15000.0
19	50.66	GaAs	1.961	93.0	100	615.0	123.9	15000.0
17	0.00	GaAs	0.000	35.0	100	500.0	1.3	15000.0
15	0.00	Ga(0.50)In(0.50)As	0.000	11.0	100	500.0	1.1	15000.0
12	50.82	GaAs	2.152	85.0	100	700.0	144.5	15000.0
Substrat: Probe zum Überwachsen								

Abbildung 4.8 a) Querschnitts-TEM Messung an einer Probe mit Oxidapertur für einen verborgenen Stressor (links) mit schematischem Querschnitt durch die Aperturregion (rechts) (aus [Kie15]), b) Wachstumsparameter der Probe NP4513 für die nach dem Oxidationsprozess per MOCVD abgeschiedenen Schichten [Sch14b]

5 Motivation: Einzelphotonenemitter auf Basis positionierter Quantenpunkte

5.1 Einzelphotonenemitter auf Quantenpunktbasis

5.1.1 Bisherige Einzelphotonenquellen auf Quantenpunktbasis

Zukünftige Anwendungen im Bereich Quantenkryptographie und Quantencomputer benötigen zuverlässige und schnelle Einzelphotonenquellen (single photon sources, kurz SPS) [Gis02]. SPS auf Basis einzelner Quantenpunkte (quantum dots, kurz QDs) können effizient und kostengünstig auf Basis herkömmlicher Halbleitertechnologie hergestellt werden [Mic00, Zwi04, Shi07, Bim09]. Einzelne selbstorganisiert gewachsene QDs zeigen bei tiefen Temperaturen unter resonanter optischer Anregung sehr scharfe Emissionslinien mit einer homogenen Linienbreite bis zu 2 μeV [Bay02a]. Auch mit elektrischer Kontaktierung wurden bereits erfolgreich SPSs auf QD-Basis demonstriert [Loc06, Sch07c, Sal10]. Für diese SPSs werden einzelne QDs in PIN-Dioden-Strukturen eingebettet und elektrisch gepumpt, sogenannte Quantenpunkt-Leuchtdioden (quantum dot light emitting diode, kurz QD-LED). Um den Stromfluss nur durch einen QD zu lenken, wird eine Oxidapertur eingebaut, also eine kleine leitfähige Öffnung in einer isolierenden Oxidschicht (siehe Abb. 5.1) [Loc06, Loc09, **?**]. Durch Hinzufügen einer Kavität aus Bragg-Spiegeln (englisch distributed Bragg reflector, DBR) ober- und unterhalb der QDs werden die Emissionsrate und die Auskopplungseffizienz verbessert, mit dieser sogenannten Resonant-Cavity-LED (RCLED) wurden sogar Emissionsraten bis 1 GHz und erfolgreiche Einzelphotonenemission bei Temperaturen bis zu 80 K nachgewiesen (siehe Abb. 5.2 auf der nächsten Seite) [Loc09, Sto10, Sto11b].

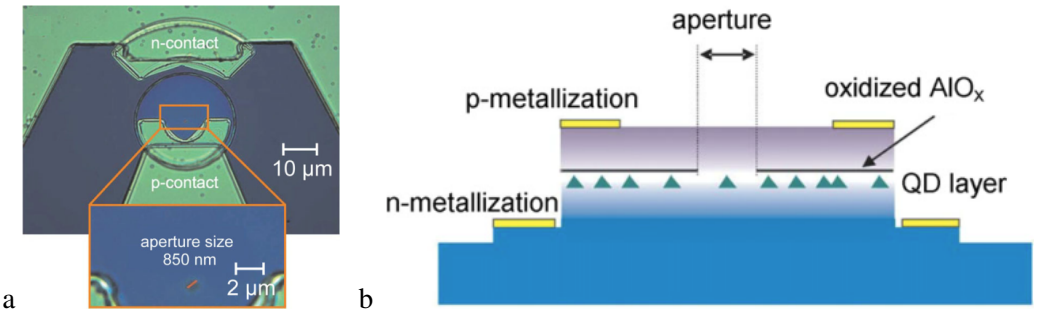


Abbildung 5.1 QD-LED a) Mikroskop-Foto mit vergrößertem Ausschnitt der 850 nm Oxidapertur b) Schematische Darstellung (aus [Unr14])

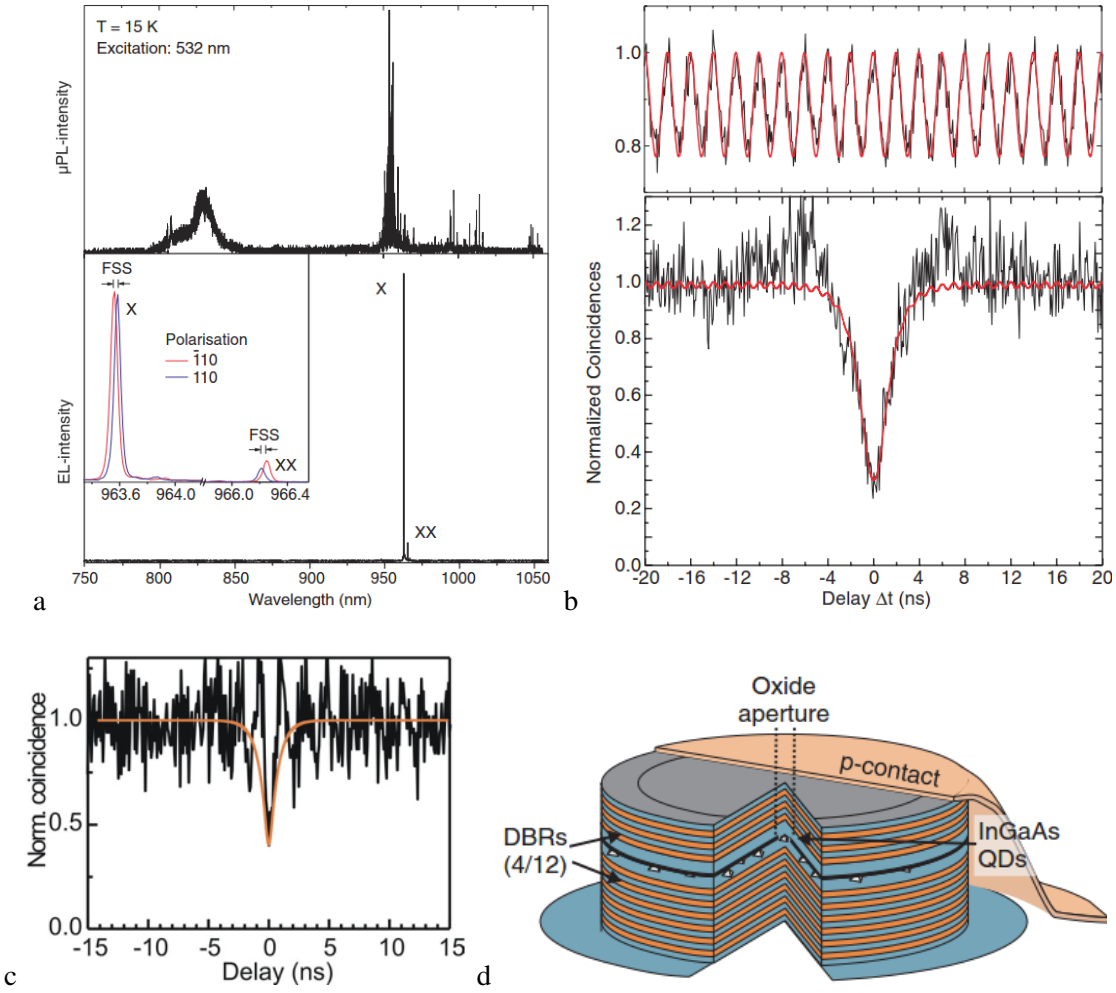


Abbildung 5.2 Optische Messungen an RCLED a) nicht-resonante-μPL (oben) und μEL (unten) Spektren mit FSS von X und XX (Einsatz), b) Pulsfolge (oben) und Antibunching (unten) bei 1 GHz, c) Antibunching bei 80 K, d) Schematischer Aufbau der RCLED-Struktur (aus [Sto11b, Sto10])

5.1.2 Positionierung von QDs mittels eines verborgenen Stressors

Bei SPSs mit QDs, die in geringer Dichte zufällig auf dem Substrat wachsen, ist die Anzahl von Dioden, die genau einen QD in der Mitte der Apertur haben, nicht sonderlich hoch. Die Ausbeute an funktionierenden SPSs aus einem Chip ist also sehr gering. Um die Ausbeute zu erhöhen, gibt es verschiedene Ansätze, die QDs zu positionieren bzw. ihren Wachstumsort zu kontrollieren. Ein Ansatz ist die Strukturierung der Wachstumsoberfläche, um durch eine lokale Minimierung der freien Energie an diesen Orten die Wahrscheinlichkeit des QD-Wachstums zu erhöhen. Dafür benötigt man allerdings Strukturierungsmethoden auf Nanometer-Skala, z.B. Elektronenstrahl-Lithographie oder Ionenstrahl-Techniken. Außerdem verursachen diese Strukturierungsmethoden Defekte in der Wachstumsoberfläche, welche die optische Qualität der gewachsenen QDs beeinträchtigen können [MS05, Meh07, Atk08, Kir09, Hak10, Moh10, Lee11, SS11, Hug11a, Hug11b, Fau11].
Wir nutzen einen anderen Ansatz die Wachstumsposition der QDs zu kontrollieren, nämlich durch

einen verborgenen Stressor [Str12b,Str12a]. Dieser macht sich den Effekt zunutze, dass die schon für die Strompfadbegrenzung genutzte Oxidapertur zu einer Verspannung in darüber liegenden Schichten führt, die ein QD-Wachstum oberhalb der Apertur begünstigen kann. Bei der Herstellung der Oxidapertur wird eine überwachsene AlAs-Schicht in einer Wasserdampf-Atmosphäre zu AlO_x oxidiert, bis in der Mitte der Mesen noch eine schmale leitfähige AlAs Öffnung bleibt. Dabei schrumpft die AlAs Schicht bei der Oxidation zu AlO_x um bis zu 13% und verspannt dadurch die darüber liegenden Schichten (bis zu 2% tensile Verspannung entlang der Apertur Grenzen, kompressiv oder neutral außerhalb). Die tensile Verspannung entspricht etwa der Gitterfehlanpassung zwischen InGaAs und GaAs und ist daher energetisch günstig für das Wachstum von QDs. Messungen mit AFM, CL und μPL zeigen, dass die QDs entlang der Aperturgrenzen wachsen [Str12b,Str12a]. Durch Variation des Mesadurchmessers und der Oxidationszeit können leicht Submikrometer-Aperturen gefertigt werden, die einen punktförmigen Stressor erzeugen. Dieser begünstigt die Ansiedlung einzelner QDs in der Mesamitte im nachfolgenden Wachstumsschritt, die in Photo- und Kathodolumineszenz (cathodoluminescence, kurz CL) scharfe Linien mit Einzelphotonenemission zeigen. Ensemble-CL-Messungen zeigen den WL als QW Lumineszenz bei 1384 meV und drei Ensembles von QDs um etwa 1340 meV (QD I), 1290 meV (QD II) und 1240 meV (QD III), wobei der WL und QD III nicht nur entlang der Apertur, sondern auch am Mesarand auftreten (siehe Abb. 5.3).

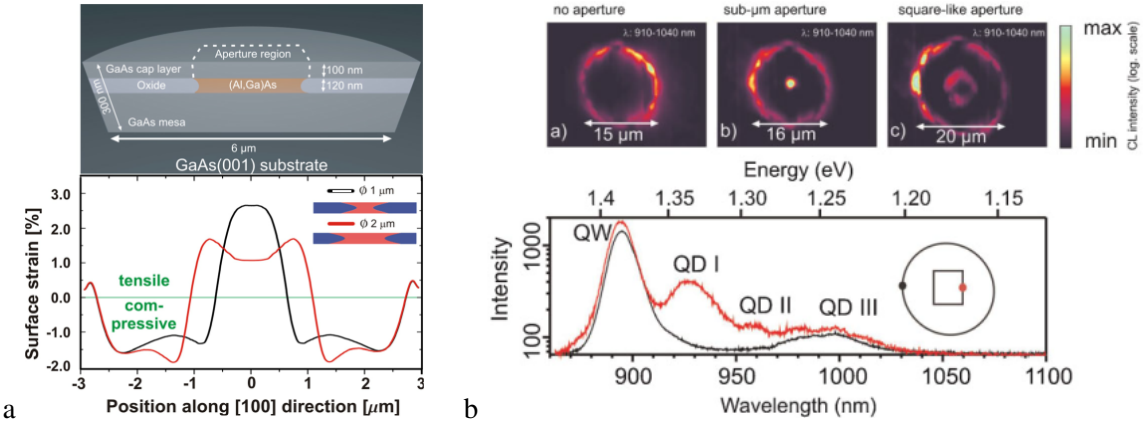


Abbildung 5.3 a) Schematischer Querschnitt durch die Probe mit buried stressor (oben), Verspannungsverteilung auf der Wachstumsoberfläche (unten), b) CL-Mapscans von Mesen unterschiedlicher Durchmesser (oben), CL-Ensemblespektra der gewachsenen QDs mit QW Lumineszenz (WL) bei 1384 meV und drei Ensembles von QDs um etwa 1340 meV (QD I), 1290 meV (QD II) und 1240 meV (QD III), wobei der WL und QD III nicht nur entlang der Apertur, sondern auch am Mesarand auftreten (aus [Str12b, Str12a])

Nach einigen Optimierungen im MOCVD-Wachstum werden die Mesen mit den positionieren QDs weiter prozessiert, um eine elektrisch betriebene SPS zu erhalten [Unr12]. Die Emissionsrate und die Auskopplungseffizienz wird mittels einer Kavität aus DBR-Spiegeln unterhalb der Oxidapertur erhöht. Für die elektrische Kontaktierung werden die Mesawände mit parasitären QDs weggeätzt und mit einer SiN_x Isolierung und einer oberen p-Kontakt-Metallisierung versehen. Der n-Kontakt ist über eine Rückseiten-Metallisierung gewährleistet, für die elektrische Kontaktierung wird das Device auf einen Chipcarrierer aufgebracht (gebondet) (siehe Abb. 5.4 auf der nächsten Seite).

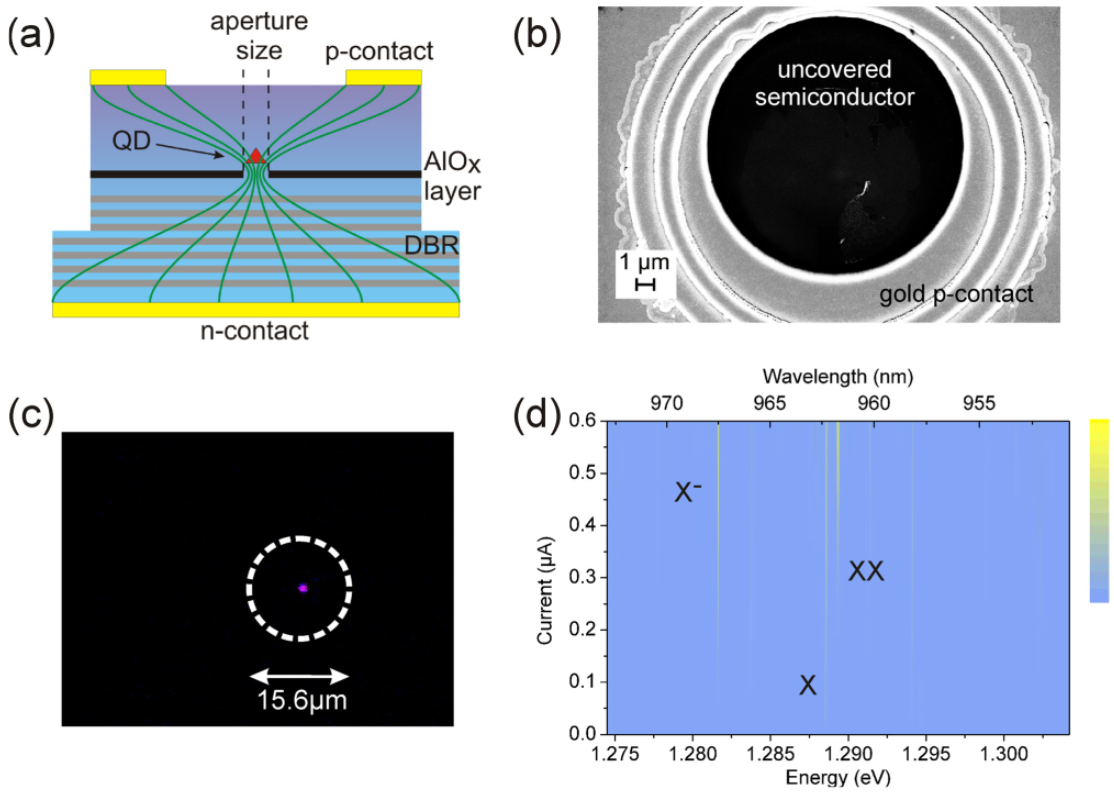


Abbildung 5.4 a) schematische Darstellung einer QD-LED mit Stromfluss durch den positionierten QD und DBR-Kavität unterhalb der Oxidapertur, b) SEM-Aufnahme der Oberfläche der SPS mit Topkontakt und freier Halbleiter-Oberfläche, c) Mikroskop-Foto der EL durch einem 930 nm Kantenfilter betrachtet mit Andeutung des Mesadurchmessers, d) Injektionsstrom-abhängige Messungen der Linien X, XX und X^- (aus [Unr12])

Es werden Elektrolumineszenz (EL)-Messungen bei tiefen Temperaturen durchgeführt und die Autokorrelation der detektierten QD-Linien mit Hilfe eines HBT-Interferometers untersucht. Die Spektren zeigen sehr scharfe Linien mit klarem Antibunching. Im spektralen Fenster von 1280 bis 1290 meV können Exziton X und Biexziton XX mit Halbwertsbreite 32 $\pm$ 2 μeV und FSS 84 $\pm$ 2 μeV identifiziert werden, sowie ein Trion X^- mit einer auflösungsbegrenzten Halbwertsbreite von 25 $\pm$ 3 μeV ohne FSS. Am X^- wird eine Autokorrelation mit einem Antibunching $g^2(0)$=0,05 gemessen (siehe Abb. 5.5 auf der nächsten Seite). Dieser Wert ist zum Zeitpunkt der Veröffentlichung der beste gemessene für positionierte QDs und sehr nahe dem besten Wert für elektrisch betriebene zufällig gewachsene QDs von 0,02 [Ben05]. Selbst bei einem hohen Injektionsstrom von 0,6 μA, bei dem das X bereits in Sättigung ist, wird das Spektrum nur von den drei oben genannten Linien dominiert, was dafür spricht, dass der Strom tatsächlich nur durch einen einzelnen QD fließt und dass in dessen Nähe keine Defekte vorhanden sind.

Diese SPS entspricht im Wesentlichen der von Gisin *et al.* [Gis02] gewünschten Single Photon Gun, die einzelne Photonen auf Knopfdruck erzeugen kann. Die Herstellung beinhaltet nur übliche Wachstumsverfahren und Prozessierungstechniken auf Mikrometer-Skala und lässt sich problemlos auf volle Wafergröße skalieren. Die verbleibenden Herausforderungen für die praktische Anwendung als

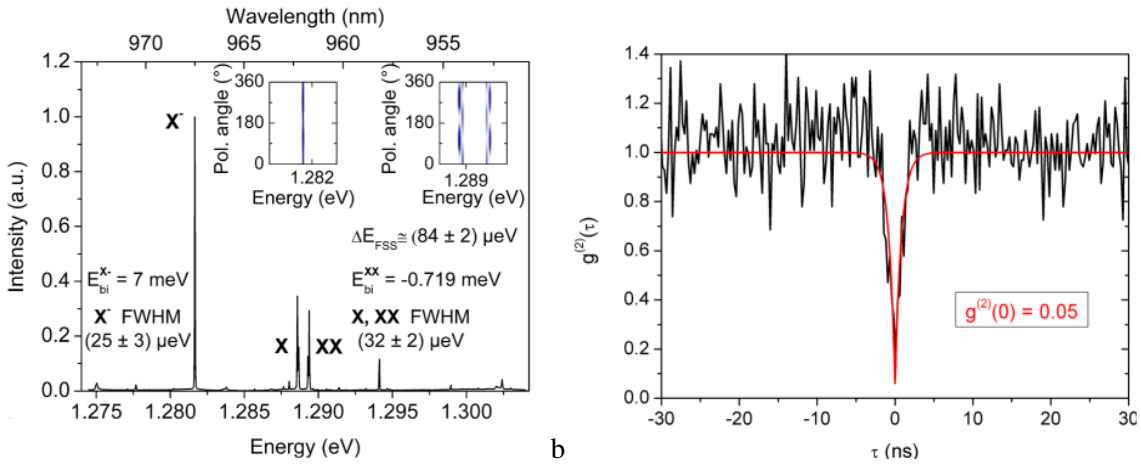


Abbildung 5.5 EL einer QD-LED mit positioniertem QD a) μEL-Spektren mit polarisationsabhängigen Messungen zur FSS der Linien X, XX und X^- (Einsätze) b) Autokorrelationsmessung an X^- mit $g^2(0)$=0.05 (aus [Unr12])

SPS sind die Kühlung auf 10-50 K im Betrieb und die Einkopplung in eine Glasfaser. Eine mögliche Lösung für beides wird in [Sch15] mittels Stirling-Kühlung und Halbleiter-Linsen demonstriert, wobei dort jedoch eine andere Positionierungsmethode verwendet wird.

5.2 Optische Anregung positionierter QDs

Im Folgenden sollen die durch den verborgenen Stressor positionierten QDs durch optische Spektroskopie näher untersucht werden. Wie bereits in Abb. 5.2 auf Seite 40 gezeigt, treten bei nicht-resonanter optischer Anregung deutlich mehr QD-Lumineszenzlinien auf als bei elektrischer Anregung nur eines einzelnen QDs. Um ein ähnlich scharfes Spektrum wie in der μEL durch optische Anregung nachzubilden, ist resonante Anregung unterhalb des WL notwendig. Es werden μPL-Messungen bei verschiedenen Anregungsenergien vorgenommen, um zu untersuchen, unter welchen Bedingungen scharfe Einzelphotonenlumineszenz gemessen werden kann.
Dazu werden an einer Mesa mit 15,6 μm Durchmesser μPL-Mapscans sowohl bei Überbandanregung bei 2330 meV (532 nm) als auch bei resonanter Anregung unterhalb des WL bei 1365 meV (908 nm) durchgeführt, siehe Abb. 5.6 auf Seite 45. Diese zeigen eine räumlich gut isolierte QD-Lumineszenz in der Mesamitte (bezeichnet als QD A), hier scheint ein nahezu punktförmiger Stressor vorzuliegen, hervorgerufen durch eine Submikrometer-Apertur. Weitere Lumineszenz vereinzelter QDs zeigt sich an mehreren Positionen auf der Mesa (bezeichnet als QD B bis E), diese sind anscheinend zufällig gewachsen. Am Rand der Mesa tritt starke Lumineszenz vieler QDs auf, die dort ebenfalls eine bevorzugte Wachstumsposition finden, wie in Abb. 5.3 auf Seite 41 dargestellt. Diese würden bei der Prozessierung zu einer SPS entfernt und vom Topkontakt überdeckt werden. Die Spektren der QDs A bis E, die während der Mapscans aufgenommen wurden, sind neben den Mapscans dargestellt. Quantenpunkt A leuchtet so intensiv, dass er teilweise auch noch an den anderen Positionen detektiert werden kann. Bei Überband-Anregung wurde ein größerer Spektralbereich aufgenommen.

In resonanter Anregung ist in allen Spektren eine Raman-Phononenlinie bei 1330 meV sichtbar. Die QD-Lumineszenzlinien bei resonanter Anregung sind wie erwartet schärfer und zeigen weniger Untergrundlumineszenz. Die Lumineszenz des in der Mesamitte gelegenen QD A wird mittels hochaufgelöster μPL untersucht, um die Linienbreite zu bestimmen. Außerdem werden Autokorrelationsmessungen durchgeführt, um Einzelphotonenemission nachzuweisen, beides wird in Abb. 5.7 auf Seite 46 dargestellt. Bei resonanter Anregung unterhalb des WL mit 1365 meV ist in einem spektralen Fenster von über 60 meV im Wesentlichen nur eine scharfe Lumineszenzlinie mit einer Halbwertsbreite von 65 μeV sichtbar. Diese zeigt bei einer Autokorrelationsmessung ein Antibunching mit $g^{(2)}(0)$=0,24, also deutliche Einzelphotonenemission. Bei Anregung oberhalb des WL mit 1393 meV spaltet die beobachtete Linie in zwei etwas verbreiterte Linien auf, gleichzeitig misst die Autokorrelationsmessung nur noch ein $g^2(0)$=0,56. Da bei den Messungen noch die Zeitauflösung der verwendeten Einzelphotonendetektoren und die Zerfallszeit der Emissionslinien in einer Entfaltung berücksichtigt werden sollte, lässt sich mit dieser Messung immer noch Einzelphotonenemission nachweisen. Bei Überbandanregung mit 2330 meV wurde nur ein schwaches Antibunching mit $g^2(0)\approx$0,8 erreicht (siehe Abb. 7.3 auf Seite 56). Vermutlich wurde die Anregungsleistung zu hoch gewählt, so dass benachbarte QDs mit angeregt und detektiert wurden.

5.2.1 Ausblick auf die folgenden Kapitel

Der hier gefundene QD A in der Mitte einer Mesa mit Submikrometer-Apertur dient im Folgenden als Beispielsystem für weitere Untersuchungen. Um jedoch die Vergleichbarkeit der Ergebnisse mit anderen positionierten QDs aus diesem Wachstumsansatz zu gewährleisten, werden in Kapitel 6 **Vorcharakterisierung** ab Seite 47 μPL-Mapscans an einer Vielzahl von Mesen dieser Probe vorgenommen und statistisch hinsichtlich Emissionsenergie und Halbwertsbreite der gefundenen QD-Lumineszenzen ausgewertet. Um die Kopplung der QDs mit Phononen ortsaufgelöst zu untersuchen, wird eine TERS-Messung durchgeführt. Hierfür muss eine für AFM- und STM-Messungen optimierte Probe mit nur einer dünnen Deckschicht über den QDs verwendet werden. Eine genaue Beschreibung des Wachstums der in dieser Arbeit hauptsächlich untersuchten Probe findet sich hingegen in Abschnitt 4.3 **Probenherstellung** ab Seite 37.
Im darauf folgenden Kapitel 7 **Optische Charakterisierung der exzitonischen Struktur** ab Seite 51 werden μPL-Messungen in Abhängigkeit von Anregungsenergie und Anregungsintensität vorgenommen, um zu untersuchen, wie sich die Lumineszenzlinien entwickeln und unter welchen Bedingungen optische Anregung ähnlich scharfe Einzelphotonenlumineszenz wie elektrische Anregung hervorbringt. Auch sollen die den Lumineszenzlinien zugrunde liegenden optischen Übergänge identifiziert werden. Hierfür sind vor allem Messungen in Abhängigkeit von Anregungsintensität und Polarisation notwendig.
Um die resonante Anregung besser zu verstehen, werden in Kapitel 8 **Elektronische und phononische Resonanzen** ab Seite 73 μPLE-Messungen durchgeführt, um die Anregungskanäle der untersuchten Lumineszenzlinien zuzuordnen. Dabei können sowohl elektronische als auch phononische Übergänge identifiziert werden. Da speziell für diese QDs noch keine Berechnungen der zu erwar-

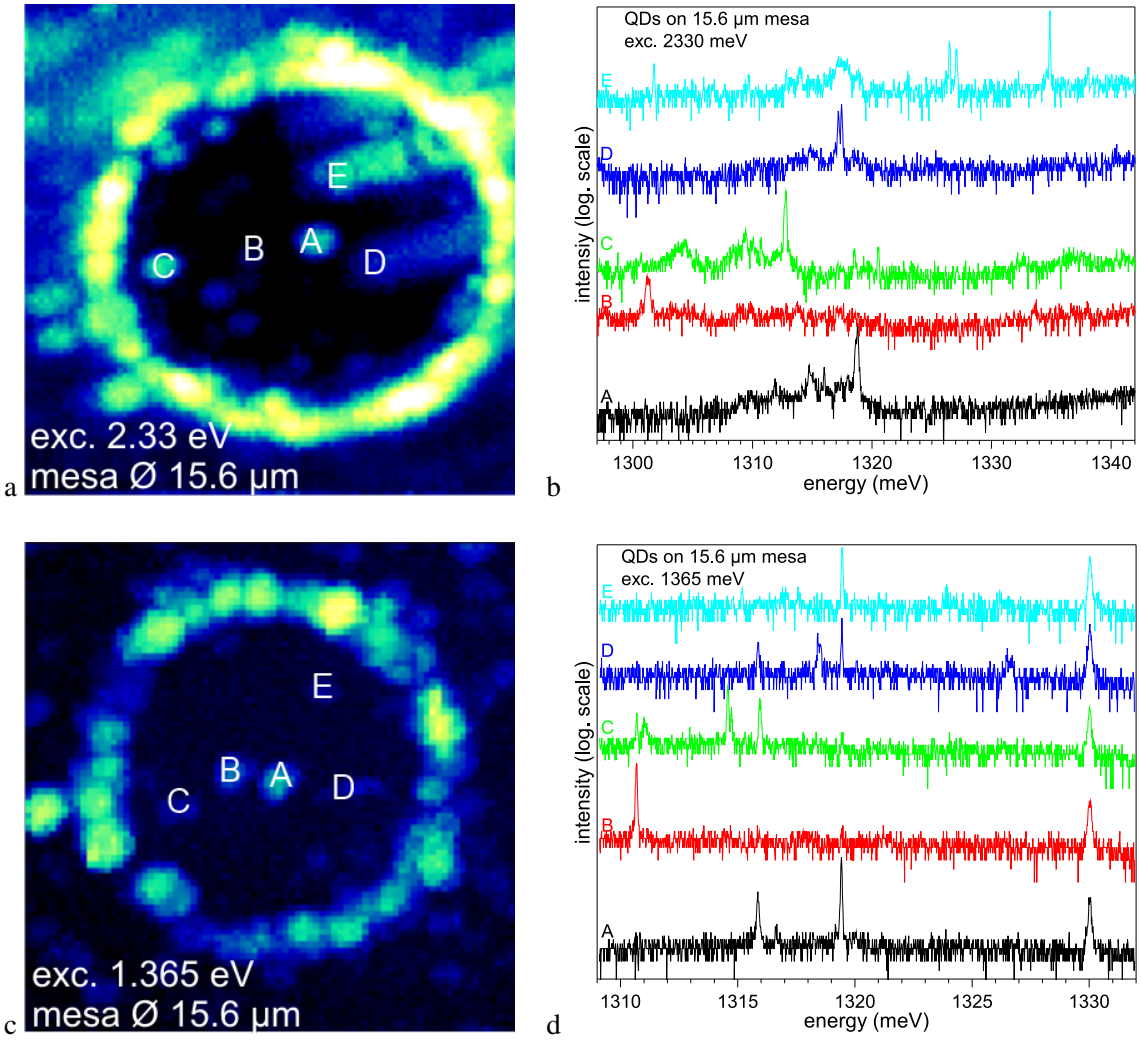


Abbildung 5.6 Hochaufgelöste μPL-Mapscan der untersuchten Mesa mit 15,6 μm Durchmesser bei Überband- und nahresonanter Anregung. Die Farben geben die maximale Intensität der Lumineszenzlinien der Spektren am jeweiligen Bildpunkt in logarithmischer Skalierung wieder. Anregung a) Überband mit 2330 meV (532 nm), b) Spektren dazu, und c) nahresonant bei 1365 meV (908 nm), d) Spektren dazu mit Phonon bei 1330 meV (kleineres spektrales Fenster als in b)).

tenden Übergänge vorliegen, werden die Ergebnisse mit ähnlichen PLE-Spektren aus der Literatur verglichen, um Anregungskanäle den Übergängen zwischen bestimmten Elektronen- und Lochzuständen zuzuordnen. Auch die Zuordnung der beobachteten phononische Prozesse erfolgt anhand der Literatur.

5.2.2 Spektroskopische Fragestellungen bezüglich möglicher Anwendungen

Als SPS für die Quantenkryptographie wird eine möglichst helle und scharfe Emissionslinie benötigt. Dies kann z.B. die Emission eines neutralen oder auch eines geladenen Exzitons, also eines Trions, sein. Letzteres ist vorteilhaft, da keine FSS vorliegt. Für die Erzeugung von Trionen müssen

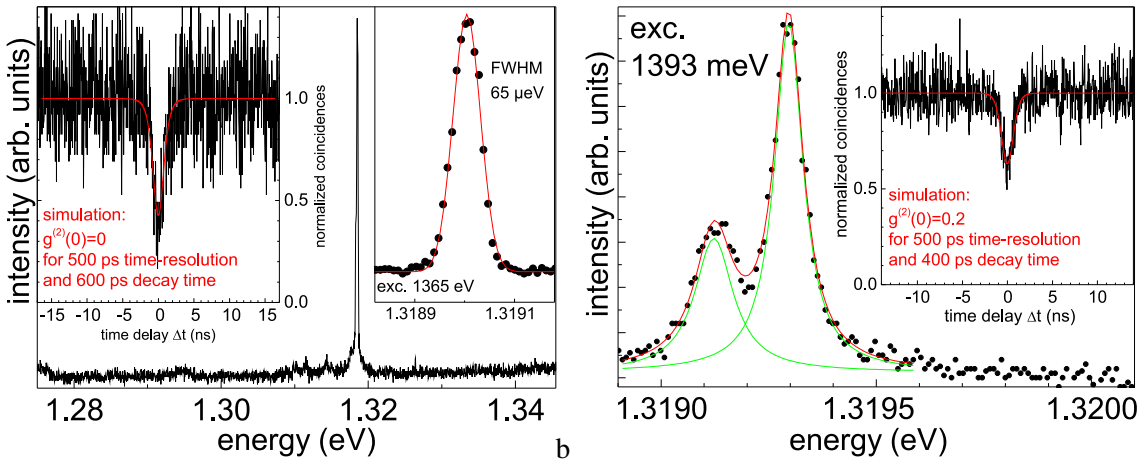


Abbildung 5.7 Hochaufgelöste μPL und Autokorrelation an dem positionierten QD A: a) Bei resonanter Anregung unterhalb des WL mit 1365 meV ist in einem spektralen Fenster von über 60 meV im Wesentlichen nur eine scharfe Lumineszenzlinie mit einer Halbwertsbreite von 65 μeV sichtbar. Diese zeigt bei einer Autokorrelationsmessung ein Antibunching mit $g^{(2)}(0)$=0,24, also deutliche Einzelphotonenemission. b) Bei Anregung oberhalb des WL mit 1393 meV spaltet die beobachtete Linie in zwei etwas verbreiterte Linien auf, gleichzeitig wird in der Autokorrelationsmessung nur noch ein $g^2(0)$=0,56 gemessen.

zusätzliche Ladungsträger einer Art (Elektronen oder Löcher) in der Nähe des QDs vorliegen. Dies geschieht oft unbeabsichtigt unter bestimmten Anregungsbedingungen durch Aufladung von Defekten nahe des QDs, kann aber auch absichtlich durch Dotierung der Halbleiterschichten nahe des QDs oder durch ein an einer Diodenstruktur angelegtes elektrisches Feld geschehen. Bezüglich der positionierten QDs ist es interessant zu wissen, ob unter bestimmten Anregungsbedingungen vermehrt Trionen erzeugt werden.

In der Quantenkryptographie werden außerdem Quellen von verschränkten Photonen benötigt, um Quantenrepeater zur Erhöhung der Reichweite in Quantennetzwerken zu ermöglichen. Verschränkte Photonen ließen sich etwa durch QDs mit FSS nahe Null für Exziton und Biexziton realisieren, da dann beide Polarisationsrichtungen jeweils energetisch entartet sind. Ein möglicher Ansatz hierfür sind auf (111)-GaAs-Substrat gewachsene QDs mit höherer Symmetrie und dadurch geringeren piezoelektrischen Feldern. Eine andere Möglichkeit ist die Verschränkung von Exziton und Biexziton, wenn es gelingt, diese energetisch übereinander zu bringen, etwa durch das Anlegen elektrischer Felder oder die Verspannung der QD-Schicht. Auch dieser Ansatz lässt sich mit positionierten QDs kombinieren, es sollte jedoch die Aufspaltung zwischen X und XX möglichst klein und natürlich bekannt sein.

6 Vorcharakterisierung

6.1 Übersichtscharakterisierung mittels μPL

6.1.1 Ortsaufgelöste Messungen

Um einen Überblick über die Verteilung und die optische Qualität der gewachsenen QDs zu erhalten, wird die Probe großflächig in Mikrophotolumineszenz (μPL) untersucht. Die Messungen finden im cw-μPL-Setup bei einer Temperatur von 16 K statt. Die spektrale Auflösung beträgt in dieser Konfiguration 40 μeV, die räumliche Auflösung etwa 1 μm. Als Anregungsquelle dient ein ND:YAG Laser bei 2330 meV (532 nm). Dabei werden 34 Mesen mit Durchmessern zwischen 10 und 25 μm untersucht und jeweils 20 x 20 Pixel Mapscans der μPL aufgezeichnet. Jeder Pixel stellt ein hochaufgelöstes μPL-Spektrum von 1313 bis 1325 meV dar und wurde mit einer Integrationszeit von 5 s aufgenommen. Die Farbe des Pixels im Mapscan stellt die maximale Intensität der Linien im Spektrum dar. In diesen Mapscans werden 853 QD-Lumineszenzlinien gefunden und hinsichtlich energetischer Position und Linienbreite untersucht. Dabei wird unterschieden, ob sich die QD am Rand der Mesa, entlang der Aperturgrenze oder auf dem Rest der Mesaoberfläche befinden.
Die μPL-Mapscans in Abb. 6.1 auf der nächsten Seite zeigen die gleiche Verteilung der QDs wie die AFM-Bilder entlang der Aperturgrenzen, aber auch auf der Mesaoberfläche finden sich einige, entlang an der Mesakante sogar sehr viele QDs. Dabei ist zu beachten, dass die AFM-Messungen nicht an derselben Probe aufgenommen werden konnten wie die μPL-Messungen, die Form und Größe der Apertur und damit des verborgenen Stressors ist jedoch sehr gut reproduzierbar.

6.1.2 Energetische Position und Halbwertsbreite der QD-Emmissionslinien

Die durchschnittliche Halbwertsbreite (full width at half maximum, FWHM) der QD-Emissionslinien entlang der Aperturgrenze beträgt 140 $\pm$ 60 μeV. Dieser Wert liegt nur wenig höher als für QDs am Mesarand mit 110 $\pm$ 60 μeV und auf der Mesafläche mit 130 $\pm$ 70 μeV. Der Median der Linienbreitenverteilung liegt jeweils deutlich unter dem Mittelwert, was dem Einfluss einiger weniger besonders breiter QD-Linien geschuldet ist. An allen Positionen lassen sich QDs mit Halbwertsbreiten von etwa 40 bis 300 μeV finden, die Halbwertsbreite der QDs hängt also nicht wesentlich von der Position auf der Mesa ab. Entlang der Apertur liegt die schmalste gemessene Linienbreite bei 40 μeV, begrenzt durch das Auflösungsvermögen des Spektrometers.
Zur Ermittlung der durchschnittlichen Emissionsenergie der QDs entlang der Aperturgrenze werden zusätzliche Messungen mit einem größeren spektralen Fenster durchgeführt. Dabei werden Spektren von 1297 bis 1342 meV mit einer Integrationszeit von 1 s aufgezeichnet. Auf 62 Mesen werden ins-

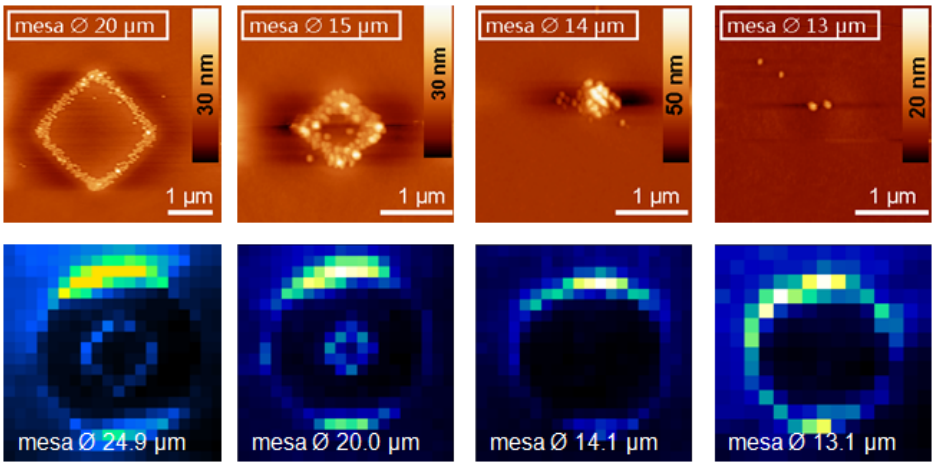


Abbildung 6.1 (oben) Die AFM Messungen zeigen QDs, die entlang des verborgenen Stressors in der Mitte von Mesen unterschiedlichen Durchmessers wachsen. Mit sinkendem Durchmesser der Mesa wird die Apertur kleiner und der verborgene Stressor entlang der Apertur wird von einer rautenförmigen Fläche zu einem Punkt. (unten) Die μ-PL Mapscans der Mesen zeigen QD-Lumineszenz vor allem am Mesarand und entlang des verborgenen Stressors. Auch hier ist der Übergang von einer rautenförmigen Struktur hin zu einem Punkt für sinkenden Mesadurchmesser erkennbar.

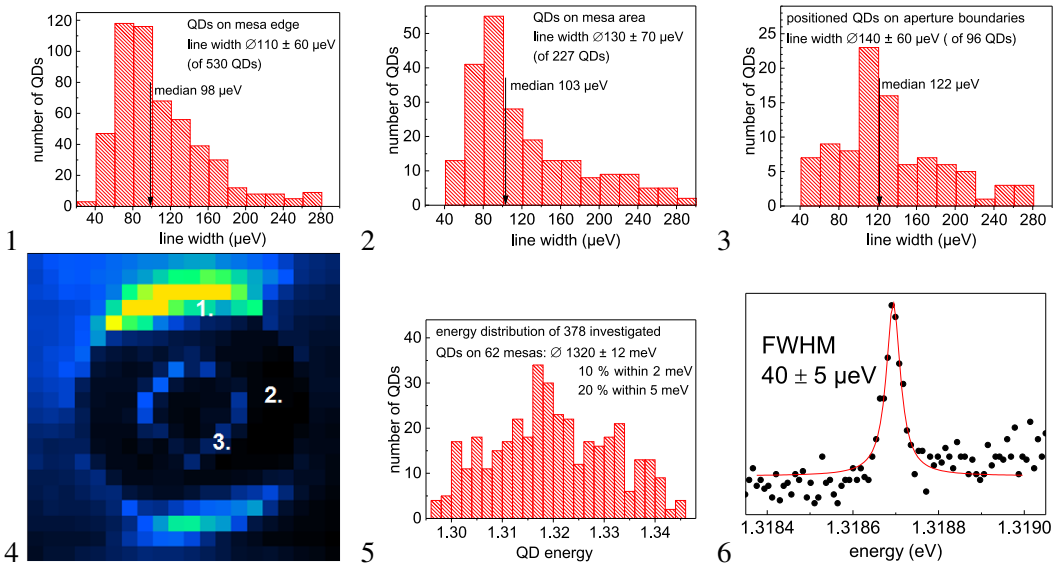


Abbildung 6.2 Verteilung der Linienbreiten nach Wachstumsgebieten auf der Mesa: 1 Mesarand, 2 Mesafläche, 3 Aperturgrenze, 4 Zuordnung der Mesagebiete im μPL-Mapscan, 5 Energieverteilung der QD-Emissionslinien am Aperturrand, 6 schmalste gemessene QD-Linie am Auflösungslimit

gesamt 378 QD-Lumineszenzlinien untersucht. Der Mittelwert der Emissionsenergie liegt bei 1320 $\pm$ 12 meV, 10 % der QDs liegen innerhalb von 2 meV des Mittelwerts, 20 % innerhalb von 5 meV. Eine genau reproduzierbare spektrale Position der QD-Emission ist für die verlässliche Fertigung von Bauelementen ebenso wichtig wie die örtliche Position.

6.1.3 Vergleich mit anderen Positionierungsverfahren

Zur Positionierung von QDs werden auch andere Verfahren verwendet, die auf einer Strukturierung der Wachstumsoberfläche basieren, was jedoch zu Defekten in der Nähe der QDs und damit zu Linienverbreiterungen führen kann. Für die Strukturierung der Wachstumsoberfläche sind Prozessierungsmethoden mit Nanometer-Genauigkeit erforderlich, etwa durch Elektronenstrahl-Lithographie. Zum Zeitpunkt dieser Messungen (2012) erreichten MBE-gewachsene QDs auf Elektronenstrahl-strukturierten Substraten durchschnittliche (minimale) Linienbreiten von 132 μeV (80 μeV) und 213 μeV (43 μeV), siehe [SS11] und [Hug11a, Hug11b]. MOCVD-gewachsene QDs erreichten Linienbreiten von 200 μeV (63 μeV) (siehe [Fau11]). Die Positionierung mittels eines verborgenen Stressors ist also durchaus konkurrenzfähig mit anderen Positionierungsmethoden und in Sachen Prozessierungsaufwand sogar überlegen, da nur Mikrometer-genaue Prozessierung benötigt wird.

6.1.4 Position der im Folgenden untersuchten Mesa auf der Probe

Die in Abb. 5.6 auf Seite 45 und in den folgenden Kapiteln untersuchte Mesa mit sub-Mikrometer-Apertur trägt die interne Bezeichnung 3-16-9. Das heißt, sie befindet sich in Feld 3, Reihe 16, Spalte 9, ist also die 9. Mesa in der Reihe, in der der Durchmesser von 15 bis 16 μm variiert wird, und besitzt demnach einen Durchmesser von 15,6 μm. Die Messungen in den folgenden Kapiteln wurden fast alle am QD A in der Mitte dieser Mesa durchgeführt. QDs mit ähnlichen Eigenschaften finden sich auch auf vielen anderen Mesen. Diese Mesa wird als repräsentativ für eine Mesa mit punktförmigem Stressor angenommen und dieser QD als repräsentativ für einen dadurch positionierten QD.

6.2 TERS-Untersuchung der Ramanmoden

Eine ähnliche QD-Probe wird stark dotiert und ohne Deckschicht (cap layer) gewachsen, um die QDs mittels AFM und STM sowie TERS untersuchen zu können. Die TERS Messungen werden von Emanuele Poliani im STM Modus durchgeführt, um eine hohe Ortsauflösung und ein hohes TERS-Enhancement zu erreichen. Dabei werden in dem untersuchten Bereich auf dem Substrat typische GaAs TO und LO Moden bei 268 bzw. 292 cm^{-1} (33,2 bzw. 36,2 meV) gemessen. Am Ort der QDs wird zusätzliche eine QD LO-Phononenmode bei 256 cm^{-1} (31,7 meV) bei großen QDs und bei 260 cm^{-1} (32,2 meV) bei kleinen QDs gemessen. Kleinere QDs führen also wie erwartet zu höher Emissionsenergie der QD-Moden. Diese Raman-Moden treten auch als Resonanzen in μPL-Messungen auf (siehe Kapitel 7 **Optische Charakterisierung der exzitonischen Struktur** ab Seite 51), ihre Rolle bei Anregungsprozessen wird in Kapitel 8 **Elektronische und phononische Resonanzen** ab Seite 73 untersucht. Eine Unterscheidung von Raman-Streuung und Phononen-assistierter Lumineszenz wird in Kapitel 9 **Dynamik: Unterscheidung von Raman Streuung und Fluoreszenz** ab Seite 91 mittels zeitaufgelöster μPL getroffen.

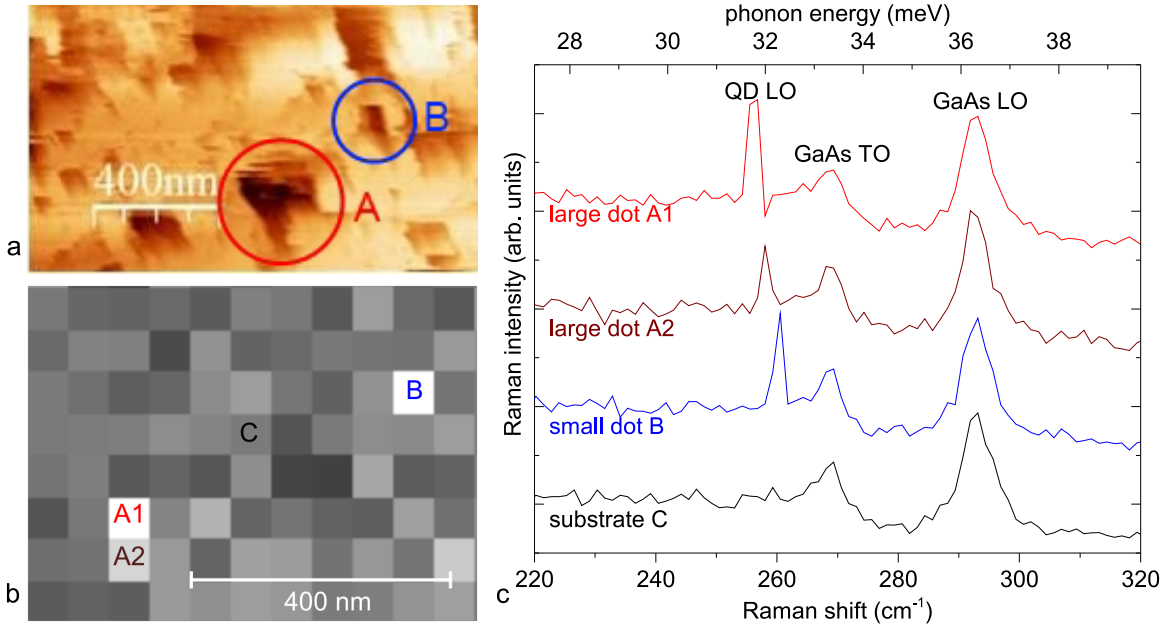


Abbildung 6.3 STM und TERS Maps zeigen QDs auf GaAs Substrat. Die topologische Auflösung der STM Messung (a) ist nicht besonders gut, es treten Rauschen und Kontaktabbrüche auf. Die parallel aufgenommene TERS Messung (b) zeigt jedoch deutlich Ramanmoden (c) von GaAs (TO und LO) bei 268 bzw. 292 cm^{-1} (33,2 bzw. 36,2 meV) sowie am Ort der QDs A und B eine zusätzliche QD-Mode bei 256 bis 260 cm^{-1} (31,7 bis 32,2 meV).

