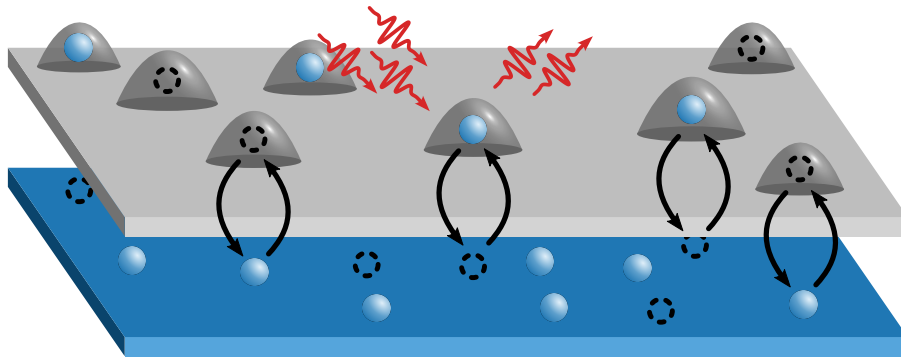


*Nichtgleichgewichtsdynamik
in selbstorganisierten
Quantenpunkten*



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

- DISSERTATION -

von

Jens Kerski

aus Duisburg

Tag der Abgabe: 11. Mai 2023
Tag der Disputation: 1. August 2023

Mitglieder der Prüfungskommission:
1. Gutachter: Prof. Dr. Axel Lorke
2. Gutachter: Prof. Dr. Rolf Haug
Prüfer: Jun. Prof. Dr. Manuel Gruber
Vorsitzender: Prof. Dr. Jürgen König

„Let us fight for a world of reason, a world where science and progress will lead to all men's happiness.“

– Charlie Chaplin, *The Great Dictator* (1940) -

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden verschiedene Formen der Nichtgleichgewichtsdynamik in selbstorganisierten InAs/GaAs-Quantenpunkten studiert. Dazu wurden sowohl optische als auch elektrische Methoden zur zeitaufgelösten Charakterisierung verwendet. Die Quantenpunkte wurden dafür in eine diodenartige Halbleiterheterostruktur eingebracht. Diese Struktur ermöglichte es den Ladungszustand der Quantenpunkte zu beeinflussen. Dazu wurde eine elektrische Spannung an die Struktur angelegt, die die Energie der Quantenpunktzustände unter das chemische Potential eines benachbarten Reservoirs gebracht hat, was dazu geführt hat, dass Elektronen aus dem Reservoir in die Zustände tunneln. Mit der Spannung konnten die Quantenpunkte außerdem einem elektrischen Feld ausgesetzt werden. Die Messungen erfolgten alle bei tiefen Temperaturen. Dafür wurden die Proben in Kryostaten eingebaut. In diesen konnten mit supraleitenden Spulen Magnetfelder von bis zu 10 T erzeugt werden.

Mit Hilfe von zeitaufgelöster resonanter Fluoreszenz wurde die Nichtgleichgewichtsdynamik eines Elektron-Spins in einem einzelnen Quantenpunkt im Magnetfeld untersucht. Diese Nichtgleichgewichtsdynamik wird durch die Anregung eines optischen Überganges induziert und ist unter dem Begriff des *optischen Spin-Pumpens* besonders für die Anwendung von Quantenpunkten in der Quanteninformationstechnik von Bedeutung. In dieser Arbeit wurde explizit der Auger-Prozess berücksichtigt, der in früheren Arbeiten vernachlässigt wurde. Die Messergebnisse wurden erfolgreich mit einem Ratenmodell beschrieben. Dabei zeigte sich, dass der Auger-Prozess nicht zum Spin-Pumpen beiträgt und die Rate des Auger-Prozesses entgegen einiger Vermutungen nicht im Magnetfeld steigt.

Es wurden außerdem Messungen mit zeitaufgelöster resonanter Fluoreszenz durchgeführt, um den fluktuierenden Ladungszustand eines einzelnen Quantenpunktes zu untersuchen. Diese Fluktuationen werden auch als Telegraphenrauschen bezeichnet und sind das Ergebnis des Quantentransports von tunnelnden Elektronen zwischen dem Quantenpunkt und dem benachbarten Reservoir. Die Messung dieser Fluktuationen geschieht üblicherweise elektrostatisch mit einer hohen Zeitauflösung. Für die optische Messung werden einzelne Photonen detektiert und die Zeitauflösung bzw. die Bandbreite des Telegraphenrauschens wird durch eine Postprozessierung erst nach dem Experiment gewählt. In dieser Arbeit konnte gezeigt werden, dass es eine maximale (optimale) Bandbreite gibt, bis zu der der Quantentransport aufgelöst werden kann. Exemplarisch wurde die Auswertung mit einer maximalen Bandbreite von etwa 179 kHz demonstriert. Es wurden mehrere Möglichkeiten zur Erhöhung der maximalen Bandbreite diskutiert und gezeigt, dass dies mit einer stärkeren Laseranregung möglich ist. Zur quantitativen Beschreibung der maximalen Bandbreite wurde außerdem ein Modell aufgestellt. Mit diesem ließ sich der vorhandene Datensatz gut beschreiben.