7 Optische Charakterisierung der exzitonischen Struktur

Im folgenden wird die Lumineszenz des Quantenpunkts A auf der zuvor beschriebenen Mesa 3-16-9 mit sub-Mikrometer-Apertur untersucht.
In Abschnitt 7.1.1 werden Übersichtsspektren dargestellt, um die QD-Lumineszenz in Relation zur Benetzungsschicht (wetting layer, WL) und den anderen QD-Ensembles einzuordnen.
In Abschnitt 7.1.2 auf der nächsten Seite wird gezeigt, welche Lumineszenzlinien bei unterschiedlichen Anregungsenergien auftreten, dies wird in Tabelle 7.1 auf Seite 54 zusammengefasst.
Die Zuordnung der Lumineszenzlinien erfolgt in Abschnitt 7.2 auf Seite 55 anhand von Korrelationsmessungen sowie Messungen in Abhängigkeit von Anregungsintensität und Polarisation.
Einige Linien treten nur bei nicht-resonanter Hochanregung auf, diese werden in Abschnitt 7.3 auf Seite 66 genauer untersucht und zugeordnet.
Durch einen Vergleich mit ähnlichen Spektren in der Literatur wird in Abschnitt 7.4 auf Seite 68 die Zuordnung noch unklarer Linien diskutiert.

7.1 Übersicht über die Photolumineszenz des positionierten Quantenpunkts

7.1.1 Übersichtsspektren des Quantenpunkts

Um einen Überblick über die spektrale Position der Lumineszenz von QD A zu erhalten, werden Übersichtsspektren bei Überbandanregung mit 2330 meV (532 nm) und bei Anregung oberhalb des WL mit 1442 meV (860 nm) aufgenommen. Es werden mehrere Spektren mit kleinerem spektralen Fenster zusammengefügt („step and glue“), um im Bereich zwischen 1,2 und 1,4 eV ein Übersichtsspektrum zu erhalten (genauer von 1216 meV bzw. 1245 meV bis 1395 meV, siehe Abb. 7.1 auf der nächsten Seite). Die Lumineszenz von QD A liegt bei etwa 1320 meV (940 nm), es gibt jedoch weitere scharfe Lumineszenzlinien bei 1347 meV (920 nm), die eventuell angeregten Zuständen zugeordnet werden können, ebenso wie einige scharfe Linien innerhalb der WL-Lumineszenz um 1370 meV (genauer bei 1359 meV, 1366 meV, 1370 meV, 1373 meV, 1374 meV und 1378 meV). Die Lumineszenz des WL bei etwa 1380 meV (898 nm) ist bei Anregung direkt darüber bei 1442 meV deutlich intensiver als bei Überbandanregung. Unterhalb von 1270 meV sind mehrere scharfe Lumineszenzlinien sichtbar, die zu einem anderen QD-Ensemble gehören und hier nicht weiter untersucht werden (vgl. Abb. 5.3 auf Seite 41).

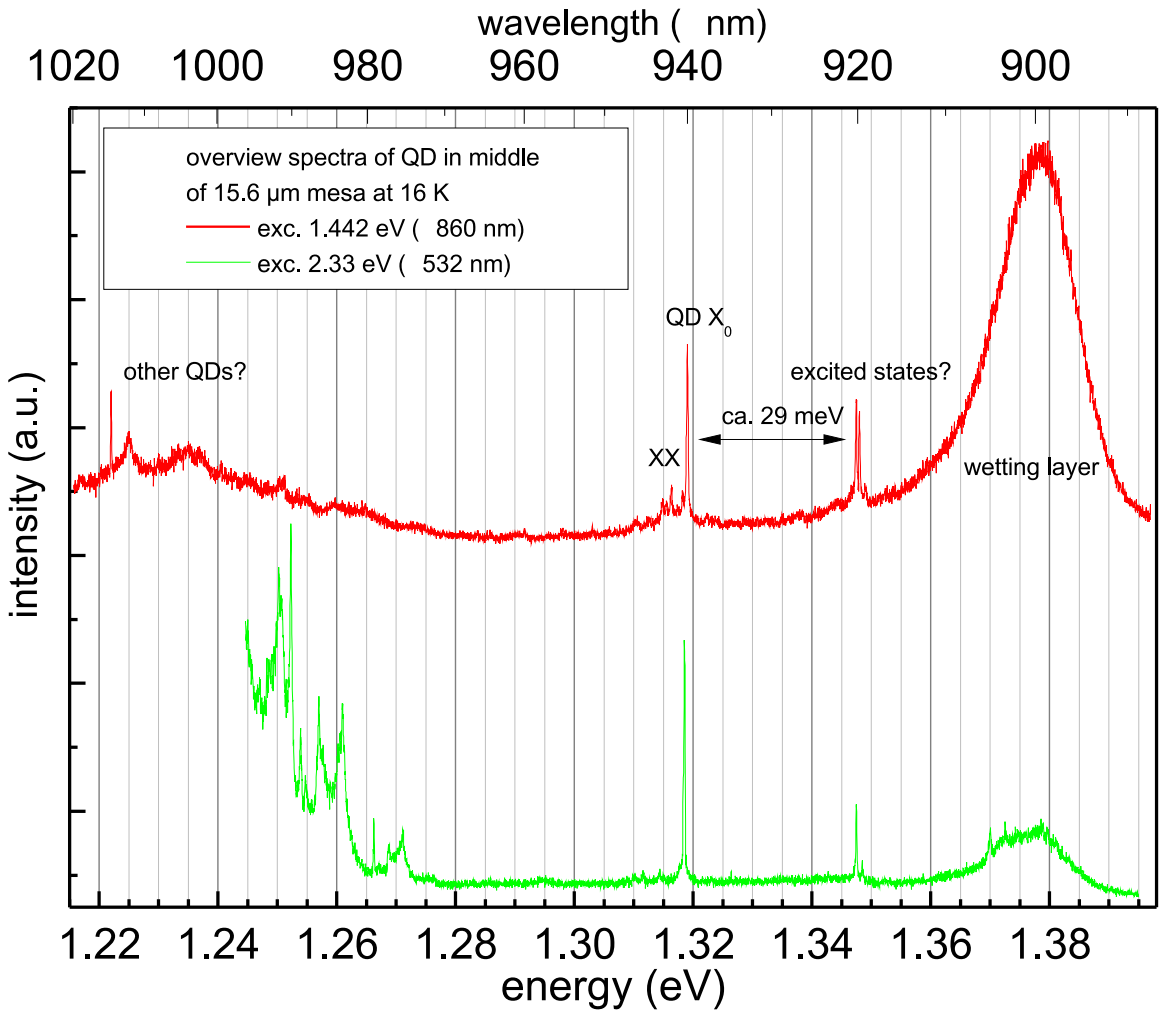


Abbildung 7.1 Übersichtsspektrum von QD A in der Mitte der untersuchten Mesa bei Überbandanregung mit 2330 meV (532 nm) und bei Anregung oberhalb des WL mit 1442 meV (860 nm). Bei 1320 meV liegen die QD-Lumineszenzlinien, bei 1370 bis 1380 meV liegt die Lumineszenz des WL. Weitere scharfe Lumineszenzlinien sind bei 1347 meV sichtbar, diese könnten zu angeregten Zuständen des QD gehören, ebenso wie die scharfen Linien, die bei Überbandanregung innerhalb der WL-Lumineszenz erkennbar sind. Auf niederenergetischer Seite sind zwischen 1220 und 1270 meV scharfe Linien erkennbar, die zu anderen QDs gehören und hier nicht weiter untersucht werden.

7.1.2 Abhängigkeit der QD-Lumineszenz von der Anregungsenergie

Die QD-Lumineszenz bei 1320 meV wird in hochaufgelösten Spektren bei verschiedenen Anregungsenergien untersucht, unterhalb der Resonanz bei 1356 meV, resonant bei 1357 meV und 1365 meV, sowie nicht-resonant nahe des WL bei 1380 meV und deutlich über dem WL bei 1393 meV (siehe Abb. 7.2 auf der nächsten Seite). Mehrere Lumineszenzlinien sind sichtbar, sie werden zunächst mit den Bezeichnungen L0 bis L8 durchnummeriert. Durch intensitäts- und polarisationsabhängige Messungen sowie Korrelationsmessungen werden sie im Folgenden verschiedenen exzitonischen Komplexen zugeordnet (siehe Abschnitt 7.2 auf Seite 55).

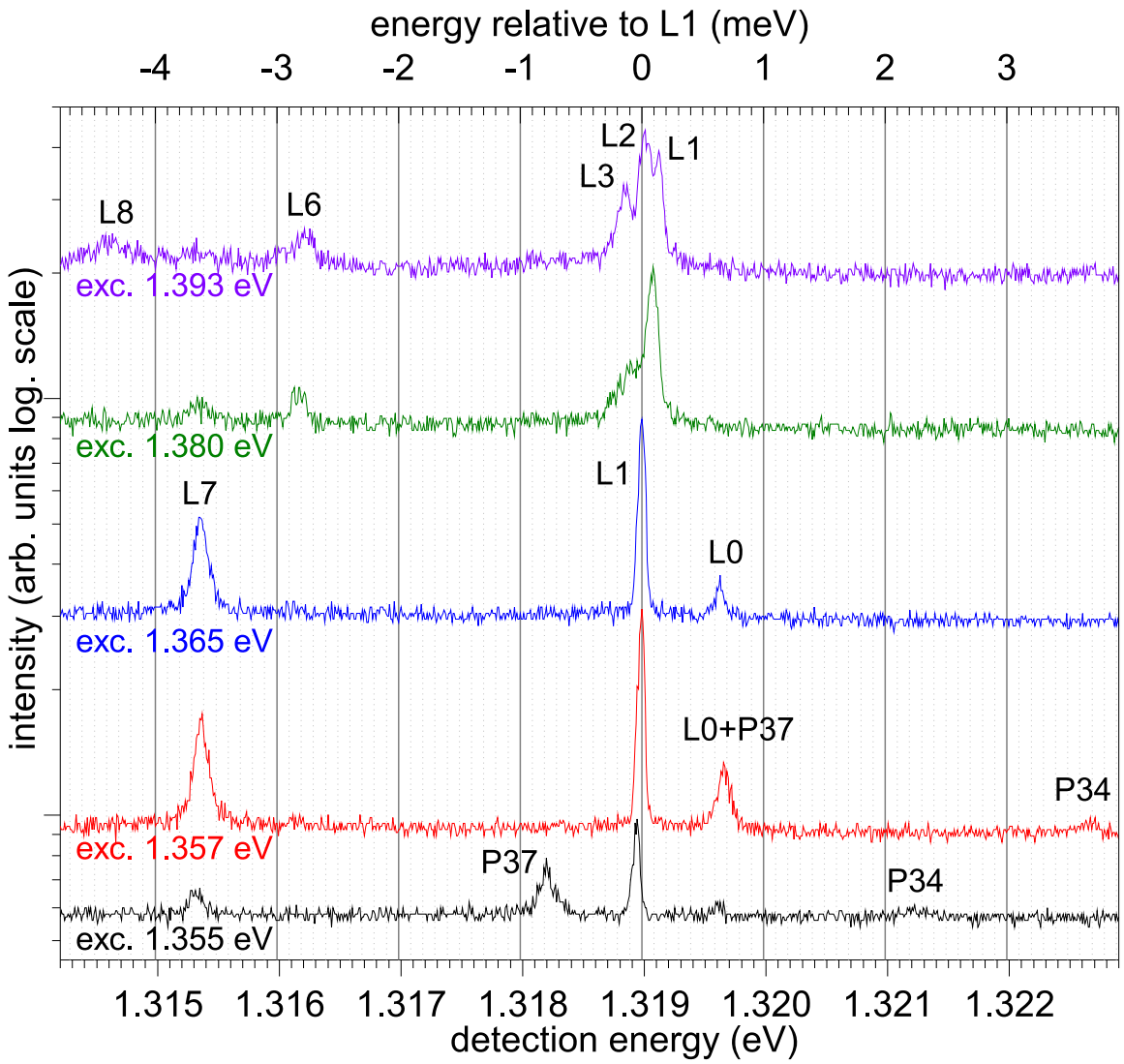


Abbildung 7.2 Hochaufgelöste Spektren des QD bei verschiedenen Anregungsenergien. Neben der scharfen Exzitonenlinie L1 sind bei resonanter Anregung breite Linien von L0 und L7 sichtbar sowie die Phononenlinien P34 und P37. Bei nicht-resonanter Anregung erscheinen die Linien L6 und L8 und die Exzitonenlinie scheint sich in drei Linien L1 bis L3 aufzuspalten.

7.1.2.1 Resonante Anregung

Bei resonanter Anregung bei 1357 und 1365 meV ist die Linie L1 bei 1319,0 meV (940,0 nm) klar erkennbar, sie ist sehr scharf (Halbwertsbreite 54 μeV) und wird dem neutralen Exziton X0 zugeordnet. Außerdem sind weitere Lumineszenzen sichtbar: Die bei dieser Anregungsintensität nur schwache Linie L6 bei 1316,1 meV (942,0 nm) wird im Folgenden mittels intensitäts- und polarisationsabhängiger Messungen dem Biexziton 2X zugeordnet, welches oft auch mit XX bezeichnet wird. Außerdem gibt es zwei weitere scharfe Linien L0 bei 1319,6 meV (939,6 nm) und L7 bei 1315,3 meV (942,5 nm), die mit Halbwertsbreite 107 μeV und 133 μeV allerdings deutlich breiter als X0 sind. Ihre Zuordnung erfordert weitere Untersuchungen und wird später erfolgen. Bei Anregung un-

Tabelle 7.1 Positionen der Lumineszenzlinien: E ist die energetische Position, Δ E ist die Differenz zu X0 und W ist die Halbwertsbreite (FWHM), alles in meV. Bei den mit b markierten Linien liegt W an der Grenze des im Fit zulässigen und ist daher nur auf 0,2 bzw. 0,4 meV geschätzt oder ganz ohne Wert angegeben, wenn sie sich nur aus dem Konturplot erahnen lassen. Die Werte für die Linien L0 bis L8 wurden aus den hochaufgelösten Spektren entnommen, die Werte für die Linien L9-12 aus den Übersichtsspektren. Da erstere bei 16 K aufgenommen wurden und letztere bei 6 K, besteht ein leichter Offset zwischen den energetischen Positionen. Die Linien in den 6 K Übersichtsspektren liegen im Schnitt bei etwa 0,3 meV höheren Energien.

Anregung: Energien in meV		**1365 meV resonant**			**1380 meV WL**			**1393 meV nicht-resonant**		
Linie	**Interpretation**	**E**	**Δ E**	**W**	**E**	**Δ E**	**W**	**E**	**Δ E**	**W**
L0	X1 -37 meV	1319,62	0,65	0,107						
L1	X0	1318,98	0,00	0,054	1319,07	0,00	0,090	1319,12	0,00	0,061
L2	Diff. X0?				1318,89	-0,19	0,182	1319,01	-0,11	0,120
L3	Diff. X0?				1318,78	-0,29	0,2 b	1318,86	-0,26	0,121
L4	X+							1318,10	-1,02	0,4 b
L6	2X (XX)	1316,14	-2,84	0,2 b	1316,16	-2,91	0,164	1316,21	-2,91	0,362
L7	X1 -42 meV	1315,35	-3,62	0,133	1315,34	-3,74	0,4 b	1315,31	-3,81	0,4 b
L8	3X				1314,43	-4,64	0,4 b	1314,60	-4,5	0,4 b
L9	4X?	1311,8	-7,2	0,2 b	1312,4	-6,7	b	1312,4	-6,7	0,4 b
L10	QD B 2X?	1308,8	-10,2	0,2 b	1309,6	-9,5	b	1310,4	-8,7	b
L11	QD B X?				1308,2	-10,1	b	1308,2	-10,1	0,4 b
L12	QD B X+?	1306,6	-13,0	0,2 b	1307,4	-11,7	0,2 b	1307,4	-11,7	0,4 b

terhalb der Resonanz mit 1355 meV sind auch noch zwei Phononenlinien zu erkennen, die bei 1318,2 meV etwa 36 bis 37 meV und bei 1321,2 etwa 33 bis 34 meV unterhalb der Anregungsenergie liegen. Die Halbwertsbreiten dieser Linien sind mit 125 μeV und 107 μeV größer als die von L1 und ähnlich der von L7. Die Linie L0 ist hingegen bei nicht-resonanter Anregung mit 60 μeV Halbwertsbreite wieder schmaler. Dies liegt daran, dass sie sich bei resonanter Anregung mit 1357 meV genau mit dem 37 meV Phonon überlagert.

7.1.2.2 Nicht-resonante Anregung

Bei nicht-resonanter Anregung oberhalb des WL lassen sich bei ausreichend hoher Anregungsintensität an der Position des Exzitons um 1319 meV drei Lumineszenzlinien L3 bis L1 mit einem Abstand und einer Halbwertsbreite von jeweils etwa 100 μeV auflösen bei 1318,9 meV, 1319,0 meV und 1319,1 meV. Die Linien L0 und L7 sind bei dieser Anregung nicht mehr sichtbar, dafür ist niederenergetisch vom Exziton eine schwache Linie L4 bei 1318,1 meV (940,6 nm) zu erkennen, bei der es sich eventuell um ein Trion handeln könnte. Außerdem tritt neben dem Biexziton eine Linie L5 bei 1316,3 meV (941,9 nm) auf sowie niederenergetisch davon eine weitere Linie L8 bei 1314,6 meV (943,1 nm). Die neben X und 2X auftauchenden Linien L2-L3 und L5 bei hoher

nicht-resonanter Anregung haben ihren Ursprung vermutlich in diskreter spektraler Diffusion und werden in Abschnitt 7.3 auf Seite 66 diskutiert. Die Linie L8 könnte von ihrer energetischen Position her (vgl. [Ben11]) und ihrem deutlichen Anstieg bei nicht-resonanter Hochanregung (siehe Abschnitt 7.2.4 auf Seite 60) ein Multiexziton sein, vermutlich das Triexziton 3X.

7.1.2.3 Weitere Lumineszenzlinien auf niederenergetischer Seite

Die Linien L9 und L10 sind sehr breit und treten auf der niederenergetischen Seite von L8 in den intensitätsabhängigen Messungen vor allem bei hoher nicht-resonanter Anregung auf, im resonanten Fall können sie nur erahnt werden (siehe Abschnitt 7.2.4 auf Seite 60). Die Anregungsabhängigkeit von L9 (siehe Abb. 7.10 auf Seite 65) legt nahe, dass es sich um ein Multiexziton, vermutlich das Quad-Exziton 4X handelt.
Bei den Linien L10 bis L12 handelt es sich vermutlich um Linien des benachbarten QD B, der seine Hauptemission bei 1311 meV hat, siehe Abb. 5.6 auf Seite 45, und die bei hoher Anregung auch noch am Ort von QD A detektiert werden können. Sie werden bei den anregungsenergieabhängigen Messungen in Abb. 8.2 auf Seite 75 und Abb. 8.3 auf Seite 76 auf niederenergetischer Seite von L9 detektiert und zeigen ähnliches Verhalten wie die Linien von QD A (Verschieben mit Anregungsenergie und Resonanzen, siehe Tabelle 8.3 auf Seite 87). Die Linie L10 wird auch bei den intensitätsabhängigen Messungen ausgewertet und scheint sich biexzitonisch oder trionisch zu verhalten. Es könnte sich bei L10 jedoch auch um ein weiteres geladenes oder angeregtes Multiexziton von QD A handeln. Wenn man die Resonanzen und das Schieben der Linien mit QD A vergleicht, könnte es sich bei L10 um das Exziton X von QD B handeln, bei L11 um das Biexziton 2X und bei L12 um eine ähnliche Linie wie L7 für QD B (Resonanzen im Zusammenhang mit Phononen). Das Verhalten der Linien von QD B kann im Rahmen dieser Arbeit jedoch leider nicht ausführlicher untersucht werden.

7.2 Identifikation der exzitonischen Lumineszenz

Um die einfachen exzitonischen Lumineszenzen Exziton und Biexziton zweifelsfrei zu identifizieren, werden folgende Messungen vorgenommen:

- Autokorrelation an L1, um die Einzelphotonenemission eines einzelnen QDs nachzuweisen
- Kreuzkorrelation zwischen L1 und L7, um nachzuweisen, dass sie vom selben QD stammen
- Leistungsabhängige μPL an L1, L6 und L8, um sie als X, 2X und 3X zu identifizieren
- Polarisationsabhängige μPL an L1, L3, L6, L7 und L8, um diese Zuordnung zu bestätigen

7.2.1 Autokorrelationsmessungen bei resonanter und nicht-resonanter Anregung

Um nachzuweisen, dass die untersuchte Lumineszenz L1 tatsächlich von einem einzelnen QD kommt, werden Autokorrelationsmessungen durchgeführt. Im Falle eines Einzelphotonenemitters tritt ein

Antibunching in der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(t)$ auf, die dann im Idealfall den Wert $g^{(2)}(0)=0$ aufweist. Bei einem Wert für $g^{(2)}(0)$ von unter 0,5 geht man im Allgemeinen von Einzelphotonenemission aus, wobei die Zeitauflösung und das Dunkelstromrauschen der verwendeten Einzelphotonendetektoren berücksichtigt werden müssen. In Abb. 5.7 auf Seite 46 wird gezeigt, wie sich Exzitonen-Lumineszenz und die Autokorrelationsmessung für nicht-resonante Anregung oberhalb des WL und für den quasi-resonanten Fall unterscheiden. Es wird die $g^{(2)}(t)$-Funktion unter beiden Bedingungen gemessen. Für den nicht-resonanten Fall mit Anregung bei 1393 meV (890 nm) beträgt $g^{(2)}(0)=0{,}56$, für den resonanten Fall mit Anregung bei 1365 meV (908 nm) ist $g(2)(0)=0{,}24$. Durch Simulation des Antibunchings und Faltung mit der Zeitauflösung der Detektoren und der Zerfallszeit der Lumineszenz und Anfitten an die Messergebnisse lässt sich ein korrigierter $g^{(2)}(0)$-Wert ermitteln. Unter Berücksichtigung der Zeitauflösung der verwendeten Avalanche Photodioden (APDs) von etwa 500 ps und der Zerfallszeit für L1 von etwa 600 ps (resonant) bzw. 400 ps (nicht-resonant) liegt der entfaltete Wert für $g(2)(0)=0{,}0$ bzw. 0,2. Beide Messungen zeigen also Einzelphotonenemission.

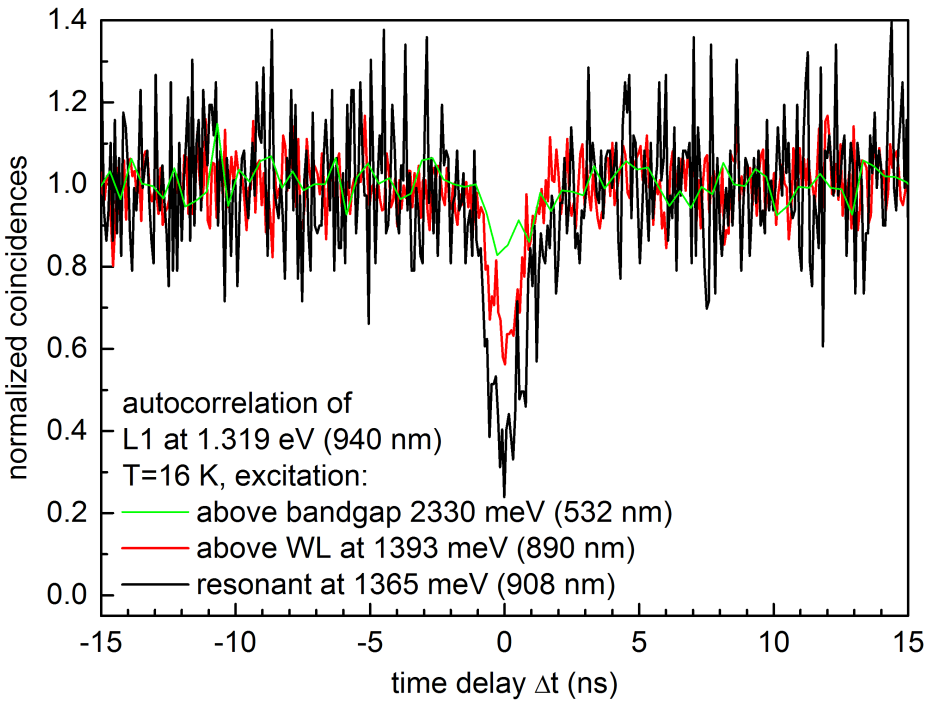


Abbildung 7.3 Autokorrelationfunktion $g^{(2)}(t)$ von X0 bei verschiedenen Anregungsenergien.

7.2.2 Kreuzkorrelationsmessungen zwischen L1 und L7

Bei Kreuzkorrelationsmessungen dient eine Lumineszenzlinie als Start- und eine andere als Stopp-Signal einer Korrelationsmessung. Sie erlauben die Identifikation von Kaskadenprozessen, bei denen ein bestimmter strahlender Zerfall besonders häufig von einem anderen gefolgt wird, etwa der Zerfall eines Biexzitons von dem eines Exzitons.

Hier wird die Korrelation zwischen L1 und L7 untersucht. Es zeigt sich, dass kein deutlicher Kaskadenprozess vorliegt, dass aber ein Antibunching zwischen den beiden Lumineszenzen besteht, sie also vom gleichen QD kommen. Die Flanken des Antibunchings unterscheiden sich jedoch, was auf unterschiedliche Zerfallszeiten schließen lässt. Auf der Seite von L7 ist ein leichtes Bunching erkennbar, was bedeutet, dass eine strahlende Rekombination von L1 nach einer Rekombination von L7 etwas wahrscheinlicher ist als umgekehrt. Aufgrund des Signal-Rausch-Verhältnisses lässt sich jedoch keine definitive Aussage über einen Kaskadenprozess machen. Wenn L7 ein Biexziton wäre, müsste das Bunching deutlicher ausgeprägt sein. Es könnte sich um die Rekombination des geladenen Biexzitons $2X^{2+}$ zu einem Trion X^{+} handelnd, das Bunching sieht ähnlich aus wie in [Iga10]. Bestätigt ist jedenfalls, dass beide Linien vom selben QD kommen, jedoch aus unterschiedlichen Energieniveaus. Bei Anpassung mit der Zeitauflösung des Versuchsaufbaus von 0,5 ns entspricht das gemessene Antibunching einem $g^{(2)}(0)=0{,}08 \pm 0{,}08$, also einer deutlichen Einzelphotonenemission. Die Zerfallszeiten für L1 ($1{,}0 \pm 0{,}3$ ns) und L7 ($0{,}6 \pm 0{,}2$ ns) entsprechen innerhalb des Fehlerintervalls den Ergebnissen zeitaufgelöster Messungen, die in Kapitel 9 ab Seite 91 näher untersucht werden.

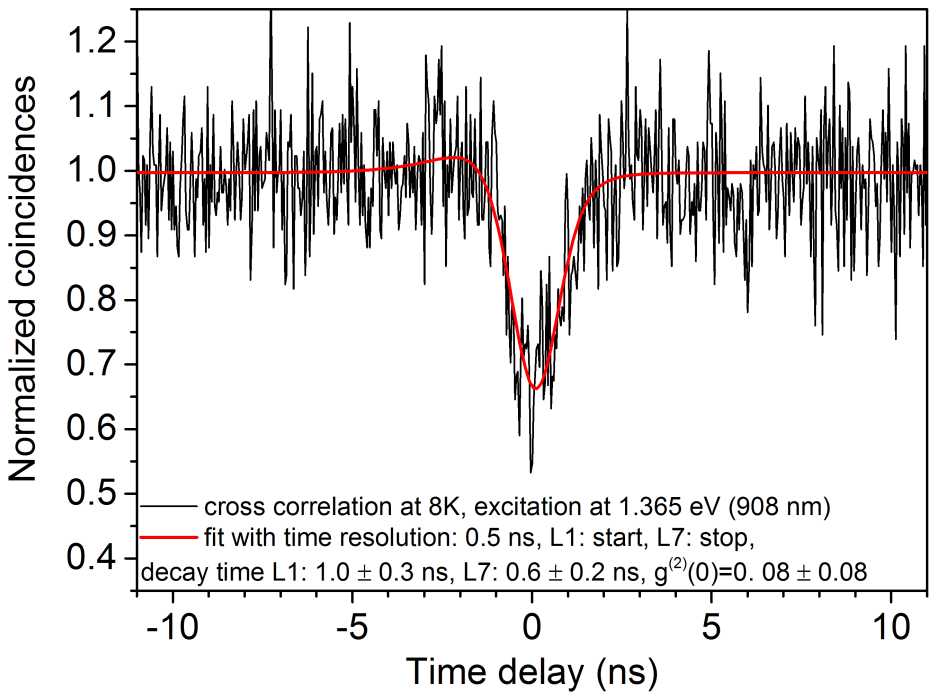


Abbildung 7.4 Kreuzkorrelation von L1 (X0) und L7 (X1-42meV) bei resonanter Anregung mit 1365 meV. Der Fit mit einer Simulation für die Kreuzkorrelation zeigt unterschiedliche Abklingzeiten für L1 und L7 und ein leichtes Bunching auf Seite von L7. Bei Anpassung mit der Zeitauflösung des Versuchsaufbaus von 0,5 ns entspricht das gemessene Antibunching einem $g^{(2)}(0)=0{,}08 \pm 0{,}08$, also einer deutlichen Einzelphotonenemission. Die Zerfallszeiten für L1 ($1{,}0 \pm 0{,}3$ ns) und L7 ($0{,}6 \pm 0{,}2$ ns) stimmen innerhalb des Fehlerintervalls mit den Ergebnissen zeitaufgelöster Messungen überein.

7.2.3 Polarisationsabhängigkeit der Lumineszenz

Zur Identifikation der Lumineszenz-Linien und zur Bestimmung der Feinstrukturaufspaltung (FSS) werden polarisationsabhängige Messungen durchgeführt. Die Polarisation der Lumineszenz soll unabhängig von der Polarisationsabhängigkeit der Transmissionscharakteristik des Spektrometers untersucht werden. Dazu wird ein Linear-Polarisator als Analysator vor den Eingangsspalt des Spektrometers auf dessen maximale Transmission eingestellt. Vor dem Analysator wird ein $\lambda/2$-Verzögerungsplättchen im Strahlengang positioniert, dessen Drehwinkel verändert wird. Auf diese Weise wird die lineare Polarisation des detektierten Lichts gedreht und kann unabhängig von den Transmissionseigenschaften des Spektrometers analysiert werden.
Die Lumineszenz-Linien im Spektrum werden mit Lorentz-Peaks gefittet und die Peak-Zentren über dem Drehwinkel des $\lambda/2$-Plättchens aufgetragen. Zur Bestimmung der FSS wird diese Verteilung mit Cosinus-Quadrat gefittet, siehe Abb. 7.5 auf der nächsten Seite.
Unter resonanter Anregung bei 1364 meV wird die Polarisationsabhängigkeit der Linien L1, L3, L6, L7 und L8 bestimmt: L1, L3 und L7 sind in die gleiche Richtung polarisiert mit einer FSS von (14 ± 12), (18 ± 12) und (42 ± 12) μeV. Die Linie L6 hingegen ist gegensätzlich polarisiert mit einer FSS von (20 ± 12) μeV. Die Polarisation von L8 lässt sich aufgrund des Signal-Rausch-Verhältnisses nur grob bestimmen, die FSS scheint bei (51 ± 13) μeV zu liegen, die Richtung scheint die gleiche wie bei L6 zu sein.
Die Richtung und Größe der FSS bestätigt die vermutete Zuordnung von sowohl L1 als auch L3 zu X sowie L6 zu 2X, da diese ungefähr gleich große, aber im Fall von L6 entgegengesetzte FSS haben. Die Entstehung der Linie L3 wird in Abschnitt 7.3 auf Seite 66 durch diskrete spekrale Diffusion erklärt. Die größere FSS der Linie L7 deutet auf eine höhere Anisotropie des Zustands hin, etwa auf einen angeregten Zustand des Exzitons. Die Linie L8 ist bei dieser resonanten Anregung sehr schwach und lässt sich daher nur bedingt polarisationsabhängig messen. Die Polarisationsrichtung scheint eher 2X zu entsprechen, was zunächst gegen eine Zuordnung zu 3X sprechen würde, wo wir eine Feinstruktur ähnlich des Exzitons erwarten [Ben12, Sch14a]. Die theoretisch möglichen Übergänge von 3X zu 2X sind jedoch sehr viel zahlreicher und komplexer mit allein 64 möglichen Übergängen in der s-Schale [Mli09, Bar95]. Beschränkt man sich auf die Betrachtung der Rekombinationen von Elektronen und Löchern im Grundzustand, so kommen nur noch 16 Konfigurationen in Frage. Von diesen bilden sieben schnell rekombinierende Singulett-Spinzustände, neun hingegen bilden metastabile Triplett-Spinzustände, die in angeregte Biexzitonen-Zustände rekombinieren [Sch16]. Die Singulett-Zustände zerfallen auf einer Zeitskala von wenigen Pikosekunden und zeigen dementsprechend breite Lumineszenzlinien, was gut zur Linie L8 passt. Die Triplett-Zustände rekombinieren in vier scharfen Emissionslinien, die hier jedoch nicht klar aufgelöst werden können. Zudem folgen ihnen Rekombinationen angeregter Biexzitonen-Zustände, die zu weiteren Emissionslinien führen, die hier nicht klar polarisationsabhängig aufgelöst werden können. Diese Vielzahl möglicher Rekombinationen könnte jedoch die weiteren Linien im Spektrum L4, L5 und L9 erklären, die zu schwach und zu breit für eine polarisationsaufgelöste Detektion sind. Für die zur Rekombination notwendigen Spin-Umklapp-Prozesse ist die Wechselwirkung mit LO-Phononen

notwendig, deren Energie ähnlich der Abstände der elektronischen Zustände ist [Sch16]. Diese Voraussetzung ist in diesen Messungen gegeben, die Linienzuordnung wird weiter in Abschnitt 7.4 auf Seite 68 diskutiert.
Die Polarisationsabhängigkeit der anderen Lumineszenzlinien lässt sich nicht klar bestimmen, da sie zu schwach und zu breit sind, um eine FSS zu messen. Dies kann daran liegen, dass sie keine FSS haben, weil sie etwa Trionen sind, oder daran, dass die Messbedingungen hierfür nicht ausreichen. Auch sind im Aufbau einige Bauteile wie etwa metallische Spiegel vorhanden, welche die Polarisation der gemessenen Lumineszenz beeinflussen können und damit die Untersuchung schwächerer, breiterer Linien erschweren.

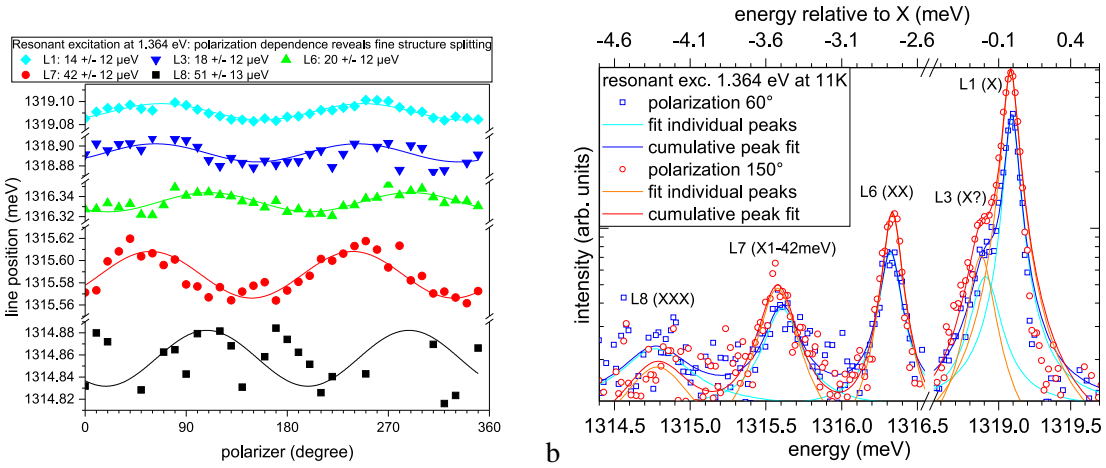


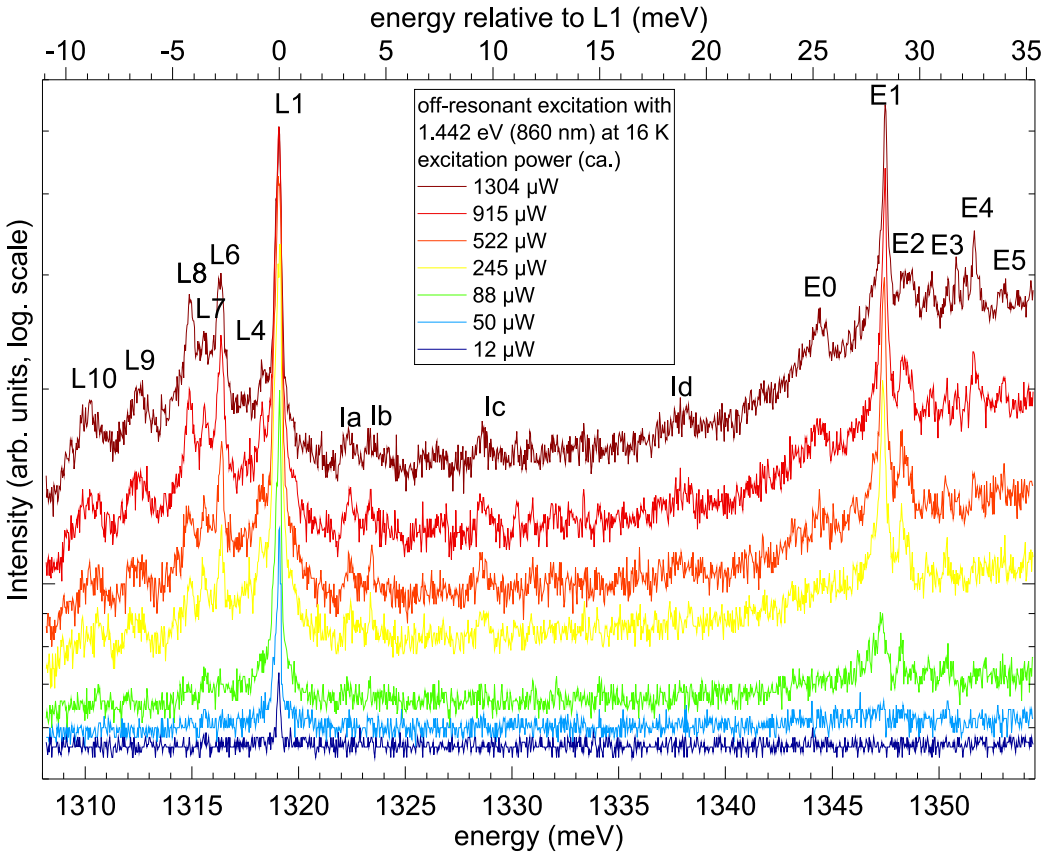
Abbildung 7.5 Polarisationsabhängige Messungen zeigen die FSS der Linien L1 bis L8 und bestätigen die Zuordnung von L1 und L3 zu X sowie L6 zu XX. a) Die Bestimmung der FSS erfolgt aus den Positionen der Linien L1, L3, L6, L7 und L8 mit einem Sinus-Quadrat Fit. b) Die Spektren der Linien bei den Polarisator-Positionen 60° und 150°.

7.2.4 Abhängigkeit der QD-Lumineszenz von der Anregungsleistung

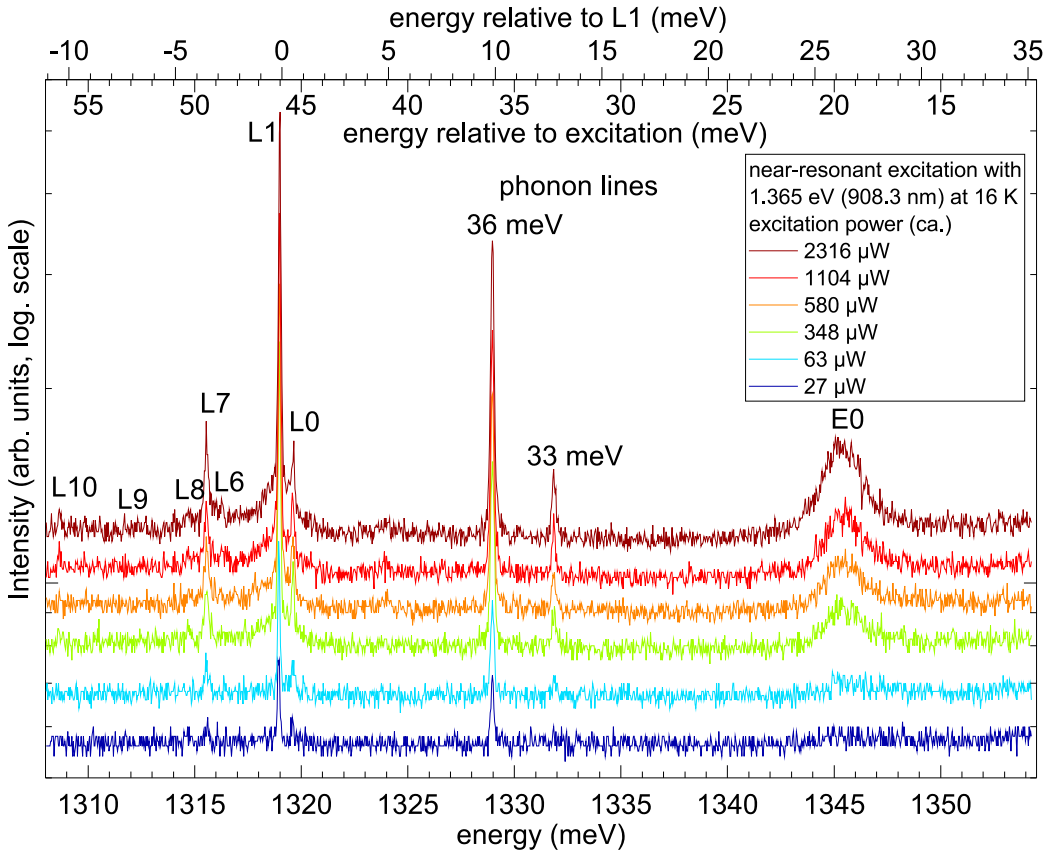
Zur Untersuchung der Abhängigkeit von der Anregungsleistung bzw. -intensität werden weniger hochaufgelöste Spektren über einen breiteren Spektralbereich aufgenommen, sowohl bei resonanter Anregung mit 1365 meV als auch bei nicht-resonanter Anregung mit 1442 meV, siehe Abschnitt 7.2.4 auf der nächsten Seite. Hierbei finden sich weitere Linien, die jedoch im Folgenden weniger ausführlich diskutiert werden, nämlich L9 bis L12 auf der niederenergetischen Seite, sowie E1 bis E4 auf der hochenergetischen Seite als angeregte Zustände bzw. p-Schalen-Lumineszenz.

7.2.4.1 Auswertung der intensitätsabhängigen Messungen mit Fitfunktionen

Bei Anregung mit hoher Leistung setzt sich das Spektrum aus vielen Linien sowie einem verbreiterten Untergrund zusammen. Der Untergrund kommt zu großen Teilen vom langwelligen Ausläufer des WLs. Zur Auswertung der Spektren werden die darin auftauchenden Linien mit Hilfe des Programms Origin 2016 mit einer Vielzahl von Lorentz-Funktionen angepasst (gefittet). Als Randbedingung für



a



b

Abbildung 7.6 Anregungsintensitätsabhängige Spektren a) bei nicht-resonanter Anregung bei 1442 meV (860 nm), b) bei resonanter Anregung bei 1365 meV (908 nm)

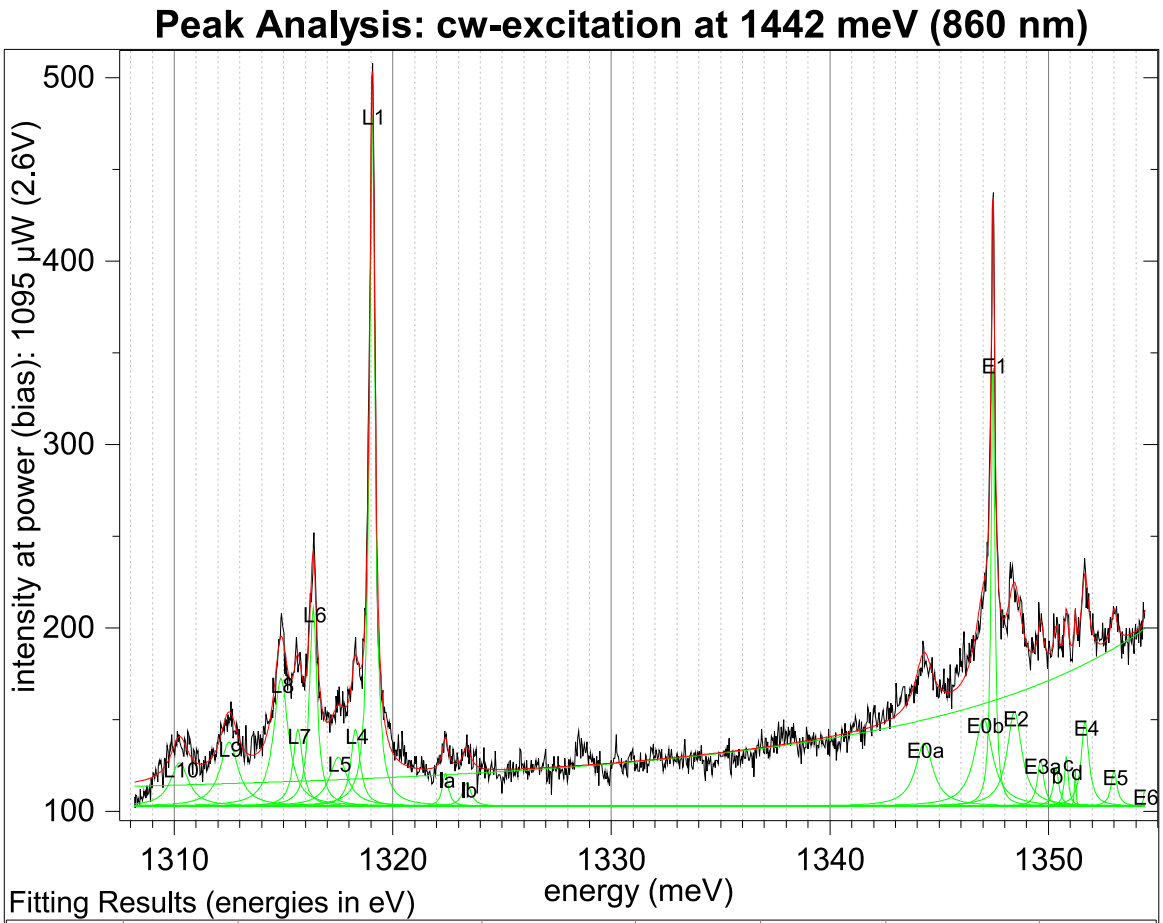
den Fit der einzelnen Peaks werden positive Flächeninhalte, Linienbreiten zwischen 20 und 1000 μeV, sowie ein Zentrum nicht weiter als 200 μeV entfernt von der manuell im Spektrum markierten Peakposition angenommen, wobei die letzten beiden Angaben bei besonders hochaufgelösten Spektren abweichen können. Für den WL wird eine Linienbreite von 1 bis 50 meV sowie Zentrum bei 1376 meV angenommen. Bei hoher Anregungsintensität trägt auch noch der kurzwellige Ausläufer eines Ensembles größerer QDs um 1231 meV zum Untergrund bei, die durch einen weiteren Lorentz-Peak mit einer Breite von 10 bis 100 meV berücksichtigt werden. Die Fits werden in einem Levenberg-Marquardt Prozess iteriert, bis die gewünschte Genauigkeit erreicht ist. Beispielspektren für resonante und nicht-resonante Anregung mit den gefitteten Peaks finden sich in Abb. 7.8 auf Seite 63 und Abb. 7.7 auf der nächsten Seite.
In einigen Fällen sollen mehrere Peaks gemeinsam ausgewertet werden. Dies erfolgt über die Integration der Fläche des Spektrums über den entsprechenden Bereich, etwa bei der Auswertung von s- und p-Schalen-Lumineszenz in Abb. 7.9 auf Seite 64 sowie bei den hochaufgelösten leistungsabhängigen Spektren zur Untersuchung der spektralen Diffusion in Abb. 7.11 auf Seite 67.

7.2.4.2 Identifikation der s- und p-Schalen-Lumineszenz

Die Linien L0 bis L10 werden als Lumineszenz des QD-Grundzustands, also der s-Schale (s-shell), interpretiert. Auf hochenergetischer Seite davon ab etwa 1340 meV treten weitere Lumineszenzlinien auf, die mit E0 bis E5 bezeichnet werden und als angeregte Zustände interpretiert werden, vermutlich als p-Schalen (p-shell) Lumineszenz [Fin00a]. Für die Anregungsabhängigkeit von s- und p-Schalen-Lumineszenz wird erwartet, dass letztere ein superlineares Verhalten zeigt, also deutlich stärker mit der Anregungsleistung ansteigt [Win09, Fon16]. Um dies zu überprüfen werden die Bereiche von 1308 bis 1321 meV sowie von 1341 bis 1352 meV integriert und doppellogarithmisch über der Anregungsleistung aufgetragen. Geraden durch die Messpunkte mit der Steigung 0,59 für die s-Schale und 1,19 für die p-Schale bestätigen diese Zuordnung, siehe Abb. 7.9 auf Seite 64.

7.2.4.3 Interpretation der Intensitätsabhängigkeit

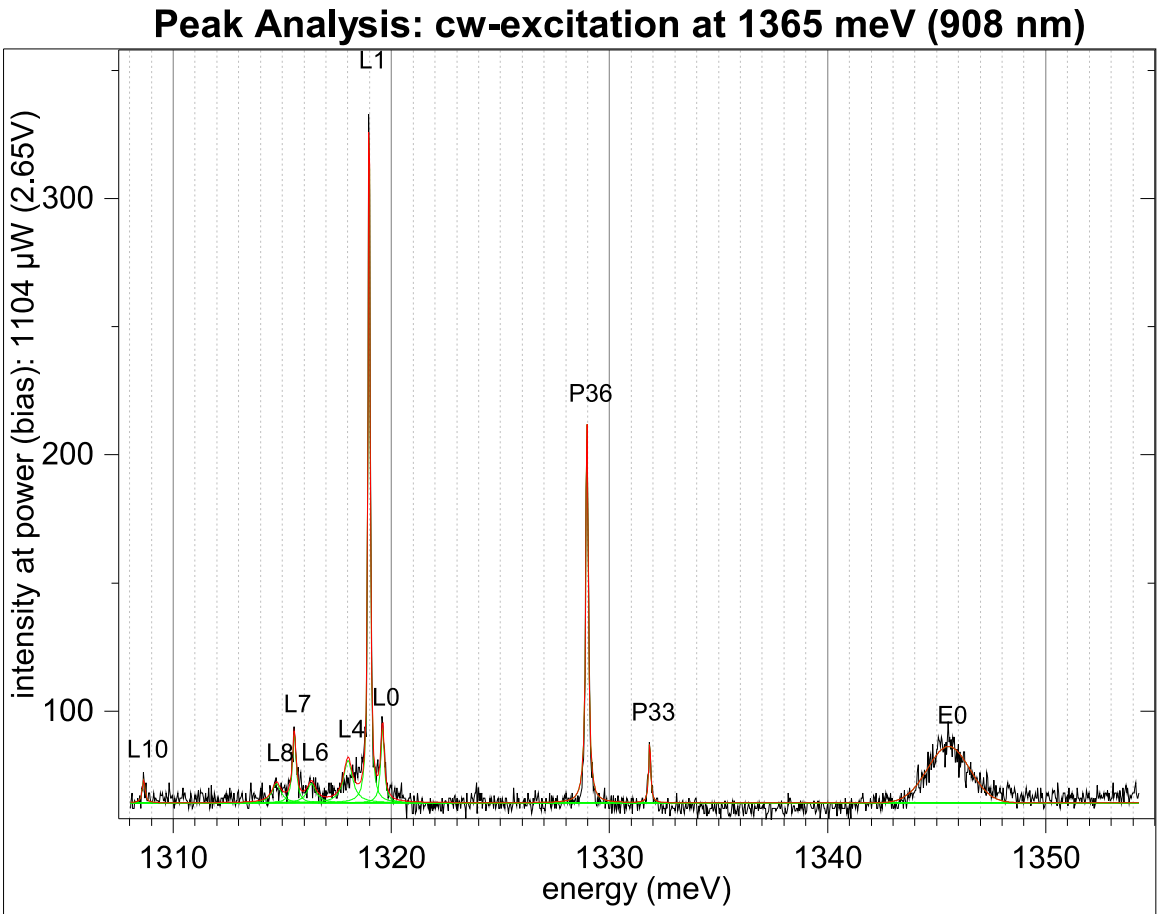
Die Fläche der Peaks wird in doppellogarithmischer Darstellung über der Anregungsleistung aufgetragen. Die Abhängigkeit der Lumineszenzintensität I von der Anregungsleistung L folgt im Wesentlichen der Abhängigkeit $I \sim L^k$. Dementsprechend lässt sich die Abhängigkeit in doppellogarithmischer Darstellung durch eine Gerade mit der Steigung k anpassen. Dabei wird bei QDs eine Steigung von k=1 für Exzitonen erwartet, von k=2 für Biexzitonen. Trionen sollten ebenfalls bei 1 liegen, Multiexzitonen über 2 [Fin00a, Fin01, Sar06b, Sar06a]. Die Bereiche mit sehr niedrigen Intensitäten und damit schlechtem Signal-Rausch-Niveau sowie der Sättigungsbereich bei sehr hohen Intensitäten werden für die Steigung der Gerade nicht berücksichtigt.
Eine mathematisch genauere Analyse der Leistungsabhängigkeit wird in [Kin10] beschrieben. Das dort verwendete Modell gibt jedoch hier keine besseren Ergebnisse, vermutlich weil die Intensität nicht über genügend Größenordnungen variiert werden kann, ohne dass der Untergrund in den einzelnen Spektren zu stark wird.



Fitting Results (energies in eV)

Peak Index	Name	Interperation	Center Max	Delta E	FWHM	Area Fit	Max Height
1	L10	QD B	1.31024	-8.82m	1.00m	0.0372	24
2	L9	4X?	1.31251	-6.55m	1.00m	0.0549	35
3	L8	3X	1.31488	-4.18m	806µ	0.0881	70
4	L7		1.31565	-3.40m	517µ	0.0340	42
5	L6	2X	1.31636	-2.70m	413µ	0.0702	108
6	L5	2X SD	1.31751	-1.55m	1.00m	0.0419	27
7	L4	X+?	1.31829	-770µ	512µ	0.0338	42
8	L1	X	1.31906	-3.77f	310µ	0.1847	380
9	Ia		1.32241	3.35m	325µ	0.0092	18
10	Ib		1.32338	4.33m	468µ	0.0093	13
11	E0a	p-shell	1.34431	25.3m	1.00m	0.0537	34
12	E0b	p-shell	1.34703	28.0m	1.00m	0.0752	48
13	E1	p-shell	1.34746	28.4m	200µ	0.0765	244
14	E2	p-shell	1.34844	29.4m	815µ	0.0660	52
15	E3a	p-shell	1.34965	30.6m	349µ	0.0140	26
16	E3b	p-shell	1.35034	31.3m	302µ	0.0096	20
17	E3c	p-shell	1.35082	31.8m	208µ	0.0088	27
18	E3d	p-shell	1.35122	32.2m	64.2µ	0.0022	22
19	E4	p-shell	1.35167	32.6m	417µ	0.0303	46
20	E5	p-shell	1.35300	33.9m	330µ	0.0100	19
21	E6	p-shell	1.35439	35.3m	96.9µ	0.0013	9
22	WL	WL	1.37772	58.7m	972µ	340.4243	222889

Abbildung 7.7 Auswertung der intensitätsabhängigen Messungen an einem Beispielspektrum mit nicht-resonanter Anregung bei 1442 meV (860 nm) mit einem LCVR Bias von 2,6 V und einer Leistung von 1095 μW



Fitting Results (energies in eV)

Peak Index	Name	Interpretation	Center Max	Delta E	FWHM	Area Fit	Max Height
1	L10	QD B	1.30864	-10.3m	154µ	0.0022	9
2	L8	3X	1.31473	-4.25m	500µ	0.0058	7
3	L7		1.31555	-3.43m	211µ	0.0088	26
4	L6	2X	1.31634	-2.64m	500µ	0.0060	8
5	L4	X+?	1.31801	-967µ	500µ	0.0130	17
6	L1	X	1.31898	0.00	111µ	0.0482	278
7	L0		1.31960	616µ	195µ	0.0089	29
8	P36	GaAs LO / IF	1.32897	9.99m	147µ	0.0340	148
9	P33	GaAs TO	1.33185	12.9m	110µ	0.0040	23
10	E0	p-shell	1.34554	26.6m	2.26m	0.0531	22

Abbildung 7.8 Auswertung der intensitätsabhängigen Messungen an einem Beispielspektrum mit resonanter Anregung bei 1365 meV (908 nm) mit einem LCVR Bias von 2,65 V und einer Leistung von 1104 μW

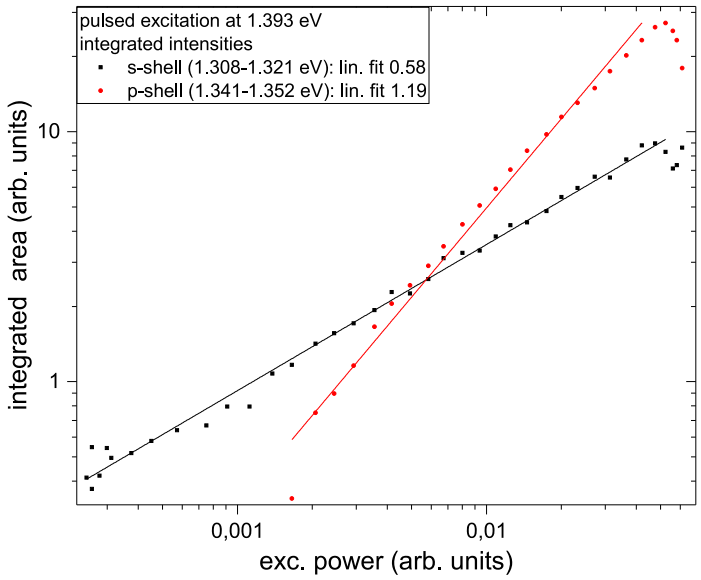


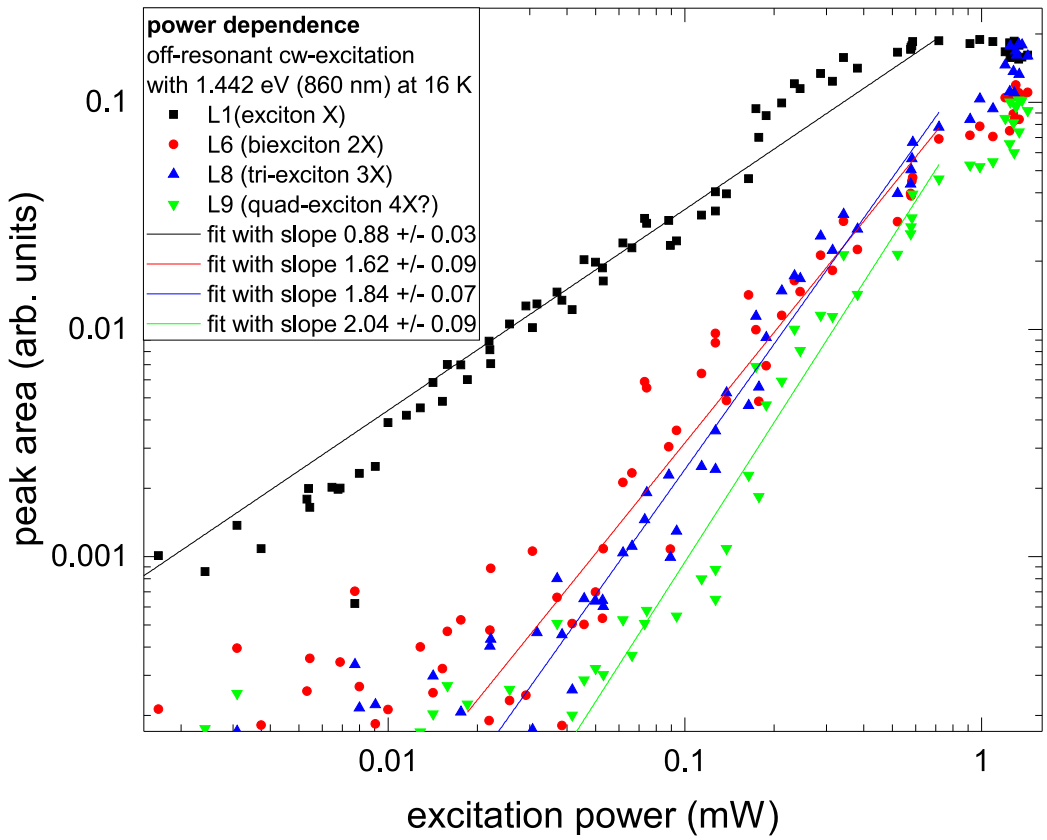
Abbildung 7.9 Auswertung der Intensitätsabhängigkeit der s- und p-Schale bei gepulster nicht-resonanter Anregung bei 1393 meV (890 nm). Die p-Schale weist wie erwartet eine steilere Steigung auf als die s-Schale.

7.2.4.4 Intensitätsabhängigkeit bei nicht-resonanter Anregung

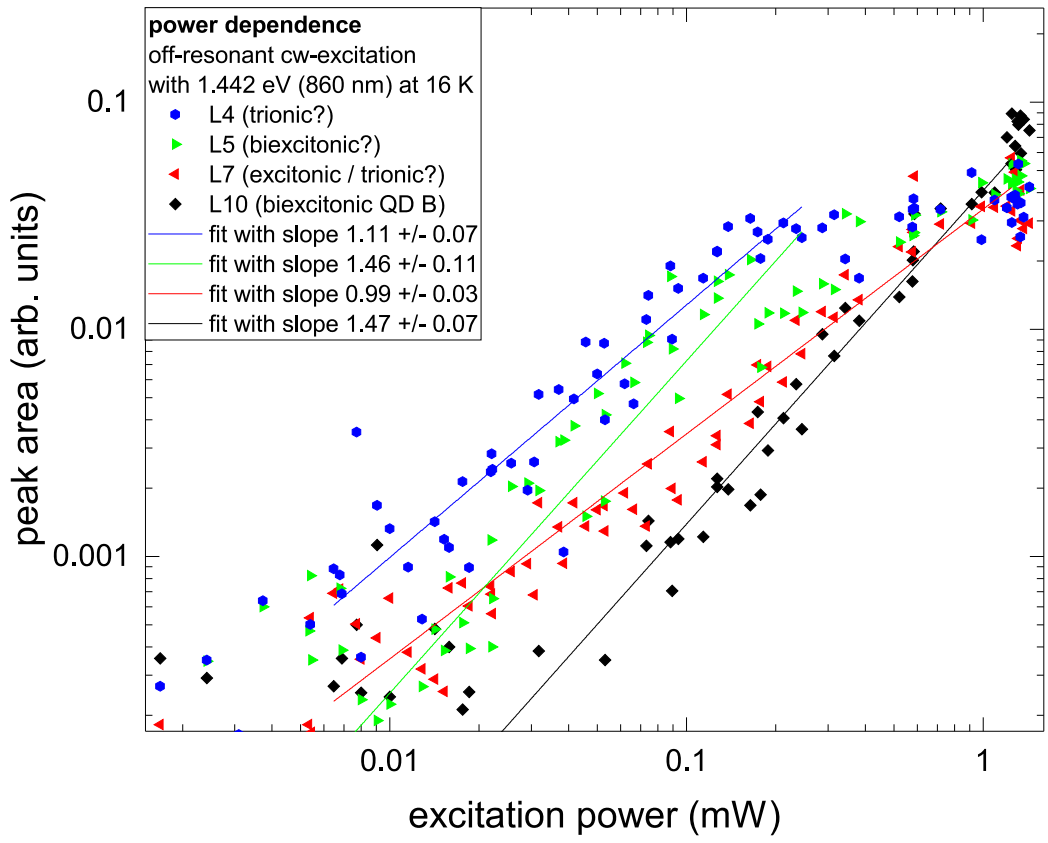
Unter nicht-resonanter Anregung bei 1442 meV ist bei geringer Anregungsleistung nur die Linie L1 sichtbar. Bei höheren Anregungsleistungen kommen auf niederenergetischer Seite die Linien L4 bis L10 hinzu sowie auf hochenergetischer Seite die Linien E0 bis E5 und dazwischen noch einige nicht weiter untersuchte Peaks Ia bis Ic. Vor allem die Linien L1, L6, L8 und L9 zeigen unterschiedliche Intensitätsabhängigkeiten, die in Abb. 7.10 auf der nächsten Seite dargestellt werden: Die Steigungen der Geraden durch die Messpunkte für L1 und L6 von 0,88 $\pm$ 0,03 und 1,62 $\pm$ 0,09 entsprechen ungefähr dem erwarteten Verhältnis von 1 zu 2 und bestätigen die Zuordnung als X und 2X. Die Steigungen für die Geraden durch L8 und L9 von 1,84 $\pm$ 0,09 und 2,04 $\pm$ 0,09 legen die Interpretation als Multiexzitonen 3X und 4X nahe. Die Intensitätsabhängigkeit der schwächeren Linien L4, L5, L7 und L10 wird ebenfalls untersucht: Die Steigungen der Geraden für L4 mit 1,11 $\pm$ 0,07 und L7 mit 0,99 $\pm$ 0,03 legen einen exzitonischen oder trionischen Charakter nahe. Die Geraden für L5 mit Steigung 1,46 $\pm$ 0,11 und für L10 mit 1,47 $\pm$ 0,07 sprechen für einen biexzitonischen Charakter der Linien.

7.2.4.5 Intensitätsabhängigkeit bei resonanter Anregung

Bei resonanter Anregung mit 1365 meV wird das Spektrum von den Linien L0, L1 und L7 dominiert, L6 ist nur schwach zu erkennen, L8 bis L10 noch weniger. Auf hochenergetischer Seite treten die Phononenlinien 36 und 33 meV unterhalb der Linie des Anregungslasers auf, sowie eine breite Lumineszenz E0 bei 1345 meV, die vermutlich von angeregten Zuständen in der p-Schale stammt. Die beobachteten Lumineszenzlinien zeigen kein Sättigungsverhalten und haben alle eine recht ähnliche sub-lineare Intensitätsabhängigkeit, daher wird diese hier nicht weiter ausgewertet.



a

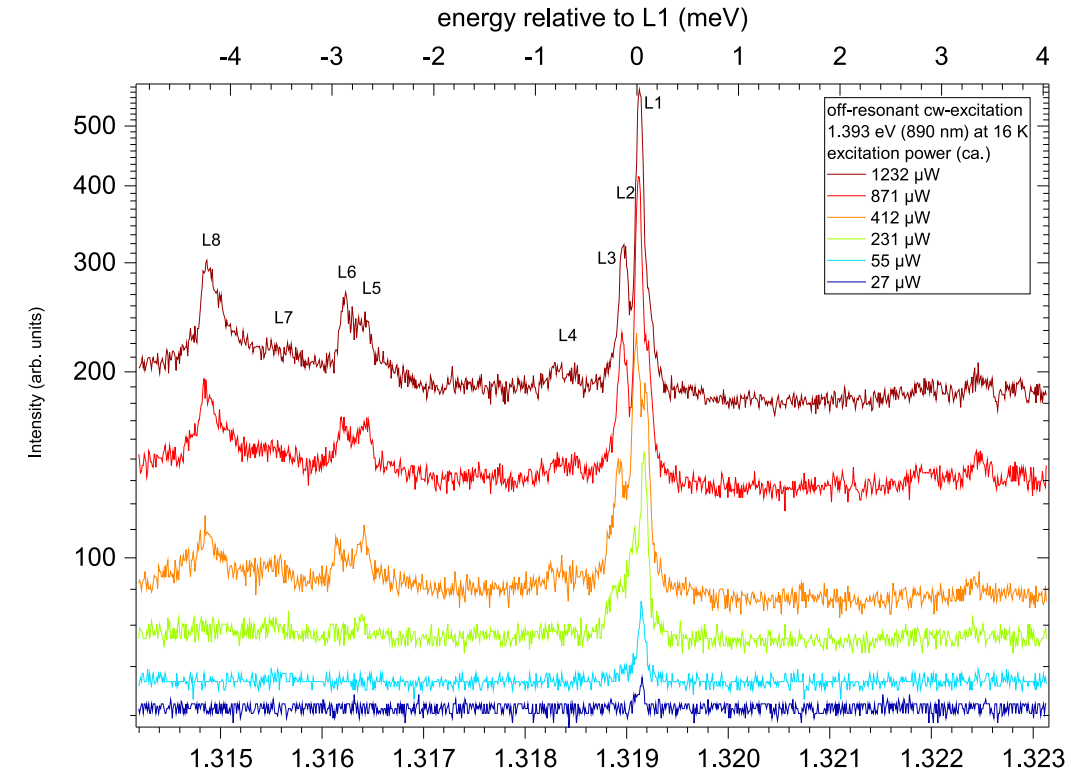


b

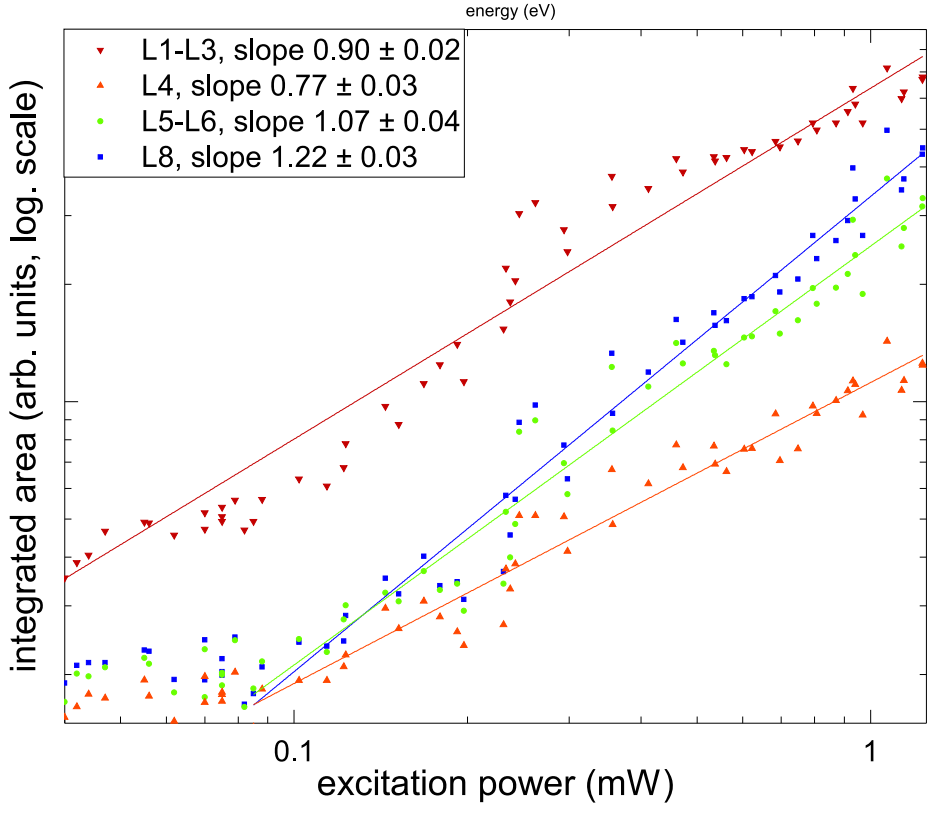
Abbildung 7.10 Auswertung der Intensitätsabhängigkeit von X (L1), 2X (L6) und 3X (L8) bei nicht-resonanter Anregung bei 1442 meV (860 nm). Die Steigungen von 0,88 ± 0,03 bzw. 1,62 ± 0,09 entsprechen ungefähr dem erwarteten Verhältnis von 1 zu 2, die Steigungen für 3X von 1,84 ± 0,09 und 4X mit 2,04 ± 0,09 liegen wie erwartet darüber.

7.3 Diskrete spektrale Diffusion bei Hochanregung

Bei nicht-resonanter Anregung oberhalb des WL lassen sich bei ausreichend hoher Anregungsintensität in der direkten Umgebung des Exzitons bei 1319 meV drei Lumineszenzlinien L1 bis L3 mit einem Abstand und einer Halbwertsbreite von jeweils etwa 100 μeV auflösen: L1 bei 1319,1 meV, L2 bei 1319,0 meV und L3 1318,9 meV, wobei L1 vermutlich X0 entspricht. Die Linien L0 und L7 als Phononenreplika des angeregten Zustands sind bei dieser Anregung nicht mehr sichtbar. Es tritt jedoch eine Linie L4 niederenergetisch vom Exziton bei 1318,1 meV (940,6 nm) auf, die mit steigender Anregungsintensität stärker wird. Neben dem Biexziton L6 bei 1316,2 meV (942,0 nm) erscheint eine weitere Linie L5 bei 1316,3 meV (941,9 nm), sowie niederenergetisch davon eine Linie L8 bei 1314,7 meV (943,0 nm).
Die dreifache Aufspaltung der Exzitonenlinie lässt sich mit diskreter spektraler Diffusion erklären: Bei Anregung oberhalb des WL (jedoch unterhalb der GaAs Bandkante E_g von 1519 meV (816 nm) bei tiefen Temperaturen) werden bei ausreichend hoher Anregungsleistung bestimmte Defekte in der Nähe des QD aufgeladen. Dadurch kommt es zu einer leichten Verschiebung der Lumineszenz zu niedrigeren Energien um etwa 100 μeV. Diese Verschiebung tritt sowohl beim Exziton X0 als auch beim Biexziton XX auf und ist jeweils ungefähr gleich groß. Es kommt zu einer scheinbaren Verbreiterung und Aufspaltung dieser Linien. Ursache dieser Verschiebung ist der quadratische quantum confined Stark effect (QCSE) durch einen vermutlich negativ geladenen Defekt einige 10 nm vom QD entfernt.
Laut [Lem01] ist für eine einzelne punktförmige Ladung 20 nm vom QD entfernt ein elektrisches Feld von etwa 2,5 kv/cm zu erwarten, was zu einer Rotverschiebung von 0,2 bis 1 meV führt. Die hier gemessene Verschiebung von 0,1 meV spricht für einen geladenen Defekt, der weiter als 20 nm entfernt ist.
Die Aufspaltung der Linien könnte auch als mehrere Multiexzitonen interpretiert werden, jedoch zeigen zeitaufgelöste Messungen am gesamten Linien-Triplett keine Veränderung der Zerfallszeit und nur einen monoexponentiellen Zerfall. Die einzelnen Linien lassen sich im tr-PL-Setup leider nicht auflösen, man würde für ein Triplett aus Multiexzitonen jedoch mehrere Zerfallszeiten erwarten. Die Anklingzeit der Linie nimmt mit steigender Anregungsintensität zu, dies lässt auf eine Umladung der Defekte schließen. Ein weiteres Indiz gegen Multiexzitonen ist, dass die Linie L3 in der polarisationsabhängigen Messung ungefähr die gleiche Polarisation hat wie L1 (siehe Abb. 7.5 auf Seite 59). Dies spricht auch dagegen, dass die Aufspaltung zu L2 und L3 als Feinstrukturaufspaltung interpretiert wird. Auch die Autokorrelationsmessungen lassen darauf schließen, dass es sich um Lumineszenzen des gleichen Zustands handelt: Der Bandpass für die Autokorrelationsmessung ist mit ca 0,4 meV so groß, dass bei nicht-resonanter Anregung das gesamte Triplett L1-L3 gemessen wird, trotzdem wird ein Antibunching mit einem $g^{(2)}(0)$=0,56 erreicht, was bei Lumineszenzen von unterschiedlichen QDs oder von verschiedenen Zuständen nicht der Fall wäre.
Eine weitere mögliche Interpretation wäre eine Linienaufspaltung durch den Rashba-Effekt, hierauf wird in Abschnitt 7.5 auf Seite 70 eingegangen.



a



b

Abbildung 7.11 a) Intensitätsabhängige hochaufgelöste μPL-Spektra bei nicht-resonanter Anregung mit 1393 meV b) Integrierte Intensität der Peaks L1 bis L3, L4, L5 bis L6 sowie L8 über der Anregungsintensität in doppellogarithmischer Darstellung. Die nahezu lineare Steigung der Fits für L1-L3 wird als exzitonisches Verhalten interpretiert, die überlineare Steigung der Fits von L5-L6 und L8 als multiexzitonisches Verhalten.

7.4 Interpretation der Photolumineszenz mit Hilfe der Literatur

Zur vollständigen Interpretation der μPL-Spektren wären ausführliche Rechnungen hilfreich, etwa in Form von 8-Band-k·p-Simulationen, wie sie etwa von Schliwa *et al.* gerechnet wurden [Sch07a, Sch07b, Sch09b]. Derart ausführliche theoretische Simulationen zu diesen spezifischen QDs übersteigen jedoch den Umfang dieser Arbeit. Ein weiterer Ansatz zur Interpretation der μPL-Daten ist der Vergleich mit der Literatur, insbesondere mit den Ergebnissen von Benny *et al.* [Ben11, Ben12, Sch14a, Sch16]. Die dort veröffentlichen μPL-Spektren weisen eine große Ähnlichkeit mit unseren Spektren auf, obwohl es sich um MBE-gewachsene QDs mit einer Exzitonen-Emmision um 1.280 eV handelt. Die Abstände der verschieden Emissionslinien im PL-Spektrum sind jedoch sehr ähnlich zu unseren Linien, was darauf schließen lässt, dass die Energieabstände der Elektronen und Löcher sehr ähnlich sind. Auch bei den μPLE-Spektren lassen sich viele Gemeinsamkeiten finden, siehe Kapitel 8 ab Seite 73. Bei Benny *et al.* wurden die μPL- und μPLE-Spektren polarisationsabhängig gemessen, was genauere Aussagen über die beobachteten Übergänge zulässt. Bei uns wurden beide Polarisationen gemeinsam gemessen, dennoch ergeben sich starke Ähnlichkeiten, die eine Zuordnung der Linien ermöglichen.
Die Zuordnung von einfach, zweifach und dreifach Exziton X, 2X und 3X zu L1, L6 und L8 wurde bereits zuvor durch anregungs- und polarisationsabhängige Messungen getroffen, sie passt jedoch gut zu den Spektren von Benny *et al.* Anhand der Ähnlichkeit dieser Spektren erfolgt die Zuordnung des positiv geladenen Trions X^+ zu L4. Die Emissionen des angeregten Trions könnten dann L0 (Singulett Übergang X_S^+) und Linien im Untergrund um L8 herum (Triplett Übergang $X_{T\pm3}^+$) zugeordnet werden. Die Lumineszenz von L9 könnte nach diesem Vergleich der Emission des metastabilen spin-blockierten Loch-Triplett-Zustands des ersten angeregten Biexzitons XX_T^* zugeordnet werden [Ben11, Ben12]. Die Anregungsabhängigkeit dieser Linie spricht jedoch eher auch für ein Multiexziton, etwa das Quad-Exziton 4X, siehe Abb. 7.10 auf Seite 65. Weitere PL Emissionen (hier nicht gezeigt), die jedoch im Untergrund untergehen, lassen sich etwa 9 bis 10 meV oberhalb von L1 finden, diese werden bei Benny *et al.* angeregten Biexzitonen-Emissionen zugeordnet [Ben11].

7.4.1 Identifikation der den Emissionslinien zugrunde liegenden Übergänge

Der Zustand eines einzelnen Ladungsträgers wird bei Benny *et al.* wie folgt beschrieben: Die erste Zahl O=1,2,...,6 gibt das Energieniveau des Orbitals an, wobei O=1 den Grundzustand beschreibt. Der folgende Buchstabe e oder h steht für Elektron oder Loch und die darauffolgende Zahl beschreibt den Besetzungszustand mit entweder 1 (1 Ladungsträger, offene Schale) oder 2 (2 Ladungsträger, geschlossene Schale). Das Exziton im Grundzustand X0 wird also durch $(1e^1)(1h^1)$ beschrieben.
Relativ klar sind die Zuordnung des Exzitons (X0) (Übergang $(1e^1)(1h^1) \rightarrow 0$) bei 1319,0 meV (L1) und des Biexzitons (XX) (Übergang $(1e^2)(1h^2) \rightarrow (1e^1)(1h^1)$ bei 1316,2 meV (L6). Weitere Linien werden Phononen-Replika eines angeregten Zustands X1-37meV bei 1319,6 meV (L0) und X1-42meV bei 1315,5 meV (L7) zugeordnet. Demnach läge X1 bei 1356,6 bis 1357,5 meV. Bei nicht-resonanter Anregung ist dort jedoch keine Lumineszenz zu sehen, nur in der PLE zeigt sich eine deutliche Resonanz für diese beiden Linien und X0 bei Anregung bei etwa 1357 meV.

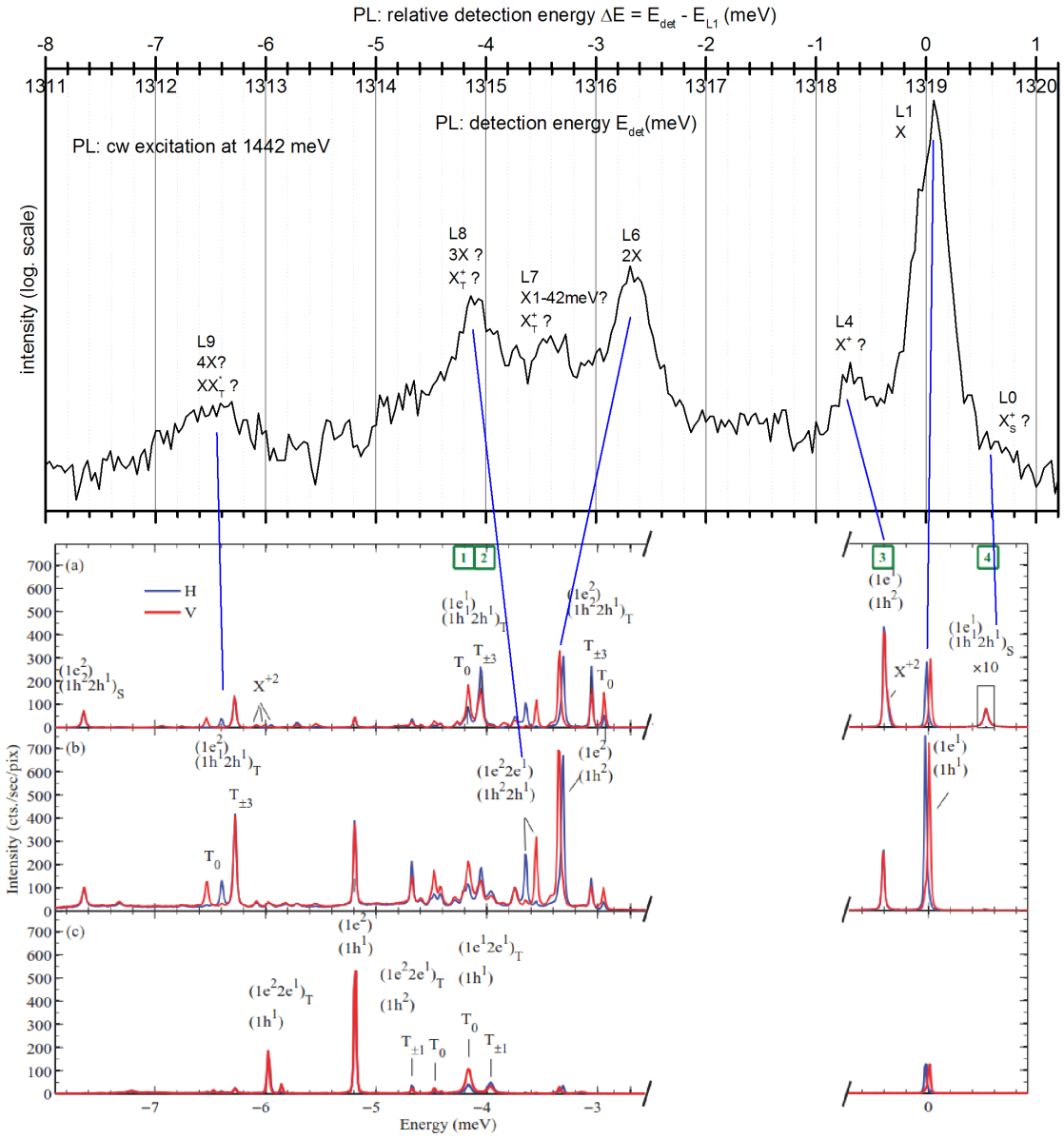


Abbildung 7.12 Vergleich der μPL-Spektren mit den Ergebnissen von Benny *et al.* (unten) [Ben12]. Die Zuordnung von einfach, zweifach und dreifach Exziton X, 2X und 3X zu L1, L6 und L8 wurde bereits zuvor durch anregungs- und polarisationsabhängige Messungen getroffen, sie passt jedoch gut zu den Spektren von Benny *et al.* Anhand der Ähnlichkeit dieser Spektren erfolgt die Zuordnung des positiv geladenen Trions X^+ zu L4. Die Emissionen des angeregten Trions könnten dann L0 (Singulett Übergang X_S^+) und Linien im Untergrund um L8 herum (Triplett Übergang $X_{T\pm3}^+$) zugeordnet werden.

Bei nicht-resonanter Anregung sind jedoch scharfe Linien etwa 29 meV oberhalb von X0 zu sehen bei 1344 und 1347 meV. Bei nah-resonanter Anregung ist im Bereich um 1345 meV nur ein breiter Buckel zu sehen. Könnten diese Linien dem von Benny nur als Anregungskanal beschriebenen Übergang $(2e^1)(1h^1) \rightarrow 0$ entsprechen? Von der Energie her könnte dann der oben gesuchte Übergang X1 dem Übergang $(2e^1)(2h^1) \rightarrow 0$ entsprechen, den Benny als Anregungskanal des Exzitons bei etwa 44 meV sieht.

7.5 Interpretation von L7 und L0

Während sich die exzitonischen Linien L1 bis L3, die biexzitonischen Linien L5 bis L6 und die multexzitonischen Linien L8 bis L9 anhand der intensitäts- und polarisationsabhängigen Messungen recht gut zuordnen lassen, ist die Zuordnung von L0 und L7 etwas komplexer. Beide Linien tauchen vor allem bei resonanter Anregung mit moderater Anregungsleistung auf und zeigen in den PLE-Spektren gemeinsame Resonanzen mit L1 und deutliche Resonanzen mit verschiedenen Phononen-Energien. Mögliche Interpretationen sind:

- Rekombinationen des angeregten Trions wie in [War09b, Sie09, War09a] beschrieben: Für ein Trion sprechen die Position im Spektrum und die PLE-Konturplots, die jenen aus Warming *et al*. ähneln. Gegen ein Trion spricht jedoch die gemessene FSS, die ein Trion nicht aufweisen sollte.

- Strahlende Rekombination des Exziton dark-states, möglich gemacht durch spin-flip durch Phononen oder Strain: Für den dark-state spricht der energetische Abstand zum Exziton bright-state: Hartree-Fock Feinstruktur-Rechnungen von G. Hönig prognostizieren ein dark-bright-splitting von $>$ 3 meV für QDs mit einer Emissionsenergie von $>$ 1,2 eV [Hön13]. Es könnte sich auch um die Rekombination eines Hybrid-Biexziton handeln wie in [Hön14] beschrieben, dagegen spricht jedoch die kürzere Rekombinationszeit in tr-PL und dass L7 mit steigender Temperatur eher an Intensität verliert denn gewinnt. Ein möglicher Prozess, der die strahlende Rekombination des dark-state Exzitons möglich machen könnte, ist die Durchmischung mit dem bright-state durch Phononen, wie er in [Rod16] beschreiben ist. Hierbei kann es, wenn die Phononenenergien in der Nähe der exzitonischen Übergänge liegen, durch den Rashba-Effekt zu einer Verschiebung des Triplet-Zustands durch den Rashba-Effekt kommen, so dass gleich drei helle exzitonische Übergänge auftreten. Dies würde gut zu den in Abb. 7.11 auf Seite 67 abgebildeten Spektren mit der dreifachen Aufspaltung des Exzitons passen, jedoch wurde diese Form des Rashba-Effekts bisher nur für Perovskit-Nanokristalle berechnet und beschrieben [Bec18]. Es müsste in weiteren theoretischen Rechnungen geprüft werden, ob er auch in InGaAs QDs auftreten könnte. Gegen die Rekombination des dark-state Exzitons spricht zudem wieder die gemessene FSS, die größer ist als die des Exzitons, aber eher kleiner sein sollte.

- Rekombinationen des angeregten Exzitons (s-Schalen-Elektron, p-Schalen-Loch) wie in [Sze15] unter Beteiligung von Phononen: Für die Rekombination eines angeregten Exzitons unter Phononen-Beteiligung spricht, dass die Abstände von L0 und L7 den Energien verschiedener am QD auftretender Phononen entsprechen. So liegt L7 etwa 32 bis 33 meV (QD-Phonon-Energie) unter E1 und E2 sowie etwa 42 meV (AlGaAs LO Phononen Energie) unter X1 und L0 liegt etwa 37 meV (GaAs LO/IF Phonon) unter X1. Zudem liegen L7 und L0 energetisch in einem so geringen Abstand zu L1 (kleiner 10 meV), dass in diesem Bereich auch noch Wechselwirkung mit akustischen Phononen stattfinden könnte. In diesem Fall müssten die oben genannten Abstände der Summe von optischen und akustischen Phononen entsprechen, wie es im Bulk bereits beobachtet wurde [Bla82].
  Diese Interpretationsmöglichkeit für die beobachtete mehrfache Resonanz unter Phononenbeteiligung, also etwa durch den resonanten Ramaneffekt, wird im Folgenden näher untersucht.

8 Elektronische und phononische Resonanzen

8.1 Anregungsabhängige Spektroskopie

In den bisher vorgestellten Messungen haben die QDs teilweise stark unterschiedliches Lumineszenzverhalten gezeigt, je nachdem ob sie in Resonanz oder nicht-resonant bzw. sogar oberhalb der Bandkante angeregt wurden. Dieses Verhalten wird im Folgenden mit Hilfe von μPLE-Messungen genauer ergründet. Durch Variation der Anregungsenergie können so Anregungskanäle und Transferprozesse untersucht werden. Auch die Wechselwirkung mit Phononen wird im Detail untersucht.

8.1.1 Durchführung der energieabhängigen μPL-Messungen

Um genauer zu untersuchen, was zwischen der nicht-resonanten und der resonanten Anregung geschieht, wurden energieabhängige μPL-Messungen durchgeführt. Bei einer Temperatur von 16 K wurde die Probe mit dem TiSa angeregt, wobei die Anregungsenergie in 200 Schritten zwischen 1349,2 und 1401,1 meV variiert wurde (885,2 bis 919,2 nm). Für jede Anregungsenergie wurde ein Spektrum mit einer Integrationszeit von 5 s bei hoher Auflösung über den Bereich von 1312,8 bis 1325,3 meV (935,5 bis 944,5 nm) aufgenommen. Dabei wurde die Anregungsintensität mittels des LPCs konstant gehalten. Zur Unterdrückung des Laserstreulichts wurde ein 940 nm Langpass-Kantenfilter genutzt. Diese Daten werden als Konturplot mit Anregungsenergie E_{exc} über Detektionsenergie E_{det} aufgetragen, wobei die Intensität durch die Farbe bzw. Helligkeit des Pixels kodiert ist, siehe Abb. 8.1 auf der nächsten Seite.
Diese hochaufgelösten Spektren erlauben die genaue Untersuchung der exzitonischen Linien. Allerdings kann die Anregungswellenlänge nicht näher als 24 meV an die Detektionswellenlänge gefahren werden, ohne dass Laserstreulicht die Detektion stört. Dies liegt daran, dass alle drei Stufen des Spektrometers additiv für eine höhere Auflösung genutzt wurden. Nutzt man hingegen die ersten beiden Stufen im subtraktiven Modus zu Streulichtunterdrückung, so erhält man zwar eine geringere spektrale Auflösung, kann jedoch mit der Anregung näher an die Detektion heranfahren. Hierbei wurde zusätzlich zur Unterdrückung des Laserstreulichts ein 930 nm Langpass-Kantenfilter verwendet. In dieser Konfiguration wurden ebenfalls energieabhängige μPL-Spektren aufgenommen, und zwar über einen Spektralbereich von 1277,8 bis 1321,6 meV (970 bis 938 nm) in der Detektion mit einer Anregung von 1325,0 bis 1442,3 meV (936 bis 860 nm) in 3000 Schritten. Die Spektren wurden mit einer Integrationszeit von jeweils 5 s bei 6 K aufgenommen, siehe Abb. 8.2 auf Seite 75 für die Gesamtdarstellung der Messungen und Abb. 8.3 auf Seite 76 für einen Ausschnitt der Messung um die untersuchten QD-Linien mit den Bezeichnungen und Interpretationen aus Kapitel 7 **Optische Charakterisierung der exzitonischen Struktur** ab Seite 51.

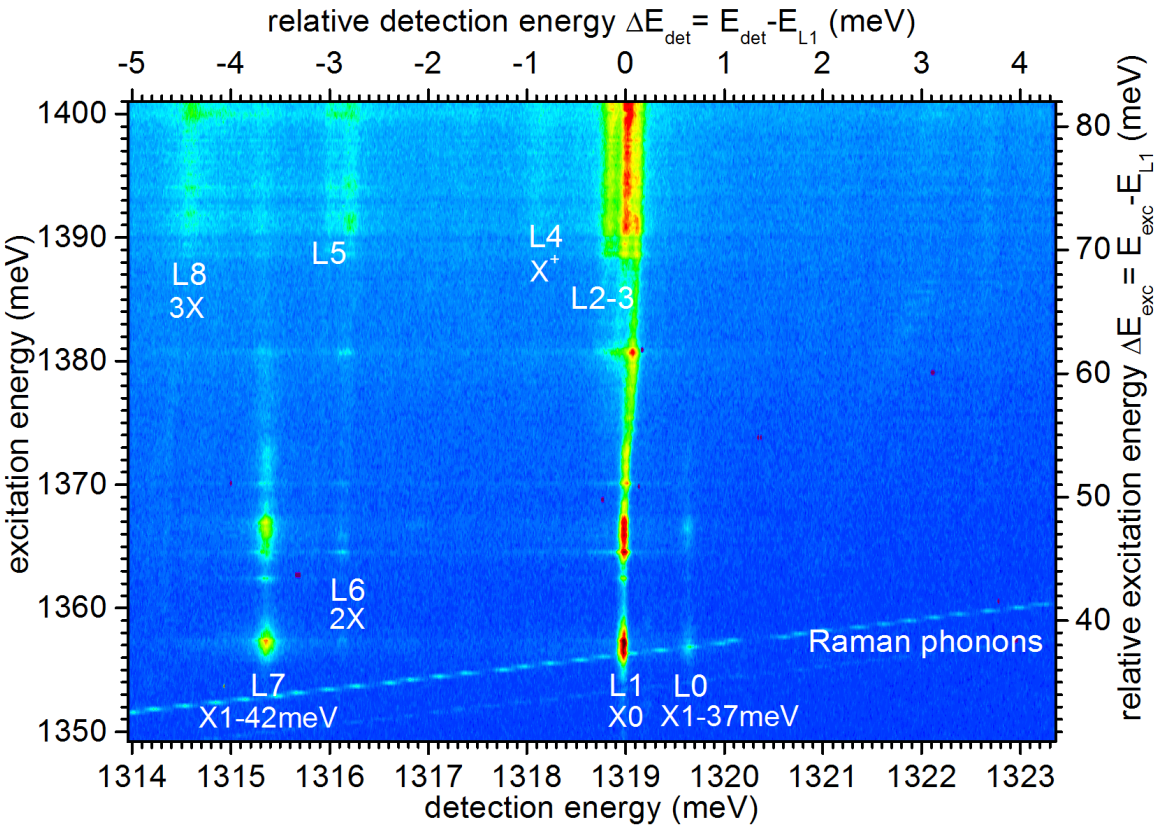


Abbildung 8.1 Hochaufgelöster energieabhängiger μPL-Konturplot mit Detektion von 1312,8 bis 1325,3 meV und Anregung von 1349,2 und 1401,1 meV. Die Resonanzen von L0, L1 und L7 sind deutlich zu erkennen, ebenso wie das zusätziche Auftreten der Linien L2 und L3 sowie L5 durch diskrete spektraleDiffusion bei Anregung oberhalb des WL.