Schließlich wurde noch mit zeitaufgelöster Leitfähigkeitsspektroskopie an einem Ensemble von Quantenpunkten gemessen, mit welcher Rate Elektronen aus einem zweidimensionalen Elektronengas in die Quantenpunkte tunneln. Die Messungen wurden mit einem Magnetfeld senkrecht zur Tunnelrichtung durchgeführt. Dies verändert die Rate und ermöglicht es die am Tunnelprozess beteiligten Wellenfunktionen zu vermessen. In dieser Arbeit wurden Nichtgleichgewichtsmessungen durchgeführt, bei denen die Elektronen sowohl in den Grundzustand als auch in angeregte Zustände tunneln. Mit einem Ratenmodell konnten die Messdaten angepasst und die Tunnelraten von einander getrennt werden. Dadurch konnte die erste erfolgreiche Vermessung der Wellenfunktion eines angeregten Zustandes durchgeführt werden. Diese deutete auf ein isotropes Bindungspotential der Quantenpunkte hin. Dies steht im Widerspruch zu früheren Messungen an Vielteilchenzuständen und deutet darauf hin, dass die zusätzlichen Ladungsträger in den Quantenpunkten eine Symmetriebrechung vermitteln.

Abstract

In this work, various forms of nonequilibrium dynamics in self-assembled InAs/GaAs quantum dots were studied. For this purpose, both optical and electrical methods were used for time-resolved characterization. For this purpose, the quantum dots were introduced into a diode-like semiconductor heterostructure. This structure made it possible to influence the charge state of the quantum dots. This was done by applying an electrical voltage to the structure that shifted the energy of the quantum dot states below the chemical potential of a nearby reservoir, causing electrons from the reservoir to tunnel into the states. The voltage also allowed to expose the quantum dots to an electric field. All of the measurements were performed at low temperatures. For this purpose, the samples were placed in cryostats. In these, magnetic fields of up to 10 T could be generated with superconducting coils.

Time-resolved resonance fluorescence was used to study the nonequilibrium dynamics of an electron spin in a single quantum dot in a magnetic field. These nonequilibrium dynamics are induced by the excitation of an optical transition and also known as *optical spin pumping*. They are particularly important for the application of quantum dots in quantum information technology. In this work, explicit consideration was given to the Auger process, which was neglected in previous work. The measurements were successfully described with a set of master equations. It was shown, that the Auger process does not contribute to spin pumping and that, contrary to some assumptions, the rate of the Auger process does not increase in a magnetic field.

Time-resolved resonance fluorescence measurements were also performed to study the fluctuating charge state of a single quantum dot. These fluctuations are also known as telegraph signal and are the result of quantum transport of tunneling electrons between the quantum dot and the nearby reservoir. These fluctuations are usually measured electrostatically with a high time resolution. For the optical measurement, single photons are detected and the time resolution or the bandwidth of the telegraph signal is chosen by post-processing only after the experiment. In this work, it was shown that there is a maximum (optimal) bandwidth up to which quantum transport can be resolved. As an example, the evaluation of the telegraph signal was demonstrated with a maximum bandwidth of about 179 kHz. Several ways to increase the maximum bandwidth were discussed and it was demonstrated with stronger laser excitation. A model was established to quantitatively describe the maximum bandwidth. With this, the existing data set could be described well.

Finally, time-resolved transconductance spectroscopy was used on an ensemble of quantum dots to measure the rate at which electrons tunnel from a two-dimensional electron gas into the quantum dots. The measurements were performed with a magnetic field perpendicular to the tunneling direction. This changes the rate and allows the wave functions involved in the tunneling process to be measured. In this work, nonequilibrium measurements were performed in which electron tunneling into both the ground state and excited states occur. A set of master equations was used to fit the measured data and separate the tunneling rates from each other. This allowed the first successful measurement of the wave function of an excited state self-assembled quantum dot. This indicated an isotropic potential of the quantum dots. This contradicts previous measurements on many-body states and suggests that the additional charge carriers in the quantum dots mediate a break of the quantum dots' symmetry.

Inhaltsverzeichnis

I. Einleitung und Hintergrund	1
1. Einleitung	3
2. Quantenpunkte	5
2.1. Wachstum	5
2.2. Energiestruktur	6
2.3. Vielteilchenzustände	9
2.4. Stark-Effekt	11
2.5. Einfluss von magnetischen Feldern	12
2.6. Auger-Effekt	13
3. Experimenteller Aufbau und Methoden	15
3.1. Probenaufbau	15
3.1.1. Probe zur elektrischen Charakterisierung	16
3.1.2. Probe zur optischen Charakterisierung	18
3.2. Optische Spektroskopie	20
3.2.1. Aufbau	20
3.2.2. Resonante Fluoreszenz	22
3.3. Leitfähigkeitsspektroskopie	24
3.3.1. Spektroskopie nahe am Gleichgewicht	26
3.3.2. Nichtgleichgewichtsspektroskopie	27
II. Nichtgleichgewichtsdynamik	31
4. Auger- und Spin-Dynamik im Magnetfeld	33
4.1. Statistische Beschreibung der Dynamik im Magnetfeld	34
4.2. Charakterisierung	39
4.3. Zeitaufgelöste Dynamik	41
4.4. Zusammenfassung	44
5. Postprozessierung einzelner Photonen zur Echtzeitmessung von Quantensprüngen	47
5.1. Messaufbau	47
5.2. Auswertungsschema	49
5.3. Festlegung der Grenzphotonenzahl	50
5.4. Intrinsische Bandbreitenlimitierung	51
5.4.1. Statistische Beschreibung	55
5.5. Zusammenfassung	58

6. Wellenfunktionen von angeregten Zuständen	59
6.1. Vermessung von Wellenfunktionen	59
6.2. Bestimmung der Quantenpunktzustände	64
6.3. Modell des Ladungstransfers im Nichtgleichgewicht	67
6.4. Die Wellenfunktion des angeregten p -Zustandes	70
6.5. Zusammenfassung	74
7. Zusammenfassung der Ergebnisse und Ausblick	77
Publikationsliste	81
Literaturverzeichnis	83

Teil I.

Einleitung und Hintergrund

„Bernhard von Chartres sagte, wir seien gleichsam Zwerge, die auf den Schultern von Riesen sitzen, um mehr und Entfernteres als diese sehen zu können – freilich nicht dank eigener scharfer Sehkraft oder Körpergröße, sondern weil die Größe der Riesen uns emporhebt.“

– Johannes von Salisbury, *Metalogicon* 3,4,47–50 -

1. Einleitung

Der Begriff *Quantenpunkt* (QP) bezeichnet eine ganze Reihe an Festkörpervnanostrukturen, die als definierende Gemeinsamkeit eine diskrete Zustandsdichte aufweisen. Sie entsprechen demnach in der üblichen Festkörperphysikterminologie einem nulldimensionalen Elektronengas (0DEG) und können beispielsweise dadurch entstehen, dass man ein freies Elektronengas in allen drei Raumrichtungen bis zur Quantisierung einschränkt. Aufgrund dessen benutzt man häufig auch den Begriff des *künstlichen Atoms*.

Bekannte Vertreter von Quantenpunkten sind Nanopartikel [Saha12, Medintz05]. Das sind Partikel, die eine Größe von wenigen bis zu etwa 100 Nanometern aufweisen. Die Einschränkung der Elektronenzustände und die Variation der Systemeigenschaften erfolgt sowohl über die Struktur (Form und Größe der Partikel) als auch über die beteiligten Materialien (Core-Shell-Systeme [Chaudhuri11] oder aber über die Substrat Oberfläche [Fort08]). Nanopartikel sind in der Industrie und Forschung vor allem für ihre optischen Eigenschaften von besonderem Interesse. So werden sie zum Beispiel in Solarzellen zur Absorption [Zhou18], in Displays zur Farbgebung [Kim17] oder aber auch in der Krebsdiagnostik [Chinen15] verwendet. Andere bedeutsame Vertreter von Quantenpunkten sind lithographisch- [Kouwenhoven01] oder aber elektrostatisch-definierte Quantenpunkte [vanderWiel02]. Bei diesen wird ein zweidimensionales Elektronengas benutzt. Dies ist eine hochleitfähige Schicht [Störmer79, Hwang08]. Durch Ätzverfahren oder aber elektrische Spannungen wird sie lokal verarmt, sodass sich die Elektronen nur in einem bestimmten lokalisierten Bereich aufhalten dürfen. Diese Art von QP ist bisher vor allem von wissenschaftlichem Interesse für die Untersuchung von elektrischen Tunnelprozessen oder aber auch von Quantentransport [Lu03, Gustavsson06, Wagner19].