8.1.2 Beschreibung der energieabhängigen μPL-Konturplots

In beiden Messungen sind deutlich die Phononen zu erkennen, die mit der Anregungsenergie durch das Spektrum schieben. Die intensivsten QD-Linien sind exzitonischer Natur, und zwar L1 (Exziton X0) sowie die Linien L0 und L7. Da diese Linien nur auftreten, wenn ein Phonon in Resonanz mit einem angeregten Zustand des Exzitons ist, werden sie, wie schon als eine Möglichkeit in Abschnitt 7.5 auf Seite 70 diskutiert, als Phononen-assistierte Rekombination von angeregten Zuständen des Exzitons X1-37meV (L0) und X1-42meV (L7) interpretiert.
Bei resonanter und nah-resonanter Anregung unterhalb des WL ($E_{exc} < 1370meV$) sind ausschließlich diese Linien zu sehen, sie sind relativ scharf, L1 hat eine Halbwertsbreite von 56 μeV. Bei einer Anregung im WL zwischen 1370 und 1380 meV kommt es zu einer Verbreiterung und zu einer Blauverschiebung dieser Linien um etwa 140 μeV. Wird oberhalb des WL angeregt, treten weitere Linien auf bzw. spalten die vorhandenen Linien auf: Statt der Exziton-Linie L1 ist dort ein Triplett L1-L3 aus drei etwa 100 μeV breiten und 100 μeV voneinander entfernten Linien zu sehen, auch das Biexziton L6 scheint aufzuspalten. Dieses Verhalten wurde schon unter dem Begriff diskrete spektrale Diffusion in Abschnitt 7.3 auf Seite 66 näher behandelt. Durch die nicht-resonante Anregung gelangen mehr Ladungsträger zum QD, einige werden anscheinend auch an Defekten in der Nähe des

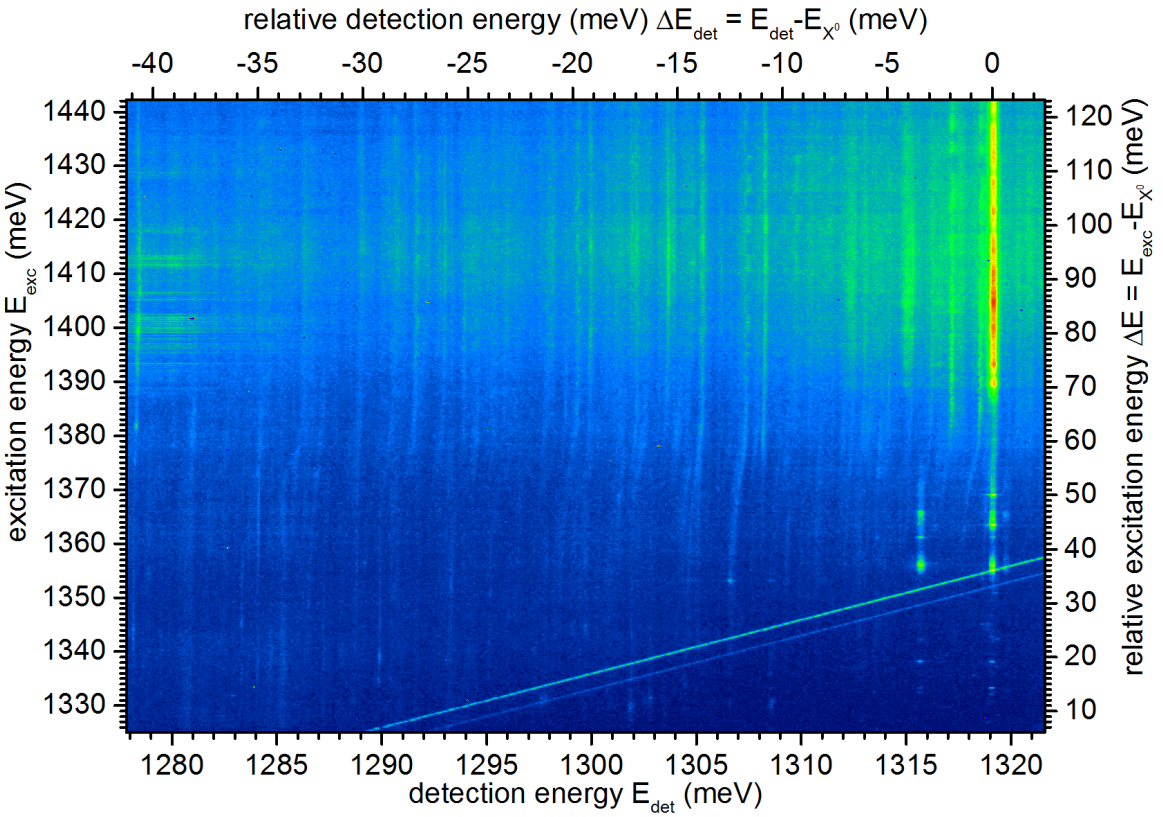


Abbildung 8.2 Energieabhängige μPL-Konturplot Übersicht mit Detektion von 1277,8 bis 1321,6 meV und Anregung von 1325,0 bis 1442,3 meV. Viele Linien auf der niederenergetischen Seite der QD-Linien zeigen eine ähnliche Verschiebung zu höheren Energien bei Anregung oberhalb des WL.

QD gebunden. Die Linie L4 erscheint und wird im Vergleich mit [Ben12] als positiv geladenes Trion interpretiert. Anscheinend ist bei nicht-resonanter Anregung oberhalb des WL ein Überschuss an positiven Ladungsträgern in der Nähe des QDs vorhanden, wodurch vermehrt Lumineszenz positiv geladener Trionen auftritt.

In den energieabhängigen μPL-Konturplots mit größerem Detektionsbereich, also Abb. 8.2 bis 8.3 auf den Seiten 75–76, werden auch Lumineszenzlinien benachbarter QDs mit detektiert. Vor allem in Abb. 8.2 erkennt man, dass sehr viele Linien auf der niederenergetischen Seite ein ähnliches Schieben zu höheren Energien bei Anregung oberhalb des WL zeigen wie die untersuchten Linien von QD B. In Abb. 8.3 auf der nächsten Seite wurden einige Linien QD B zugeordnet und anhand ihres Verlaufs und ihrer energetischen Position eine erste Zuordnung vorgenommen.

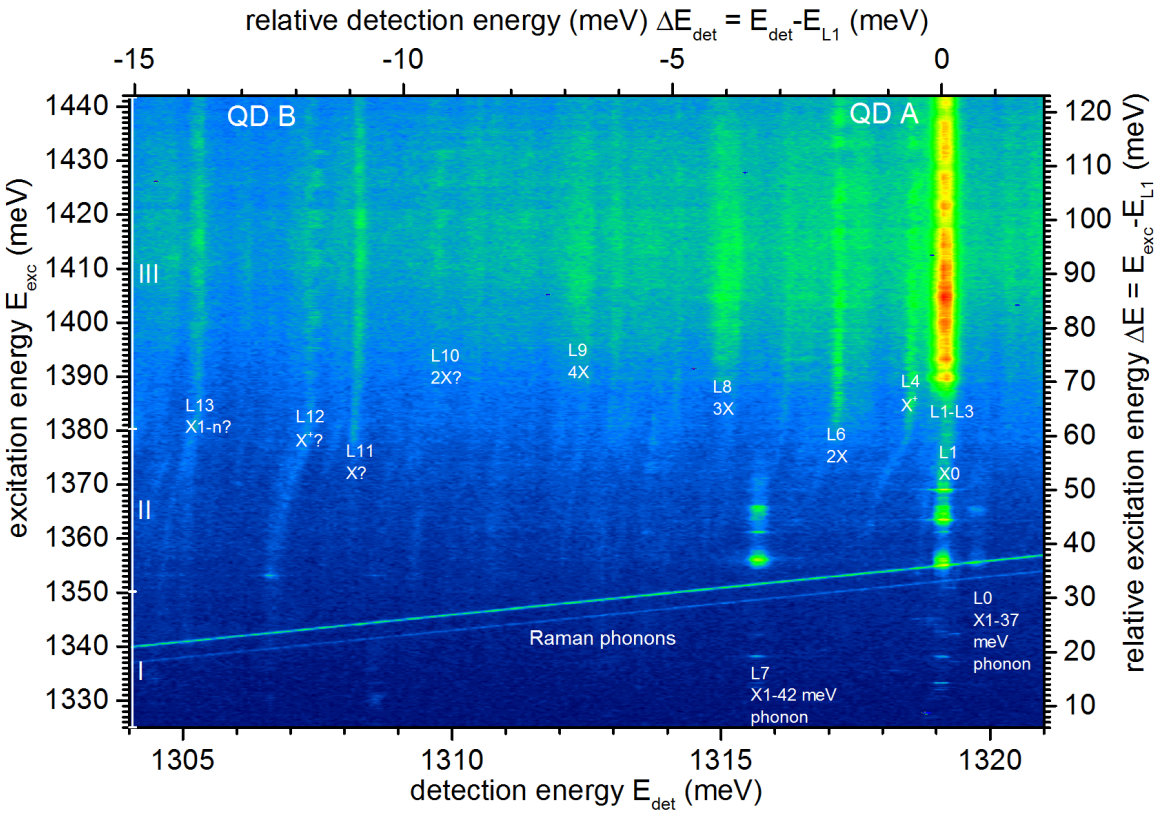


Abbildung 8.3 Energieabhängiger μPL-Konturplot Bereich mit den in Kapitel 7 ab Seite 51 beschriebenen QD-Linien und deren möglicher Interpretation. Die Detektion reicht von 1304 bis 1321 meV, die Anregung von 1325 bis 1442 meV. Die Resonanzen von L0, L1 und L7 sind klar zu erkennen. Auf niederenergetischer Seite der QD-Multiexzitonen-Linien L6, L8 und L9 werden einige Linien l10 bis L13 des benachbarten QD B identifiziert. Im nah-resonanten Gebiet I für E_{exc} zwischen 1325 und 1350 meV, also näher als 30 meV an L1, treten scharfe Resonanzen der Linien L0, L1 und L7 auf. Im Gebiet II für E_{exc} zwischen 1350 und 1380 meV, also 30-60 meV über L1, treten für diese Linien breitere Resonanzen zusammen mit Phononen auf. Im Gebiet III für E_{exc} größer als 1380 meV, also mehr als 60 meV über L1, liegt nicht-resonante Anregung oberhalb des WL vor.

8.2 Auswertung der μPLE-Spektren

Die Intensität einer untersuchten Emissionslinie mit der Detektionsenergie E_{det} kann auch über der Anregungsenergie aufgetragen werden, dann erhält man PLE-Spektren (Photolumineszenz-Anregungsspektroskopie, englisch photoluminescence excitation spectroscopy, PLE). In diesen lassen sich die Anregungskanäle der untersuchten Übergänge ablesen. PLE-Spektren können entweder über der absoluten Anregungsenergie E_{exc} oder über der relativen Anregungsenergie $\Delta E = E_{exc} - E_{det}$ aufgetragen werden. Letzteres erlaubt beim Vergleich der PLE-Spektren verschiedener Emissionslinien unter anderem die schnelle Identifikation phononischer Anregungen bei Resonanzen bei gleichen, materialtypischen Werten für ΔE.

Die μPLE-Messungen zeigen verschiedene Anregungsgebiete, in denen unterschiedliche Anregungs-

prozesse dominieren: Im nah-resonanten Gebiet I für E_{exc} zwischen 1325 und 1350 meV, also näher als 30 meV an L1, dominieren scharfe diskrete elektronische Übergänge, die im Folgenden noch näher bestimmt werden müssen. Im Gebiet II für E_{exc} zwischen 1350 und 1380 meV, also 30-60 meV über L1, dominiert die Anregung über Phononen sowie in angeregte exzitonische Zustände, die sich zum Teil als breitere Resonanzen im PLE-Spektrum zeigen. Schließlich im Gebiet III für E_{exc} größer als 1380 meV, also mehr als 60 meV über L1, liegt nicht-resonante Anregung oberhalb des WL vor. Hier dominieren Mehrphononen-Prozesse sowie verbreiterte Übergänge zwischen gebundenen Zuständen und dem Kontinuum des WL [Tod99, Vas02, Oul03]. Gebiet I und II der PLE-Spektren sind vergrößert in Abb. 8.6 auf Seite 81 dargestellt, Gebiet III ist in den Übersichts-PLE-Spektren in Abb. 8.5 bis 8.5 auf Seite 80 dargestellt.
Die Zuordnung der beobachteten Phononenmoden, die vor allem in Gebiet II auftreten, erfolgt in Abschnitt 8.3 auf Seite 83 anhand des Vergleichs mit bekannten materialtypischen Phononenenergien aus der Literatur.
Die Zuordnung der beobachteten elektronischen Resonanzen vor allem in Gebiet I erfolgt durch Vergleich mit veröffentlichen Messungen und Rechnungen, vor allem von Benny *et al*. [Ben11, Ben12], aber auch von Schliwa und Winkelklemper [Sch07b, Sch09b] sowie Warming *et al*. [War09b]. Diese Zuordnung wird in Abschnitt 8.4 auf Seite 85 diskutiert.
Die Zuordnung der Lumineszenzlinien erfolgte bereits in Abschnitt 7.2 auf Seite 55 anhand der leistungsabhängigen und polarisationsabhängigen Messungen, außerdem anhand der energetischen Position relativ zueinander im Vergleich mit veröffentlichen Messungen und Rechnungen, sie sind in Tabelle 7.1 auf Seite 54 zusammengefasst. Den Konturplots und PLE-Spektren können zahlreiche Resonanzen der beobachteten Lumineszenzlinien entnommen werden, von denen die wichtigsten in Tabelle 8.1 auf der nächsten Seite zusammengefasst sind und interpretiert werden. Dort sind nur die Resonanzen für die exzitonischen Linien L0, L1 und L7 aufgeführt, die zu QD A gehören und elektronische Resonanzen zeigen. Bei den anderen Linien von QD A (L4, L6, L8, L9) treten nahezu ausschließlich Resonanzen im Zusammenhang mit Phononen auf, die schon bei den exzitonischen Linien diskutiert wurden.
Die Linien von QD B zeigen ein sehr ähnliches Resonanzverhalten, daher sind deren Resonanzen für die Linien L10 und L12 ebenso wie auch die schwächeren Resonanzen der QD A Linien L0, L1, L7 in Tabelle 8.3 auf Seite 87 zusammengefasst.

Tabelle 8.1 Wichtige Resonanzen in der Anregung, wobei $\Delta E = E_{Exc} - E_{L1}$ der energetische Abstand zum Exziton X0 (L1) bei 1319 meV ist. Die Stärke der Resonanzen ist von 0 (schwach) bis ++++ (sehr stark) angegeben, zusätzlich mit dem Vermerk b für breite Resonanzen, sowie gegebenenfalls die Energien bekannter Ramanmoden (in meV), falls sie an der Resonanz beteiligt sein könnten. In der letzten Spalte sind die in Abschnitt 8.4 auf Seite 85 vorgenommenen Interpretationen im Vergleich mit [Ben11] sowie mögliche beteiligte materialspezifische Phononenmoden angegeben. Alle Energien sind in meV angegeben.

Anregung	L0		L1		L7		Interpretation
E_{Exc}	1320.1	Δ E	1319.3	Δ E	1315.9	Δ E	Übergang zu
1328,2	0	8,0	++	8,8	+	12,2	$(1e^1 2e^1)(1h^2)$
1333,2		13,1	++	13,9		17,3	$(1e^1)(2h^1)$
1334,4		14,3	++	15,1	++	18,5	
1339,2		19,1	++	19,9	+++	23,3	$(1e^1)(3h^1)$
1347,2		27,1	0	27,9		31,3	E1 $(2e^1)(1h^1)$
1349,6		29,5		30,3	+ b 34	33,7	
1352,5		32,4		33,2	+++ 37	36,6	
1353,1		33,0	++ 34	33,8		37,2	InAs LO / GaAs TO Phonon
1353,7	++ 34	33,6		34,4		37,8	
1355,9	+	35,8	++++ 37	36,6	++	40,0	GaAs LO / IF Phonon
1356,5	+++ 37	36,4	++	37,2	++	40,6	
1356,9	+	36,8	+++	37,6	++++	41,0	X1 $(1e^1)(6h^1)$
1357,2	+	37,1	+++	37,9	+++	41,3	
1362,2	+	42,1	++	42,9	++ 46	46,3	
1364,4	+	44,3	++++	45,1	+++ b	48,5	X2 $(2e^1)(2h^1)$
1365,5	+	45,4	++ b 46	46,2		49,6	$Al_{0,8}Ga_{0,2}As$ LO Phonon?
1366,1	++ b 46	46,0	++	46,8		50,2	
1366,7		46,6	++ b	47,4	+++ b 51	50,8	
1370,0	+	49,9	++++ 51	50,7	0	54,1	X3 AlAs LO Phonon?
1371,8	+	51,7	++	52,5		55,9	$(2e^1)(3h^1)$?
1380.2		60.1	++ b	60.9		64.3	
1387,2		67,1	+ b 68	67,9		71,3	2 LO InAs
1388,4		68,3	++ 69	69,1		72,5	$(2e^1)(6h^1)$?
1390,7	0	70,6	+++ b	71,3		74,7	
1392,8	0	72,7	++ 74	73,5		76,9	2 LO GaAs / IF
1394,1	0	74,0	+++ b	74,8		78,2	
1405,4	0	85,3	+++ b	86,1		89,5	

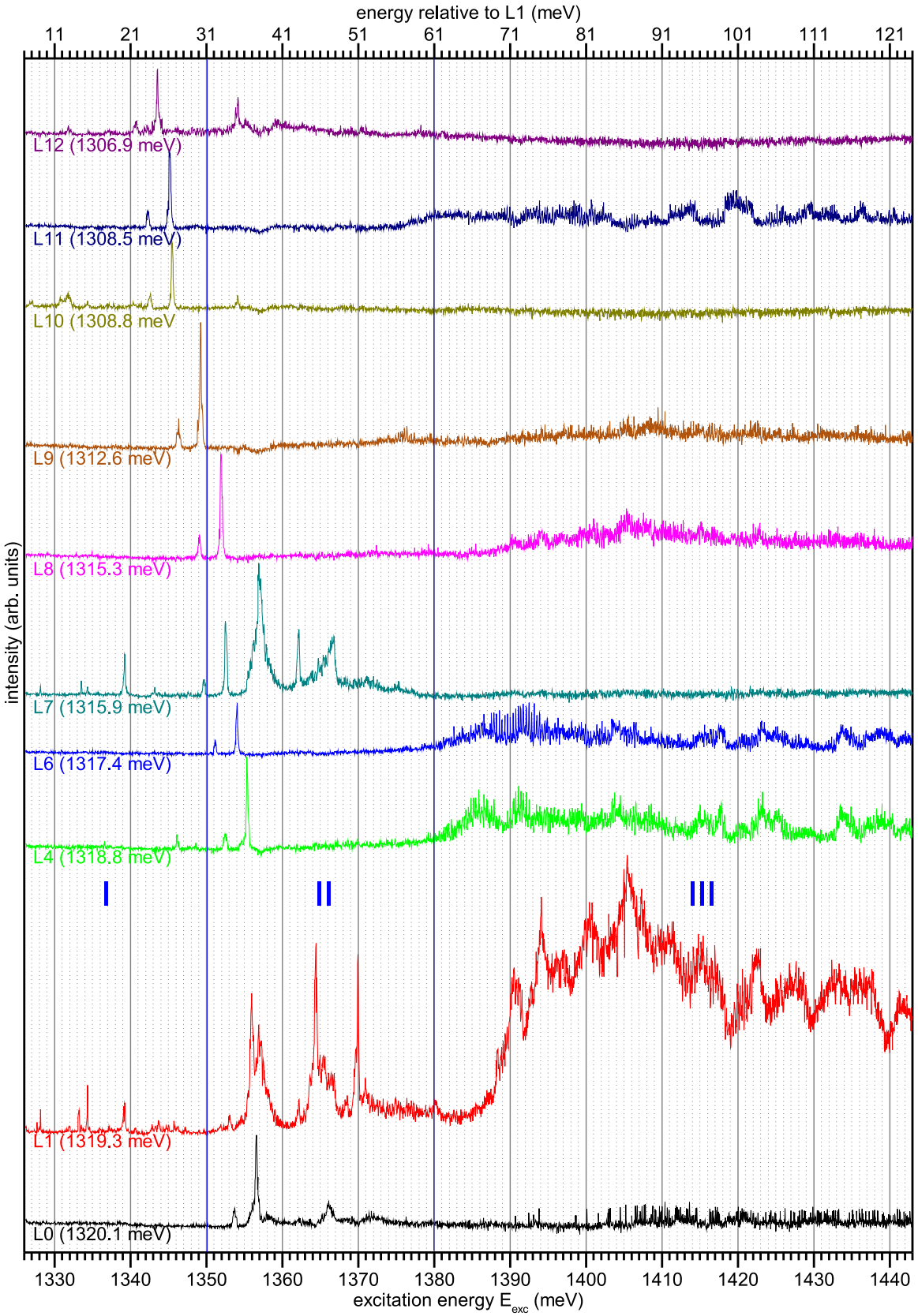


Abbildung 8.4 Übersichts-PLE-Spektren über absoluter Anregungsenergie: Im resonanten Bereich I dominieren schmale scharfe Peaks, die für diskret elektronische Anregungskanäle stehen. Im nah-resonanten Bereich II dominieren breitere Peaks, die auf Anregungsprozesse mit Phononen zurückzuführen sind. Im nicht-resonanten Bereich III oberhalb des WL sind breite Peaks von Mehrphononen-Prozessen und Übergängen mit dem WL Kontinuum sichtbar.

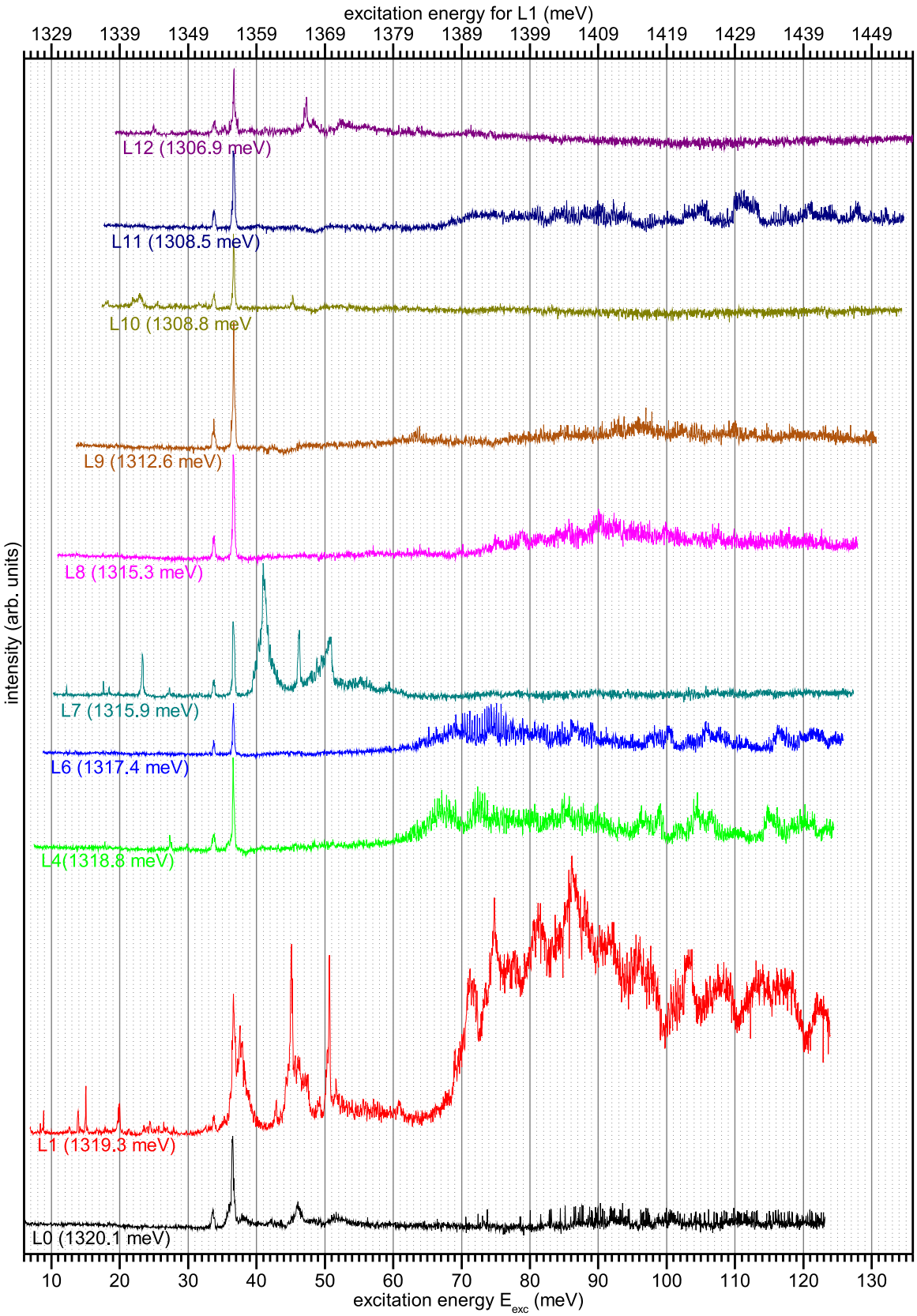
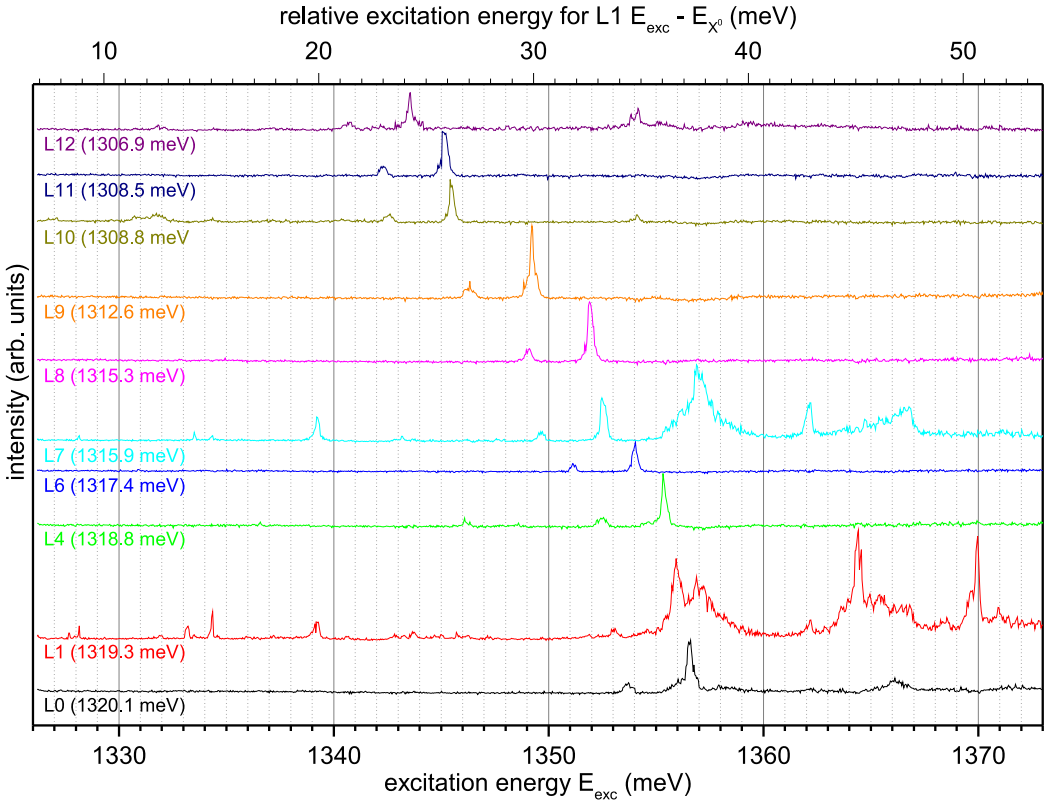
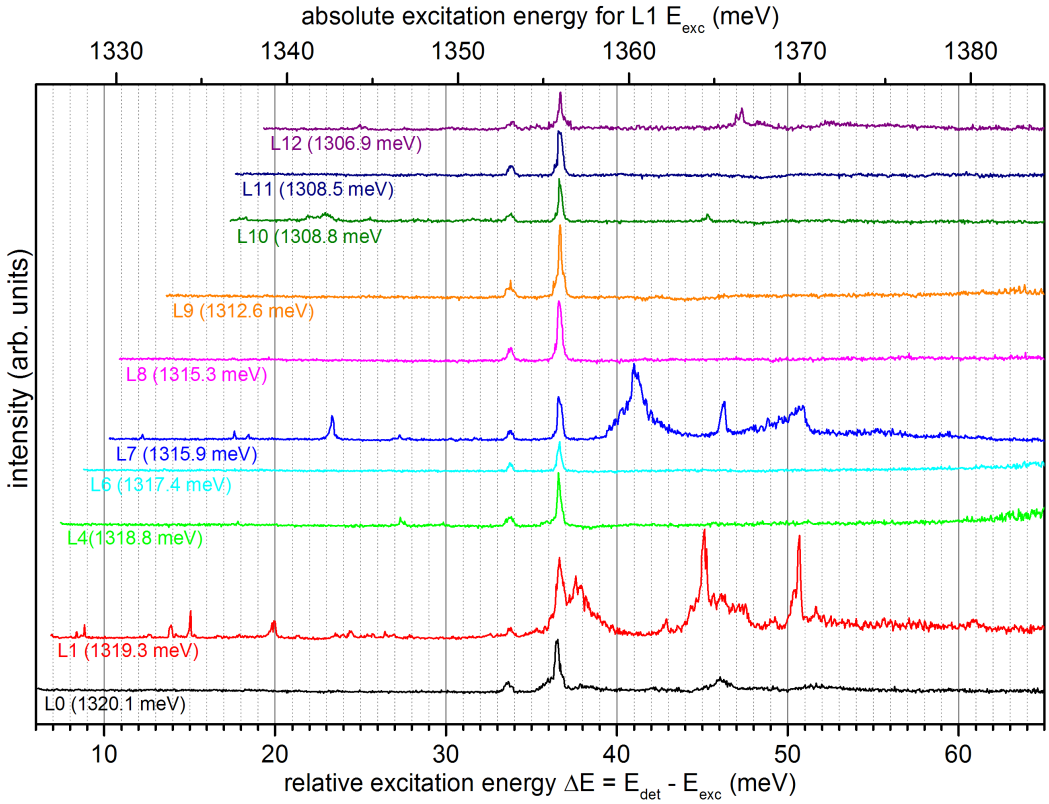


Abbildung 8.5 Übersichts-PLE-Spektren über relativer Anregungsenergie: Phononen-assistitierte Anregungsprozesse sind klar bei gleichen relativen Anregungsenergien erkennbar, etwa bei 33-34 meV, 36-37 meV, 46 meV und 50-51 meV, sowie bei zahlreichen Multiphononen-Peaks oberhalb von 70 meV.

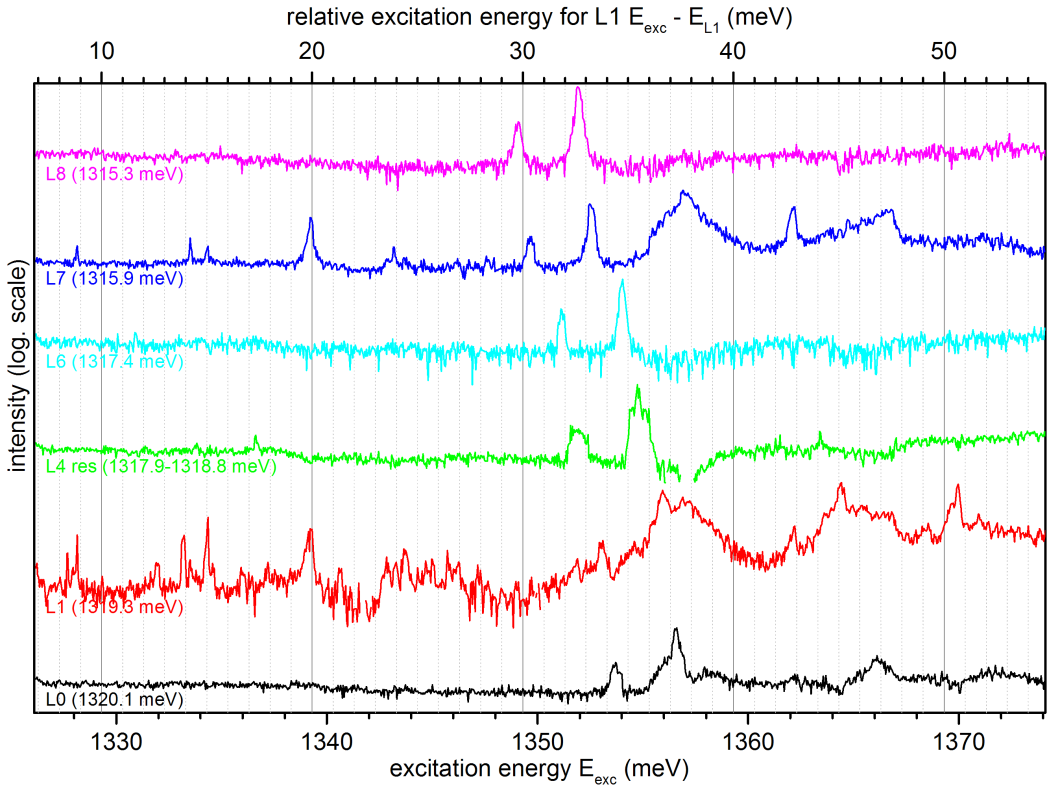


a

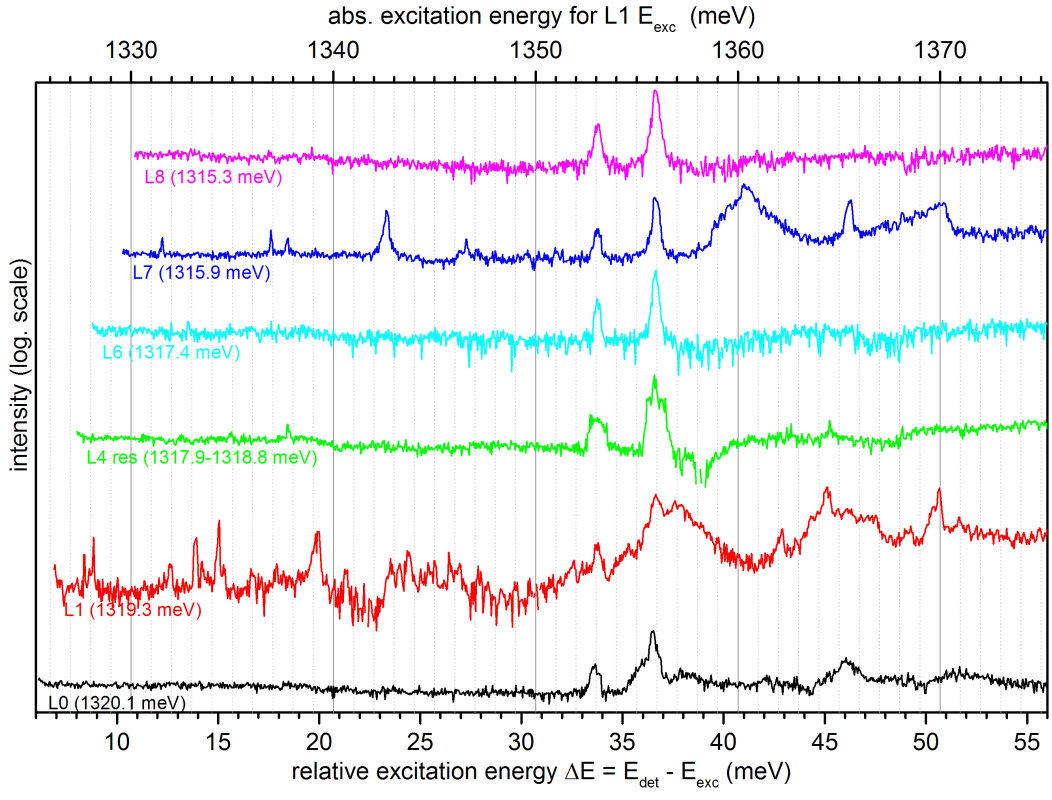


b

Abbildung 8.6 PLE-Spektren im nahresonanter Bereich mit scharfen Anregungskanälen und Phononen: a) über absoluter Anregungsenergie, b) über relativer Anregungsenergie



a



b

Abbildung 8.7 PLE-Spektren von L0 bis L8 im nahresonanter Bereich mit scharfen Anregungskanälen und Phononen in logarithmischer Skalierung: a) über absoluter Anregungsenergie, b) über relativer Anregungsenergie

8.3 Phononen-assistierte Übergänge

Phononenmoden treten in den energieabhängigen μPL-Messungen entweder als deutliche Peaks im Spektrum auf, die sich bei Veränderung der Anregungsenergie mitbewegen, oder nur als Resonanzen bestimmter Lumineszenzlinien, wenn sich diese genau im Abstand der Phononenenergie von der Anregungsenergie befinden. In den Konturplots Abb. 8.1 bis 8.3 auf den Seiten 74–76, bei denen die Anregungsenergie über Detektionsenergie aufgetragen wurde, liegen diese Resonanzen auf parallelen Geraden.
In den μPLE-Spektren Abb. 8.4 bis 8.6 auf den Seiten 79–81 treten Phononen-assistierte Anregungskanäle typischerweise bei den gleichen, materialtypischen relativen Energien auf und sind breiter als diskrete elektronische Anregungskanäle [Fin00b, Fin01]. Bei der Darstellung über der relativen Anregungsenergie (siehe Abb. 8.4 auf Seite 79 oder Teil b von Abb. 8.6 auf Seite 81) sind mehrere phononische Resonanzen klar erkennbar, etwa bei 33-34 meV, 36-37 meV, 46 meV und 50-51 meV, sowie bei zahlreichen Multiphononen-Peaks oberhalb von 70 meV.
Für InAs QDs werden in der Literatur verbreiterte Übergänge im Zusammenhang mit Phononen von InAs und AlAs bei 31, 41, 51 und 75 meV beschrieben [Sar08a, Sar08b]. In PLE-Messungen an einzelnen QDs werden phononische Resonanzen bei 32 und 36 meV durch InAs und GaAs LO-Phononen erklärt sowie bei 40 meV eine Absorption in der QD d-Schale [Fin00b]. Für PLE-Messungen an InAs QDs in GaAs wurden für LO-Phononenenergien von 29,6 meV für den InAs WL, von 32,6 meV für die InAs QDs und 37,6 meV für die verspannte GaAs-Barriere gemessen [Hei97]. In resonanten Raman-Messungen ebenfalls an InAs QDs in GaAs wurden Phononenmoden bei 31, 33 und 36 meV beschrieben und auch theoretisch berechnet, die sich auch an diesen QDs wiederfinden [Paa04, Paa05]. Materialspezifische Phononenenergien verschiedener Arsenide, also von InAs, GaAs, AlAs und verschiedenen ternären Kompositionen von $Al_xGa_{1-x}As$ und $In_xGa_{1-x}As$, finden sich bei [Ada85] und werden bei [Iof17] kompakt dargestellt. So lassen sich auch Phononenenergien für ternäre Kompositionen berechnen. Bei bekannter Komposition und Verspannung könnte anhand von Rechnungen wie in [Ren01] auch beispielsweise die Größe des QDs berechnet werden, dies übersteigt jedoch den Rahmen dieser Arbeit.
Auch in der Betrachtung der Abstände zwischen den verschiedenen Lumineszenzlinien in der s- und p-Schale und den angeregten Zustände, aufgelistet in Tabelle 8.2 auf Seite 85, fallen immer wieder Abstände auf, die typischen Phononenenergien entsprechen.

8.3.1 Zuordnung der Phononenmoden

Folgende Phononenmoden wurden gemessen und zugeordnet:

- Folgende Phononenpeaks sind deutlich im Spektrum sichtbar:
  - (34 ± 1) meV: LO-artiges am QD gebundenes InAs Phonon [Hei97, Paa05]
  - (37 ± 1) meV: Interface (IF) Phonon an der Grenzfläche zwischen InAs und GaAs am QD bzw. GaAs LO-Phonon außerhalb des QDs [Hei97, Paa05]

- Lokal an einem vergleichbaren QD wurden in TERS folgende Phononen gemessen (siehe Abschnitt 6.2 auf Seite 49):
  - (32 $\pm$ 0,2) meV: QD LO-Phonon
  - (33,2 $\pm$ 0,5) meV: GaAs TO-Phonon
  - (36,2 $\pm$ 0,5) meV: GaAs LO-Phonon
- Als deutliche Resonanzen bei Lumineszenzen sind sichtbar:
  - (46 $\pm$ 1) meV: $Al_{0.8}Ga_{0.2}As$ LO-Phonon [Iof17]
  - (51 $\pm$ 1) meV: AlAs LO-Phonon [Sar08a, Iof17]
- Auch 2LO-Resonanzen sind in den PLE-Spektren und in PL zusammen mit Lumineszenzen sichtbar [Hei97]:
  - (68 $\pm$ 2) meV: 2LO des InAs LO-Phonons
  - (72 $\pm$ 2) meV 2LO des IF bzw. GaAs LO-Phonons
- Als schwache Resonanz in den PLE-Spektren oder im Abstand bestimmter Lumineszenzen sind erkennbar :
  - (29 $\pm$ 1) meV: InAs LO-Phonon ([Hei97, Iof17])
  - (31 $\pm$ 1) meV TO-artiges am QD gebundenes InAs Phonon ([Paa05])
  - (41 $\pm$ 1) meV: InAlAs LO-Phonon [Sar08a]

8.3.2 Doppelresonanz

Im Zusammenhang mit Phononen tritt eine Doppelresonanz auf: Eine eingehende Resonanz bei Anregung in angeregte Zustände X1 und X2 sowie eine ausgehende Resonanz durch Phononen-assistierte Rekombination, die zu den Lumineszenen L7 und L0 führt. Eine solche Doppelresonanz wird auch in [Gov93] beschreiben, allerdings bei Quantum Wells im Magnetfeld. Das Auftreten von Exzitonen-Phononen-Komplexen in Nanokristallen wird in [Ito95] beschrieben, auch hier entspricht der Abstand zwischen elektronischen Energieniveaus den Phononenenergien. Die Grundlagen zur Kopplung zwischen elektronischen Zuständen und Phononen sind in [Joh66, Lev74] beschrieben.

Tabelle 8.2 Energetische Abstände der Lumineszenzlinien aus der Messung in Abb. 7.7 auf Seite 62 zur Identifkation von Abständen, die typischen Phononenenergien entsprechen: Alle Energien, sowohl die energetische Position ist in der Spalte Pos. als auch die Differenz zu den jeweiligen anderen Linien Δ E sind in meV angegeben.

Linie	Pos.	ΔE L0	ΔE L1	ΔE L4	ΔE L5	ΔE L6	ΔE L7	ΔE L8	ΔE L9	ΔE L10	ΔE X1	ΔE X2	ΔE X3
L10	1310,24	-9,62	-8,82	-8,05	-7,27	-6,12	-5,41	-4,64	-2,27	0	-46,8	-51,8	-59,8
L9	1312,51	-7,35	-6,55	-5,78	-5,00	-3,85	-3,14	-2,37	0	2,27	-44,5	-49,5	-57,5
L8	1314,88	-4,98	-4,18	-3,41	-2,63	-1,48	-0,77	0	2,37	4,64	-42,1	-47,1	-55,1
L7	1315,65	-4,21	-3,41	-2,64	-1,86	-0,71	0	0,77	3,14	5,41	-41,3	-46,3	-54,3
L6	1316,36	-3,50	-2,70	-1,93	-1,15	0	0,71	1,48	3,85	6,12	-40,6	-45,6	-53,6
L5	1317,51	-2,35	-1,55	-0,78	0	1,15	1,86	2,63	5,00	7,27	-39,5	-44,5	-52,5
L4	1318,29	-1,57	-0,77	0	0,78	1,93	2,64	3,41	5,78	8,05	-38,7	-43,7	-51,7
L1	1319,06	-0,80	0	0,77	1,55	2,70	3,41	4,18	6,55	8,82	-37,9	-42,9	-50,9
L0	1319,86	0	0,80	1,57	2,35	3,50	4,21	4,98	7,35	9,62	-37,1	-42,1	-50,1
Ia	1322,41	2,55	3,35	4,12	4,90	6,05	6,76	7,53	9,90	12,2	-34,6	-39,6	-47,6
Ib	1323,38	3,52	4,32	5,09	5,87	7,02	7,73	8,50	10,9	13,1	-33,6	-38,6	-46,6
E0a	1344,31	24,4	25,2	26,0	26,8	27,9	28,7	29,4	31,8	34,1	-12,7	-17,7	-25,7
E0b	1347,02	27,2	28,0	28,7	29,5	30,7	31,4	32,1	34,5	36,8	-9,98	-15,0	-23,0
E1	1347,46	27,6	28,4	29,2	29,9	31,1	31,8	32,6	34,9	37,2	-9,54	-14,5	-22,5
E2	1348,44	28,6	29,4	30,2	30,9	32,1	32,8	33,6	35,9	38,2	-8,56	-13,6	-21,6
E3a	1349,65	29,8	30,6	31,4	32,1	33,3	34,0	34,8	37,1	39,4	-7,35	-12,4	-20,4
E3b	1350,34	30,5	31,3	32,1	32,8	34,0	34,7	35,5	37,8	40,1	-6,66	-11,7	-19,7
E3c	1350,82	31,0	31,8	32,5	33,3	34,5	35,2	35,9	38,3	40,6	-6,18	-11,2	-19,2
E3d	1351,22	31,4	32,2	32,9	33,7	34,9	35,6	36,3	38,7	41,0	-5,78	-10,8	-18,8
E4	1351,67	31,8	32,6	33,4	34,2	35,3	36,0	36,8	39,2	41,4	-5,33	-10,3	-18,3
E5	1353,00	33,1	33,9	34,7	35,5	36,6	37,4	38,1	40,5	42,8	-4,00	-9,00	-17,0
E6	1354,39	34,5	35,3	36,1	36,9	38,0	38,7	39,5	41,9	44,2	-2,61	-7,61	-15,6
X1	1357	37,1	37,9	38,7	39,5	40,6	41,3	42,1	44,5	46,8	0	-5,00	-13,0
X2	1362	42,1	42,9	43,7	44,5	45,6	46,4	47,1	49,5	51,8	5,00	0	-8,00
X3	1370	50,1	50,9	51,7	52,5	53,6	54,4	55,1	57,5	59,8	13,0	8,00	0
WL	1377,7	57,9	58,7	59,4	60,2	61,4	62,1	62,8	65,2	67,5	20,7	15,7	7,72

8.4 Zuordnung der elektronischen Übergänge im Vergleich mit der Literatur

Auch bei Betrachtung der PLE-Messungen zeigt der Vergleich mit der Literatur, dass Benny *et al*. [Ben11, Ben12] Anregungen bei sehr ähnlichen Energien sehen wie wir. Daher werden im Folgenden die Anregungskanäle im direkten Vergleich interpretiert. Unterhalb von 25 meV stimmen mehrere Anregungskanäle in die angeregten Lochniveaus (2h) und (3h) bis auf wenige meV überein, auch die Duplett-Struktur der Anregungsresonanzen ist recht ähnlich. So lassen sich die Anregung in die Zustände mit angeregten Löchern $(1e^1)2h^1$ bei 15 meV und $(1e^1)3h^1$ bei 20 meV, sowie auch in den Triplett-Zustand des Biexzitons $(1e^12e^1)1h^2$ bei 9 meV in unseren PLE-Spektren zuordnen. Dies lässt darauf schließen, dass die energetischen Abstände der Elektronen und Löcher sehr ähnlich sind, obwohl es sich um völlig unterschiedliche QD Proben handelt. Bei etwa 29 meV sehen wir keinen Anregungskanal in den angeregten Elektronenzustand (2e) in PLE, dafür aber eine Rekombination in PL des angeregten Exzitons E1, dass wir so als den Zustand $(2e^1)1h^1$ identifizieren. Dieser und

weitere PL-Übergänge wurden bei Benny *et al*. nicht beobachtet, da deren QDs sich in einer Kavität befinden und diese Emission im Stopband liegt, daher ist hier nicht viel Intensität zu erwarten. Weitere Anregungskanäle finden sich bei beiden Proben wieder: Die Resonanz des angeregten Exzitons $(1e^1)6h^1$ bei 38 meV ist bei Benny *et al*. deutlich weniger ausgeprägt als bei dem hier untersuchten QD, wo sie mit der Resonanz des 37 meV IF-Phonons koppelt und wir sie als X1 bezeichnen. Sie liegt bei einer absoluten Anregungsenergie von 1358 meV. Die sehr ausgeprägte Resonanz des angeregten Exzitons $(2e^1)2h^1$ bei ca. 43 meV ist auch bei unserem QD vorhanden und wird von uns als angeregter Zustand X2 bezeichnet. Sie liegt bei 1362 meV absoluter Anregungsenergie.
Anhand des nun bekannten Abstand zwischen Elektronengrundzustand (1e) und erstem angeregten Zustand (2e) von 29 meV und den bekannten angeregten Lochzuständen (2h), (3h) und (6h) lässt sich auch die ungefähre Lage der Zustände $(2e^1)3h^1$ zu ca. 49 meV und $(2e^1)6h^1$ zu ca. 67 meV berechnen. Diese lassen sich mit ca +2 meV Abweichung, die wahrscheinlich auf in dieser Abschätzung nicht berücksichtige Wechselwirkungen zurückzuführen sind, auch tatsächlich passenden Übergängen im PLE-Spektrum zuordnen, nämlich den angeregten Zuständen X3 bei 1370 meV und X4 bei 1388 meV absoluter Anregungsenergie. Letzterer kann nur einem PLE-Peak zugeordnet werden kann, da er in PL-Spektren nicht gemessen wurde, da er sich bei den meisten Messungen außerhalb des Detektionsbereich befand, koppelt aber wahrscheinlich auch noch mit 2LO-Phononen in der energetischen Nähe.
Zur Darstellung der an den Übergängen beteiligten Elektronen- und Lochniveaus wird ein Termschema Abb. 8.9 auf Seite 89 mit aus den obigen Zuordnungen berechneten Abständen der Energieniveaus aufgestellt. So ergeben sich als Abstand zwischen Elektronengrundzustand und erstem angeregten Zustand $\Delta e_1 e_2$ 29 meV, als Abstand zwischen den Lochniveaus $\Delta h_1 h_2$ mit 15 meV, $\Delta h_2 h_3$ mit 5 meV und $\Delta h_3 h_6$ mit 18 meV. Neben der schon zuvor identifizierten p-Schalen Lumineszenz werden weitere angeregte Zustände (X1-X4) identifiziert, die sich in μPL als breite Lumineszenz, in μPLE jedoch als relativ scharfe Anregung zeigen. Die Phononen-assistierte Rekombination dieser Zustände bei resonanter schwacher bis mittelstarker Anregung ist eine mögliche Erklärung für die Lumineszenzlinien L0 und L7. In dem erweiterten Termschema Abb. 8.10 auf Seite 90 werden die wesentlichen beobachteten Anregungskanäle und Lumineszenzen zusammengefasst.

Tabelle 8.3 Alle Resonanzen der Lumineszenzlinien von QD A und QD B aus den PLE-Messungen bei bestimmten Anregungsenergien. Die relative Stärke der Resonanz wird von 0 (sehr schwach) bis ++++ (sehr stark) angegeben, dabei steht b für breite Resonanzen und Zahlen für beteiligte Phononen (ungefähre Energie in meV). Alle Energien sind in meV angegeben. In der Spalte Interpretation sind die Energieniveaus angegeben, in die angeregt wird, sowie materialspezifische Phononen, die möglicherweise beteiligt sein könnten.

Anregung	QD A L0		QD A L1		QD A L7		QD B L10		QD B L12		Interpretation
E_{Exc}	1320,1	Δ E0	1319,3	Δ E	1315,9	Δ E	1308,8	Δ E	1306,9	Δ E	Übergang zu
1326,7		6,6		7,4		10,8	+	17,9		19,8	
1327,1		7,0		7,8		11,2	+	18,3		20,2	
1327,7		7,6	+	8,4		11,8		18,9		20,8	
1328,2	0	8,0	++	8,8	+	12,2		19,3		21,2	$(1e^1 2e^1)(1h^2)$
1330,7		10,6		11,4		14,8	+ b	21,9		23,8	
1331,9		11,8	+	12,6	+	16,0	+ b	23,1	+	25,0	
1333,2		13,1	++	13,9		17,3		24,4		26,3	$(1e^1)(2h^1)$
1333,5		13,4	0	14,2	++	17,6		24,7		26,6	
1334,4		14,3	++	15,1	++	18,5	+	25,6		27,5	
1334,6		14,5	0	15,3		18,7		25,8		27,7	
1336,1		16,0	0	16,8		20,2		27,3		29,2	
1339,2		19,1	++	19,9	+++	23,3		30,4		32,3	$(1e^1)(3h^1)$
1340,6		20,5	0	21,3	+	24,7		31,8	+ 34	33,7	
1342,8		22,7	+	23,5	0	26,9	++ b 34	34,0	0	35,9	
1343,3		23,2	+	24,0	+	27,4		34,5	0	36,4	
1343,5		23,4		24,2		27,6		34,7	+++ 37	36,6	
1343,7		23,6	+	24,4	0	27,8		34,9	++	36,8	
1345,0		24,9	0	25,7		29,1		36,2		38,1	
1345,7		25,6	+	26,4		29,8	+++ 37	36,9		38,8	
1346,2		26,1	0	26,9		30,3		37,4		39,3	
1347,2		27,1	0	27,9		31,3		38,4		40,3	$(2e^1)(1h^1)$
1349,6		29,5		30,3	+ b 34	33,7		40,8		42,7	
1351,9		31,8	0	32,6		36,0		43,1		45,0	
1352,5		32,4		33,2	+++ 37	36,6		43,7		45,6	
1353,1		33,0	++ 34	33,8		37,2		44,3		46,2	InAs LO / GaAs TO Phonon
1353,7	++ 34	33,6		34,4		37,8	+	44,9	++	46,8	
1354,2		34,1		34,9		38,3	++	45,4	++	47,3	
1354,6		34,5	+	35,3	0	38,7		45,8		47,7	
1355,1		35,0	+	35,8		39,2	0	46,3	+	48,2	
1355,5		35,4	+	36,2	+	39,6		46,7		48,6	
1355,9	+	35,8	++++ 37	36,6	++	40,0		47,1		49,0	GaAs LO / IF Phonon
1356,5	+++ 37	36,4	++	37,2	++	40,6		47,7	0	49,6	
1356,9	+	36,8	+++	37,6	++++	41,0		48,1		50,0	X1 $(1e^1)(6h^1)$
1357,2	+	37,1	+++	37,9	+++	41,3		48,4		50,3	
1357,5		37,4	++	38,2	++	41,6		48,7	0	50,6	
1357,9	+	37,8	++	38,6	+	42,0		49,1	0	51,0	
1359,0		38,9	+	39,7	+	43,1		50,2		52,1	
1362,2	+	42,1	++	42,9	++ 46	46,3		53,4		55,3	
1362,8	0	42,7	0	43,5		46,9		54,0		55,9	
1363,6		43,5	++	44,3	+	47,7		54,8		56,7	
1363,9		43,8	+	44,6	+	48,0		55,1		57,0	
1364,4	+	44,3	++++	45,1	+++ b	48,5		55,6		57,5	X2 $(2e^1)(2h^1)$
1365,0	0	44,9	++	45,7	++	49,1		56,2		58,1	
1365,5	+	45,4	++ b 46	46,2		49,6		56,7		58,6	$Al_{0,8}Ga_{0,2}As$ LO Phonon?
1366,1	++ b 46	46,0	++	46,8		50,2		57,3		59,2	
1366,7		46,6	++ b	47,4	+++ b 51	50,8		57,9		59,8	
1368,5	0	48,4	+ b	49,2		52,6		59,7		61,6	
1369,5		49,4	++	50,2		53,6		60,7		62,6	
1369,7		49,6	+++	50,3		53,7		60,8		62,7	
1370,0	+	49,9	++++ 51	50,7	0	54,1		61,2		63,1	X3 AlAs LO Phonon?
1370,9	+	50,8	++	51,6	+	55,0		62,1		64,0	$(2e^1)(3h^1)$?
1371,8	+	51,7	++	52,5		55,9		63,0		64,9	
1380,2		60,1	++ b	60,9		64,3		71,4		73,3	
1387,2		67,1	+ b 68	67,9		71,3		78,4		80,3	2 LO InAs
1388,4		68,3	++ 69	69,1		72,5		79,6		81,5	$(2e^1)(6h^1)$?
1390,7	0	70,6	+++ b	71,3		74,7		81,8		83,7	
1392,8	0	72,7	++ 74	73,5		76,9		84,0		85,9	2 LO GaAs / IF
1394,1	0	74,0	+++ b	74,8		78,2		85,3		87,2	
1396,9		76,8	++ b	77,6		81,0		88,1		90,0	
1400,8	0	80,7	++ b	81,5		84,9		92,0		93,9	
1405,4	0	85,3	+++ b	86,1		89,5		96,6		98,5	
1407,3		87,2	++ b	88,0		91,4		98,5		100,4	
1411,3		91,2	++ b	92,0		95,4		102,5		104,4	
1415,3		95,2	++ b	96,0		99,4		106,5		108,4	
1416,9		96,8	+ b	97,6		101,0		108,1		110,0	
1422,6		102,5	++ b	103,3		106,7		113,8		115,7	
1427,6		107,5	+ b	108,3		111,7		118,8		120,7	
1432,6		112,5	+ b	113,3		116,7		123,8		125,7	
1436,6		116,5	+ b	117,3		120,7		127,8		129,7	
1441,3		121,2	+ b	122,0		125,4		132,5		134,4	

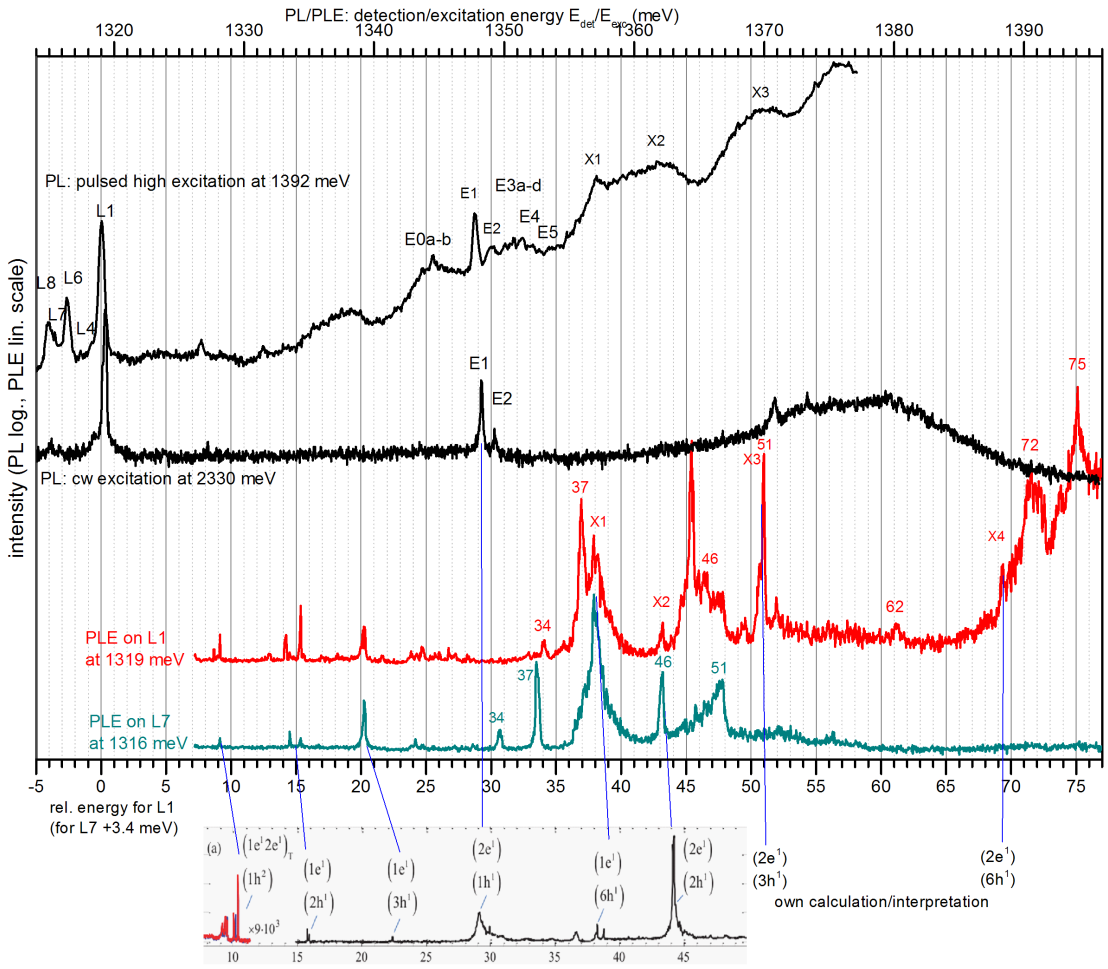


Abbildung 8.8 Vergleich der μPL und PLE-Spektren mit Ergebnissen von Benny *et al.* (unten) [Ben11]. Zahlreiche Übergänge lassen sich zuordnen. Die eigenen Rechnungen basieren auf den gemessenen Abstände der niederenergetischen Übergänge.

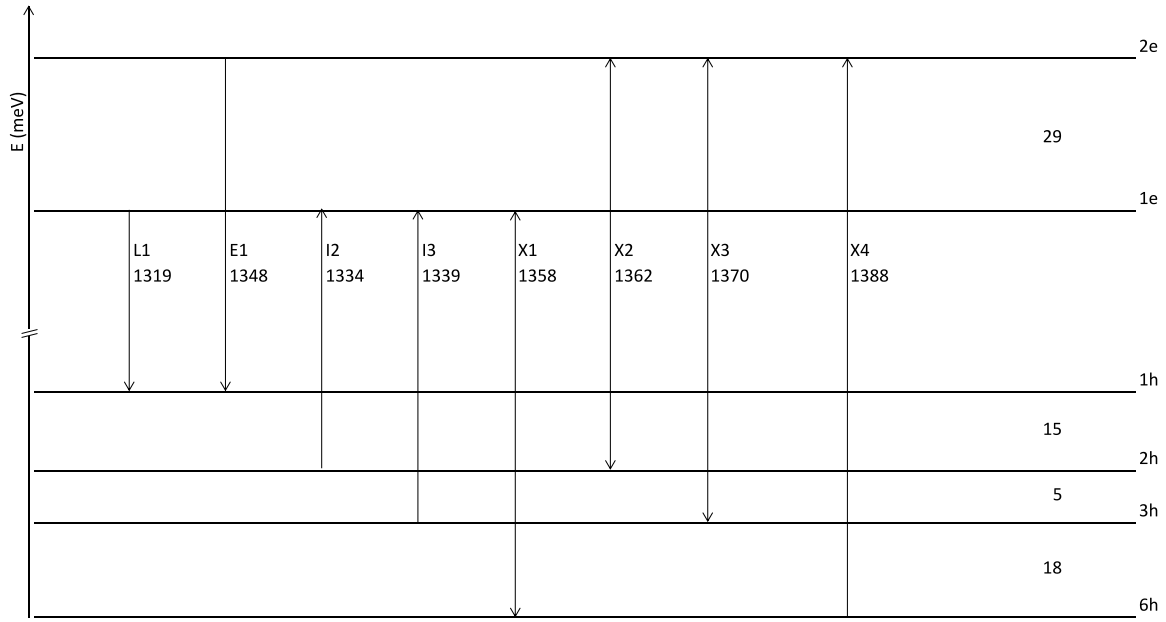


Abbildung 8.9 Termschema der Energieniveaus der Elektronen und Löcher zur Erklärung der beobachteten Resonanzen. Alle Energien sind in meV angegeben.

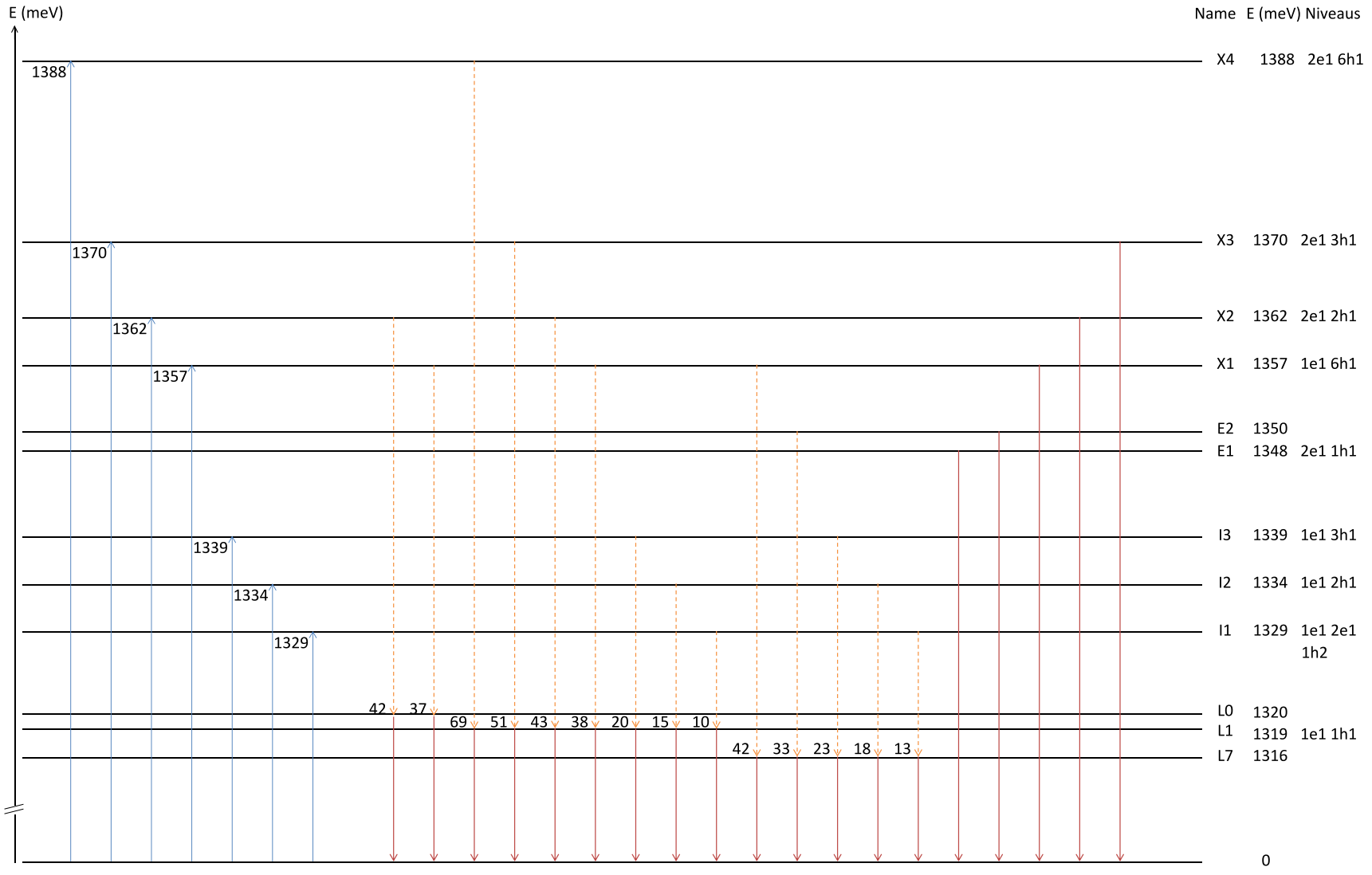


Abbildung 8.10 Termschema der Energieniveaus zur Erklärung der beobachteten Resonanzen. Die blauen Pfeile nach oben stellen die resonante Anregung in bestimmte Zustände dar, die roten Pfeile nach unten die strahlende Rekombination. Die gestrichelten orangen Pfeile stellen eine nichtstrahlende Relaxation dar, etwa über Phononen. Dies tritt besonders bei materialspezifischen Phononenenergien auf. Alle Energien sind in meV angegeben.

9 Dynamik: Unterscheidung von Raman Streuung und Fluoreszenz

9.1 Zielsetzung und Durchführung der zeitaufgelösten Messungen

Für eine genaue Identifikation der Anregungs- und Zerfallsprozesse ist eine Untersuchung der Dynamik mittels zeitaufgelöster Messungen notwendig. Anhand der um Größenordnungen unterschiedlichen Zerfallszeiten können Emissionen von Photonen gleicher Energie unterschieden werden, die jedoch aus unterschiedlichen Prozessen kommen, etwa aus Raman-Streuung und Fluoreszenz. Auch können Rekombinationen aus Zuständen unterschiedlicher Lebensdauer unterschieden werden, etwa dark-state und bright-state des Exzitons. Für die Anwendung positionierter QDs als Einzelphotonenquelle in der Quantenkommunikation ist eine genaue Kenntnis der Dynamik hilfreich, da die Zerfallszeiten die maximal möglichen Emissionsraten und somit auch die Schlüsselerzeugungsrate bestimmen. Vorherige Untersuchungen der Dynamik einzelner QDs von Feucker *et al*. [Feu08] stützen sich auf Kathodolumineszenz-Messungen, die nicht die Anstiegszeit eines exzitonischen Zerfalls messen, sondern nur die Zerfallszeiten.
Im Folgenden wird zunächst besonders die Zerfallszeit der Linie L1, aber auch der Linien L6, L8 und E1 bei nicht-resonanter Anregung kurz oberhalb des WL bei 1393 meV untersucht. Es soll festgestellt werden, ob das Auftreten von Multiexzitonen im Spektrum und die Veränderung von Zerfallszeiten korrelieren, wie es in mehreren Veröffentlichungen beschrieben wird [Dek00, Dek01, San02]. Daher werden Messungen in Abhängigkeit der Anregungsleistung vorgenommen.
Um die Prozesse bei resonanter Anregung besser zu verstehen, werden zeitaufgelöste Messungen bei verschiedenen Anregungsenergien unterhalb des WL durchgeführt und die Zerfallszeiten von L0 bis L7 bei verschiedenen Anregungsenergien zwischen 1364 und 1356 meV untersucht. Resonanzen treten insbesondere bei Anregung in X1 (1356 meV) und X2 (1364 meV) auf, daher werden die Anstiegs- und Zerfallszeiten von L0, L1, L6 und L7 bei diesen Anregungsenergien bei verschiedenen Anregungsleistungen und Temperaturen bestimmt.
Bei gebundenen Exzitonen in ZnO wurden von Wagner [Wag10] bei Anregung über resonante Raman-Streuung verlängerte Dephasierungszeiten für die beteiligten Phononen gemessen. Auch bei Borri *et al*. [Bor01] wurden unter bestimmten Bedingungen in Vierwellenmischexperimenten am QD-Ensemble längere Dephasierungszeiten für Phononen gemessen. Daher ist es interessant, ob ähnliche Phänomene auch bei resonanter Raman-Streuung an Exzitonen im QD auftreten. Im Vergleich mit der Theorie [Zim14] wird untersucht, ob sich bei resonanter Anregung von L1 über ein Phonon bei gleicher Energie Fluoreszenz und Raman-Streuung mittels zeitaufgelöster Messungen

unterscheiden lassen. Hierfür wird diese resonante Anregung bei unterschiedlichen Temperaturen von 4 bis 30 K betrachtet.
Um sicherzustellen, dass diese Ergebnisse nicht ausschließlich auf den untersuchten QD A zutreffen, werden einige Vergleichsmessungen an QD B vorgenommen.

9.1.1 Experimentelle Herausforderungen bei Messung und Auswertung

Zur Untersuchung zeitaufgelöster Prozesse an einzelnen QDs ist eine möglichst gute Zeitauflösung des Detektors erforderlich. Diese wird eher durch die SSPDs als durch die APDs erreicht. Leider gibt es jedoch durch Temperaturschwankungen im Labor und Gebäudeschwingungen Probleme bei der Langzeitstabilität des Untersuchungsbereichs der μ-PL, d.h. die Probe driftet nach einer Weile weg und der untersuchte QD ist nicht mehr im Fokus der Anregung und Detektion. Dadurch können die zeitaufgelösten Messungen nicht beliebig lange integriert werden, was vor allem bei den SSPD-Messungen zu einem schlechten Signal-Rauschverhältnis führt. Aufgrund der empfindlichen Einkopplung in die SSPDs durch eine single-mode-Glasfaser liegen die Zählraten auf den SSPDs im Bereich von nur wenigen hundert bis etwa tausend counts/s. Dadurch können die Transienten über nicht mehr als zwei Größenordnungen aufgenommen werden, was die Interpretation erschwert. Im Gegensatz zu den APDs ist jedoch die Zeitauslösung so gut, dass Streuprozesse und Lumineszenz gut unterschieden werden können.
Die Transienten werden mit dem Programm *Fluofit* der Firma *Picoquant* ausgewertet. Dabei werden die Daten mit einem mono- oder multiexponentiellen Zerfall gefittet (angepasst), welcher mit der Antwortfunktion des Versuchsaufbaus (instrument response function, IRF), also im Normalfall der gemessenen Lasertransiente, gefaltet wird. Je nach Messung wird nur eine einzige Zerfallszeit angepasst oder, wenn dies nicht zu einem befriedigenden Fit führt, eine Anstiegs- und eine Zerfallszeit, sowie im Falle der Resonanz mit einem Phonon noch eine zusätzliche Zerfallszeit für dieses Phonon. Die Messungen mit den APDs weisen höhere Zählraten im Bereich von einigen tausend counts/s auf, dadurch können Transienten von bis zu drei Größenordnungen aufgenommen werden. Durch die geringere Zeitauflösung sind diese jedoch zeitlich verbreitert und lassen meist keine sinnvolle Anpassung mit mehr als einer Zerfallszeit zu. Die bei den Messungen angegebene Anregungsleistung ist der am Ort der Probe gemessene Durchschnittswert der Leistung (cw-Äquivalent), da die Anregung natürlich gepulst ist.

9.2 Zeitaufgelöste Messungen bei nicht-resonanter Anregung

9.2.1 Intensitätsabhängigkeit der Zerfallszeiten bei nicht-resonanter Anregung

Die Anstiegs- und Abklingzeiten der Lumineszenz von L1 werden mit einer APD bei Anregungsleistungen von 2,7 bis 400 μW gemessen. Zusätzlich werden auf der CCD Übersichtsspektren von 1307 bis 1377 meV bei Anregungsleistungen von 5 bis 1600 μW aufgenommen, siehe Abb. 9.1 auf Seite 95. Im nicht-resonanten Anregungsfall bei 1393 meV nimmt die Anstiegszeit der Transienten von X0 mit zunehmender Anregungsleistung von rund 100 ps bis etwa 500 ps zu und sättigt dann ab

einer Anregungsleistung von etwa 100 μW. Die Abklingzeit bleibt währenddessen ungefähr konstant bei etwa 600 ps. Für die Anregungsleistungen oberhalb von 40 μW (80 und 160 μW) tritt eine weitere Zeitkomponente oder ein Plateau in der Transiente auf, welche beim Fit berücksichtigt werden muss. Eine Erklärung hierfür liefert im Folgenden die gemeinsame Betrachtung mit den zugehörigen PL-Spektren. Diese zusätzliche Zeitkomponente ist bei Anregung mit 400 μW nicht mehr zu beobachten. Hier ist unklar, ob diese tatsächlich nicht auftritt oder ob ein Messfehler etwa durch Probendrift während der Messung aufgetreten ist.
Bei niedriger Anregungsleistung (bis 10 μW) sind im Spektrum zunächst nur die exzitonischen Linien L1 und L7 sichtbar. Mit steigender Anregungsleistung erscheint das Biexziton L6 und nimmt an Intensität zu. Ab etwa 40 μW verbreitert sich L7 deutlich und nimmt an Intensität ab, dafür taucht ab etwa 160 μW L8 bei etwa 0,7 meV niedriger Energie (1314,9 meV) auf sowie ein weiterer breiter Peak L9 bei 1312,4 meV. Aus der anregungsenergieabhängigen μPL ist bekannt, dass L9 bei resonanter Anregung bei etwa 1310 meV liegt und beim Wechsel von resonanter (bis 1360 meV) zu nicht-resonanter Anregung (1390 meV) zu 1312 meV schiebt. Außerdem taucht zwischen Exziton L1 und Biexziton L6 ein weiterer schwacher Peak L4 bei 1317,4 meV auf, der von resonanter zu nicht-resonanter Anregung ähnlich schiebt wie L9. In den Spektren sind neben den Positionen der Linien L1 bis L10, E1 und E2 sowie X1 auch die mutmaßlichen Positionen von Raman-Phononen markiert. Auf der höherenergetischen Seite des Exzitons erscheinen mehrere 1LO (37, 33 und 32 meV) und 2LO (74, 66 und 64 meV) Phononen des Anregungslasers. Außerdem wird ab einer Anregungsleistung von etwa 40 μW die Lumineszenz der angeregten Zustände E1 und E2 sowie ab etwa 160 μW von X1 sichtbar.
Während die X1 Lumineszenz hervortritt, verschwindet L7 und L6 und L8 treten deutlicher hervor, gleichzeitig tritt eine weitere Zerfallszeit in den Transienten von L1 auf. Hier scheint also eine Verschiebung der Rekombinationskanäle aufzutreten: Bei geringer Anregungsleistung kombinieren die Zustände E1, sowie E2 bis E4 und X1 über Emission von Phononen über L7 und L0. Welche Phononen genau beteiligt sind, wird im Folgenden in Abschnitt 9.4 **Resonanter Ramaneffekt** ab Seite 109 untersucht. Bei höherer Anregungsintensität rekombinieren diese Zustände direkt. Es treten dann vermehrt die Multiexzitonenlinien L8 und L9 niederenergetisch von L7 auf.
Die zusätzliche zeitliche Komponente in den Transienten bei hoher Anregungsleistung kann auch als ein zeitliches Plateau interpretiert werden. Ein solches beobachtet auch [Rei14] bei hoher Anregung im WL und erklärt es durch die Anwesenheit zusätzlicher Ladungsträger im WL und im Volumenkristall, welche die Relaxation verzögern. In diesem Anregungsregime verläuft die Relaxation der Ladungsträger weniger über Phononen als über Auger-Prozesse. Außerdem wird dieser Prozess bei [Ray96] mit dem Auffüllen unterer Energieniveaus, etwa des Grundzustands, und dem Auftreten von Multiexzitonen in Verbindung gebracht.
In einer separaten Messreihe werden die Anstiegs- und Abklingzeiten von L1, L6, L8 und E1 bei 100 und 216 μW Anregungsleistung mit einem SSPD gemessen, um eine höhere Zeitauflösung zu erhalten, siehe Abb. 9.2 auf Seite 96. Konsistent zu den Messungen mit den APDs bleiben auch bei dieser Messreihe die Abklingzeiten der verschiedenen Lumineszenzen ungefähr konstant und die Anstiegszeiten nehmen bei erhöhter Anregungsleistung leicht zu. Dies wird auch bei [Dek00, Dek01, San02]

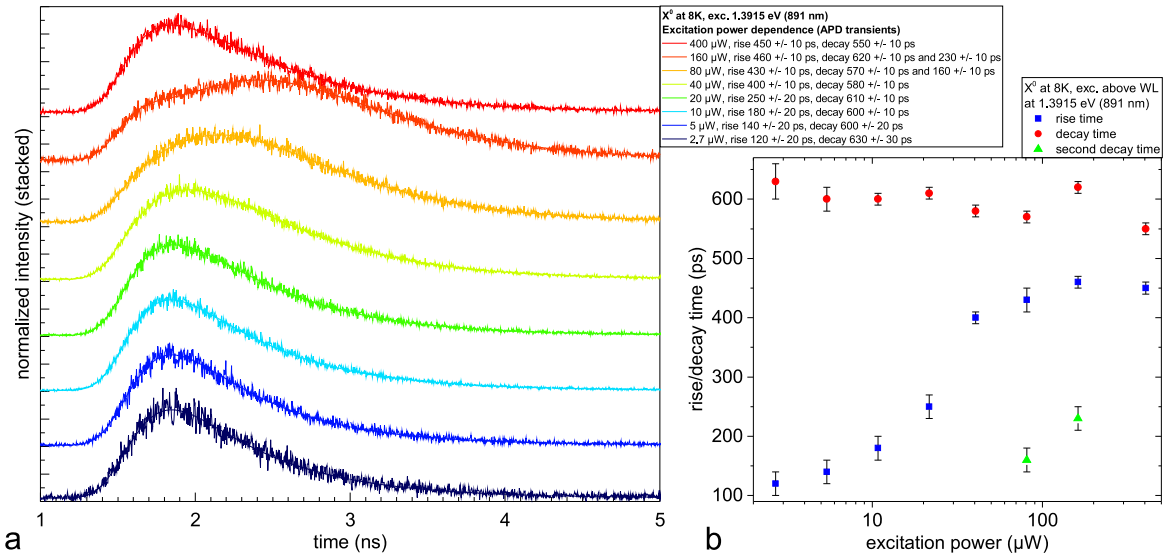
beobachtet und mit der Erzeugung von Multiexzitonen erklärt. Die Anstiegszeiten des Exzitons X0 entsprechen hierbei ungefähr den Zerfallszeiten des Biexzitons XX. Die Zerfallszeiten von X0 sind fast doppelt so lang wie die von XX. Die Zerfallszeit des angeregten Zustands E1 ist nur wenig kürzer als die von X0, die Anstiegszeit ist jedoch deutlich kürzer. Die Anstiegs- und Zerfallszeiten des mutmaßlichen Triexzitons L8 (3X) sind etwas kürzer als die von X0, jedoch länger als die von XX. Dies widerspricht den Erwartungen für ein Triexziton, bei dem man eher noch kürzere Zerfallszeiten als für das Biexziton erwarten würde [Ara11, Ara12]. Da hier jedoch nur eine Messung vorliegt, fällt eine finale Aussage über die Herkunft von L8 schwer. Hierfür wären eventuell theoretische Berechnungen hilfreich, wie sie auf Basis der Modelle von [Mli09] vorgenommen werden könnten, dies würde jedoch den Rahmen dieser Arbeit sprengen.
Bei höheren Temperaturen, 40 und 50 K, werden ebenfalls Spektren und Transienten von X0 gemessen (siehe Abb. 9.3 auf Seite 97). Die Anstiegszeiten des Exzitons X0 sind etwas kürzer als bei niedrigeren Temperaturen, die Zerfallszeiten etwas länger. Dies entspricht den Beobachtungen von Werner *et al*. [Wer11]: Dort wird der Anstieg der Zerfallszeiten mit steigender Temperatur durch die Zunahme nicht-strahlender Prozesse wie etwa Auger-Streuung und Wechselwirkung mit Defekten erklärt. Die Anstiegszeiten bei tiefen Temperaturen unterhalb von 130 K werden durch einen Phononen-Bottelneck (Flaschenhals) erklärt, der die Rekombination in den Grundzustand teilweise behindert.

9.2.2 Phononenseitenbande

Die Intensität der verschiedener Ordnungen der Phononenreplika angeregter Zustände kann miteinander oder mit den jeweiligen Nullphononenlininen verglichen werden, um den Huang-Rhys-Faktor S zu bestimmmen, der ein Maß für die Kopplungsstärke der Phononen ist [Hua50]. Bei den vorliegenden Messungen wird dies etwas erschwert durch den stark ausgeprägten Untergrund bei Hochanregung und die teilweise unklare Zuordnung der Linien im Spektrum. Es wird versucht den Parameter S aus den Spektren in Abb. 9.1 auf der nächsten Seite aus dem Verhältnis der Flächen des Peaks der 1LO und der 2LO Phononenreplika des Anregungslasers 33 meV und 66 meV unterhalb der Anregungsenergie zu bestimmen. Beide Peaks sind nur bei starker Anregung sichtbar, das Verhältnis der beiden Peaks beträgt dann aber unabhängig von der Anregungsleistung etwa $S = 0,08 \pm 0,02$. Dieser Wert ist deutlich größer als der bei [Sto11a] bestimmte Wert von $S \approx 10^{-4}$ für die LO Phononenreplika der Elektrolumineszenz eines einzelnen InGaAs QDs. Vermutlich handelt es sich bei den hier untersuchten Phononen daher eher um GaAs bulk Phononen, für die Huang-Rhys-Faktoren von $S \approx 0,01$ bestimmt wurden [Nom92].

9.2.3 Vergleich mit benachbartem QD B bei nicht-resonanter Anregung

Auch an dem benachbarten QD B (Position auf der Mesa siehe Abb. 5.6 auf Seite 45) werden Spektren und Transienten bei starker nicht-resonanter Anregung aufgenommen, siehe Abb. 9.4 auf Seite 98. Aufgrund der räumlichen Nähe der beiden QDs werden sowohl die mutmaßliche Grundzustandslumineszenz des Exzitons von QD B L11 bei 1309,6 meV als auch Lumineszenzlinien eines



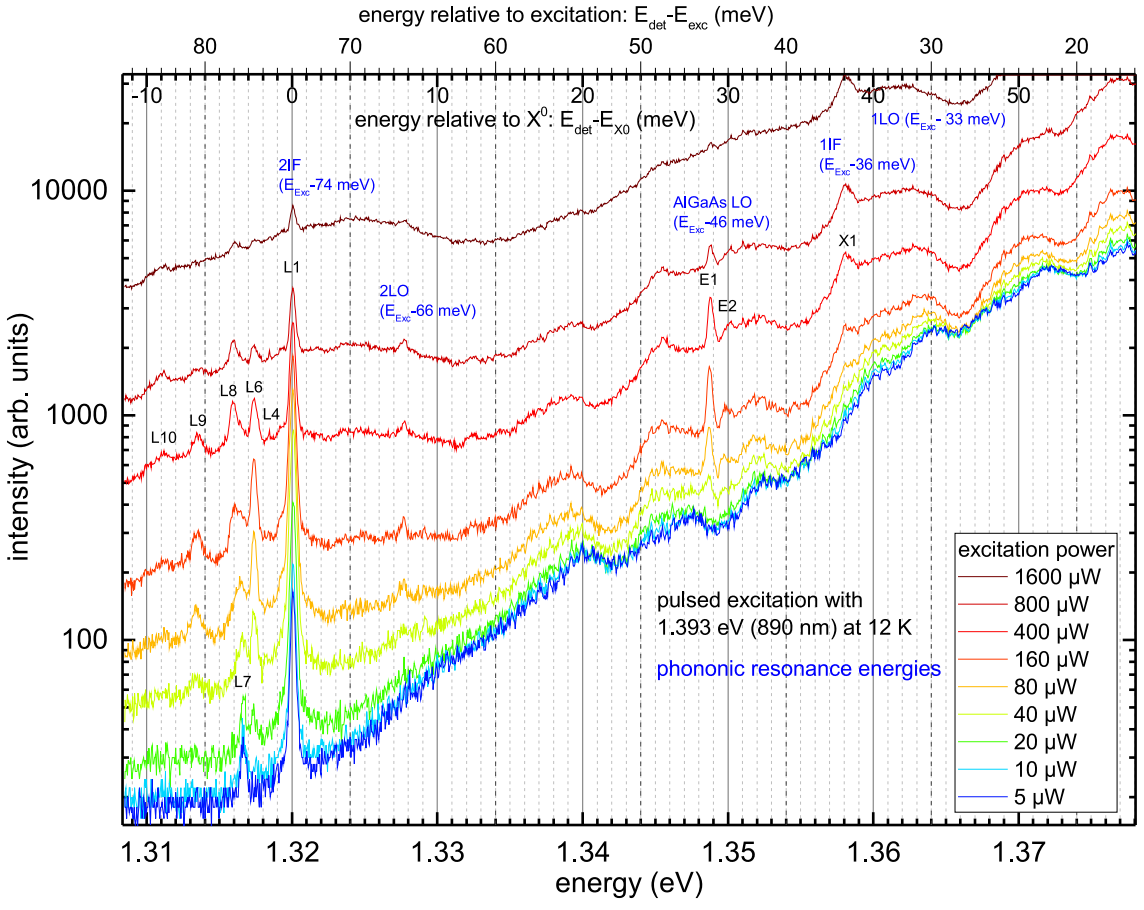


Abbildung 9.1 a) APD-Transienten von L1 bei nicht-resonanter Anregung b) Im nicht resonanten Anregungsfall nimmt die Anstiegszeit der Transienten von X0 mit zunehmender Anregungsleistung zu und sättigt schließlich, die Abklingzeit bleibt ungefähr konstant um die 600 ps. Bei Anregung mit 80 bis 160 μW tritt ein zusätzlicher Zerfallsprozess auf. c) Leistungsabhängige Spektren bei nicht-resonanter gepulster Anregung passend zu den Transienten, in blau mögliche phononische Resonanzen.

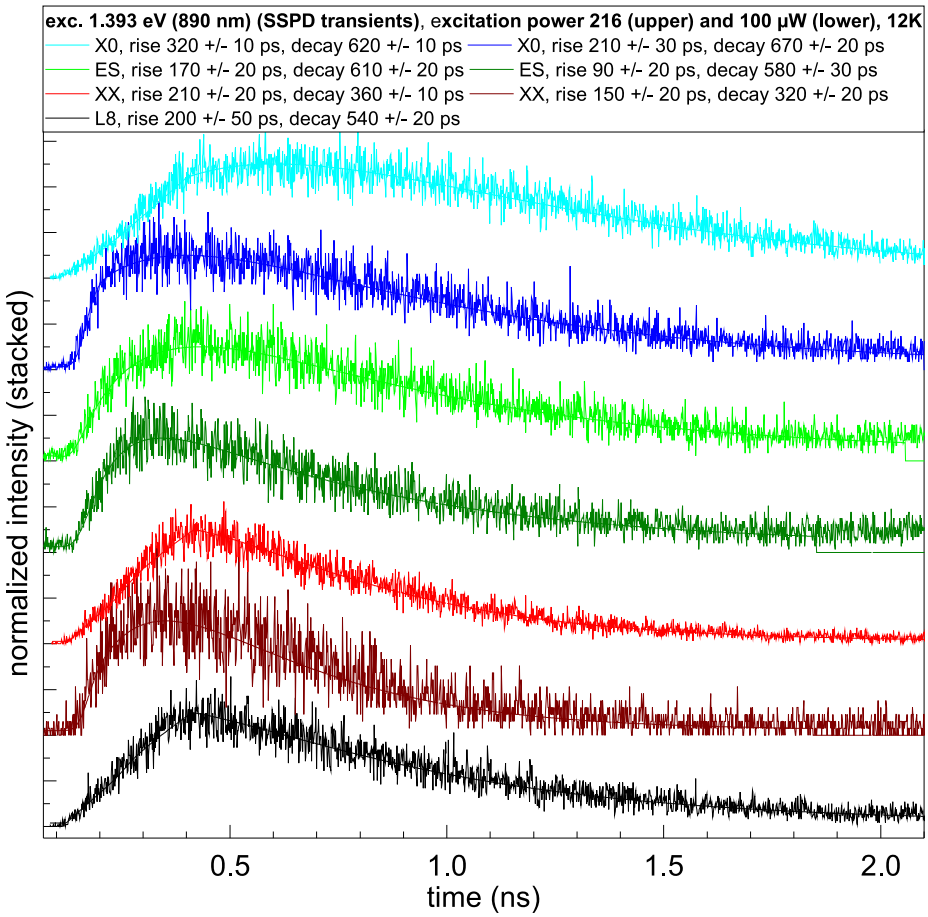
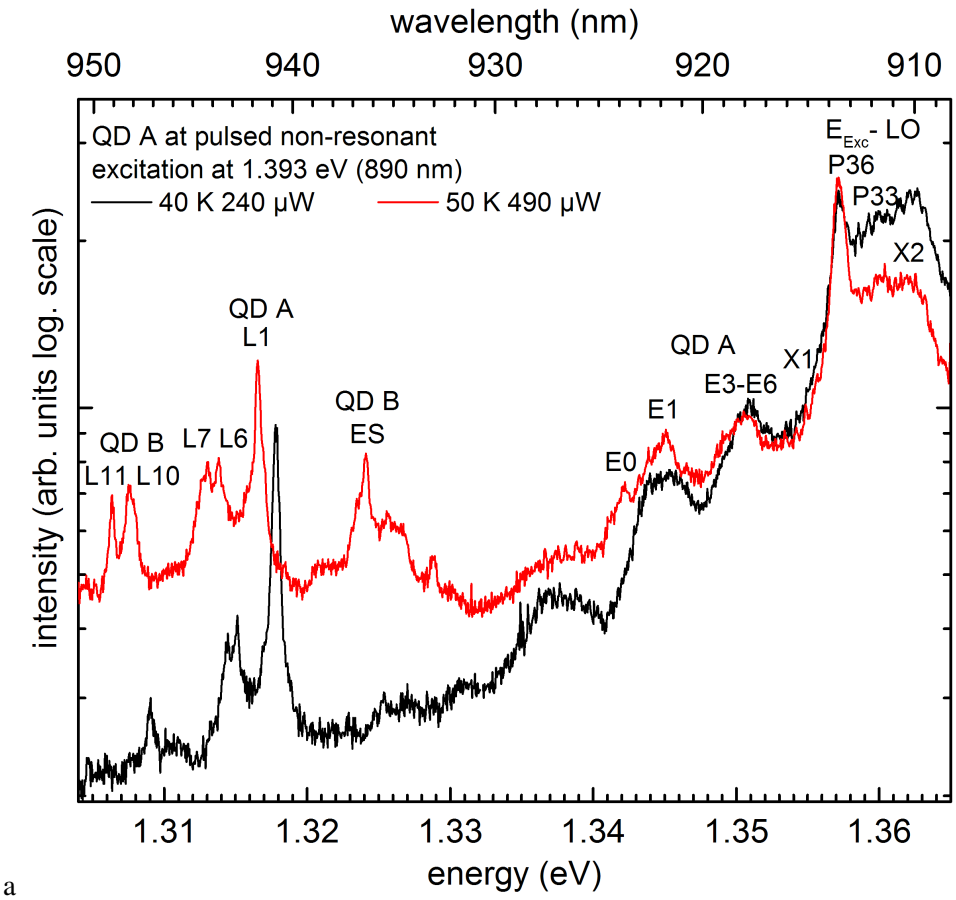
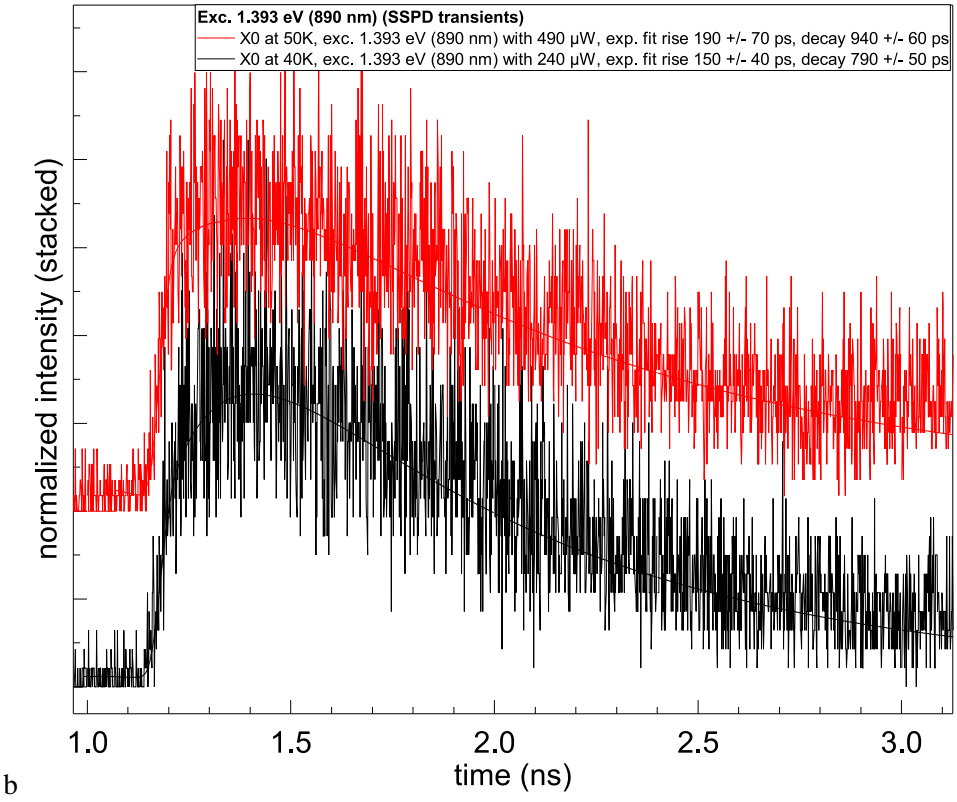


Abbildung 9.2 SSPD-Transienten von X0 (L1), XX (L6), L8 und E1 bei nicht-resonanter Anregung bei jeweils zwei unterschiedlichen Anregungsleistungen, 100 und 216 μW (außer L8, da nur 216 μW), alle bei 12 K. Die Anstiegszeiten des Exzitons X0 entsprechen ungefähr den Zerfallszeiten des Biexzitons XX, die Zerfallszeiten von X0 sind fast doppelt so lang.

angeregten Zustands bei 1326,3 meV teilweise auch in Spektren gemessen an QD A detektiert, wenn auch deutlich weniger intensiv als am Ort von QD B. An diesen Linien werden auch zeitabhängige Messungen durchgeführt: Die gemessenen Anstiegs- und Zerfallszeiten von L11 sind relativ ähnlich denen von L1 bei vergleichbaren Anregungsbedingungen, die des angeregten Zustands sind eher etwas langsamer, vor allem bei der Anstiegszeit. Insgesamt gesehen unterscheiden sich die QDs nicht wesentlich.



a



b

Abbildung 9.3 a) Spektren bei 40 und 50 K mit starker nicht-resonanter Anregung mit 240 bzw. 490 μW Anregungsleistung, b) SSPD-Transienten von X0 unter diesen Bedingungen: Die Anstiegszeiten des Exzitons X0 sind etwas kürzer als bei niedrigeren Temperaturen, die Zerfallszeiten etwas länger.

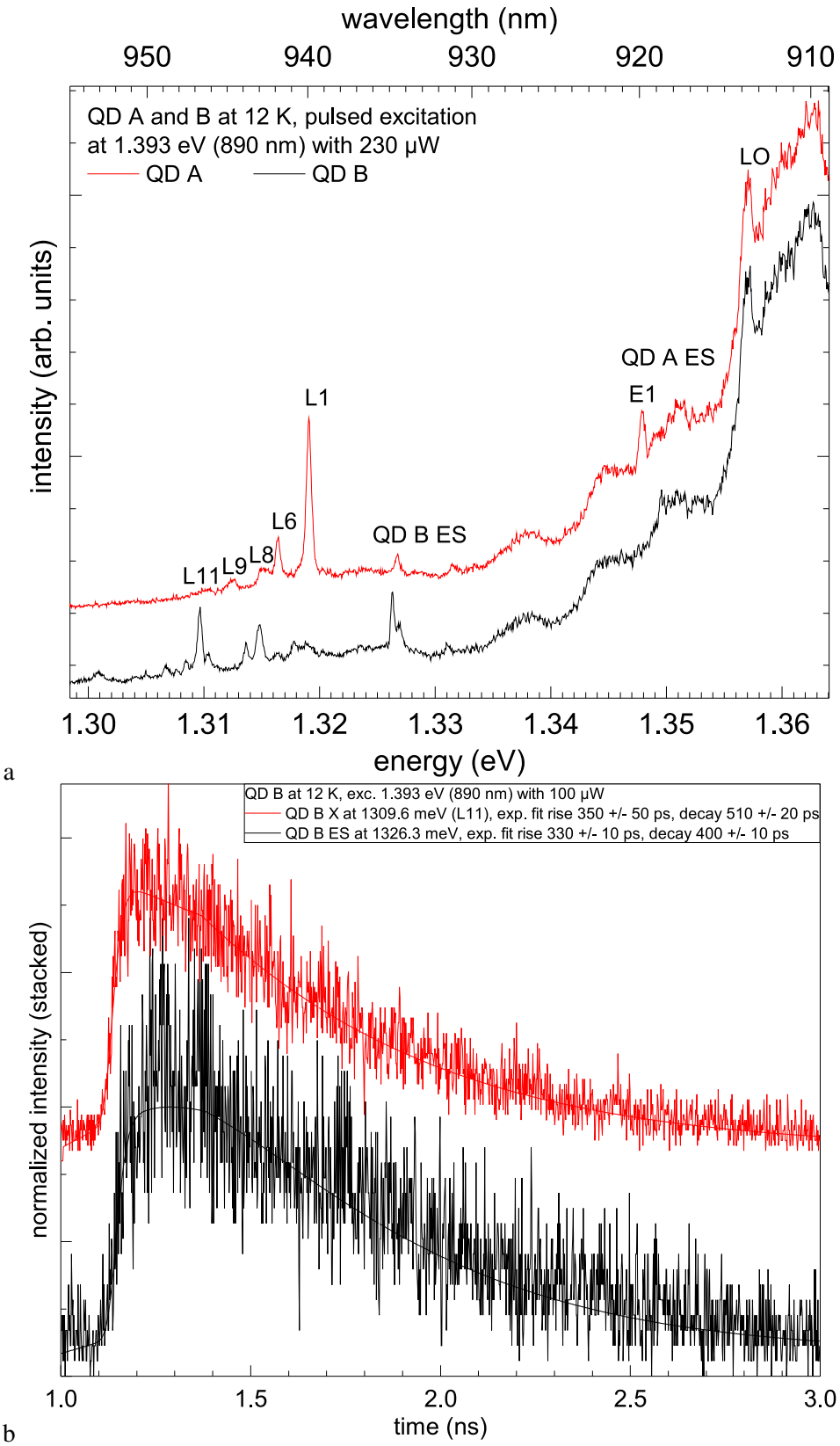


Abbildung 9.4 a) Spektren der Lumineszenz von QD A und B im Vergleich bei nicht-resonanter Anregung. b) SSPD-Transienten von Lumineszenzlinien von dem benachbarten QD B bei nicht-resonanter Anregung mit 1,393 eV mit 100 μW bei 12 K: Das mutmaßliche Exziton X (L11) bei 1309,6 meV und ein angeregter Zustand ES bei 1326,3 meV zeigen ähnliche Anstiegs- und Zerfallszeiten wie die entsprechenden Linien beim hauptsächlich untersuchten QD A (siehe Abb. 9.2 auf Seite 96).