In dieser Arbeit werden sogenannte *selbstorganisierte Quantenpunkte* untersucht [Petroff01, Riel08, Geller19]. Dabei handelt sich um Halbleiterheterostrukturen, bei denen ein Material (I) mit größerer Bandlücke ein Material (II) mit kleinerer Bandlücke umschließt. Dadurch kommt es zu einem attraktiven Einschlusspotential für Ladungsträger. Wenn der Einschluss klein genug ist, führt dies zur Diskretisierung der Zustandsdichte. Über die räumliche Ausdehnung des Einschlusses und die Wahl der Materialien lässt sich die Energiestruktur deutlich variieren. In unserem Fall ist das Material I GaAs und das Material II InAs. Selbstorganisierte Quantenpunkte spielen sowohl für die moderne Grundlagenforschung eine große Rolle, als auch für aktuelle und zukünftige industrielle Anwendungen. Für die Grundlagenforschung stellen diese Quantenpunkte vor allem ein experimentell gut kontrolliertes Modellsystem dar. So emittieren sie zum Beispiel einzelne Photonen [Michler00, Nguyen11], lassen sich mit mehreren Elektronen beladen [Ruß06], zeigen den Kondo-Effekt [Igarashi07] und lassen sich untereinander koppeln [Luyken98]. Industriell lassen sie sich für Anwendungen in Lasern [Bimberg97], Solarzellen [Nozik02] oder Daten-Speichern [Petroff01, Nowozin14] benutzen. Aktuell stehen selbstorganisierte Quantenpunkte besonders dafür im Fokus, dass sie vielversprechende Kandidaten für Qubits im Bereich des Quantencomputings [Loss98, Ladd10] darstellen. Im Rahmen dieser Arbeit wurden verschiedene Formen der Nichtgleichgewichtsdynamik in den Quantenpunkten studiert. Dazu wurden sowohl optische als auch elektrische Methoden zur zeitaufgelösten Charakterisierung verwendet.

Die Arbeit ist in zwei Teilen gegliedert. Im ersten Teil werden die zum Verständnis notwendigen Grundlagen vermittelt. Dazu wird in Kapitel 2 grundsätzlich erläutert, wie die Quantenpunkte hergestellt werden [Leonard93], welche gebundenen (Vielteilchen-)Zustände es gibt [Fock28, Darwin31], aus welchen Beiträgen sich die Energien dieser Zustände zusammensetzen [Warburton98] und wie sie auf elektrische [Fry00] und magnetische Felder [Kuther98] reagieren. Die Untersuchungen in dieser

Arbeit wurden an zwei verschiedenen Proben durchgeführt. Deren Design war jeweils dafür optimiert, um entweder optische Messungen an einzelnen Quantenpunkten oder aber elektrische Messungen an Quantenpunkt-Ensembles durchzuführen. Der Aufbau und die Besonderheiten der Proben werden in Kapitel 3 erläutert, zusammen mit einer Einführung in die Methoden der resonanten Fluoreszenz [Vamivakas09, Kurzman16c, Kurzman19] und der Leitfähigkeitspektroskopie [Marquardt09, Marquardt11b, Beckel14b].

Im zweiten Teil der Arbeit werden die Ergebnisse zur Nichtgleichgewichtsdynamik präsentiert. Dazu wird in Kapitel 4 beschrieben, wie sich die Ausrichtung eines Elektronen-Spins in einem einzelnen Quantenpunkt im Magnetfeld verändert, wenn ein Trion-Übergang im Quantenpunkt optisch angeregt wird [Atature06, Dreiser08]. Diese Spin-Dynamik und das damit verbundene optische Spin-Pumpen ist von zentraler Bedeutung für die Anwendung von Quantenpunkten in der Quanteninformationstechnik. In dieser Arbeit wird zusätzlich zu den in der Literatur bereits berücksichtigten Effekten auch der Auger-Effekt betrachtet und untersucht, wie sich die Rate des Auger-Prozesses im Magnetfeld verändert. In Kapitel 5 wurde der Quantentransport untersucht, der sich durch tunnelnde Elektronen zwischen dem Quantenpunkt und einem benachbarten Reservoir ergibt. Die Messung solcher Fluktuationen erfolgt üblicherweise elektrostatisch [Matsumoto96, Regul02] an anderen Quantenpunkten und mit einer hohen Zeitaufösung [Lu03, Gustavsson06, Wagner19]. In dieser Arbeit wurden jedoch optische Messungen durchgeführt, bei denen die einzelnen Photonen eines optisch angeregten Überganges detektiert und gespeichert werden [Kurzman19]. Diese Zeitreihe der einzelnen Photonen erlaubt es die Zeitaufösung bzw. die Bandbreite, mit der die Fluktuationen ausgewertet werden, erst im Rahmen einer Postprozessierung nach dem Experiment zu wählen. Es wurde untersucht wie hoch sich diese Zeitaufösung wählen lässt, ohne das sich in der Auswertung des Quantentransports Artefakte ergeben. In Kapitel 6 werden Messungen präsentiert, die mit Leitfähigkeitsspektroskopie [Marquardt09] an Quantenpunkt-Ensembles durchgeführt wurden. In diesen Messungen wurde untersucht, mit welcher Tunnelrate die Elektronen aus einem benachbarten Reservoir in die Quantenpunkte tunneln. Die Messungen wurden mit einem Magnetfeld senkrecht zur Tunnelrichtung durchgeführt, dies verändert die Tunnelrate und ermöglicht es die Wellenfunktionen zu vermessen, die am Tunnelprozess beteiligt sind [Eisenstein91, Patanè02, Beckel12]. In dieser Arbeit wurde die Methodik zur Vermessung der Wellenfunktionen mit Nichtgleichgewichtsmessungen, bei denen die Elektronen sowohl in den Grundzustand als auch in angeregte Zustände tunneln [Marquardt11b, Beckel14b], kombiniert. Dadurch konnte zum ersten mal die Wellenfunktion eines angeregten Zustandes ohne weitere Ladungsträger im Quantenpunkt studiert werden. In Kapitel 7 werden die Ergebnisse der Arbeit noch einmal zusammengefasst und ein Ausblick für die unterschiedlichen Themen gegeben.

2. Quantenpunkte

In dieser Arbeit werden Ladungsträger und deren Dynamik in selbstorganisierten Quantenpunkten untersucht. Bei diesen Quantenpunkten (QPen) handelt es sich um Halbleiterheterostrukturen. In unserem Fall wird dabei InAs (Halbleiter mit kleinerer Bandlücke) umschlossen von GaAs (Halbleiter mit größerer Bandlücke). Diese Struktur sorgt zusammen mit den Banddiskontinuitäten [Kowalczyk82] dafür, dass die Quantenpunkte ein attraktives Potential für Elektronen und Löcher darstellen. Der InAs-Einschluss hat eine pyramiden- oder linsenartige Form [Stangl04]. In Abbildung 2.1 ist eine Rastertunnelmikroskopaufnahme eines Quantenpunktes dargestellt, der in unseren Proben aber noch abschließend mit GaAs bedeckt wird und dabei seine Form leicht verändert [Eisele08]. Die Grundfläche hat einen Durchmesser von etwa 20 nm bis 30 nm. Die Quantenpunkte sind zwischen 5 nm und 8 nm hoch. Dieser recht starke Einschluss führt zu diskreten gebundenen Zuständen. Man spricht auch von nulldimensionalen Elektronengasen oder auch von *künstlichen Atomen*.

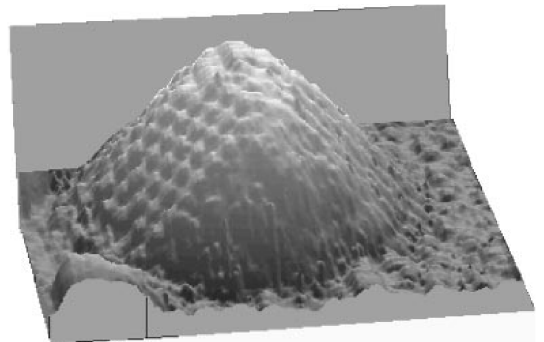


Abbildung 2.1.: Aufnahme eines unbedeckten InAs-Quantenpunktes auf einem GaAs-Substrat mit einem Rastertunnelmikroskop. Nachdruck aus [Márquez01], mit Genehmigung von AIP Publishing.

In diesem Kapitel werden die weiteren Grundlagen dargestellt, die für das Verständnis dieser Arbeit notwendig sind. Diese umfassen zunächst das selbstorganisierte Wachstum der Strukturen. Nachfolgend werden die Energiestruktur und verschiedene Vielteilchenzustände erläutert. Abschließend wird der Einfluss elektromagnetischer Felder auf die Zustände diskutiert, sowie der Auger-Effekt in selbstorganisierten Quantenpunkten. Der Aufbau dieses Kapitels und einige Formulierungen sind an die Masterarbeit [Kerski18] angelehnt.