9.3 Intensitätsabhängigkeit der Zerfallszeiten bei resonanter Anregung

Auch bei resonanter Anregung wird mittels kurzer Serien von APD-Transienten und einzelner SSPD-Transienten (siehe Abb. 9.5 bis 9.7 auf den Seiten 102–104) die Leistungsabhängigkeit der Anstiegszeiten t_{rise} und der Zerfallszeiten t_{decay} der Linien L1 (X) und L6 (XX) sowie L7 (X1-42meV) und L0 (X1-37meV) gemessen, die Ergebnisse sind in Tabelle 9.1 auf Seite 101 zusammmengefasst.
Bei resonanter Anregung in X2 (1363,7 meV) (mit schwacher bis mittelstarker Anregungsleistung bei 8 K, Transienten siehe Abb. 9.5 auf Seite 102) steigen die Anstiegszeiten von Exziton und Biexziton (L1, L6) mit der Anregungsleistung. Die Zerfallszeiten bleiben relativ konstant, ebenso wie die Zeiten für L7 und L0. Das Verhalten ist also ähnlich wie bei nicht-resonanter Anregung und vermutlich wiederum auf die Sättigung des Grundzustands und die Bildung von Multiexzitonen zurückzuführen [Dek00, Dek01]. Die Zerfallszeit des Exzitons L1 ist mit durchschnittlich etwa 650 ps ähnlich lange wie bei nicht-resonanter Anregung und knapp doppelt so lang wie die Zerfallszeit des Biexzitons (L6) mit durchschnittlich 340 ps. Das Verhältnis der Zerfallszeiten von X und XX von etwa 1,9 liegt im Rahmen dessen, was aus anderen Experimenten bekannt ist [Feu08]. Die Anklingzeit von L1 (X) liegt bei etwa 200 bis 300 ps, die von L6 (XX) bei etwa 80 bis 160 ps, also wiederum bei etwa der Hälfte. Für L7 wird eine Zerfallszeit von etwa 490 ps gemessen bei einer Anklingzeit von etwa 250 bis 330 ps, ein Wert, der zwischen denen von X und XX liegt. Für L0 wird eine stark fehlerbehaftete Zerfallszeit von ungefähr 800 ps gemessen, ein auffällig großer Wert. Es ist anzunehmen, dass die Messung der Zerfallszeit von L0 durch Ausläufer der benachbarten Linie L1 beeinträchtigt wurde und dass die gemessene Zerfallszeit eigentlich maßgeblich die von L1 ist.
Bei Anregung in X1 (1356,2 meV) mit mittelstarker bis sehr starker Leistung bei 28 K, siehe Abb. 9.6 auf Seite 103, steigen die Zerfallszeiten von L1, L7 und L0 mit der Anregungsleistung, die Anstiegszeit von L1 bleibt konstant bei etwa 240 ps, ebenso wie die Zerfallszeit von L6 bei etwa 250 ps. Die Zerfallszeiten des Exzitons L1 von 490 bis 620 ps sind etwas mehr als doppelt so groß wie die des Biexzitons L6. Die Zerfallszeiten von L7 mit 160 bis 310 ps und die von L0 mit 240 bis 390 ps fallen deutlich kürzer aus als bei Anregung in X2. Der Trend steigender Zerfallszeiten von L1 und L7 mit steigender Anregungsleistung, vermutlich aufgrund der Sättigung des Grundzustands, bestätigt sich auch bei Messungen mit den SSPDs mit besserer Zeitauflösung bei niedrigeren Temperaturen und schwächeren Anregungsleistungen, siehe Transienten in Abb. 9.8 bis 9.10 auf den Seiten 105–106. Sowohl bei resonanter Anregung in X1 (1356,2 meV) als auch energetisch etwas niedriger mit dem LO Phonon in Resonanz mit L1 sind die gemessenen Zeiten ähnlich wie bei den APD-Messungen. Zusätzlich können dank der besseren Zeitauflösung jedoch auch noch die Anklingzeiten für L6 (etwa 80 ps) und L7 (30 bis 100 ps) gemessen werden.
Messungen in Abhängigkeit von der Anregungsenergie zeigen, dass für resonante Anregung in X1 oder X2 die Zerfallszeiten vor allem von L7 und L0 etwas höher sind als für nicht-resonante Anregung zwischen diesen Zuständen, siehe Transienten in Abb. 9.7 auf Seite 104. Bei Anregung in X1 liegt dabei das 37 meV IF Phonon resonant in L0. In den zugehörigen Spektren (siehe Abb. 9.12 auf Seite 108) ist die erhöhte Intensität der Linien L1 bis L7 bei resonanter Anregung in X1 und X2 erkennbar. Die Intensität der Phononen scheint für Anregungsenergien kleiner als X2 etwas und für

Anregungsenergien kleiner als X1 nochmal stärker abzunehmen. Die Intensität der Phononenpeaks niederenergetisch von L1 ist deutlich geringer als auf der hochenergetischen Seite, nur bei Resonanz des 37 meV Phonons mit L7 kommt es noch einmal zur einer Intensitätserhöhung.

9.3.1 Verhältnis der Zerfallszeiten der verschiedenen Lumineszenzen

Das Verhältnis der Zerfallszeiten von L1 (X) und L6 (XX) ist eher etwas größer als 2, anders als etwa bei [Feu08], wo der durchschnittliche Faktor bei 1,7 lag. Allerdings wurde dort auch mittels Elektronenstrahl angeregt und Kathodolumineszenz (CL) gemessen und nicht optisch angeregte PL gemessen. Dadurch weisen die CL Transienten keine Anstiegszeiten auf und unterliegen gewissen Nachfütterungsprozessen, sind also nicht vollständig mit den PL Transienten vergleichbar. Insgesamt gesehen liegt das Verhältnis der Zerfallszeiten von Exziton und Biexziton jedoch noch in dem von der Theorie vorhergesagten Rahmen [Nar05, Nar06].

Tabelle 9.1 Mittels kurzer Serien von APD-Transienten wird die Abhängigkeit der Anstiegszeiten t_{rise} und der Zerfallszeiten t_{decay} der Linien L1 (X) und L6 (XX) sowie L7 (X1-42meV) und L0 (X1-37meV) von der Anregungsleistung gemessen, Zusammenhänge sind **fett** markiert. Bei resonanter Anregung in X2 (1363,7 meV) steigen die Anstiegszeiten von Exziton und Biexziton (L1, L6) mit der Anregungsleistung, die Zerfallszeiten bleiben relativ konstant, ebenso wie die Zeiten für L7 und L0. Es ist möglich, dass bei Messung von L0 bei dieser Anregung eigentlich die hochenergetische Flanke von L1 gemssen wurde, die gemessenen Zerfallszeiten also nicht L0 zuzuordnen sind. Bei Anregung in X1 (1356,2 meV) steigen die Zerfallszeiten von L1, L7 und L0 mit der Anregungsleistung, die Anstiegszeit von L1 bleibt konstant, ebenso wie die Zerfallszeit von L6. Messungen in Abhängigkeit von der Anregungsenergie zeigen, dass für resonante Anregung in X1 oder X2 die Zerfallszeiten von L7 und L0 etwas höher sind als für nicht-resonante Anregung zwischen diesen Zuständen, bei Anregung in X1 liegt das 37 meV LO Phonon resonant in L0. Der Trend steigender Zerfallszeiten von L1 und L7 mit steigender Anregungsleistung bestätigt sich auch bei Messungen mit den SSPDs mit besserer Zeitauflösung, sowohl bei resonanter Anregung in X1 (1356,2 meV) als auch energetisch etwas niedriger mit dem LO Phonon in Resonanz mit L1.

E_{exc}	P_{exc}	T	L1 (X0)		L6 (XX)		L7 (X1-42 meV)		L0 (X1-37 meV)	Res.
(meV)	(μW)	(K)	t_{rise} (ps)	t_{decay} (ps)	t_{rise} (ps)	t_{decay} (ps)	t_{rise} (ps)	t_{decay} (ps)	t_{decay} (ps)	
APD	resonante Anregung in X1 und X2									
1363,7	**630**	8	**320±10**	650±10	**160±10**	360±10	250±30	490±20	800±230	X2
1363,7	**300**	8	**230±20**	660±10	**90±10**	330±10	250±90	480±20	760±140	X2
1363,7	**160**	8	**210±30**	630±20	**80±50**	330±30	330±60	490±30		X2
1356,2	**2000**	28	230±20	**620±10**		250±10		**310±10**	**390±20**	X1
1356,2	**1000**	28	230±20	**550±10**		220±20		**220±10**	**300±20**	X1
1356,2	**500**	28	250±60	**490±20**		270±20		**160±20**	**240±10**	X1
1364,7	1000	16	170±10	710±20		330±40		**460±20**	**420±20**	X2
1360,7	1000	16	160±20	750±40		320±40		360±20	380±30	
1357,4	1000	16	210±20	620±20		310±40		360±20	330±20	
1356,2	1000	16	190±10	630±10		360±20		**390±10**	**400±30**	X1,
									LO@L0	19 ps
SSPD	resonante Anregung in und nahe X1									
1356,2	**880**	8	230±20	**780±30**	100±20	240±20	100±50	**480±30**		X1
1356,8	**290**	4	340±10	**450±10**	70±20	290±20	100±30	**390±20**		X1
1354,8	**880**	8	130±20	**760±30**					LO@L1	5 ps
1355,3	**360**	12	320±10	**500±10**	80±20	260±20	30±10	450±20	LO@L1	2 ps
1355,3	**290**	4	320±10	**470±10**					LO@L1	7 ps

E_{exc}	P_{exc}	T	L1 (X0)		L6 (XX)		L8 (3X)		E1	
(meV)	(μW)	(K)	t_{rise} (ps)	t_{decay} (ps)	t_{rise} (ps)	t_{decay} (ps)	t_{rise} (ps)	t_{decay} (ps)	t_{rise} (ps)	t_{decay} (ps)
SSPD	nicht-resonante Anregung im WL									
1393,1	**210**	12	**320±10**	620±10	**210±20**	360±10	200±50	540±20	**170±20**	610±20
1393,1	**100**	12	**210±30**	670±20	**150±20**	320±20			**90±20**	580±30
1393,1	230	40	190±70	940±60						
1393,1	110	50	150±40	790±50						

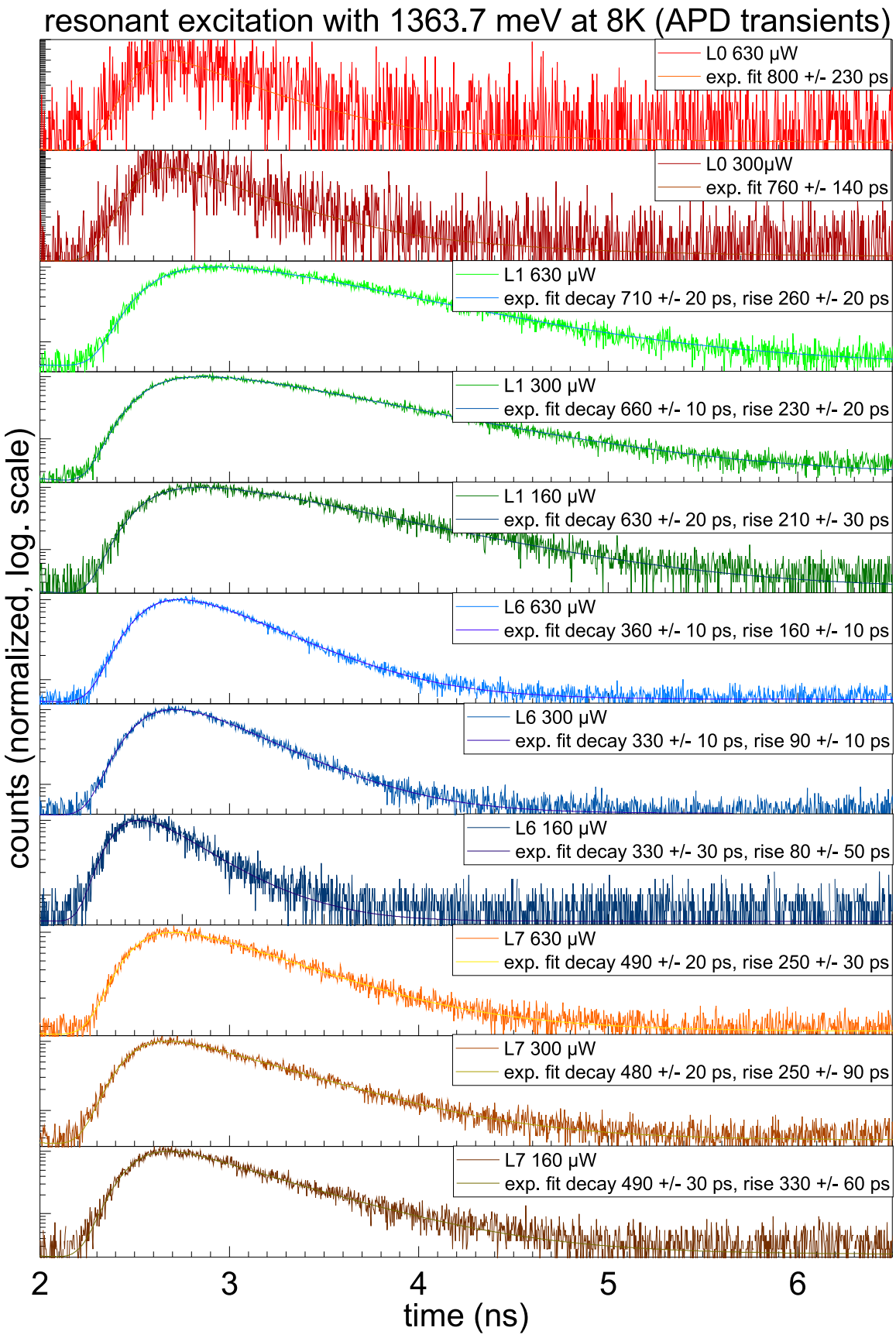


Abbildung 9.5 APD-Transienten von L0, L1, L6 und L7 bei resonanter Anregung bei 1363,7 meV resonant in X2 mit schwacher bis starker Anregungsleistung 160 bis 630 μW, alle bei 8 K.

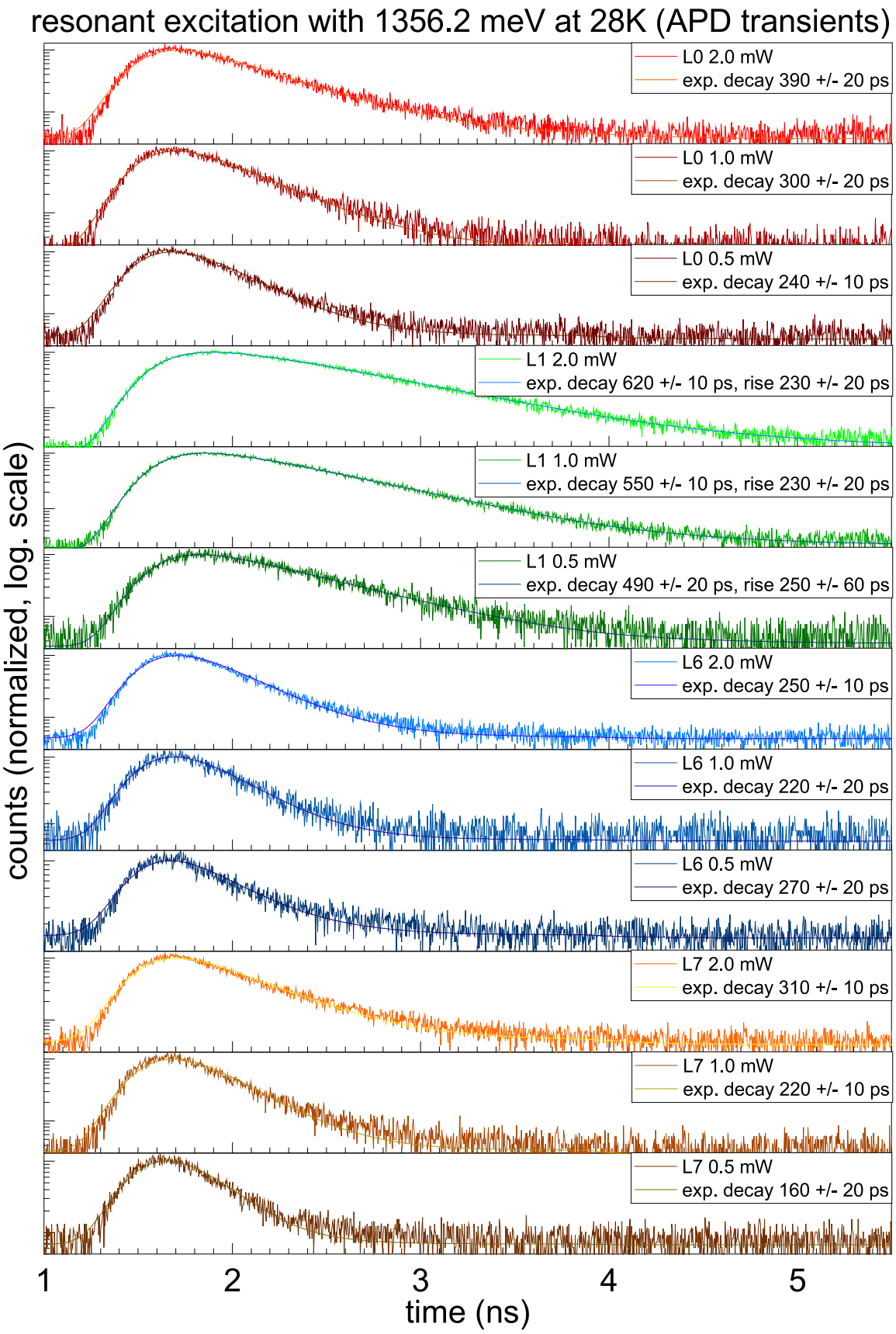


Abbildung 9.6 APD-Transienten von L0, L1, L6 und L7 bei resonanter Anregung bei 1356,2 meV resonant in X1 mit mittlerer bis sehr starker Anregungsleistung 0,5 bis 2,0 mW, alle bei 28 K.

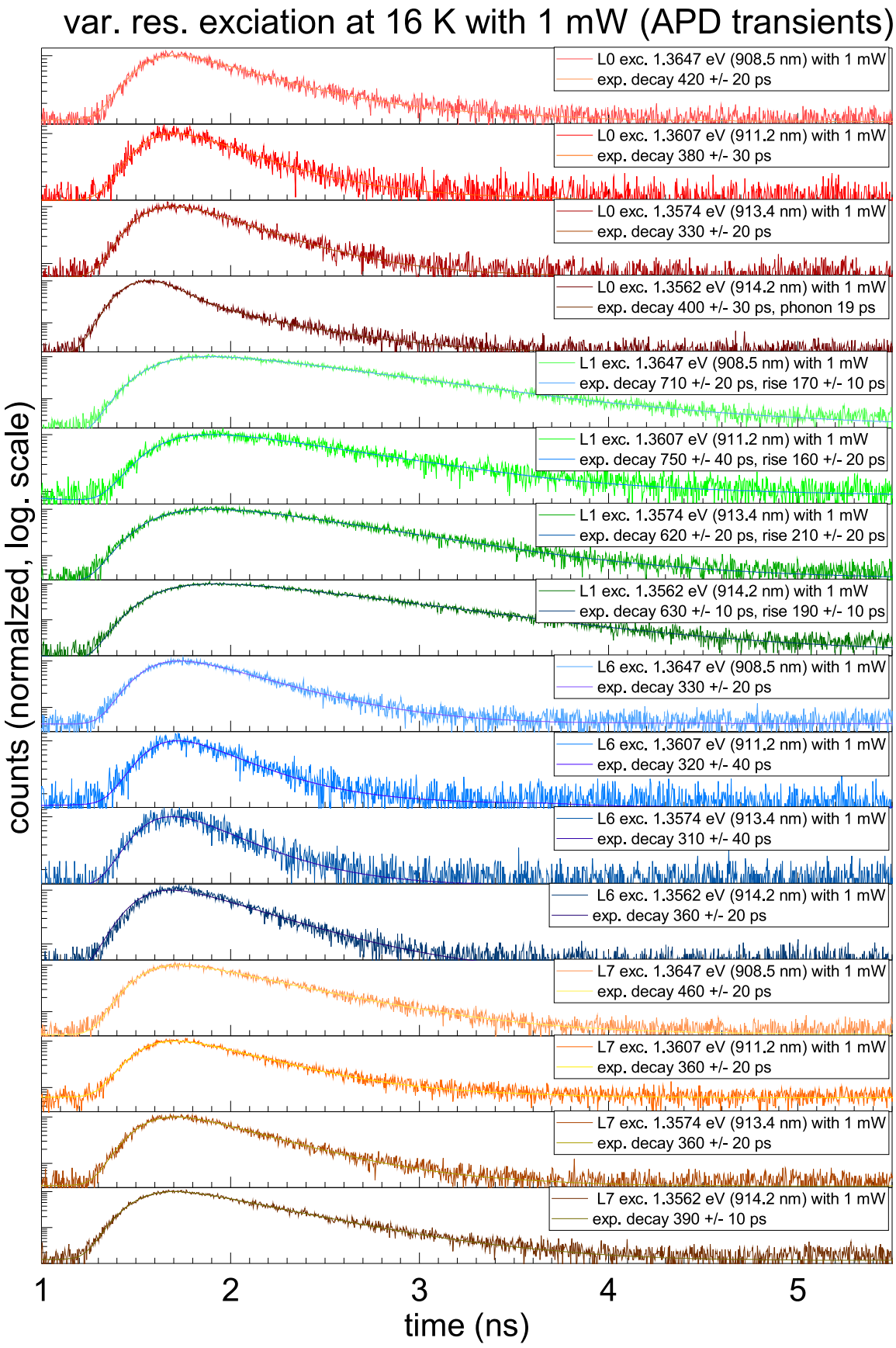


Abbildung 9.7 APD-Transienten von L0, L1, L6 und L7 bei starker Anregung mit 1 mW bei 1356,2 meV (resonant in X1 mit LO Phonon resonant in L0), 1357,4 meV, 1360,7 meV und 1364,7 meV (resonant in X2), alle bei 16 K.

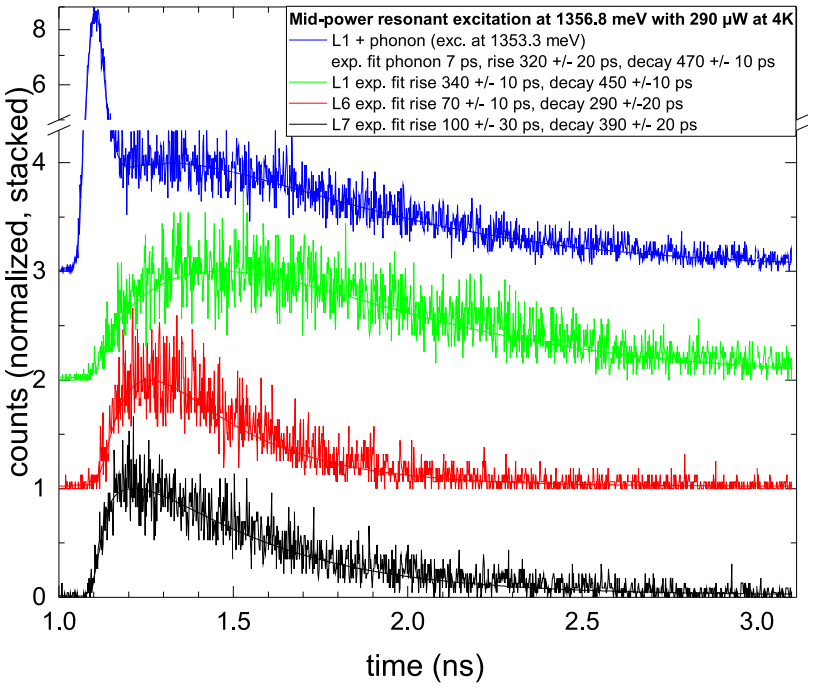


Abbildung 9.8 SSPD-Transienten von X0 (L1), XX (L6) und L7 bei mittelstarker Anregung mit 290 μW bei 1356,8 meV resonant in X1, sowie mit dem LO Phonon in Resonanz mit L1 (Anregung mit 1355,3 meV), alle bei 4 K.

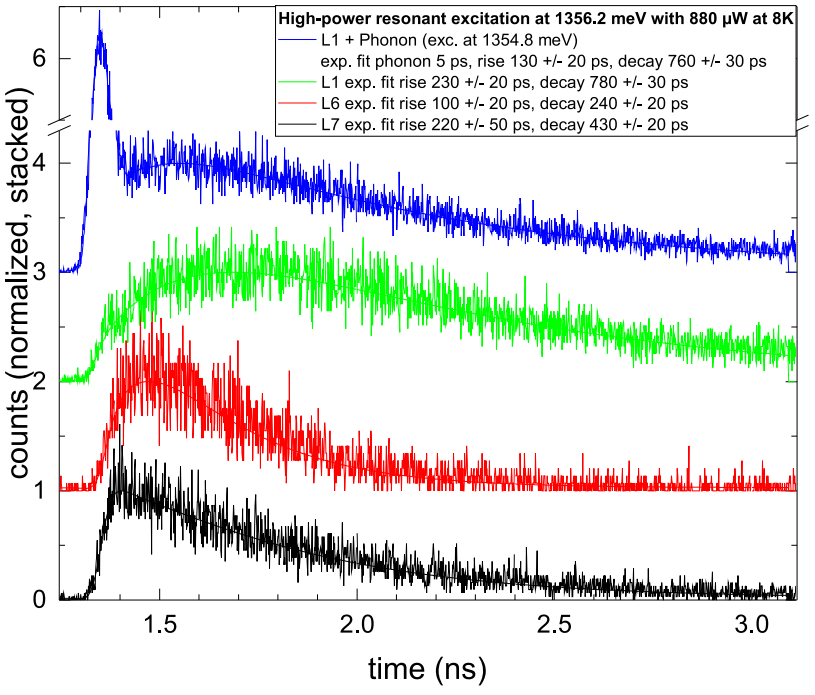


Abbildung 9.9 SSPD-Transienten von X0 (L1), XX (L6) und L7 bei starker Anregung mit 880 μW bei 1356,2 meV resonant in X1, sowie mit dem LO Phonon in Resonanz mit L1 (Anregung mit 1354,8 meV), alle bei 8 K.

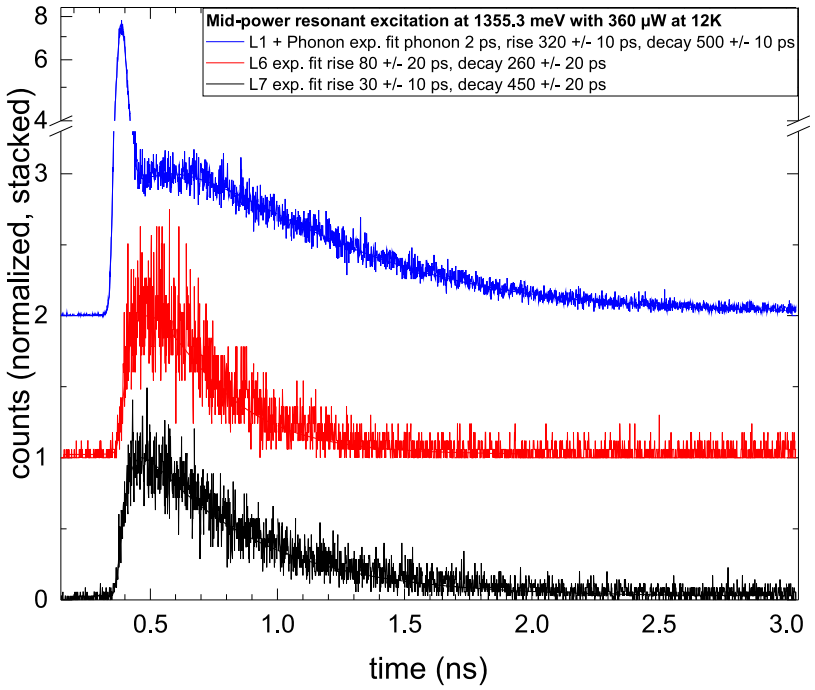
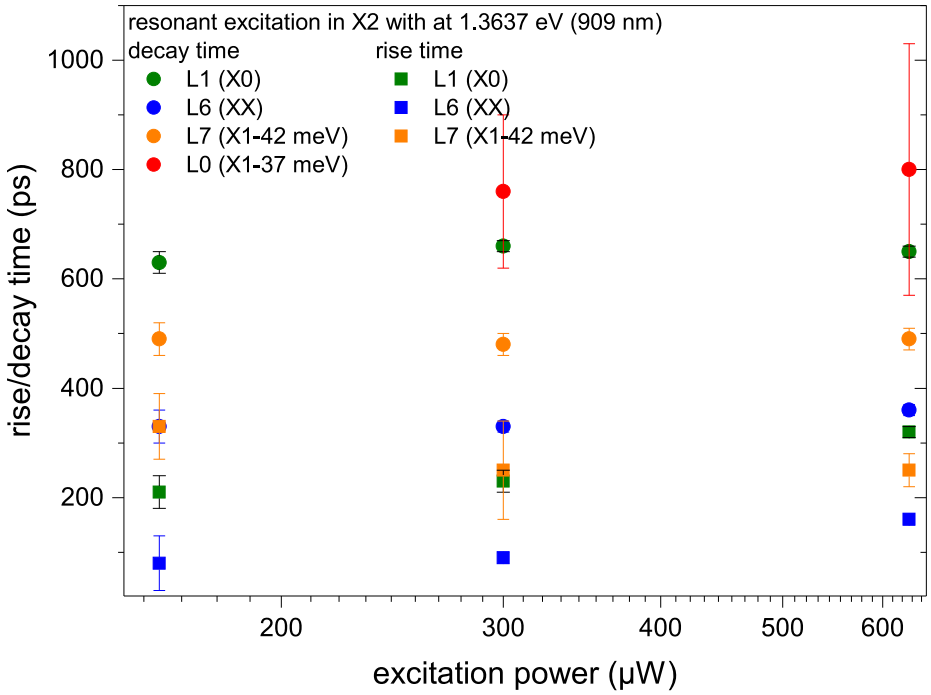
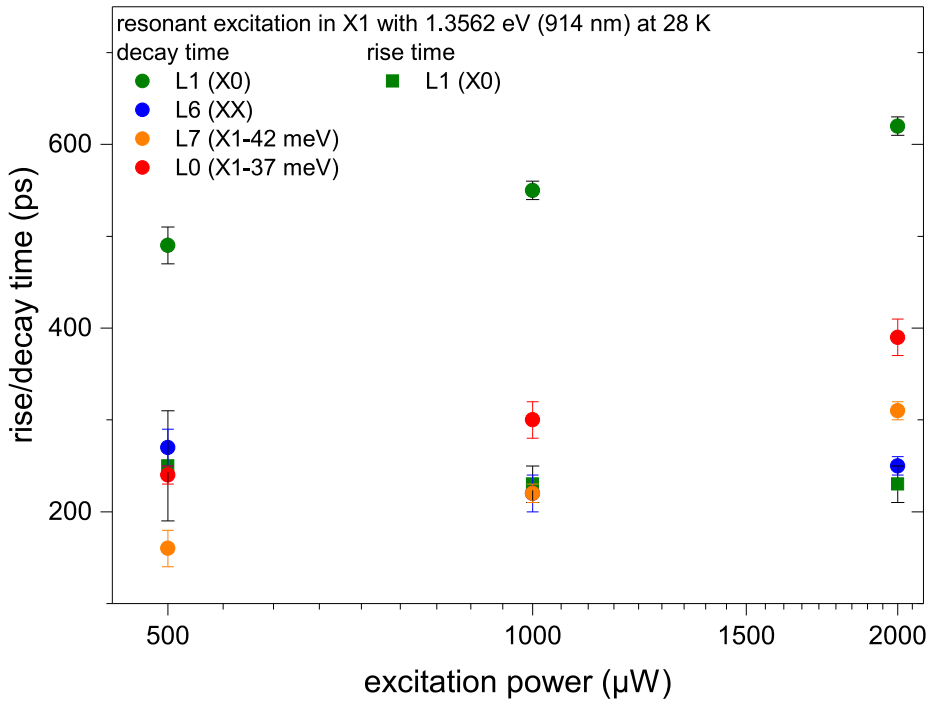


Abbildung 9.10 SSPD-Transienten von X0 (L1), XX (L6) und L7 bei mittelstarker Anregung mit 360 μW bei 1355,3 meV mit dem LO Phonon in Resonanz mit L1, alle bei 12 K.

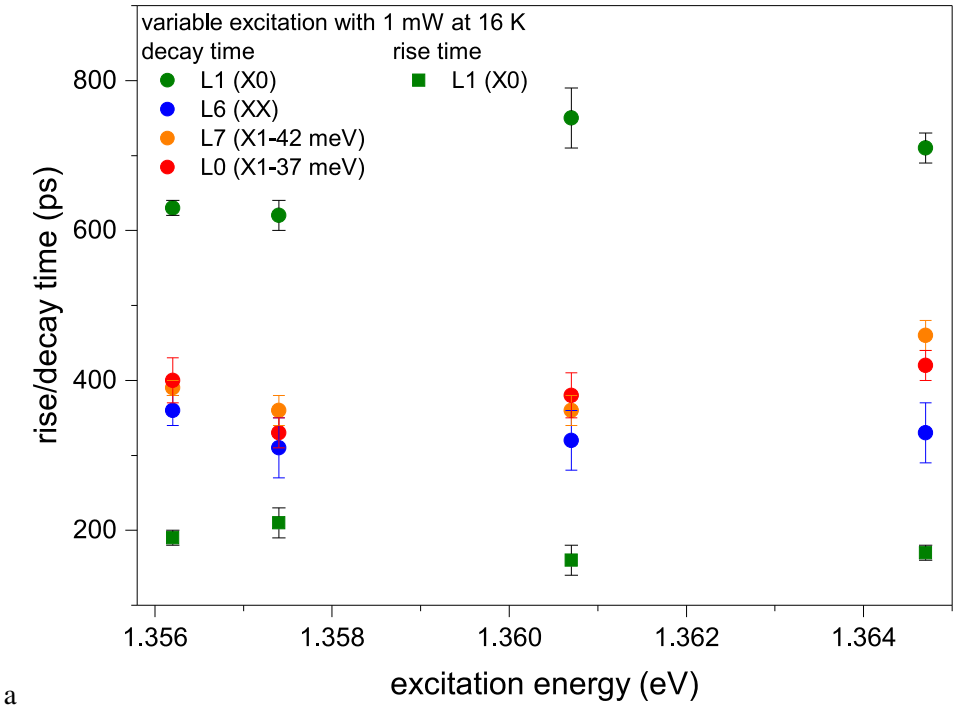


a

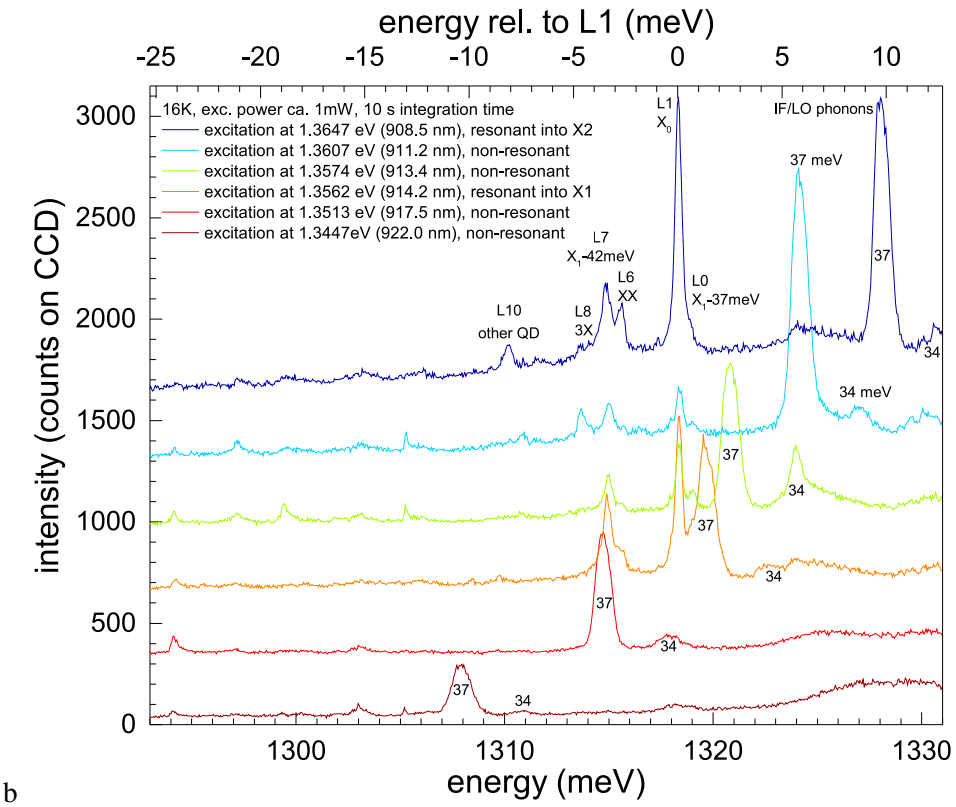


b

Abbildung 9.11 Leistungsabhängigkeit der Anstiegs- und Zerfallszeiten aus den APD-Messsungen in Abb. 9.5 bis 9.6 auf den Seiten 102–103: a) Zeiten von L0, L1, L6 und L7 bei resonanter Anregung in X2 bei 8 K mit schwacher Anregungsleistung (160 bis 630 μW): Die Anstiegszeiten von Exziton (L1) und Biexziton (L6) steigen leicht mit der Anregungsleistung an. Die Zerfallszeiten von L1 und L6 hingegen bleiben relativ konstant, ebenso wie die Anstiegs- und Zerfallszeiten für L7 sowie die auffällig lange Zerfallszeit für L0. b) Zeiten von L0, L1, L6 und L7 bei resonanter Anregung bei 1356,2 meV resonant in X1 bei 28 K mit mittlerer bis sehr starker Anregungsleistung (0,5 bis 2,0 mW): Die Zerfallszeiten von L0, L1 und L7 und L0 steigen mit der Anregungsleistung an, die Zerfallszeit von L6 sowie die Anstiegszeit von L1 hingegen bleiben im Rahmen der Messungenauigkeit konstant.



a



b

Abbildung 9.12 a) Energieabhängigkeit der Anstiegs- und Zerfallszeiten der Transienten von L0, L1, L6, L7 aus Abb. 9.7 auf Seite 104 bei mittelstarker Anregung mit 1 mW bei 16K mit Anregungsenergien von 1356,2 meV (resonant in X1, Phonon in L0), 1357,4 meV, 1360,7 meV und 1364,7 meV (resonant in X2). Bei resonanter Anregung in X1 oder X2 werden tendenziell etwas langsamere Zerfallszeiten gemessen als zwischen diesen Resonanzen. b) QD-Spektren passend zu den oben genannten Transienten sowie zusätzlich mit noch niedrigeren Anregungsenergien von 1351,3 meV (LO Phonon resonant mit L7) und 1344,7 meV (nicht-resonant). Die Intensität der Raman-Phononen nimmt auf der niederenergetischen Seite von L1 stark ab, nur in Resonanz mit L7 sind sie noch einmal deutlich sichtbar.

9.4 Resonanter Ramaneffekt

Im Falle der resonanten Anregung liegen die Phononen des Anregungslasers energetisch sehr nahe an den exzitonischen Zuständen des Quantenpunkts. Dadurch sind reale QD-Zustände an der Raman-Streuung beteiligt und es kommt zu resonanter Raman-Streuung. Wenn man die Intensität der Raman-Peaks über der Anregungsenergie aufträgt (siehe Abb. 9.13 auf der nächsten Seite), lasst sich ein deutliches Resonanzprofil für die 36 meV Linie feststellen, die 36 meV Phononen scheinen also gut an die QD Lumineszenz zu koppeln. Die Intensität der 33 meV Linie hingegen steigt etwas zu höheren Energien hin an, zeigt jedoch keine deutliche Resonanz. Der Vergleich mit den PLE-Spektren der in Resonanz auftretenden Linien L0, L1 und L7 zeigt, dass die Resonanz der 36 meV Phononlinien P36 noch über die bloße Überlagerung mit den Lumineszenzlinien hinausgeht. Bei Auftragung über der Detektionsenergie, welche ja für die Phononen von der Anregungsenergie abhängt, stellt man fest, dass die Resonanz der 36 meV Linie genau im Bereich der QD-Lumineszenz liegt und dass zusätzlich auch eine deutliche Überlagerung mit den Lumineszenzlinien auftritt. Die 33 meV Phononenlinien P33 hingegen zeigt zwar einen leichten Anstieg hin zu größeren Energien, jedoch keine erkennbare Resonanz, nur eine leichte Überlagerung mit L0 und L1.
Das unterschiedliche Resonanzverhalten der beiden Phononenmoden könnte auf die Phononenwellenvektorabhängigkeit der Elektron-Phonon-Fröhlich-Wechselwirkung zurückzuführen sein. Da in polaren Kristallen wie GaAs oder InAs ein elektrisches Dipolfeld auftritt, bevorzugt die Fröhlich-Wechselwirkung aus Symmetriegründen longitudinal-optische Phononen (LO) [Car82]. Die 36 meV Phononlinien P36 verhält sich demnach LO-artiger als die 33 meV Phononenlinien P33. Die 36 meV Phononlinie P36 kann einem LO-artigen IF-Phonon zugeordnet werden, die 33 meV Phononenlinie P33 hingegen vermutlich eher einer GaAs TO-Mode oder einer InAs LO-Mode, die jedoch schwächer ausgeprägt ist, da InAs nur direkt im QD und im WL vorhanden ist und nicht in der umgebenden Matrix.
Die Breite und Form des Resonanzprofils entspricht ungefähr der aus der Literatur bekannten Verbreiterung einer Lumineszenzlinie durch akustische Phononen („Phononenfuß“) [Sto11b]. Auch verhält sich das Resonanzprofil ungefähr spiegelsymmetrisch zur PLE-Resonanz von L1, ein weiterer Hinweis darauf, dass die Wechselwirkung mit Phononen genauer betrachtet werden sollte. Wenn akustische Phononen mit in die Betrachtung der energetischen Abstände einbezogen werden, lassen sich alle beobachteten Übergänge erklären.
In einem Spektrum bei nah-resonanter Anregung mit 1364 meV treten nahe des Lasers auch Linien auf, die den akustischen Phononen zugeordnet werden können (siehe Abb. 9.14 auf Seite 111). Hierfür ist es notwendig, den die Laserintensität auf der CCD mittels Kantenfiltern stark abzuschwächen, so dass auch Linien direkt neben dem Laser gemessen werden können. Die Linien bei 1 bzw. 1,5 meV werden am QD lokalisierten TA-Phononen zugeordnet, die bei 5 meV lokalisierten LA-Phononen. Diese Energien sind deutlich geringer als für akustische Phononen im Bulk-Material [Bla82], was auf eine Rückfaltung der Phononen in die erste Brillouin-Zone zurückzuführen sein könnte, wie in [Kot79, Kel11, Zha12] für andere Materialsysteme beschrieben.

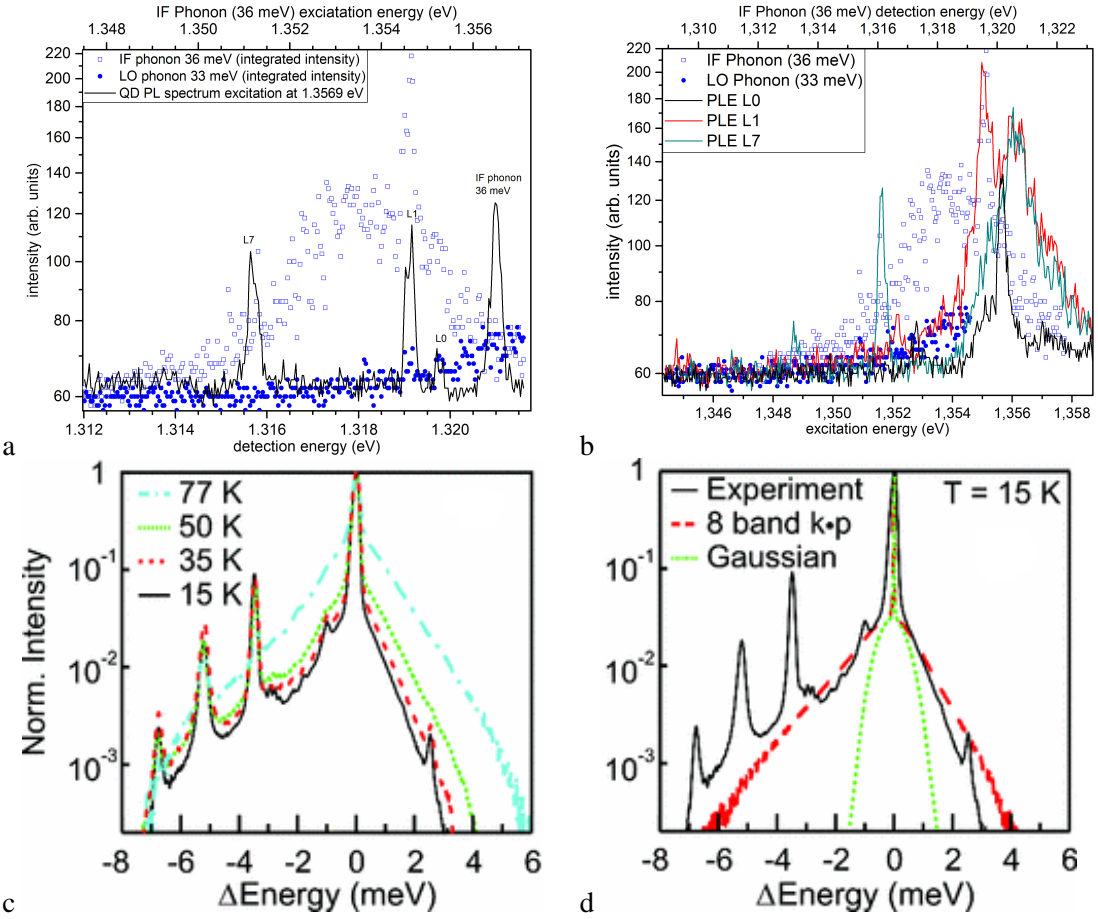


Abbildung 9.13 Die Intensität der Phononenlinie 36 meV unterhalb der Anregungsenergie (IF-Phonon P36) zeigt eine deutliche Resonanz im Gebiet der QD-Lumineszenz. In der Auftragung a) über der Detektionsenergie ist erkennbar, dass die größte Intensität in der Nähe von L1 auftritt. Der schmale Peak im Resonanzprofil entsteht durch Überlagerung mit L1. Die Breite und Form des Resonanzprofils entspricht der aus der Literatur bekannten Verbreiterung einer Lumineszenzlinie durch akustische Phononen („Phononenfuß“). Zudem verhält sich das Resonanzprofil ungefähr spiegelsymmetrisch zur PLE-Resonanz von L1. Die Auftragung über der Anregungsenergie b) zeigt eine breite Anregungsresonanz um etwa 2 meV zu niedrigen Energien verschoben als die PLE-Resonanz von L1. Die Phononenlinie 33 meV unterhalb der Anregungsenergie (InAs LO oder GaAs TO-Phonon P33) zeigt keine erkennbare Resonanz. Die Form und energetische Breite des gemessenem Resonanzprofils entspricht ungefähr der Linienverbreiterung durch akustische Phononen (Abbildungen c und d aus [Sto11a]), die in logarithmischer Darstellung als eine Art „Phononenfuß“ erkennbar ist. Mit steigender Temperatur nimmt die Linienverbreiterung zu (c). Die experimentell gemessene Linienverbreiterung lässt sich auch durch 8 Band k · p Messungen berechnen.

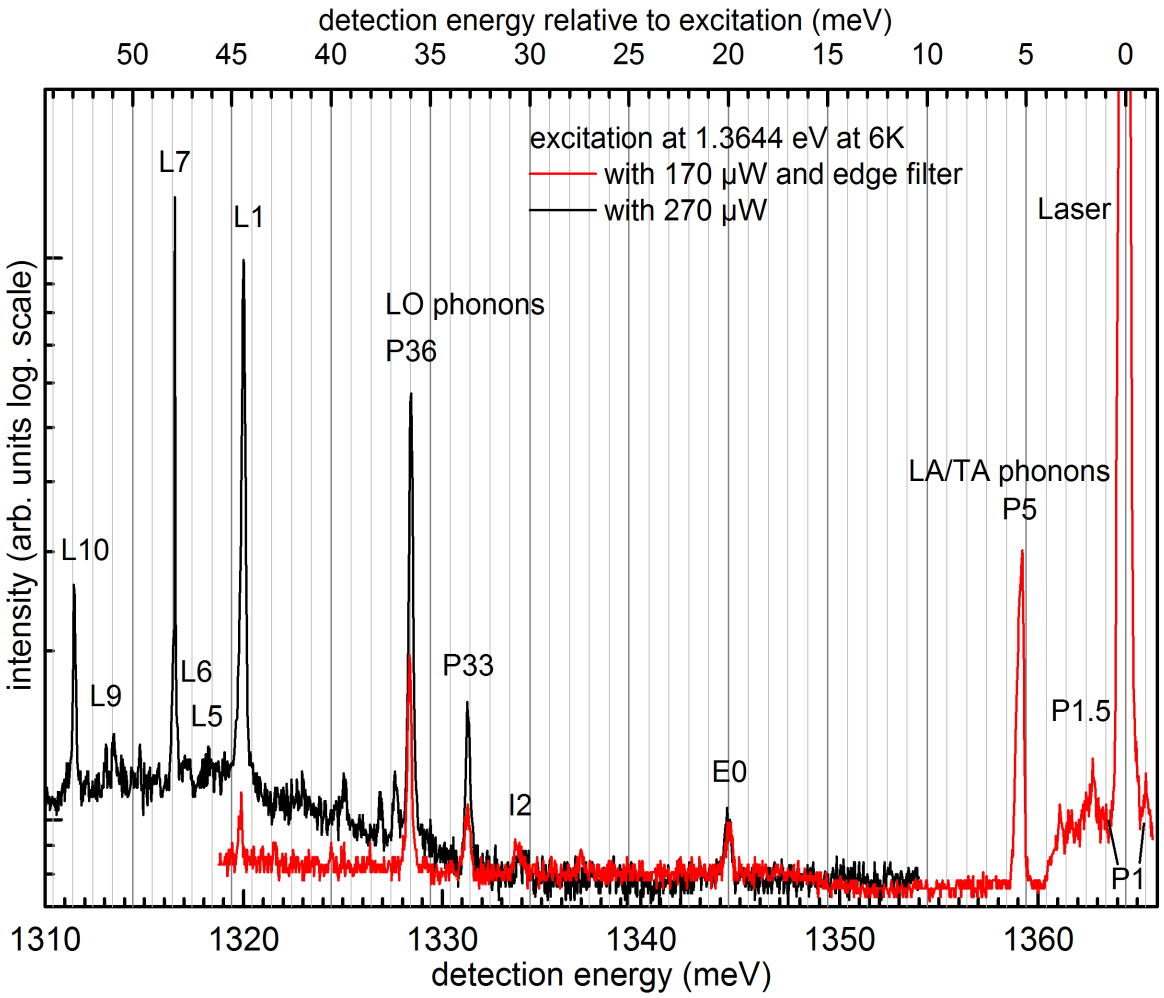


Abbildung 9.14 Bei nah-resonanter Anregung mit 1364 meV treten neben der Laserlinie auch Linien auf, die akustischen Phononen zugeordnet werden können. Hierfür ist es notwendig, den die Laserintensität auf der CCD mittels Kantenfiltern stark abzuschwächen, so dass auch Linien direkt neben dem Laser gemessen werden können. Die Linien werden am QD lokalisierten akustischen Phononen zugeordnet, die in die erste Brillouin-Zone zurückgefaltet wurden, und zwar TA-Phononen bei 1 bzw. 1,5 meV und LA-Phononen bei 5 meV.