2.1. Wachstum

Selbstorganisierte Quantenpunkte können sowohl durch *metallorganische chemische Gasphasenabscheidung* (MOCVD) [Petroff94] als auch *Molekularstrahlepitaxie* (MBE) [Leonard93] hergestellt werden. Da die in dieser Arbeit untersuchten Quantenpunkte mit MBE hergestellt wurden, beschreiben wir im Folgenden die Grundlagen dieser Herstellungsvariante. Bei der MBE werden Materialien in einer Ultrahochvakuumkammer verdampft und aus der Gasphase heraus auf einem einkristallinen Substrat abgeschieden. Dieses Verfahren ermöglicht es sehr reine und defektfreie Schichten herzustellen. Es wird darum besonders zur Herstellung von Halbleiterbauelementen eingesetzt. Die Struktur der abgeschiedenen Schichten kann bei der MBE sogar *in situ* mithilfe von Beugung reflektierter hochenergetischer Elektronen beobachtet werden. Dadurch können Schichtdicken monolagen-genau abgeschieden werden, was die Methode ideal für die Herstellung von Halbleiterheterostrukturen macht.

Das Wachstum der selbstorganisierten Quantenpunkte beginnt mit einem reinen und glatten GaAs-Substrat (vgl. Abb. 2.2(a)). Auf diesem wird InAs abgeschieden. Dies geschieht zunächst in Form einer sogenannten Benetzungsschicht, einer Monolage InAs, die das gesamte Substrat bedeckt (vgl. Abb. 2.2(b)). Die InAs-Schicht nimmt dabei die Struktur des GaAs-Substrats an. Da die Gitterkonstante

von InAs ($6,058 \text{ \AA}$) etwa 7% größer ist als die von GaAs ($5,653 \text{ \AA}$), ist die Benetzungsschicht in sich verspannt. Nach der Benetzungsschicht scheiden sich keine weiteren geschlossenen Monolagen ab, sondern es kommt zu Inselwachstum. Es werden also lateral begrenzte Schichten abgeschieden, die in der Wachstumsrichtung immer kleiner werden (vgl. Abb. 2.2(c)). Dabei passt sich die Gitterkonstante jeder folgenden Insellage weiter der des reinen InAs an. Die Verspannung in der Wachstumsrichtung nimmt deshalb stetig ab (vgl. Abb. 2.2(e)). Diese Art des Wachstums, die sich durch den Übergang vom Schichtwachstum zum Inselwachstum auszeichnet, wird auch *Stranski-Krastanov-Mechanismus* genannt [Stranski37] und stellt eben einen selbstorganisierten Wachstumsprozess dar. Abschließend werden die Quantenpunkte mit einer Schicht GaAs bedeckt (vgl. Abb. 2.2(d)).

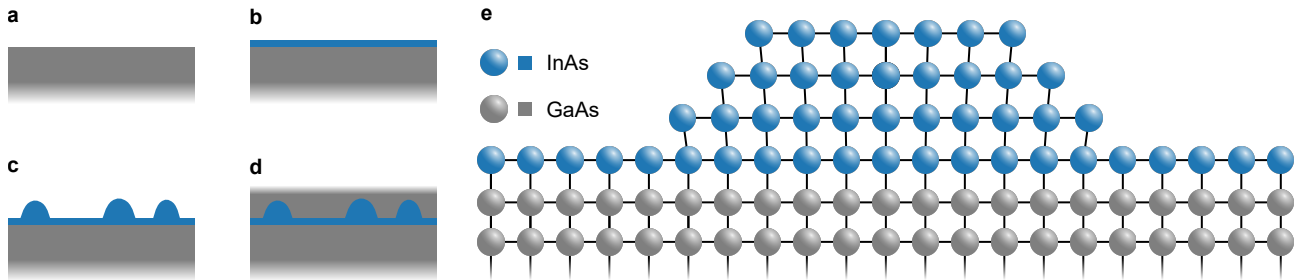


Abbildung 2.2.: Schematische Darstellung des selbstorganisierten Quantenpunktwachstums. **a,** Die Quantenpunkte wachsen auf einem möglichst reinen und ebenen GaAs-Substrat. **b,** Beim Abscheiden von InAs bildet sich zunächst eine Monolage (Benetzungsschicht), die das gesamte Substrat bedeckt. **c,** Beim weiteren Abscheiden bilden sich Inseln aus. **d,** Die InAs-Inseln werden abschließend mit GaAs bedeckt. **e,** Der Übergang von Schicht zu Insel-Wachstum (Stranski-Krastanov) wird durch Gitterverspannungen verursacht. Die Benetzungsschicht passt ihre Gitterkonstante zunächst dem Substrat an. Die Inselschichten passen ihre Konstante zunehmend weniger an und bauen so die Verspannung ab.