9.4.1 Tripel-Resonanz durch Multiphononenrelaxation im resonanten Ramaneffekt

Wenn zusätzlich zu den optischen Phononen auch akustische Phononen betrachtet werden, lässt sich eine schlüssige Interpretation aller beobachteten Übergänge finden. Auf eine Wechselwirkung mit akustischen Phononen lässt sich auch aus dem gemessenen Intensitätsprofil der Resonanzanregung schließen, dessen Breite ungefähr der aus der Literatur bekannten Verbreiterung einer Lumineszenzlinie durch akustische Phononen („Phononenfuß“) entspricht, siehe Abb. 9.13 auf Seite 110. Die Verbreiterung der akustischen Phononen über eine Breite von etwa 10 meV erlaubt eine Wechselwirkung mit passenden elektronischen Zuständen. Hierzu müssen Prozesse mit optischen und akustischen Phononen betrachtet werden, wie sie schon in frühen Arbeiten zum resonanten Ramaneffekt

beschrieben sind [Yu76].
Bei resonanter Anregung in einen angeregten Zustand X1 bis X4 findet die Relaxation des angeregten Exzitons zunächst über ein oder mehrere akustische LA Phononen (mit jeweils etwa 5 meV) bis in den angeregten Zustand X1 statt. Von dort aus kommt es zu einer Relaxation über ein optisches LO Phonon (mit 36 bis 37 meV) nach L0, wo das Exziton rekombinieren kann oder über ein akustisches TA Phonon (mit 1 bis 1,5 meV) weiter nach L1 relaxiert und dort im Grundzustand rekombiniert. Ein anderer Relaxationspfad führt über ein weiteres LA Phonon nach E4 und dann anschließend über ein optisches LO Phonon nach L7, wo das Exziton rekombiniert. Aufgrund der Beteiligung angeregter Löcher, die langsamer relaxieren als angeregte Elektronen, ist die Relaxation aus den X-Zuständen langsamer als aus den E-Zuständen. Ein weiterer möglicher Relaxationspfad für L7 wäre die Relaxation von X1 nach E1 über 2 LA Phononen und anschließend über ein 33 meV LO Phonon nach L7. Das weniger ausgeprägte Resonanzprofil der 33 meV Phononenlinie und die Unterschiede bei den gemessenen Rembinationszeiten von E1 und L7 lassen diesen Prozess jedoch weniger wahrscheinlich erschienen.
Derartige Multiphononen-Relaxationen werden auch in [Zha12] beschrieben und sind schematisch in Abb. 9.15 auf der nächsten Seite dargestellt. Die Übergänge zwischen den verschiedenen Niveaus im Termschema sind in Abb. 9.16 auf Seite 114 abgebildet. Die beteiligten akustischen Phononen sind im QD lokalisiert, ähnlich den zurückgefalteten Phononen in Superlattices (Übergittern) wie in [Col80, Col85] beschrieben. Die Summe der akustischen und optischen Phononen entspricht jedoch zum Teil wieder den in [Bla82] beschriebenen Phononenenergien im Bulk.

9.4.2 Vergleich der Zerfallszeiten im quasi-resonanten und nicht-resonanten Fall

Im Falle der Anregung der Lumineszenz über den resonanten Ramaneffekt lassen sich Fluoreszenz und Raman-Streuung spektral nicht mehr unterscheiden. Zeitaufgelöste Messungen zeigen jedoch, dass der Ramam-Streuprozess zeitlich im einstelligen ps-Bereich abläuft, die Fluoreszenz sehr viel langsamer im Bereich von 100 bis 1000 ps.
Der Zerfall im resonanten und im quasi-resonanten Fall wurde von Zimmermann in ihrer Masterarbeit berechnet [Zim14]. Diese Rechnungen zeigen eine qualitativ gute Übereinstimmung mit dem Experiment. Allerdings weist im zeitaufgelösten Experiment der kohärente Anteil der Lumineszenz, also der Raman-Peak, eine etwa fünfmal so hohe Spitzenintensität auf wie der inkohärente Anteil, also die Fluoreszenz, und enthält etwa ein Viertel der gesamten im Zeitintervall gemessenen Photonen. Die Theorie hingegen schätzt den kohärenten Anteil deutlich geringer ein mit einer Spitzenintensität nur etwa um den Faktor 1,5 höher als den inkohärenten Anteil.

9.4.3 Resonanzüberhöhung beim resonanten Ramaneffekt

Im zeit-integrierten Spektrum wird durch Vergleich der Summe von Raman-Peak und Fluoreszenz im nicht-resonanten Fall und im resonanten Fall überprüft, ob es zu einer tatsächlichen Resonanzüberhöhung oder nur zu einer Überlagerung beider Signale kommt, siehe Abb. 9.18 auf Seite 115. Dabei stellt sich heraus, dass sowohl die Summe der Spitzenintensität von QD Lumineszenz und Raman

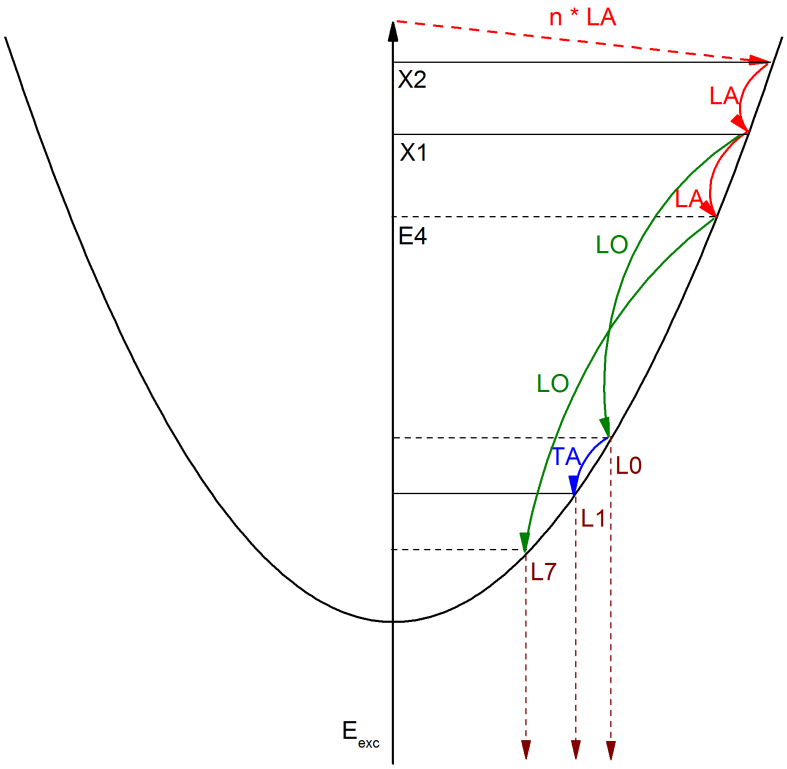


Abbildung 9.15 Mulitphononen Relaxation bei Anregung in X2 (oder höher): Die Relaxation des angeregten Exzitons erfolgt über ein oder mehrere LA Phononen bis zum Niveau X1. Von dort aus einerseits eine Relaxation über ein LO Phonon zu L0 statt mit anschließender Rekombination über L0 oder weiterer Relaxation über ein TA Phonon und dann Rekombination über L1. Andererseits kann das angeregte Exziton auch über ein weiteres LA Phonon von X1zu E4 relaxieren und von dort aus über ein LO Phonon weiter relaxieren und dann über L7 rekombinieren. Derartige Multiphononenprozesse werden in [Zha12]beschreiben.

Peak als auch die Summe der Flächen im nicht-resonanten Fall ungefähr gleich, sogar eher etwas höher ist als im resonanten. Es kommt also zeitlich integriert nicht zu einer Resonanzüberhöhung über die Überlagerung der beiden Signale hinaus.

- Nicht-resonant: Fläche L1 = 0.76, Fläche Phonon = 1.13, Summe = 1.89
- Resonant: Fläche L1 + Phonon = 1.68

Betrachtet man hingegen die Intensität von Raman-Peak und Fluoreszenz bzw. Phononen-assistierte Lumineszenz zeitaufgelöst, stellt man fest, dass der kurzlebige Raman-Peak, also der kohärente Anteil der Lumineszenz, eine etwa fünfmal so hohe Spitzenintensität hat wie die langlebige Fluoreszenz, also der inkohärente Anteil der Lumineszenz (Faktor 5,6 in Abb. 9.17 auf der nächsten Seite. Integriert man die Gesamtzahl der Counts über den abgebildeten Messbereich von 3 ns, so entfallen auf die ersten 160 ps, in denen der Raman-Prozess überwiegt, ein Viertel der Gesamtzahl der Counts. Auch in den temperaturabhängigen zeitaufgelösten Messungen in Abb. 9.19 auf Seite 116 ist der Raman-Peak unabhängig von der Temperatur etwa fünfmal so hoch wie das Maximum der

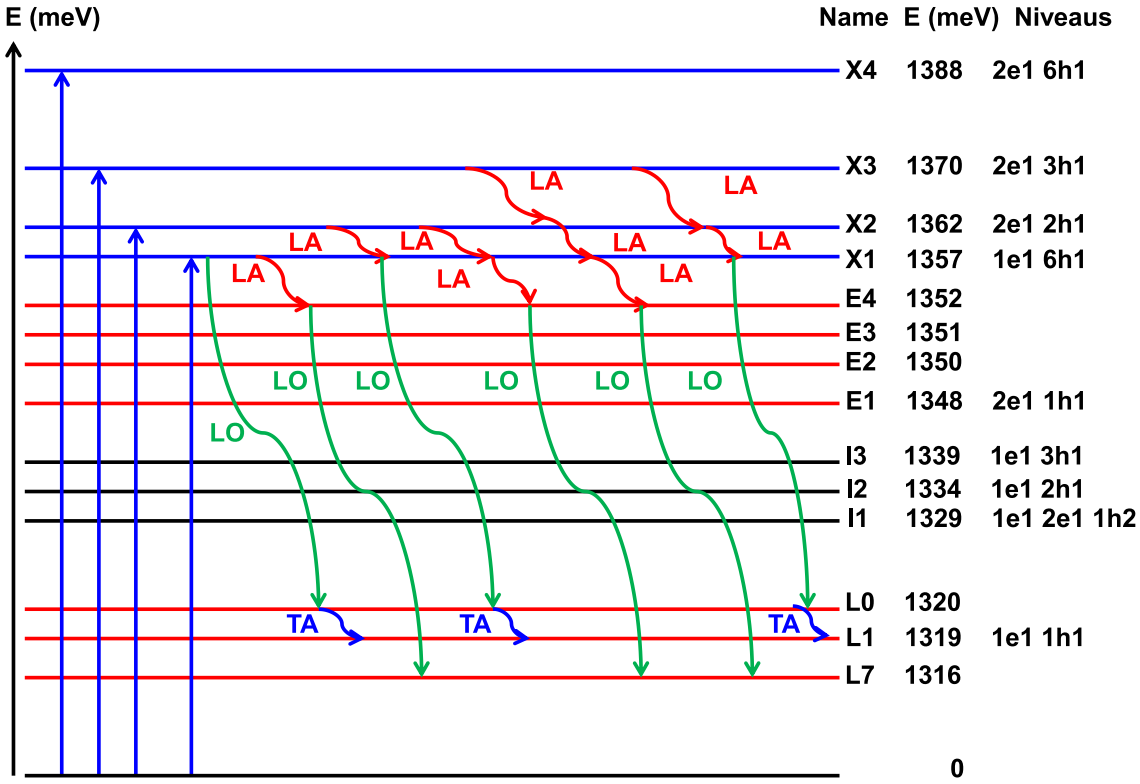


Abbildung 9.16 Termschema mit Mulitphononen Relaxation.

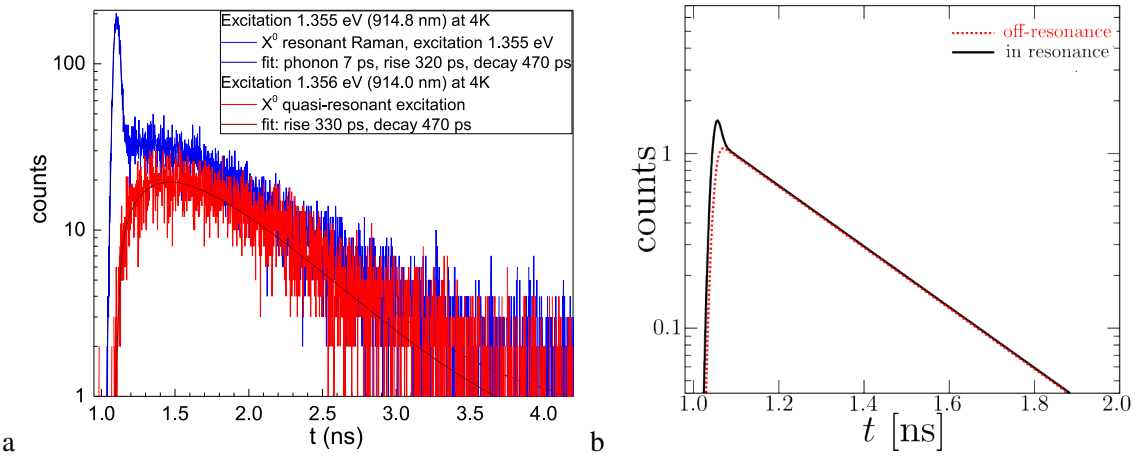


Abbildung 9.17 Transienten von X0 in Resonanz mit dem Phonon und im quasi-resonanten Fall: a) Experiment und b) theoretische Rechnung von Zimmermann [Zim14]. Qualitativ stimmen Messung und Experiment überein, jedoch weist im Experiment der kohärente Anteil der Lumineszenz, also der Raman-Peak, eine etwa fünfmal so hohe Spitzenintensität auf wie der inkohärente Anteil, also die Fluoreszenz, und enthält etwa ein Viertel der gesamten im Zeitintervall gemessenen Photonen. Die Theorie schätzt den kohärenten Anteil deutlich geringer ein mit einer nur etwa um den Faktor 1,5 höheren Spitzenintensität als den inkohärenten Anteil.

Fluoreszenz. Bei 6 K und 30 K wurde relativ gesehen deutlich weniger Fluoreszenz gemessen, dies ist jedoch vermutlich auf ein Wegdriften der Probe während der Messung zurückzuführen, also einen Messfehler, der die Messung verfälscht hat. Dass sich das Verhältnis zwischen kohärenten und inkohärenten Anteil bis etwa 30 K nicht ändert, deckt sich mit den Beobachtungen am Ensemble von Werner *et al.* [Wer11]. Dort wurde bis 25 K ein etwa gleichgroßer Anteil von Raman-Streuung und Phononen-assistierter Lumineszenz gemessen (50:50), erst bei Temperaturen ab 75 K nimmt der kohärente Anteil ab und verschwindet ab 200 K ganz. Jedoch ist bei diesen Messungen am QD-Ensemble der kohärente Anteil insgesamt geringer, nur etwa die Hälfte der Intensität entfallen hierauf. Dies ist verständlich, da nicht die scharfe Resonanz eines einzelnen QDs angeregt wird, sondern ein Sub-Ensemble mit vielen QDs, die nicht alle perfekt in Resonanz sind.

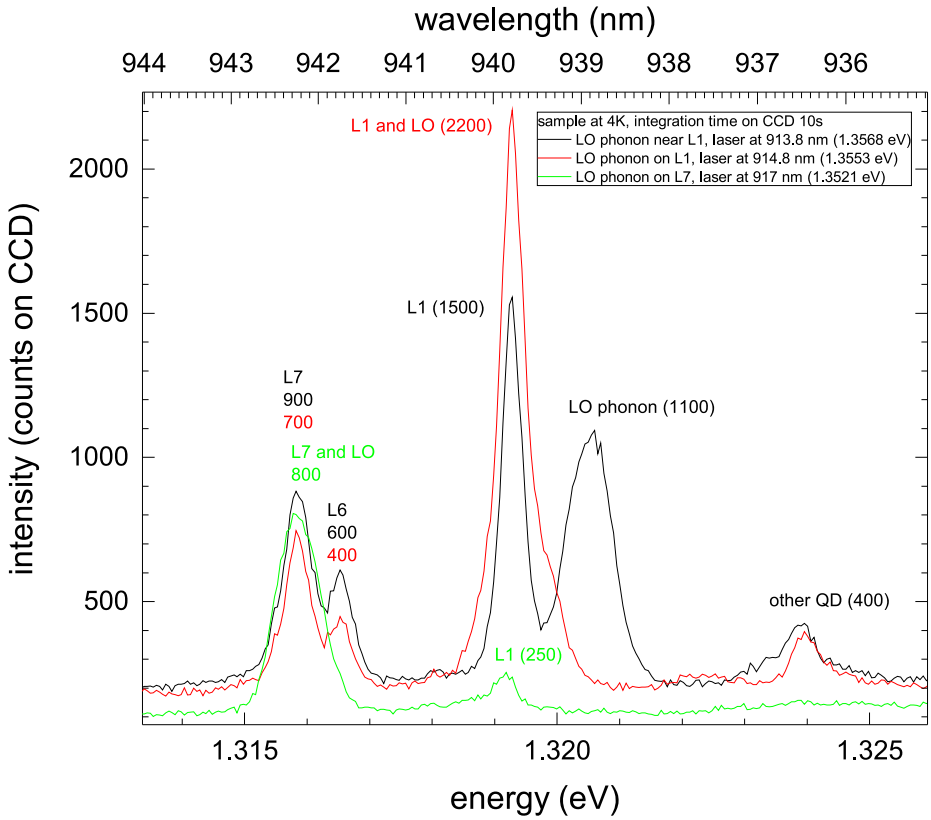


Abbildung 9.18 Vergleich der zeitintegrierten Summe von Raman-Peak und Fluoreszenz im nicht-resonanten und im resonanten Fall. Sowohl die Summe der Spitzenintensität von QD-Lumineszenz und Raman Peak als auch die Summe der Flächen im nicht-resonanten Fall ist ungefähr gleich, sogar eher etwas höher als im resonanten. Es kommt im zeitintegrierten Spektrum also nicht zu einer Resonanzüberhöhung über die Überlagerung beider Signale hinaus.

9.4.4 Temperaturabhängigkeit der Zerfallszeiten

Die Zerfallszeiten für Raman-Phonon und Lumineszenz sowie die Anklingzeit der Lumineszenz werden bei verschiedenen Temperaturen von 4 K bis 30 K gemessen. Dabei ist jeweils das 37 meV

LO-Phonon in Resonanz mit dem Exziton X0 (L1) bei einer Anregungsenergie von ungefähr 1355 meV, der genaue Wert variiert etwas mit der Temperatur. Die Anregungsleistung wird annähernd konstant gelassen. Die Zeiten für Anklingzeit, Zerfallszeit und Phonon werden über der Temperatur aufgetragen. Dabei fällt auf, dass die Zerfallszeit mit steigender Temperatur leicht abnimmt, während die Anklingzeit und die Zerfallszeit der Phononen ungefähr gleich bleibt (innerhalb der Messgenauigkeit des Detektors, der Wert bei 6 K scheint ein Ausreißer zu sein). Eine Vergleichsmessung einer Phononentransiente bei vergleichbaren Anregungsbedingungen, jedoch außerhalb der Resonanz mit der Lumineszenz, zeigt dieselbe Abklingzeit wie die Phononen in Resonanz mit der Lumineszenz. Die im Folgenden in Abschnitt 9.4.5 diskutierten langen Dephasierungszeiten von Phononen in Resonanz mit exzitonischen Zuständen sind hier also nicht erkennbar.

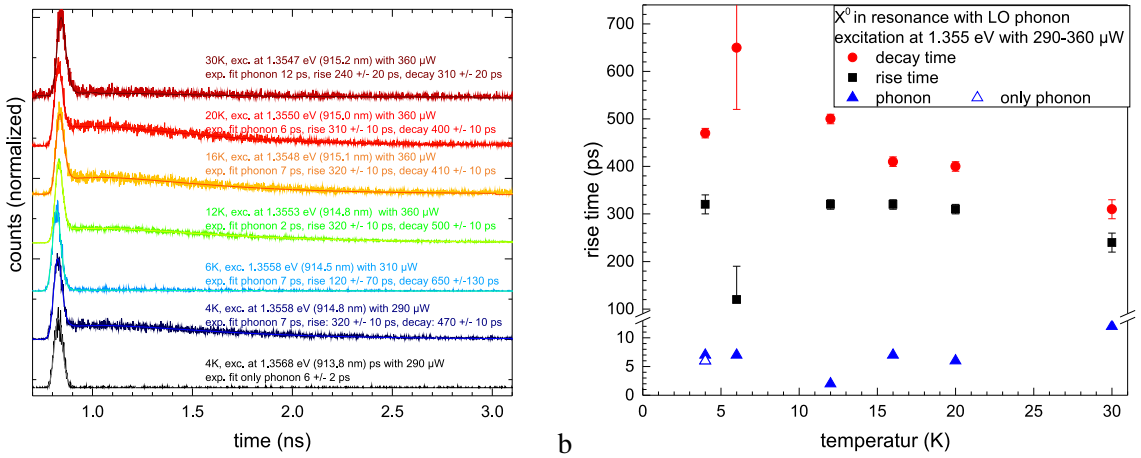


Abbildung 9.19 a) Die Transienten von X0 in Resonanz mit dem Phonon bei Temperaturen von 4 bis 30 K wurden mit Anstiegs- und Zerfallszeiten sowie einer Phononen-Lebensdauer-Komponente gefittet. Die Transiente eines Phonons bei 4 K außerhalb der Resonanz mit der Lumineszenz zeigt die gleiche kurze Lebensdauer. b) Zerfallszeiten über Temperatur aufgetragen: Die Zerfallszeit der Lumineszenz nimmt mit steigender Temperatur etwas ab, während die Anklingzeit und die Zerfallszeit der Phononen ungefähr gleich bleibt. Die Zerfallszeit des Phonons ohne Lumineszenz unterscheidet sich nicht von den Zerfallszeiten der Phononen in Resonanz mit der Lumineszenz.

9.4.5 Vergleich der Phononenlebenszeiten mit der Literatur

Eine besonders lange Dephasierungszeit für Phononen bei tiefen Temperaturen lässt sich in Abb. 9.19 nicht feststellen. Eine solche wurde von Borri *et al.* [Bor01, Lan04] unter Vierwellenmischung am QD Ensemble beobachtet. Auch die Dephasierungszeiten des Biexzitons und angeregter Exzitonen wurden mit Vierwellenmischung am QD Ensemble untersucht [Bor03, Bor06].
Aufgrund der unterschiedlichen Messmethoden sind die hier vorliegenden zeitaufgelösten PL-Messungen nicht vollständig mit denen von Borri *et al.* vergleichbar: Borri *et al.* messen in Vierwellenmischungs-Experimenten an einem Ensemble von InGaAs QDs Dephasierungszeiten des Exzitons von 630 ps bei 7 K, 170 ps bei 25 K und 37 ps bei 50 K [Bor01]. Weitere Untersuchungen zeigen, dass diese Dephasierungszeit bei tiefen Temperaturen (10 K) im Wesentlichen nur durch die strah-

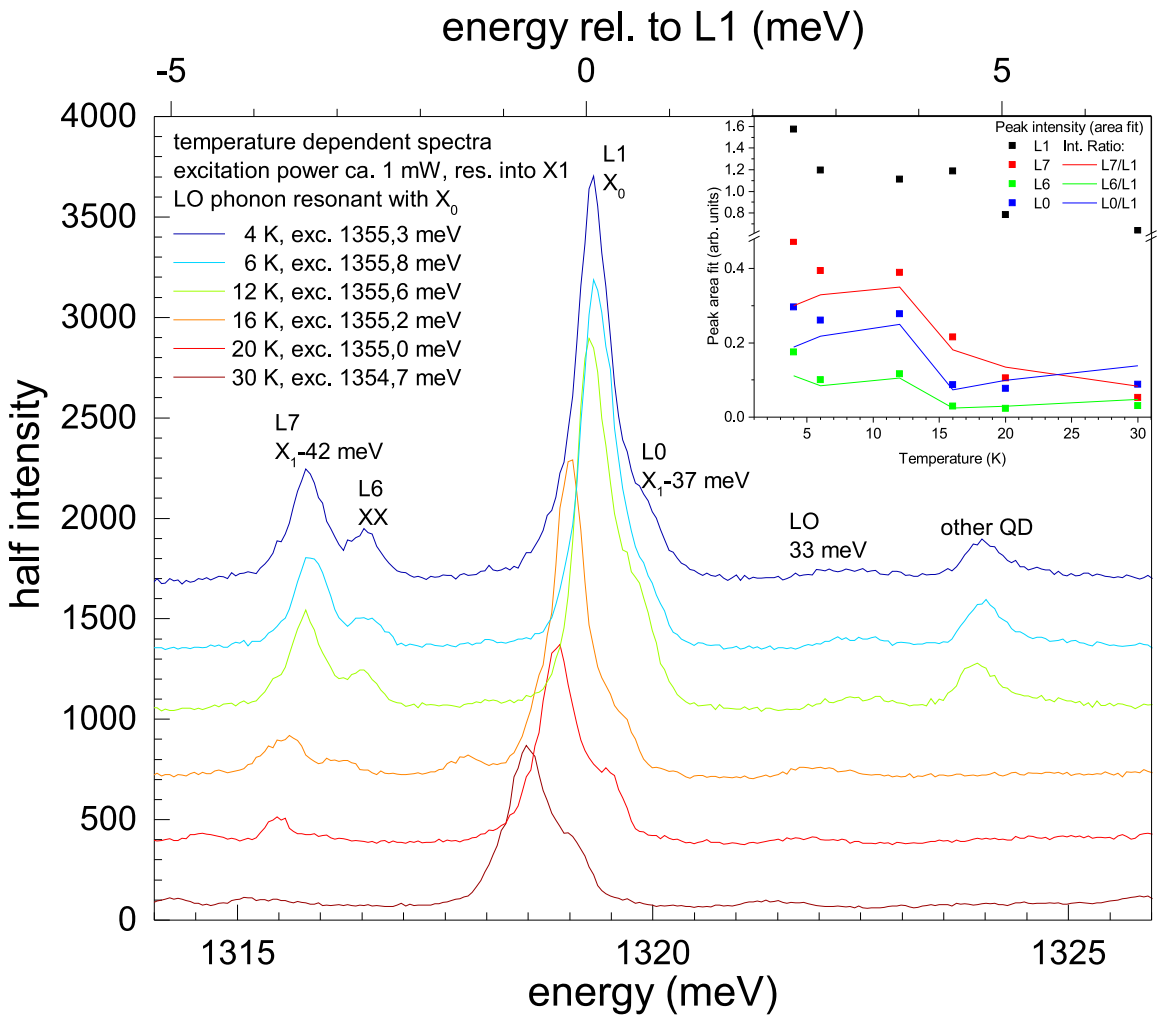


Abbildung 9.20 Temperaturabhängige Spektren bei resonanter Anregung in X1: Die LO 37 meV Phononenmode ist in Resonanz mit dem Exziton X0. In der eingesetzten Grafik ist das Verhältnis der Peakhöhen von L0, L6 und L7 zu L1 aufgetragen. Für Temperaturen oberhalb von 16 K lässt sich deutlicher Abfall dieser Verhältnisse feststellen. Bei Temperaturen von 16 bis 30 K sind die Peaks von L7 und L6 nicht mehr so deutlich ausgeprägt, zusätzlich werden Peaks an den Positionen von L8 und L4 teilweise deutlicher sichtbar, deren Fläche hier jedoch nicht mit untersucht wurde. Zudem ist das Spektrum bei 30 K nur bedingt vergleichbar, da hier die Anregungsleistung verdoppelt werden musste, um ein deutliches Spektrum aufzunehmen, die dargestellte Intensität wurde zur Anpassung der Darstellung halbiert. Die Peaks von L6 und L7 können kaum noch klar bestimmt werden, daher ist die Verhältnisse von L6 und L7 zu L1 bei 30 K mit einem großen Fehler behaftet.

lende Lebensdauer gegeben ist und stark vom Confinement Potential (Einschluss Potential) der QDs abhängt [Lan04]. Dieses wird durch thermisches Ausheilen (Annealing) der QD Ensembles verändert: Für nicht ausgeheilte QD Ensembles mit großem Confinement Potential von 330 meV und einer Emission bei 0,99 eV wird eine strahlende Lebensdauer von 1 ns gemessen, für thermisch ausgeheilte mit geringen Confinement Potential von 69 meV und Emission bei 1,31 eV beträgt die strahlende Lebensdauer nur noch 200 ps. Weitere Dephasierungsprozesse werden mit Zeiten länger als 30 ns abgeschätzt und spielen bei diesen Betrachtungen keine Rolle.
Diese Ergebnisse passen zu den zeitabhängigen PL-Messungen insofern, dass hier zwar eine gute optische Qualität der QDs vorliegt, vergleichbar oder besser als die bei Borri *et al.* betrachteten ausgeheilten QD Proben, die strahlende Lebensdauer jedoch durch spektrale Diffusion durch Defekte im Umfeld des QDs beeinflusst wird. Solche mikroskopischen Effekte können nur bei Messungen am einzelnen QD und nicht bei Messungen am Ensemble beobachtet werden.
Ähnliche zeitaufgelöste PL-Messungen wurden von Wagner [Wag10] in resonanter Raman-Streuung an gebundenen Exzitonen im ZnO durchgeführt. Für nicht-resonante Anregung wurden für die $2E_1$(LO) Raman-Mode von ZnO kurze monoexponentielle Zerfallszeiten von unter 20 ps gemessen. Für die 2LO Phononenseitenbande des gebundenen I_6 Exzitons I_6-2LO wird bei nicht-resonanter Anregung eine Anstiegszeit von 200 ps und eine Zerfallszeit von 1,4 ns gemessen, vergleichbar mit denen des freien Exzitons. Bei resonanter Anregung jedoch, wenn sich die $2E_1$(LO) Raman-Mode und die I_6-2LO Phononenseitenbande des gebundenen Exzitons überlappen, verschwindet die Anstiegszeit und eine zusätzliche schnelle Zerfallszeit von 180 ps tritt in den Transienten auf. Diese wird als die Phononenlebensdauer der durch Fröhlich-Wechselwirkung resonant erhöhten $2E_1$(LO) Mode interpretiert. Diese Lebensdauer kann in temperaturabhängigen Messungen von 15 bis 30 K nachgewiesen werden, danach nimmt sie bei 40 K auf 50 ps und bei 80 K auf unter 20 ps ab. Dies wird dem thermalen Zerfall des gebundenen Exzitonenzustands zugeschrieben, welcher der Resonanz zugrunde liegt.
Eine vergleichbar lange Phononenlebensdauer kann in unseren Messungen nicht festgestellt werden. Zwar findet Phononen-assistierte Lumineszenz und resonante Raman-Streuung am QD statt. Der kohärente Anteil, also die Zerfallszeit der Phononen, liegt dabei immer im einstelligen Pikosekundenbereich und ist durch die Zeitauflösung des Detektors begrenzt. Dies könnte auf Defekte in der Nähe der QDs zurückzuführen sein, die inkohärenter Streuung und somit zu schnellerer Dephasierung führen. Auch die Betrachtung der Linienbreite der Phononen im Spektrum führt einem ähnlichen Ergebnis für die Phononenlebensdauer. Wenn man die gemessene Halbwertsbreite Γ als natürliche Linienbreite annimmt, erhält aus der Unschärferelation $\Delta E \Delta t > \frac{\hbar}{2}$ für die Energieunschärfe $\Delta E = \frac{\Gamma}{2} = \frac{\hbar}{2\tau}$ für die Lebensdauer $\tau = \Delta t = \frac{\hbar}{\Gamma}$. Die Phononenlinienbreiten bei gepulster Anregung liegen in Abb. 9.12 auf Seite 108 bei etwa 800 ± 100 μeV, daraus folgt eine Phononenlebensdauer von etwa 0,8 ps, was auf die gepulste Anregung zurückzuführen sein könnte. Bei cw-Anregung hingegen zeigen die Phononenlinien Halbwertsbreiten von 100 bis 150 μeV, siehe Abb. 7.2 auf Seite 53 und Abb. 7.8 auf Seite 63, dies entspricht einer Phononenlebensdauer von etwa 5 ps. Stock *et al.* messen bei elektrischer Anregung Linienbreiten für die Phononenreplika der QD-Lumineszenz von 700 ps, kommen in ihren Rechnungen anhand der Linienform jedoch ebenfalls zu Lebensdauern von etwa 5 ps [Sto11a].

10 Zusammenfassung der Ergebnisse

In dieser Arbeit wurden positionierte einzelne Quantenpunkte (quantum dots, QDs) untersucht, die mittels des „buried stressor approachs“, also eines verborgenen Stressors, hergestellt worden sind. Ziel der Untersuchungen war es zum einen, die Eignung dieser QDs als Einzelphotonenquelle für die Quantenkryptographie festzustellen, und zum anderen, das Anregungsverhalten und die genaue elektronische Struktur zu verstehen.
Als Messmethode kamen vor allem verschiedene Formen der Mikrophotolumineszenzspektroskopie (μPL) in unterschiedlichen Experimenten zum Einsatz:
Als Vorcharakterisierung wurde eine Vielzahl von Mesen mit positionierten QDs mittels μPL abgerastert und die energetische Halbwertsbreite und Position der gemessenen Lumineszenzlinien statistisch ausgewertet. Dabei wurde festgestellt, dass tatsächlich vermehrt Lumineszenz einzelner QDs entlang des verborgenen Stressors zu beobachten ist. Zusätzlich wachsen sehr viele QDs am Mesarand, hier ist jedoch die QD-Dichte zu hoch, als dass diese sinnvoll untersucht oder als Einzelphotonenquelle genutzt werden könnten. Spektral unterscheidet sich die Lumineszenz der QDs entlang des Stressors nicht wesentlich von der von zufällig auf der Mesafläche oder am Mesarand gewachsenen QDs. TERS-Messungen (Tip-enhanched-Raman-Spectrocopy) an einer Mesa wiesen typische GaAs Phononenmoden auf, und zwar transversal optisch (TO) mit 33,2 meV und longitudindal optisch mit 36,2 meV. Diese Moden waren auf der gesamten Probe messbar, eine zusätzliche Mode bei ca. 32 meV ließ sich direkt am QD nachweisen. Diese Phononenmoden spielen eine große Rolle bei der Erzeugung angeregter Zustände und wurden im Folgenden auch zeitaufgelöst untersucht.
Mittels hochaufgelöster μPL wurde an einer ausgesuchten Mesa die strahlende Rekombination der exzitonischen Zustände eines einzelnen QDs unter verschiedenen Anregungsenergien und Anregungsleistungen untersucht. Die beobachteten Lumineszenzlinien wurden soweit möglich den identifizierten exzitonischen Komplexen zugeordnet. Dabei half vor allem die Abhängigkeit der Lumineszenzintensität von der Anregungsleistung sowie die polarisationsaufgelöste Detektion. Im Bereich der s-Schalen-Lumineszenz (L0 bis L9) wurden die Rekombinationen des Exzitonen-Grundzustands X bzw. X0 (L1) sowie der Multiexzitonen 2X (L6), 3X (L8) und 4X (L9) sowie des Trions X+ (L4) identifiziert (4X und X+ unter Vorbehalt). Außerdem wurden Emissionslinien eines benachbarten QDs mit ähnlicher Lumineszenzstruktur gemessen (L10 bis L12). Bei hoher nicht-resonanter Anregung treten in der Nähe der Linien von X und 2X weitere Linien L2, L3 und L5 auf, die ihren Ursprung vermutlich in diskreter spektraler Diffusion durch einen geladenen Defekt in der Nähe des QDs haben. Auf hochenergetischer Seite der s-Schalen-Lumineszenz etwa 25 bis 35 meV oberhalb von L1 tritt bei hoher Anregungsintensität eine umfangreiche p-Schalen-Lumineszenz mit den angeregten Zuständen E0 bis E5 auf, die nur teilweise konkreten Übergängen zugeordnet werden

konnten. Noch oberhalb davon (35 bis 60 meV oberhalb von L1) treten bei Hochanregung breite Lumineszenzpeaks X1 bis X4 auf, die im Folgenden anhand von PLE-Messungen der Rekombination angeregter Elektronen- und Lochzustände zugeordnet werden konnten.
Die Einzelphotonenemission des Exzitonen-Grundzustands wurde mittels Autokorrelationsmessungen an einem Hanbury-Brown-Twiss-Interferometer (HBT) nachgewiesen, außerdem konnte mittels Kreuzkorrelation nachgewiesen werden, dass der Exzitonen-Grundzustand L1 und die Linie L7 von einem QD stammen. Die Interpretation dieser und weiterer Messungen legt nahe, dass L7 ebenso wie die ebenfalls nur in Resonanz auftretende Linie L0 Phononen-assistierten Rekombinationen des angeregten Exzitonenzustands X1 sind. Weitere Interpretationsmöglichkeiten waren die Rekombination eines angeregten Trions oder die durch Phononen-induzierte Spin-Flips ermöglichte Rekombination eigentlich verbotenener Übergänge wie des Exzitonen dark-states. Diese Interpretationen konnten jedoch aufgrund der gemessen Feinstrukturaufspaltung und Temperaturabhängigkeit für L7 als unwahrscheinlich angenommen werden.
Die Anregungsprozesse selbst lassen sich am besten über Mikrophotolumineszenzanregungsspektroskopie (μPLE) studieren. Hierbei wurde die Anregungsenergie variiert und gleichzeitig die Lumineszenzintensität der verschiedenen QD-Linien gemessen. Durch Vergleich der PLE-Spektren über der relativen Anregungsenergie ließ sich besonders gut die Anregung über Phononenmoden feststellen. Hierbei waren vor allem die InAs LO Mode am QD (34 meV) sowie die Interface (IF) Mode am QD (37 meV) nachweisbar. Auch die materialspezifischen TO und LO Moden von GaAs (33 und 36 meV), AlAs (51 meV) und InAs (29 und 31 meV) sowie von ternären Verbindungen von AlGaAs (46 meV) und InAlAs (41 meV) konnten PLE-Resonanzen zugeordnet werden. Die Intensität der Phononenmoden ist sehr unterschiedlich und die Zuordnung nicht immer eindeutig. Der Vergleich der PLE-Spektren bei absoluten Anregungsenergien ermöglicht die Zuordnung angeregter Zustände. Diese wurden unter Zuhilfenahme ähnlicher QD-Spektren aus der Literatur interpretiert. Zur Erklärung der Übergänge wurde ein Termschema aufgestellt, welches auch die Berechnung der Abstände der Elektronen- und Lochniveaus zulässt. So ergeben sich als Abstand zwischen Elektronengrundzustand und erstem angeregten Zustand $\Delta e_1 e_2$ 29 meV, als Abstand zwischen den Lochniveaus $\Delta h_1 h_2$ mit 15 meV, $\Delta h_2 h_3$ mit 5 meV und $\Delta h_3 h_6$ mit 18 meV. Neben der schon zuvor identifizierten p-Schalen Lumineszenz E0 bis E5 wurden weitere angeregte Zustände (X1 bis X4) identifiziert, die sich in μPL als breite Lumineszenz, in μPLE jedoch als relativ scharfe Anregung zeigen.
Die Phononen-assistierte Rekombination dieser Zustände bei resonanter schwacher bis mittelstarker Anregung ist eine wahrscheinliche Erklärung für die Lumineszenzlinien L0 und L7. Hierbei konnte eine Doppel- bzw. sogar Tripelresonanz beobachtet werden: Für den eingehenden Resonanzfall können angeregte Zustände besonders gut über energetisch passende Phononen angeregt werden, im ausgehenden Resonanzfall kommt es zu resonanter Ramanstreuung, wenn die Anregungsenergie des Lasers nur noch eine Phononenenergie oberhalb der Quantenpunktlumineszenz liegt. Wenn zusätzlich zu den optischen Phononen auch akustische Phononen betrachtet werden, lässt sich eine schlüssige Interpretation aller beobachteten Übergänge finden. Auf eine Wechselwirkung mit akustischen Phononen lässt sich auch aus dem gemessenen Intensitätsprofil der Resonanzanregung schließen, dessen Breite ungefähr der aus der Literatur bekannten Verbreiterung einer Lumineszenzlinie durch

akustische Phononen („Phononenfuß“) entspricht. Die Relaxation der angeregten Zustände X1 bis X4 über ein oder mehrere logitudinal akustische (LA) und transversal akustische (TA) Phononen sowie ein optisches LO Phonon erklärt die beobachtete Tripel-Resonanz von L0, L1 und L7.
Mittels zeitaufgelöster Mikrophotolumineszenz (tr-μPL) wurde die Dynamik der Anregungs- und Zerfallsprozesse untersucht, dabei wurden Energietransferprozesse zwischen verschiedenen Zuständen erkannt. Außerdem erlaubt die tr-μPL die genauere Untersuchung der Wechselwirkung mit Phononen: Durch Analyse der Zerfallszeiten konnten kohärente resonante Raman-Streuung im Bereich weniger ps und inkohärente Phononen-assistierte Fluoreszenz im Bereich von 100 bis 1000 ps unterschieden werden. Die experimentellen Funde wurden durch den Vergleich mit theoretischen Rechnungen untermauert. Beim Vergleich der Lumineszenz-Intensitäten in den zeitintegrierten Spektren ließ sich kein wesentlicher Unterschied zwischen Ramanmode und Lumineszenz in Resonanz sowie der Summe der einzelnen Peaks nicht-resonant feststellen. In den zeitaufgelösten Messungen übertrifft die Spitzenintensität der kohärenten Ramanstreuung jedoch die der inkohärenten Fluoreszenz um mehr als das fünffache. Etwa ein Viertel der Gesamtzahl der zeitaufgelösten Detektionsereignisse im untersuchten Zeitfenster von 3 ns entfallen auf die ersten 160 ps, in denen die Raman-Streuung dominiert. Die Resonanzüberhöhung lässt sich also nur zeitaufgelöst messen.
Durch die Kombination verschiedener optischer Messtechniken an einem einzelnen QD konnte ein großer Teil seiner Lumineszenz und seiner Anregungsstruktur erklärt werden. Hierbei war die Positionierung durch den verborgenen Stressor von großem Vorteil, da so der QD auch in verschiedenen Experimenten immer wieder gefunden werden konnte. Außerdem erlaubten die dank der Probenstruktur auftretenden Phononenmoden das Studium angeregter Zustände, die bisher nur in Zweiphotonenanregung untersucht worden sind. Dank der Verspannung durch den verborgenen Stressor stimmen die Energien der Phononenmoden relativ gut mit den Abständen der Energieniveaus überein und erlauben so resonante Anregung über optische und akustische Phononen. Insgesamt kann festgestellt werden, dass der untersuchte Positionierungsansatz nicht nur die zuverlässige Herstellung von Einzelphotonenquellen ermöglicht, sondern auch die ausführliche Untersuchung der elektronischen Struktur und des Anregungsverhaltens dieser QDs.

Veröffentlichungen

Eigene Publikationen zum Thema

Einzelne Ergebnisse dieser Arbeit wurden bereits in folgenden Publikationen veröffentlicht:

1. U. W. Pohl, A. Strittmatter, J. H. Schulze, D. Quandt, T. D. Germann, W. Unrau, T. Heindel, O. Hitzemann, D. Bimberg, and S. Reitzenstein, *Self-aligned quantum-dot growth for single-photon sources*, in *Conference Proceedings - International Conference on Indium Phosphide and Related Materials*, pp. 1–2, IEEE, Kobe, Japan (2013).

2. A. Strittmatter, A. Holzbecher, A. Schliwa, J.-H. Schulze, D. Quandt, T. D. Germann, A. Dreismann, O. Hitzemann, E. Stock, I. A. Ostapenko, S. Rodt, W. Unrau, U. W. Pohl, A. Hoffmann, D. Bimberg, and V. Haisler, *Site-controlled quantum dot growth on buried oxide stressor layers*, physica status solidi (a) **209** (12), 2411 (2012).

3. W. Unrau, D. Quandt, J.-H. Schulze, T. Heindel, T. D. Germann, O. Hitzemann, A. Strittmatter, S. Reitzenstein, U. W. Pohl, and D. Bimberg, *Electrically driven single photon source based on a site-controlled quantum dot with self-aligned current injection*, Applied Physics Letters **101** (21), 211119 (2012).

4. A. Strittmatter, A. Schliwa, J.-H. Schulze, T. D. Germann, A. Dreismann, O. Hitzemann, E. Stock, I. A. Ostapenko, S. Rodt, W. Unrau, U. W. Pohl, A. Hoffmann, D. Bimberg, and V. Haisler, *Lateral positioning of InGaAs quantum dots using a buried stressor*, Applied Physics Letters **100** (9), 093111 (2012).

Weitere Publikationen

5. G. Durkaya, M. Buegler, R. Atalay, I. Senevirathna, M. Alevli, O. Hitzemann, M. Kaiser, R. Kirste, A. Hoffmann, and N. Dietz, *The influence of the group V/III molar precursor ratio on the structural properties of InGaN layers grown by HPCVD*, physica status solidi (a) **207** (6), 1379 (2010).

Konferenzbeiträge zum Thema

1. O. Hitzemann, A. Schliwa, A. Strittmatter, J.-H. Schulze, D. Quandt, W. Unrau, U. W. Pohl, and A. Hoffmann, *Exciton dynamics in a single site-controlled quantum dot*, in *DPG Frühjahrstagung 2015*, Berlin, Germany (2015).

2. O. Hitzemann, A. Strittmatter, A. Schliwa, J.-H. Schulze, T. D. German, W. Unrau, U. W. Pohl, A. Hoffmann, and D. Bimberg, *Excitation channels of a single site-controlled InGaAs QD*, in *8th International Conference on Quantum Dots (QD 2014)*, Pisa, Italy (2014).

3. O. Hitzemann, E. Stock, A. Strittmatter, A. Schliwa, J.-H. Schulze, T. D. German, D. Quandt, W. Unrau, U. W. Pohl, A. Hoffmann, D. Bimberg, and V. Haisler, *Optical excitation channels of a single site-controlled quantum dot*, in *DPG Frühjahrstagung 2013*, Regensburg, Germany (2013).

4. O. Hitzemann, A. Strittmatter, A. Schliwa, J.-H. Schulze, T. D. German, W. Unrau, U. W. Pohl, A. Hoffmann, and D. Bimberg, *Optical excitation channels of a single site-controlled InGaAs quantum dot*, in *International Nano-Optoelectronics Workshop 2013 (iNOW)*, Cargese, France (2013).

5. O. Hitzemann, A. Dreismann, E. Stock, A. Strittmatter, A. Schliwa, J.-H. Schulze, T. D. German, W. Unrau, U. W. Pohl, A. Hoffmann, D. Bimberg, and V. Haisler, *Sharp luminescence from a site-controlled single quantum dot*, in *17th International Winterschool on New Developments in Solid State Physics*, Mauterndorf, Austria (2012).

6. O. Hitzemann, A. Dreismann, E. Stock, A. Strittmatter, A. Schliwa, J.-H. Schulze, T. D. German, D. Quandt, W. Unrau, U. W. Pohl, A. Hoffmann, D. Bimberg, and V. Haisler, *Sharp luminescence from a site-controlled single quantum dot*, in *DPG Frühjahrstagung 2012*, Berlin, Germany (2012).

7. O. Hitzemann, A. Dreismann, E. Stock, A. Strittmatter, A. Schliwa, J.-H. Schulze, T. D. German, W. Unrau, U. W. Pohl, A. Hoffmann, and D. Bimberg, *Sharp luminescence from site-controlled single quantum dots*, in *International Nano-Optoelectronics Workshop 2012 (iNOW)*, Berkeley and Stanford, USA (2012).

Weitere Konferenzbeiträge

8. O. Hitzemann, W. Gehlhoff, B. Salameh, A. Hoffmann, M. Röver, J. Malindretos, A. Rizzi, and C. Rauch, *Optical, EPR and PAS measurements on Gd doped GaN as material for spintronics*, in *SPIE Photonics West 2011*, San Francisco, USA (2011).

9. O. Hitzemann, M. Kaiser, E. Malguth, M. R. Wagner, J.-H. Schulze, A. Hoffmann, S. Gupta, T. Zaidi, I. T. Ferguson, M. Röver, D.-D. Mai, J. Malindretos, and A. Rizzi, *Optical measurements on Gd doped GaN*, in *DPG Frühjahrstagung 2010*, Regensburg, Germany (2010).

10. O. Hitzemann, M. Kaiser, E. Malguth, M. R. Wagner, J.-H. Schulze, W. Gehlhoff, A. Hoffmann, S. Gupta, I. T. Ferguson, M. Röver, D.-D. Mai, and A. Rizzi, *Optical and magnetic properties of Gd doped GaN*, in *DPG Frühjahrstagung 2009*, Dresden, Germany (2009).

Literaturverzeichnis

[Ada85] S. Adachi, *GaAs, AlAs, and Al x Ga1-x As: Material parameters for use in research and device applications Determination of AlAs mole fraction in Al x Ga1-x As using Raman spectroscopy and x-ray diffraction*, Journal of Applied Physics J. Vac. Sci. Technol. B **58** (12) (1985).

[Aki05] I. A. Akimov, K. V. Kavokin, A. Hundt, and F. Henneberger, *Electron-hole exchange interaction in a negatively charged quantum dot*, Physical Review B **71** (7), 075326 (2005).

[Ako06] N. Akopian, N. H. Lindner, E. Poem, Y. Berlatzky, J. Avron, D. Gershoni, B. D. Gerardot, and P. M. Petroff, *Entangled Photon Pairs from Semiconductor Quantum Dots*, Physical Review Letters **96** (13), 130501 (2006).

[Ara11] Y. Arashida, Y. Ogawa, and F. Minami, *Four-photon cascade from quadexcitons in a single GaAs quantum dot*, Physical Review B **84** (12), 125309 (2011).

[Ara12] Y. Arashida, Y. Ogawa, and F. Minami, *Polarization-correlated three-photon emission from charged triexcitons in a single quantum dot*, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics **85** (23), 235318 (2012).

[Atk08] P. Atkinson, S. Kiravittaya, M. Benyoucef, A. Rastelli, and O. G. Schmidt, *Site-controlled growth and luminescence of InAs quantum dots using in-situ Ga-assisted deoxidation of patterned substrates*, Applied Physics Letters **93** (10), 101908 (2008).

[Avr08] J. E. Avron, G. Bisker, D. Gershoni, N. H. Lindner, E. A. Meirom, and R. J. Warburton, *Entanglement on Demand through Time Reordering*, Physical Review Letters **100** (12), 120501 (2008).

[Bar95] A. Barenco and M. A. Dupertuis, *Quantum many-body states of excitons in a small quantum dot*, Physical Review B **52** (4), 2766 (1995).

[Bay02a] M. Bayer and A. Forchel, *Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in In0.60Ga0.40As/GaAs self-assembled quantum dots*, Physical Review B **65** (4) (2002).

[Bay02b] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, a. Kuther, a. Gorbunov, a. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. Reinecke, S. Walck, J. Reithmaier, F. Klopf, and F. Schäfer, *Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots*, Physical Review B **65** (19), 1 (2002).

[Bec12] W. Becker, *The bh TCSPC Handbook*, 5th edition, Becker & Hickl GmbH, 5 edition (2012).

[Bec16] J. N. Becker, J. Görlitz, C. Arend, M. Markham, and C. Becher, *Ultrafast all-optical coherent control of single silicon vacancy colour centres in diamond*, Nature Communications **7**, 13512 (2016).

[Bec18] M. A. Becker, R. Vaxenburg, G. Nedelcu, P. C. Sercel, A. Shabaev, M. J. Mehl, J. G. Michopoulos, S. G. Lambrakos, N. Bernstein, J. L. Lyons, T. Stöferle, R. F. Mahrt, M. V. Kovalenko, D. J. Norris, G. Rainò, and A. L. Efros, *Bright triplet excitons in caesium lead halide perovskites*, Nature **553** (7687), 189 (2018).

[Ben00] O. Benson, C. Santori, M. Pelton, and Y. Yamamoto, *Regulated and entangled photons from a single quantum Dot*, Physical Review Letters **84** (11), 2513 (2000).

[Ben05] A. J. Bennett, D. C. Unitt, P. See, A. J. Shields, P. Atkinson, K. Cooper, and D. A. Ritchie, *Electrical control of the uncertainty in the time of single photon emission events*, Physical Review B **72** (3), 033316 (2005).

[Ben11] Y. Benny, Y. Kodriano, E. Poem, S. Khatsevitch, D. Gershoni, and P. M. Petroff, *Two-photon photoluminescence excitation spectroscopy of single quantum dots*, Physical Review B **84** (7), 075473 (2011).

[Ben12] Y. Benny, Y. Kodriano, E. Poem, D. Gershoni, T. A. Truong, and P. M. Petroff, *Excitation spectroscopy of single quantum dots at tunable positive, neutral, and negative charge states*, Physical Review B **86** (8), 085306 (2012).

[Ben14] C. H. Bennett and G. Brassard, *Quantum cryptography: Public key distribution and coin tossing*, Theoretical Computer Science **560** (2), 7 (2014).

[Bim08] D. Bimberg (ed.), *Semiconductor Nanostructures*, NanoScience and Technology, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg (2008), ISBN 978-3-540-77898-1.

[Bim09] D. Bimberg, E. Stock, A. Lochmann, A. Schliwa, J. A. Tofflinger, W. Unrau, M. Munnix, S. Rodt, V. A. Haisler, A. I. Toropov, A. Bakarov, and A. K. Kalagin, *Quantum Dots for Single- and Entangled-Photon Emitters*, IEEE Photonics Journal **1** (1), 58 (2009).

[Bla82] J. S. Blakemore, *Semiconducting and other major properties of gallium arsenide*, Journal of Applied Physics **53** (10), R123 (1982).

[Bor99] P. Borri, W. Langbein, J. Mørk, J. Hvam, F. Heinrichsdorff, M.-H. Mao, and D. Bimberg, *Dephasing in InAs/GaAs quantum dots*, Physical Review B **60** (11), 7784 (1999).

[Bor01] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. Sellin, D. Ouyang, and D. Bimberg, *Ultralong Dephasing Time in InGaAs Quantum Dots*, Physical Review Letters **87** (15), 157401 (2001).

[Bor03] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang, and D. Bimberg, *Dephasing of biexcitons in InGaAs quantum dots*, physica status solidi (b) **238** (3), 593 (2003).

[Bor06] P. Borri, W. Langbein, E. A. Muljarov, and R. Zimmermann, *Dephasing of excited-state excitons in InGaAs quantum dots*, physica status solidi (b) **243** (15), 3890 (2006).

[Bro00] R. Brouri, A. Beveratos, J.-P. Poizat, and P. Grangier, *Photon antibunching in the fluorescence of individual color centers in diamond*, Optics Letters **25** (17), 1294 (2000).

[Bru99] C. Brunel, B. Lounis, P. Tamarat, and M. Orrit, *Triggered Source of Single Photons based on Controlled Single Molecule Fluorescence*, Physical Review Letters **83** (14), 2722 (1999).

[Cal18] T. Calarco, *First Flagship Call: 140 proposals submitted - Quantum Falgship Website* (2018). [https://qt.eu/news/first-flagship-call-140-proposals/]

[Car75] M. Cardona (ed.), *Light Scattering in Solids*, volume 8 of *Topics in Applied Physics*, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg (1975), ISBN 978-3-662-22095-5.

[Car82] M. Cardona and G. Güntherodt (eds.), *Light Scattering in Solids II*, volume 50 of *Topics in Applied Physics*, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg (1982), ISBN 978-3-540-11380-5.

[Col80] C. Colvard, R. Merlin, M. V. Klein, and A. C. Gossard, *Observation of folded acoustic phonons in a semiconductor superlattice*, Physical Review Letters **45** (4), 298 (1980).

[Col85] C. Colvard, T. A. Gant, M. V. Klein, R. Merlin, R. Fischer, H. Morkoc, and A. C. Gossard, *Folded acoustic and quantized optic phonons in (GaAl)As superlattices*, Physical Review B **31** (4), 2080 (1985).

[D-W15] D-Wave Systems In, *D-Wave Systems Breaks the 1000 Qubit Quantum Computing Barrier* (2015). [https://www.dwavesys.com/press-releases/d-wave-systems-breaks-1000-qubit-quantum-computing-barrier]

[Dat14] N. S. Dattani and N. Bryans, *Quantum factorization of 56153 with only 4 qubits*, Arxiv (2014).

[Dek00] E. Dekel, D. V. Regelman, D. Gershoni, E. Ehrenfreund, W. V. Schoenfeld, and P. M. Petroff, *Cascade evolution and radiative recombination of quantum dot multiexcitons studied by time-resolved spectroscopy*, Physical Review B **62** (16), 11038 (2000).

[Dek01] E. Dekel, D. V. Regelman, D. Gershoni, E. Ehrenfreund, W. V. Schoenfeld, and P. M. Petroff, *Radiative lifetimes of single excitons in semiconductor quantum dots - manifestation of the spatial coherence effect*, Solid State Communications **117** (7), 395 (2001).

[Din10] F. Ding, R. Singh, J. D. Plumhof, T. Zander, V. Křápek, Y. H. Chen, M. Benyoucef, V. Zwiller, K. Dörr, G. Bester, A. Rastelli, and O. G. Schmidt, *Tuning the exciton binding energies in single self-assembled InGaAs/GaAs quantum dots by piezoelectric-induced biaxial stress*, Physical Review Letters **104** (6), 067405 (2010).

[DPG00] DPG, *Welt der Physik: Käfige für kalte Atome und Ionen* (2000). [https://www.weltderphysik.de/gebiet/teilchen/atome-und-molekuele/atome-und-quantenphysik/laserkuehlung/]

[Eke91] A. K. Ekert, *Quantum cryptography based on Bell's theorem*, Physical Review Letters **67** (6), 661 (1991).

[Far16] P. Farrera, G. Heinze, B. Albrecht, M. Ho, M. Chávez, C. Teo, N. Sangouard, and H. De Riedmatten, *Generation of single photons with highly tunable wave shape from a cold atomic ensemble*, Nature Communications **7**, 13556 (2016).

[Fau11] S. Faure, M. Nishioka, S. Ishida, D. Guimard, and Y. Arakawa, *Metal Organic Chemical Vapor Deposition Growth of High Spectral Quality Site-Controlled InAs Quantum Dots Using In situ Patterning*, Applied Physics Express **4** (11), 112001 (2011).

[Feu07] M. Feucker, *Diplomarbeit von Max Feucker September 2007*, Diplomarbeit, Technische Universität Berlin (2007).

[Feu08] M. Feucker, R. Seguin, S. Rodt, A. Hoffmann, and D. Bimberg, *Decay dynamics of neutral and charged excitonic complexes in single InAsGaAs quantum dots*, Applied Physics Letters **92** (6), 063116 (2008).

[Fin00a] 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 Communications **114** (4), 227 (2000).

[Fin00b] F. Findeis, A. Zrenner, G. Böhm, and G. Abstreiter, *Phonon-assisted biexciton generation in a single quantum dot*, Physical Review B **61** (16), R10579 (2000).

[Fin01] J. J. Finley, A. D. Ashmore, A. Lemaître, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, I. E. Itskevich, P. A. Maksym, M. Hopkinson, and T. F. Krauss, *Charged and neutral exciton complexes in individual self-assembled In (Ga) As quantum dots*, Physical Review B **63** (7), 073307 (2001).

[Fle00] L. Fleury, J.-M. Segura, G. Zumofen, B. Hecht, and U. P. Wild, *Nonclassical Photon Statistics in Single-Molecule Fluorescence at Room Temperature*, Physical Review Letters **84** (6), 1148 (2000).

[Fon16] C. F. Fong, Y. Ota, E. Harbord, S. Iwamoto, and Y. Arakawa, *p -shell carrier assisted dynamic nuclear spin polarization in single quantum dots at zero external magnetic field*, Physical Review B **93** (12), 125306 (2016).

[Gér98] J. Gérard, B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard, and V. Thierry-Mieg, *Enhanced Spontaneous Emission by Quantum Boxes in a Monolithic Optical Microcavity*, Physical Review Letters **81** (5), 1110 (1998).

[Gér99] J. M. Gérard and B. Gayral, *Strong Purcell effect for InAs quantum boxes in three-dimensional solid-state microcavities*, Journal of Lightwave Technology **17** (11), 2089 (1999).

[Gib16] E. Gibney, *Europe plans giant billion-euro quantum technologies project*, Nature **532** (7600), 426 (2016).

[Gil07] A. Gilchrist, K. J. Resch, and A. G. White, *Quantum information: source of triggered entangled photon pairs?*, Nature **445** (January), E4 (2007).

[Gis02] N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel, H. Zbinden, G. Goire Ribordy, W. Tittel, and H. Zbinden, *Quantum cryptography*, Reviews of Modern Physics **74** (1), 145 (2002).

[Gov93] A. O. Govorov, *Double-resonant Raman scattering by LO-phonons in quantum wells in a magnetic field*, Journal of Raman Spectroscopy **24** (9), 591 (1993).

[Gru10] M. Grundmann, *The Physics of Semiconductors*, Graduate Texts in Physics, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2 edition (2010), ISBN 978-3-642-13883-6.

[Guf01] F. Guffarth, R. Heitz, A. Schliwa, O. Stier, N. Ledentsov, A. Kovsh, V. Ustinov, and D. Bimberg, *Strain engineering of self-organized InAs quantum dots*, Physical Review B **64** (8) (2001).

[Guf03] F. Guffarth, R. Heitz, A. Schliwa, O. Stier, M. Geller, C. M. A. Kapteyn, R. Sellin, and D. Bimberg, *Few-particle interactions in charged In x Ga 1-x As /GaAs quantum dots*, Physical Review B **67** (23), 235304 (2003).

[Hak10] T. V. Hakkarainen, J. Tommila, A. Schramm, A. Tukiainen, R. Ahorinta, M. Dumitrescu, and M. Guina, *Structural and optical properties of InAs quantum dot chains grown on nanoimprint lithography structured GaAs with different pattern orientations*, Applied Physics Letters **97** (17), 173107 (2010).

[Hei96] R. Heitz, M. Grundmann, N. N. Ledentsov, L. Eckey, M. Veit, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. Y. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kop'ev, and Z. I. Alferov, *Multiphonon-relaxation processes in self-organized InAs/GaAs quantum dots*, Applied Physics Letters **68** (3), 361 (1996).

[Hei97] R. Heitz, M. Veit, N. N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev, Z. I. Alferov, P. S. Kop 'ev, Z. I. Alferov, P. S. Kop'ev, and Z. I. Alferov, *Energy relaxation by multiphonon processes in InAs/GaAs quantum dots*, Physical Review B **56** (16), 10435 (1997).

[Hei99] R. Heitz, I. Mukhametzhanov, O. Stier, A. Madhukar, and D. Bimberg, *Enhanced Polar Exciton-LO-Phonon Interaction in Quantum Dots*, Physical Review Letters **83** (22), 4654 (1999).

[Hei00a] R. Heitz, H. Born, A. Hoffmann, D. Bimberg, I. Mukhametzhanov, and A. Madhukar, *Resonant Raman scattering in self-organized InAs/GaAs quantum dots*, Applied Physics Letters **77** (23), 3746 (2000).

[Hei00b] R. Heitz, O. Stier, I. Mukhametzhanov, A. Madhukar, and D. Bimberg, *Quantum size effect in self-organized InAs/GaAs quantum dots*, Physical Review B **62** (16), 11017 (2000).

[Hei01] R. Heitz, H. Born, F. Guffarth, O. Stier, A. Schliwa, A. Hoffmann, and D. Bimberg, *Existence of a phonon bottleneck for excitons in quantum dots*, Physical Review B **64** (24) (2001).

[Hei05] R. Heitz, F. Guffarth, K. Pötschke, A. Schliwa, D. Bimberg, N. Zakharov, and P. Werner, *Shell-like formation of self-organized InAs/GaAs quantum dots*, Physical Review B **71** (4) (2005).

[Hön13] G. Hönig, *Private Communications: Dark-Bright-Splitting in Arsenid-Dots* (2013).

[Hön14] G. Hönig, G. Callsen, A. Schliwa, S. Kalinowski, C. Kindel, S. Kako, Y. Arakawa, D. Bimberg, and A. Hoffmann, *Manifestation of unconventional biexciton states in quantum dots.*, Nature communications **5**, 5721 (2014).

[Hua50] K. Huang and A. Rhys, *Theory of Light Absorption and Non-Radiative Transitions in F-Centres*, Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences **204** (1078), 406 (1950).

[Hug11a] A. Huggenberger, S. Heckelmann, C. Schneider, S. Höfling, S. Reitzenstein, L. Worschech, M. Kamp, and A. Forchel, *Narrow spectral linewidth from single site-controlled In(Ga)As quantum dots with high uniformity*, Applied Physics Letters **98** (13), 131104 (2011).

[Hug11b] A. Huggenberger, C. Schneider, C. Drescher, S. Heckelmann, T. Heindel, S. Reitzenstein, M. Kamp, S. Höfling, L. Worschech, A. Forchel, S. Höfling, L. Worschech, and A. Forchel, *Site-controlled In(Ga)As/GaAs quantum dots for integration into optically and electrically operated devices*, Journal of Crystal Growth **323** (1), 194 (2011).

[Iba09] H. Ibach and H. Lüth, *Festkörperphysik*, Springer-Lehrbuch, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg (2009), ISBN 978-3-540-85794-5.

[Iga10] Y. Igarashi, M. Shirane, Y. Ota, M. Nomura, N. Kumagai, S. Ohkouchi, A. Kirihara, S. Ishida, S. Iwamoto, S. Yorozu, and Y. Arakawa, *Spin dynamics of excited trion states in a single InAs quantum dot*, Physical Review B **81** (24) (2010).

[Ima94] A. Imamoglu and Y. Yamamoto, *Turnstile device for heralded single photons: Coulomb blockade of electron and hole tunneling in quantum confined p-i-n heterojunctions*, Physical Review Letters **72** (2), 210 (1994).

[Iof17] Ioffe Institut, *NSM Archive - Physical Properties of Semiconductors* (2017). [http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond/]

[Ito95] T. Itoh, M. Nishijima, A. I. Ekimov, C. Gourdon, A. L. Efros, and M. Rosen, *Polaron and exciton-phonon complexes in CuCl nanocrystals*, Physical Review Letters **74** (9), 1645 (1995).

[Joh66] E. J. Johnson and D. M. Larsen, *Polaron Induced Anomalies in the Interband Magnetoabsorption of InSb*, Physical Review Letters **16** (15), 655 (1966).

[Kel11] A. M. Kelley, *Electron-phonon coupling in cdse nanocrystals from an atomistic phonon model*, ACS Nano (2011).

[Kie15] F. Kießling, T. Niermann, M. Lehmann, J.-H. Schulze, A. Strittmatter, A. Schliwa, and U. W. Pohl, *Strain field of a buried oxide aperture*, Physical Review B **91** (7), 075306 (2015).

[Kim99] J. Kim, O. Benson, H. Kan, and Y. Yamamoto, *A single-photon turnstile device*, Nature **397** (6719), 500 (1999).

[Kin10] C. H. Kindel, *Study on Optical Polarization in Hexagonal Gallium Nitride Quantum Dots*, Dissertation, University of Tokyo (2010).

[Kir09] S. Kiravittaya, A. Rastelli, and O. G. Schmidt, *Advanced quantum dot configurations*, Reports on Progress in Physics **72** (4), 046502 (2009).

[Kit98] S. Kitson, P. Jonsson, J. Rarity, and P. Tapster, *Intensity fluctuation spectroscopy of small numbers of dye molecules in a microcavity*, Physical Review A **58** (1), 620 (1998).

[Kot79] E. S. Koteles and G. Winterling, *Resonant scattering of exciton polaritons by LO and acoustic phonons*, Physical Review B **20** (2), 628 (1979).

[Kre13] M. Kresse, *Entwicklung eines Spektroskopie-Aufbaus zur automatischen Charakterisierung von elektrisch betriebenen nanophotonischen Lichtquellen*, Bachelorarbeit, Technische Universität Berlin (2013).

[Kur00] C. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda, and H. Weinfurter, *Stable solid-state source of single photons*, Physical Review Letters **85** (2), 290 (2000).

[Lan04] W. Langbein, P. Borri, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, and A. Wieck, *Radiatively limited dephasing in InAs quantum dots*, Physical Review B **70** (3), 033301 (2004).

[Lee11] J. Lee, T. W. Saucer, A. J. Martin, D. Tien, J. M. Millunchick, and V. Sih, *Photoluminescence imaging of focused ion beam induced individual quantum dots.*, Nano letters **11** (3), 1040 (2011).

[Lem01] A. Lemaître, A. D. Ashmore, J. J. Finley, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, and T. F. Krauss, *Enhanced phonon-assisted absorption in single InAs/GaAs quantum dots*, Physical Review B **63** (16), 161309 (2001).

[Lev74] I. B. Levinson and É. I. Rashba, *Threshold phenomena and bound states in the polaron problem*, Soviet Physics Uspekhi **16** (6), 892 (1974).

[Lin06] N. H. Lindner, J. Avron, N. Akopian, and D. Gershoni, *A comment on A semiconductor source of entangled photons*, arXiv (2006).

[Loc06] A. Lochmann, E. Stock, O. Schulz, F. Hopfer, D. Bimberg, V. A. Haisler, A. I. Toropov, A. K. Bakarov, and A. K. Kalagin, *Electrically driven single quantum dot polarised single photon emitter*, Electronics Letters **42** (13), 774 (2006).

[Loc09] A. Lochmann, E. Stock, J. Töfflinger, W. Unrau, A. Toropov, A. Bakarov, V. Haisler, and D. Bimberg, *Electrically pumped, micro-cavity based single photon source driven at 1 GHz*, Electronics Letters **45** (11), 566 (2009).

[Lou05] B. Lounis and M. Orrit, *Single-photon sources*, Reports on Progress in Physics **68** (5), 1129 (2005).

[Man16] Q. Manifesto, *Quantum Manifesto*, Technical Report May, QUTE-EUROPE (2016). [http://qurope.eu/manifesto]

[Meh07] M. Mehta, D. Reuter, A. Melnikov, A. D. Wieck, and A. Remhof, *Focused ion beam implantation induced site-selective growth of InAs quantum dots*, Applied Physics Letters **91** (12), 123108 (2007).

[Mic00] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu, and A. Imamoglu, *A quantum dot single-photon turnstile device.*, Science (New York, N.Y.) **290** (5500), 2282 (2000).

[Mic04] P. Michler (ed.), *Single Quantum Dots: Fundamentals, Applications and New Concepts*, Springer (2004), ISBN 3540140220.

[Mli09] V. Mlinar and A. Zunger, *Internal electronic structure and fine structure of multiexcitons in semiconductor quantum dots*, Physical Review B **80** (20), 205311 (2009).

[Moh10] A. Mohan, P. Gallo, M. Felici, B. Dwir, A. Rudra, J. Faist, and E. Kapon, *Record-low inhomogeneous broadening of site-controlled quantum dots for nanophotonics.*, Small **6** (12), 1268 (2010).

[MS05] J. Martín-Sánchez, Y. González, L. González, M. Tello, R. García, D. Granados, J. García, and F. Briones, *Ordered InAs quantum dots on pre-patterned GaAs (001) by local oxidation nanolithography*, Journal of Crystal Growth **284** (3-4), 313 (2005).

[Nar05] G. A. Narvaez, G. Bester, and A. Zunger, *Excitons, biexcitons, and trions in self-assembled (In,Ga)As / GaAs quantum dots: Recombination energies, polarization, and radiative lifetimes versus dot height*, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics **72** (24), 245318 (2005).

[Nar06] G. A. Narvaez, G. Bester, A. Franceschetti, and A. Zunger, *Excitonic exchange effects on the radiative decay time of monoexcitons and biexcitons in quantum dots*, Physical Review B **74** (20), 1 (2006).

[Nom92] S. Nomura and T. Kobayashi, *Exciton-LO-phonon couplings in spherical semiconductor microcrystallites*, Physical Review B **45** (3), 1305 (1992).

[Oul03] R. Oulton, J. J. Finley, A. I. Tartakovskii, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, A. Vasanelli, R. Ferreira, and G. Bastard, *Continuum transitions and phonon coupling in single self-assembled Stranski-Krastanow quantum dots*, Physical Review B **68** (23), 235301 (2003).

[Paa04] A. Paarmann, *Phononenstreuung und thermische Umverteilungsprozesse in Quantenpunktensembles*, Diplomarbeit, Technische Universität Berlin (2004).

[Paa05] A. Paarmann, *Local Phonon Modes in InAs/GaAs Quantum Dots*, in *AIP Conference Proceedings*, volume 772, pp. 689–690, AIP (2005), ISSN 0094243X.

[Pey12] T. Peyronel, O. Firstenberg, Q. Y. Liang, S. Hofferberth, A. V. Gorshkov, T. Pohl, M. D. Lukin, and V. Vuletić, *Quantum nonlinear optics with single photons enabled by strongly interacting atoms*, Nature **488** (7409), 57 (2012).

[Phi98] W. D. Phillips, *Nobel Lecture: Laser cooling and trapping of neutral atoms*, Reviews of Modern Physics **70** (3), 721 (1998).

[Pic06] PicoQuant GmbH, *FluoFit User's Manual and Technical Data*, PicoQuant GmbH, Berlin, 4.2 edition (2006), ISBN 0125241402.

[Pol13] E. Poliani, M. R. Wagner, J. S. Reparaz, M. Mandl, M. Strassburg, X. Kong, A. Trampert, C. M. Sotomayor Torres, A. Hoffmann, and J. Maultzsch, *Nanoscale imaging of InN segregation and polymorphism in single vertically aligned InGaN/GaN multi quantum well nanorods by tip-enhanced Raman scattering*, Nano Letters **13** (7), 3205 (2013).

[Ras12] A. Rastelli, F. Ding, J. D. Plumhof, S. Kumar, R. Trotta, C. Deneke, A. Malachias, P. Atkinson, E. Zallo, T. Zander, A. Herklotz, R. Singh, V. Křápek, J. R. Schröter, S. Kiravittaya, M. Benyoucef, R. Hafenbrak, K. D. Jöns, D. J. Thurmer, D. Grimm, G. Bester, K. Dörr,

P. Michler, and O. G. Schmidt, *Controlling quantum dot emission by integration of semiconductor nanomembranes onto piezoelectric actuators*, Physica Status Solidi (B) Basic Research **249** (4), 687 (2012).

[Ray96] S. Raymond, S. Fafard, P. J. Poole, A. Wojs, P. Hawrylak, S. Charbonneau, D. Leonard, R. Leon, P. M. Petroff, and J. L. Merz, *State filling and time-resolved photoluminescence of excited states in In(x)Ga(1-x)As/GaAs self-assembled quantum dots*, Physical Review B **54** (16), 548 (1996).

[Rei08] M. E. Reimer, M. Korkusinski, J. Lefebvre, J. Lapointe, P. J. Poole, G. C. Aers, D. Dalacu, W. R. McKinnon, S. Frederick, P. Hawrylak, and R. L. Williams, *Voltage Induced Hidden Symmetry and Photon Entanglement Generation in a Single, Site-Selected Quantum Dot*, Cleo/Qels **53**, 4 (2008).

[Rei14] G. Reithmaier, F. Flassig, P. Hasch, S. Lichtmannecker, K. Müller, J. Vučković, R. Gross, M. Kaniber, and J. J. Finley, *A carrier relaxation bottleneck probed in single InGaAs quantum dots using integrated superconducting single photon detectors*, Applied Physics Letters **105** (8), 081107 (2014).

[Ren01] S.-F. Ren, D. Lu, and G. Qin, *Phonon modes in InAs quantum dots*, Physical Review B **63** (19), 195315 (2001).

[Rep13] J. S. Reparaz, N. Peica, R. Kirste, A. R. Goñi, M. R. Wagner, G. Callsen, M. I. Alonso, M. Garriga, I. C. Marcus, A. Ronda, I. Berbezier, J. Maultzsch, C. Thomsen, and A. Hoffmann, *Probing local strain and composition in Ge nanowires by means of tip-enhanced Raman scattering*, Nanotechnology **24** (18), 185704 (2013).

[Rib01] G. Ribordy, J. Brendel, J. D. Gautier, N. Gisin, and H. Zbinden, *Long-distance entanglement-based quantum key distribution*, Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics **63** (1), 012309 (2001).

[Ric14] S. Rich and B. Gellman, *NSA seeks to build quantum computer that could crack most types of encryption* (2014). [https://www.washingtonpost.com/world/national-security/nsa-seeks-to-build-quantum-computer-that-could-crack-most-types-of-encryption/2014/01/02/8fff297e-7195-11e3-8def-a33011492df2_story.html]

[Rie17] M. F. Riedel, D. Binosi, R. Thew, and T. Calarco, *The European quantum technologies flagship programme*, Quantum Science and Technology **2** (3), 030501 (2017).

[Rod05] S. Rodt, A. Schliwa, K. Pötschke, F. Guffarth, and D. Bimberg, *Correlation of structural and few-particle properties of self-organized InAs/GaAs quantum dots*, Physical Review B **71** (15), 1 (2005).

[Rod16] A. V. Rodina and A. L. Efros, *Radiative recombination from dark excitons in nanocrystals: Activation mechanisms and polarization properties*, Physical Review B **93** (15), 155427 (2016).

[Sal10] C. L. Salter, R. M. Stevenson, I. Farrer, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, *An entangled-light-emitting diode*, Nature **465** (7298), 594 (2010).

[San01] C. Santori, M. Pelton, G. Solomon, Y. Dale, and Y. Yamamoto, *Triggered single photons from a single-photons from a quantum dot*, Phys. Rev. Lett. **86** (8), 1502 (2001).

[San02] C. Santori, G. S. Solomon, M. Pelton, and Y. Yamamoto, *Time-resolved spectroscopy of multiexcitonic decay in an InAs quantum dot*, Physical Review B **65** (7), 073310 (2002).

[Sar06a] D. Sarkar, H. van der Meulen, J. Calleja, J. Becker, R. Haug, and K. Pierz, *Fine structure splitting and biexciton binding energy in single self-assembled InAs/AlAs quantum dots*, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures **32** (1-2), 111 (2006).

[Sar06b] D. Sarkar, H. P. van der Meulen, J. M. Calleja, J. M. Becker, R. J. Haug, and K. Pierz, *Exciton fine structure and biexciton binding energy in single self-assembled InAs/AlAs quantum dots*, Journal of Applied Physics **100** (2), 023109 (2006).

[Sar08a] D. Sarkar, J. Calleja, H. van der Meulen, J. Meyer, R. Haug, and K. Pierz, *Resonant optical excitation and intermixing in InAs/AlAs single quantum dots*, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures **40** (6), 2172 (2008).

[Sar08b] D. Sarkar, H. P. van der Meulen, J. M. Calleja, J. M. Meyer, R. J. Haug, and K. Pierz, *Resonant optical excitation of longitudinal-optical phonons and intermixing in InAs/AlAs single quantum dots*, Applied Physics Letters **92** (18), 181909 (2008).

[Sch07a] A. Schliwa, *Electronic Properties of Self-Organized Quantum Dots*, Dissertation, Technische Universität Berlin (2007).

[Sch07b] A. Schliwa, M. Winkelnkemper, and D. Bimberg, *Impact of size, shape, and composition on piezoelectric effects and electronic properties of In(Ga)As/GaAs quantum dots*, Physical Review B **76** (20), 1 (2007).

[Sch07c] M. Scholz, S. Buttner, O. Benson, A. I. Toropov, A. K. Bakarov, A. K. Kalagin, A. Lochmann, E. Stock, O. Schulz, F. Hopfer, V. A. Haisler, and D. Bimberg, *Non-classical light emission from a single electrically driven quantum dot*, Optics Express **15** (15), 9107 (2007).

[Sch09a] A. Schliwa, M. Winkelnkemper, and D. Bimberg, *Few-particle energies versus geometry and composition of In x Ga 1-x As /GaAs self-organized quantum dots*, Physical Review B **79** (7), 075443 (2009).

[Sch09b] A. Schliwa, M. Winkelnkemper, A. Lochmann, E. Stock, and D. Bimberg, *In(Ga)As/GaAs quantum dots grown on a (111) surface as ideal sources of entangled photon pairs*, Physical Review B **80** (16), 161307(R) (2009).

[Sch14a] E. R. Schmidgall, I. Schwartz, L. Gantz, D. Cogan, S. Raindel, and D. Gershoni, *Deterministic generation of a quantum-dot-confined triexciton and its radiative decay via three-photon cascade*, Physical Review B **90** (24), 241411 (2014).

[Sch14b] J.-H. Schulze, D. Quandt, and A. Strittmatter, *Online Laborbuch - Epitaxiegruppe AG Bimberg , TU Berlin NP4513_LowDensityQP _ Mesa _ PL Epi-Schritte*, Technical report, TU Berlin, Berlin (2014).

[Sch15] A. Schlehahn, L. Krüger, M. Gschrey, J.-H. Schulze, S. Rodt, A. Strittmatter, T. Heindel, and S. Reitzenstein, *Operating single quantum emitters with a compact Stirling cryocooler*, Review of Scientific Instruments **86** (1), 013113 (2015).

[Sch16] E. R. Schmidgall, Y. Benny, I. Schwartz, R. Presman, L. Gantz, Y. Don, and D. Gershoni, *Selection Rules for Non-Radiative Carrier Relaxation Processes in Semiconductor Quantum Dots*, Physical Review B **245437** (April), 1 (2016).

[Seg08] R. Seguin, *Electronic fine structure and recombination dynamics in single InAs quantum dots*, Dissertation, Technische Universität Berlin (2008).

[Shi07] A. J. Shields, *Semiconductor quantum light sources*, Nature Photonics **1** (4), 215 (2007).

[Sho97] P. Shor, *Polynomial-Time Algorithms for Prime Factorization and Discrete Logarithms on a Quantum Computer*, SIAM Journal on Computing **26** (5), 1484 (1997).

[Sie08] E. Siebert, *Anregungsspektroskopie an einzelnen Quantenpunkten*, Diplomarbeit, Technische Universität Berlin (2008).

[Sie09] E. Siebert, T. Warming, A. Schliwa, E. Stock, M. Winkelnkemper, S. Rodt, and D. Bimberg, *Spectroscopic access to single-hole energies in InAs/GaAs quantum dots*, Physical Review B **79** (20) (2009).

[SS11] J. Skiba-Szymanska, A. Jamil, I. Farrer, M. B. Ward, C. A. Nicoll, D. J. P. Ellis, J. P. Griffiths, D. Anderson, G. A. C. Jones, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, *Narrow emission linewidths of positioned InAs quantum dots grown on pre-patterned GaAs(100) substrates.*, Nanotechnology **22** (6), 065302 (2011).

[Ste06] R. M. Stevenson, R. J. Young, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, *A semiconductor source of triggered entangled photon pairs*, Nature **439** (7073), 179 (2006).

[Ste07] R. M. Stevenson, R. J. Young, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, *Quantum Information: Source of triggered entangled photon pairs? (Reply)*, Nature **445** (7124), E5 (2007).

[Sti99] O. Stier, M. Grundmann, and D. Bimberg, *Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band kp theory*, Physical Review B **59** (8), 5688 (1999).

[Sto10] E. Stock, *Self-Organized Quantum Dots for Single Photon Sources*, Dissertation, Technische Universität Berlin (2010).

[Sto11a] E. Stock, M.-R. Dachner, T. Warming, A. Schliwa, A. Lochmann, A. Hoffmann, A. Toropov, A. Bakarov, I. Derebezov, M. Richter, V. Haisler, A. Knorr, and D. Bimberg, *Acoustic and optical phonon scattering in a single In(Ga)As quantum dot*, Physical Review B **83** (4) (2011).

[Sto11b] E. Stock, W. Unrau, A. Lochmann, J. A. Töfflinger, M. Öztürk, A. I. Toropov, A. K. Bakarov, V. A. Haisler, and D. Bimberg, *High-speed single-photon source based on self-organized quantum dots*, Semiconductor Science and Technology **26** (1), 014003 (2011).

[Str12a] A. Strittmatter, A. Holzbecher, A. Schliwa, J.-H. Schulze, D. Quandt, T. D. Germann, A. Dreismann, O. Hitzemann, E. Stock, I. A. Ostapenko, S. Rodt, W. Unrau, U. W. Pohl, A. Hoffmann, D. Bimberg, and V. Haisler, *Site-controlled quantum dot growth on buried oxide stressor layers*, physica status solidi (a) **209** (12), 2411 (2012).

[Str12b] A. Strittmatter, A. Schliwa, J.-H. Schulze, T. D. Germann, A. Dreismann, O. Hitzemann, E. Stock, I. A. Ostapenko, S. Rodt, W. Unrau, U. W. Pohl, A. Hoffmann, D. Bimberg, and V. Haisler, *Lateral positioning of InGaAs quantum dots using a buried stressor*, Applied Physics Letters **100** (9), 093111 (2012).

[Stu62] M. D. Sturge, *Optical Absorption of Gallium Arsenide between 0.6 and 2.75 eV*, Physical Review **127** (3), 768 (1962).

[Sze15] J. Szeszko, V. V. Belykh, A. Rudra, B. Dwir, N. N. Sibeldin, and E. Kapon, *Multiexciton dynamics in tailored band-gap quasi-one-dimensional systems*, Physical Review B **91** (24), 245304 (2015).

[Tho18] Thorlabs, *Pellicle Beamsplitters: Thin-Film Interference Effect* (2018). [https://www.thorlabs.com/ images/TabImages/Thin_Film Interference_Graph.jpg]

[Tit98] W. Tittel, J. Brendel, H. Zbinden, and N. Gisin, *Violation of Bell inequalities by photons more than 10 km apart*, Physical Review Letters **81** (17), 3563 (1998).

[Tod99] Y. Toda, O. Moriwaki, M. Nishioka, and Y. Arakawa, *Efficient Carrier Relaxation Mechanism in InGaAs/GaAs Self-Assembled Quantum Dots Based on the Existence of Continuum States*, Physical Review Letters **82** (20), 4114 (1999).

[Tro08] F. Troiani and C. Tejedor, *Entangled photon pairs from a quantum-dot cascade decay: The effect of time reordering*, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics **78** (15), 155305 (2008).

[Tro12a] R. Trotta, P. Atkinson, J. D. Plumhof, E. Zallo, R. O. Rezaev, S. Kumar, S. Baunack, J. R. Schröter, A. Rastelli, and O. G. Schmidt, *Nanomembrane quantum-light-emitting diodes integrated onto piezoelectric actuators*, Advanced Materials **24** (20), 2668 (2012).

[Tro12b] R. Trotta, E. Zallo, C. Ortix, P. Atkinson, J. D. Plumhof, J. van den Brink, A. Rastelli, and O. G. Schmidt, *Universal Recovery of the Energy-Level Degeneracy of Bright Excitons in InGaAs Quantum Dots without a Structure Symmetry*, Physical Review Letters **109** (14), 147401 (2012).

[Tro14] R. Trotta, J. S. Wildmann, E. Zallo, O. G. Schmidt, and A. Rastelli, *Highly entangled photons from hybrid piezoelectric-semiconductor quantum dot devices*, Nano Letters **14** (6), 3439 (2014).

[Unr12] W. Unrau, D. Quandt, J.-H. Schulze, T. Heindel, T. D. Germann, O. Hitzemann, A. Strittmatter, S. Reitzenstein, U. W. Pohl, and D. Bimberg, *Electrically driven single photon source based on a site-controlled quantum dot with self-aligned current injection*, Applied Physics Letters **101** (21), 211119 (2012).

[Unr14] W. Unrau and D. Bimberg, *Flying qubits and entangled photons*, Laser & Photonics Reviews **8** (2), 276 (2014).

[Vas02] A. Vasanelli, R. Ferreira, and G. Bastard, *Continuous absorption background and decoherence in quantum dots.*, Physical review letters **89** (21), 216804 (2002).

[Wag10] M. R. Wagner, *Fundamental properties of excitons and phonons in ZnO : A spectroscopic study of the dynamics , polarity , and effects of external fields*, Dissertation, Technische Universität Berlin (2010).

[War09a] T. Warming, *Elektronische Struktur angeregter Zustände einzelner InAs-Quantenpunkte*, Dissertation, Technische Universität Berlin (2009).

[War09b] T. Warming, E. Siebert, A. Schliwa, E. Stock, R. Zimmermann, and D. Bimberg, *Hole-hole and electron-hole exchange interactions in single InAs/GaAs quantum dots*, Physical Review B **79** (12) (2009).

[Wer11] S. Werner, J. S. Reparaz, M. R. Wagner, P. Zimmer, N. N. Ledentsov, J. Kabuss, M. R. Dachner, M. Richter, A. Knorr, C. Thomsen, and A. Hoffmann, *Decay dynamics of excitonic polarons in InAs/GaAs quantum dots*, Journal of Applied Physics **110** (7), 074303 (2011).

[Wer12] S. Werner, *Eigenschaften und Dynamik verschiedener Transferprozesse in Arsenid- und Nitrid-Quantenpunkten*, Dissertation, Technische Universität Berlin (2012).

[Win09] M. Winger, T. Volz, G. Tarel, S. Portolan, A. Badolato, K. J. Hennessy, E. L. Hu, A. Beveratos, J. Finley, V. Savona, and A. Imamoğlu, *Explanation of Photon Correlations in*

the Far-Off-Resonance Optical Emission from a Quantum-Dot–Cavity System, Physical Review Letters **103** (20), 207403 (2009).

[Yu76] P. Y. Yu, *Resonant Raman study of LO + acoustic phonon modes in CdSe*, Solid State Communications **19** (11), 1087 (1976).

[Yu10] P. Y. Yu and M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors*, volume 1 of *Graduate Texts in Physics*, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 4 edition (2010), ISBN 978-3-642-00709-5.

[Zha12] Q. Zhang, J. Zhang, M. I. Utama, B. Peng, M. De La Mata, J. Arbiol, and Q. Xiong, *Exciton-phonon coupling in individual ZnTe nanorods studied by resonant Raman spectroscopy*, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics **85** (8), 085418 (2012).

[Zim14] A. Zimmermann, *Theorie der simultan zeit- und frequenzaufgelösten Fluoreszenz- und Ramanspektren von Quantenpunkten*, Masterarbeit, Technische Universität Berlin (2014).

[Zwi04] V. Zwiller, T. Aichele, and O. Benson, *Quantum optics with single quantum dot devices*, New Journal of Physics **6** (1), 96 (2004).

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die mich während meiner Arbeit an der TU Berlin unterstützt und begleitet haben. Insbesondere danke ich folgenden Personen, die diese Arbeit so erst möglich gemacht haben:

- Meinem Doktorvater, Herrn Prof. Dr. Axel Hoffmann, danke ich für die Möglichkeit, in seiner Gruppe arbeiten zu dürfen und sein großes Interesse an meiner Forschung. Seine fachliche Expertise und sein spektroskopisches Gedächtnis waren mir eine große Hilfe beim Verständnis und bei der Interpretation meiner Messergebnisse. Ich danke ihm für die zahlreichen, langen, motivierenden Gespräche über Physik und das Leben im Allgemeinen.

- Mein großer Dank gilt den weiteren Mitgliedern meines Promotionsauschusses, Frau Prof. Dr. Janina Maultzsch für die Begutachtung meiner Arbeit und Herrn Prof. Dr. Andreas Knorr für die Übernahme des Vorsitzes. Ich danke ihnen auch für die stes gute Zusammenarbeit und Betreuung im SFB 787 und in der School of Nanophotonics.

- Herrn Prof. Dieter Bimberg danke ich für die Möglichkeit, in seiner Arbeitsgruppe die ersten Schritte in die Welt der Quantenpunkte setzen zu dürfen, und für die Betreuung in den ersten Jahren als Doktorand. Außerdem danke ich den damaligen Mitgliedern der Arbeitsgruppe Bimberg, insbesondere Dr. Erik Stock für die Einführung in die Kunst, einen μPL-Versuchsaufbau am Laufen zu halten, Dr. Sven Rodt für Unterstützung bei allen praktischen spektroskopischen Fragestellungen, Dr. Gernot Stracke für die IT-Unterstützung sowie Alexander Dreismann und Murat Öztürk für die langen gemeinsamen Messungen im dunklen Labor. Herrn Prof. Dr. Wolfang Gehlhoff danke ich für die zahlreichen interessanten Gespräche in der Zeit, als ich mir ein Büro mit ihm teilen durfte.

- Herrn Prof. Dr. André Strittmatter und den Mitgliedern seiner Epitaxie-Arbeitsgruppe, insbesondere Dr. Tim Germann, Dr. David Quandt und Jan-Hindrik Schulze, sowie Dr. Waldemar Unrau danke ich dafür, dass sie die spannenden „burried stressor“ Proben gewachsen und prozessiert haben, an denen ich fast alle Messungen dieser Arbeit durchführen konnte.

- Herrn Prof. Dr. Vladimir Haisler und Herrn Prof. Dr. David Gershoni danke ich für den wertvollen wissenschaftlichen Austausch während ihrer Besuche in Berlin - ich habe viel über die Physik von Quantenpunkten gelernt.

- Herrn Prof. Dr. Stephan Reitzenstein und den ehemaligen und gegenwärtigen Mitgliedern seiner Arbeitsgruppe danke ich für die freundschaftliche und konstruktive Zusammenarbeit beim Um- und Ausbau der μPL-Labors und für die erfolgreichen gemeinsamen Arbeiten zur Quantenpunkt-Spektroskopie, insbesondere Prof. Dr. Udo Pohl, Dr. Tobias Heindel, Dr. Caspar Hopfmann, Dr. Manuel Gschrey, Dr. Anna Musial, Dr. Alexander Schlehahn und Dr. Alexander Thoma sowie Fabian Gericke, Martin Kresse, Luzy Krüger, Pierce Munnelly und Elisabeth Schlottmann.

- Dr. Felix Nippert und Thomas Kure danke ich für das fachliche Korrekturlesen meiner Arbeit, für Unterstützung bei LaTeX- und Labview-Problemen, beim Aufbau und Betrieb des tr-μPL-Labors, bei diversen Bastelarbeiten sowie für die Versorgung mit Neuigkeiten und Informationen aus der Uni und die Gesellschaft bei unzähligen gemeinsamen Mittags- und Kaffeepausen.

- Dr. Gordon Callsen danke ich für die Unterstützung beim Aufbau komplizierter Spektroskopie-Aufbauten und bei der Interpretation komplexer Quantenpunkt-Spektren sowie für die netten gemeinsamen Mensabesuche und unsere unvergessene Kalifornien-Reise.

- Dr. Christian Kindel danke ich für die Unterstützung bei der Interpretation der diskreten spektralen Diffusion sowie für die zahlreichen interessanten und motivierenden Gespräche.

- Dr. Andrei Schliwa, Dr. Gerald Hönig und Anke Zimmermann danke ich für die wertvolle Theorie-Unterstützung bei der Interpretation meiner Messungen.

- Dr. Emanuele Poliani danke ich für die Durchführung und Interpretation von TERS Messungen an meinen Quantenpunkt-Proben.

- Ich danke den Doktorandinnen und Doktoranden meiner „Vorgängergeneration“ für die zahlreichen wertvollen Hinweise, Ratschläge und Gespräche, insbesondere Dr. Max Bügler, Dr. Munise Cobet, Dr. Ronny Kirste, Dr. Markus Wagner und Dr. Stefan Werner.

- Ich danke allen anderen ehemaligen und gegenwärtigen Mitgliedern der Arbeitsgruppen Hoffmann, Thomsen und Maultzsch für das gute Klima in unseren Arbeitsgruppen, geselliges Beisammensein sowie Hilfe und Unterstützung in allen Lebenslagen. Insbesondere danke ich Dr. Harald Scheel für die vielfältige technische Unterstützung, Dr. Dirk Heinrich für Versorgung mit Multimedia und Kaffee sowie Doreen Nitzsche, Ines Rudolph und Anja Sandersfeld für die administrative Unterstützung. Den Mitgliedern unserer langjährigen Hungaaaa-Mittagsessens-Gruppe danke ich für die netten und interessanten (Fach-)Gespräche bei zahlreichen Mittagspausen in den Restaurants der Umgebung und beim Brown Bag Lunch in der Uni, insbesondere Dr. Amelie Biermann, Narine Ghazaryan, Nadja Jankowsky, Felix Kampmann, Dr. Christian Nenstiel, Dr. Sarah Schlichting, Hans Tornatzky und Asmus Vierck. Außerdem danke ich den Mitbewohnern meines letzten „Uni-Großraumsbüros“ Ludwig Greif, Stefan Jagsch, Alexander Mittelstädt und Markus Schleuning für die nette Gesellschaft und produktive Arbeitsatmosphäre.

- Ich danke den ehemaligen und gegenwärtigen Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern der feinmechanischen Werkstatt Daniela Beiße, Marco Haupt, Andreas Jank, Werner Kaczmarek, Andreas Ludewig, Rainer Noethen und Wolfgang Pieper für ihre freundliche und kompetente Unterstützung durch den Bau zahlreicher Vorrichtungen, Adapterplatten und anderer Spezialanfertigungen, um die Spektroskopie-Versuchsaufbauten zum Laufen zu bringen. Außerdem danke ich den ehemaligen und gegenwärtigen Mitarbeitern der glastechnischen Werkstatt Nobert Zielinski und Rinaldo August für ihre freundliche und hilfreiche Unterstützung mit Kryostaten, optischen Fenstern und anderen gläsernen Laborgeräten.

- Ich bedanke mich bei der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) für die Finanzierung meiner Arbeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter innerhalb des Sonderforschungsbereichs Halbleiter-Nanophotonik: Materialien, Modelle, Bauelemente (SFB 787) und die Möglichkeit in diesem interessanten Forschungsumfeld zu arbeiten.

- Ich danke meiner Mutter Esther nicht nur für das orthographische und grammatikalische Korrekturlesen dieser Arbeit und meinem Vater Bernd nicht nur für seine hilfreichen Ratschläge, sondern beiden und meiner ganzen Familie für ihre stete liebevolle Unterstützung.

- Zu guter Letzt danke ich meiner Frau Marie für ihre Liebe, Geduld und Unterstützung in all den Jahren und meinen Kindern Elisabeth und Mattis für ihr Lächeln, ihre Freude, ihre Liebe.