Diese Vorgehensweise ist für alle Quantenpunkte, die in dieser Arbeit untersucht wurden grundsätzlich gleich. Für die QPe, die optisch untersucht wurden (vgl. Kap. 3.1.2), gibt es allerdings zwei Besonderheiten. Erstens, gibt es eine sogenannte kritische Schichtdicke InAs, ab der es zum Wachstum von QPen kommt ($1,5$ Monolagen [Leonard94]). Für die optisch untersuchten QPe wurde nur geringfügig mehr InAs abgeschieden. Dies sorgt dafür, dass sie mit einer Dichte von etwa $1 \mu\text{m}^{-2}$ verteilt sind. Dies ermöglicht es die Quantenpunkte mit einem ähnlich großen Laserfokus einzeln zu untersuchen. Außerdem wurde ein sogenannter *Indium flush* durchgeführt. Dabei bedeckt man das abgeschiedene InAs zunächst nur teilweise mit GaAs und erhöht die Temperatur. Dies sorgt dafür, dass die Spitze der InAs-Inseln wieder abdampft. Außerdem kommt es zu einem Austausch von In und Ga am Rand der Inseln. Dies sorgt dafür, dass die Emission der Quantenpunkte, die üblicherweise bei etwa 1100 nm liegt stattdessen bei etwa 950 nm liegt. Dieser Nah-Infrarot Wellenlängenbereich ist technisch leichter zugänglich, da es sowohl mehr effiziente Laser als auch Detektoren in diesem Bereich gibt.

In der Literatur gibt es allerdings auch Bemühungen die natürliche Emissionswellenlänge zu erhöhen, sodass sie in den Absorptionsminima von Glasfasern liegen (*O-Band*: $\approx 1,3 \mu\text{m}$ und *C-Band*: $\approx 1,5 \mu\text{m}$). Diese Ansätze nutzen zusätzliche Lagen, die lokale Verspannungen verringern oder aber als metamorphe Pufferlagen wirken [Karachinsky05, Portalupi19]. Diese Ansätze wurden in dieser Arbeit allerdings nicht benutzt.

2.2. Energiestruktur

Eine charakteristische Eigenschaft von Quantenpunkten ist, dass sie ein diskretes Energiespektrum zeigen. Dies ist bemerkenswert, da es sich ihnen um Festkörperstrukturen handelt, die im Allgemeinen für ihre kontinuierlichen Energiebänder bekannt sind. Die in dieser Arbeit untersuchten selbstorgani-

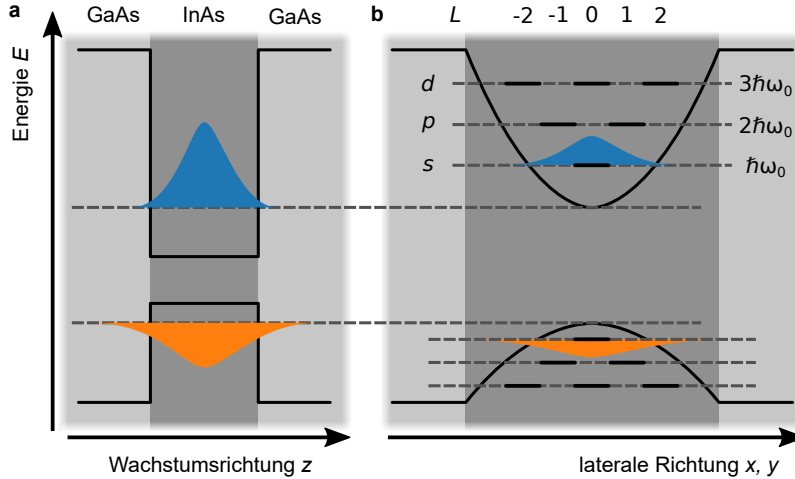


Abbildung 2.3.: Energiestruktur in einem Quantenpunkt. **a**, In der Wachstumsrichtung z ist die Ausdehnung L des QPes besonders gering. Man betrachtet ein Kastenpotential, dass so stark ist, dass nur ein einzelner gebundener Zustand existiert. **b**, Für die laterale Richtung x, y betrachtet man die Abhängigkeit der Energie des gebundenen Zustandes in der z -Richtung von der Ausdehnung L . Diese hängt von der betrachteten Position x, y ab. Es ergibt sich effektiv das Potential eines zweidimensionalen harmonischen Oszillators [Riel08].

sierten QPe zeigen sogar eine schalenartige Energiestruktur mit unterschiedlichen Drehimpulsen, wie sie vom Atom bekannt ist. Im folgenden Kapitel wird skizziert, wie sich diese Struktur herleiten lässt. Dies geschieht in Anlehnung an [Roescu08, Kapitel 2.2.1].

Wir betrachten zunächst ein einzelnes Elektron mit der Masse m_e und der Ladung e . Wir vernachlässigen zeitabhängige Potentiale und benutzen für die Wellenfunktion den Ansatz $\psi(t, \vec{r}) = \exp(-i\omega t)\psi(\vec{r})$. Damit erhalten wir aus der allgemeinen Schrödingergleichung die stationäre Schrödingergleichung

$$\left[\frac{\hbar^2}{2m_e} \Delta_{\vec{r}} + (E - V(\vec{r})) \right] \psi(\vec{r}) = 0, \quad (2.1)$$

dabei beschreibt $V(\vec{r})$ das attraktive Potential des Quantenpunktes. Dieses hängt von der exakten Form und Zusammensetzung des QPes ab und ist im Detail unbekannt. Es hat sich allerdings eine effektive Beschreibung etabliert. Dabei betrachtet man als Gemeinsamkeit aller üblichen Beschreibungen der QP-Form (Linse, Pyramide, Scheibe, etc. [Stangl04, Zieliński13]), dass die Ausdehnung in der Wachstumsrichtung (z -Richtung) deutlich geringer ist, als in den lateralen Richtungen (x, y). Dies bedeutet, dass der Einschluss in der z -Richtung sehr stark ist und dessen Beitrag zur Energie dominierend sein dürfte. Deshalb betrachtet man für das Potential explizit die Abhängigkeit von z und benutzt x und y als Parameter:

$$V(\vec{r}) = V_{x,y}(z).$$

Für $V(z)$ nehmen wir ein Kastenpotential an (vgl. Abbildung 2.3(a)), mit den Eigenenergien $E_n = \hbar^2 n^2 / 8m^* L^2$. Für die effektive Masse $m^* = 0,024 \cdot m_e$ in InAs und eine typische Höhe für einen Quantenpunkt $L = 5$ nm [FernandesdaSilva] zeigt sich für die ersten beiden Eigenenergien $E_1 \approx 0,65$ eV und $E_2 \approx 2,62$ eV. Wenn wir annehmen, dass die Tiefe des attraktiven Potentials für die Elektronen in etwa der Leitungsbanddiskontinuität von GaAs und InAs entspricht ($\Delta E_L = 0,9$ eV [Kowalczyk82]) zeigt sich, dass der Einschluss in z -Richtung so stark ist, dass es nur einen einzelnen gebundenen Zustand in dieser Richtung gibt. In der lateralen Richtung ist der Einschluss wesentlich geringer, darum berücksichtigen wir die Abhängigkeit von x und y , als Änderung des Dicke des Kastenpotentials $L(x, y)$, dass wir für die z -Richtung berücksichtigt haben. Das effektive Potential, dass auf diese Weise konstruiert wird, lässt sich gut durch einen zweidimensionalen harmonischen Oszillator (vgl. Abb. 2.3(b)) beschreiben

$$V(x, y) = \frac{1}{2} m^* \omega_0^2 (x^2 + y^2), \quad (2.2)$$

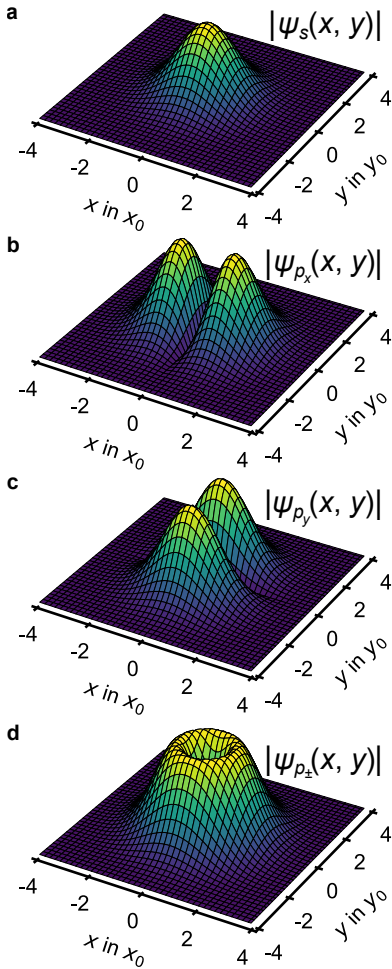


Abbildung 2.4.: Wellenfunktionsamplituden für verschiedene Lösungen des zwei-dimensionalen harmonischen Oszillators. **a** Die Lösung des Grundzustandes (s) ist nicht entartet und gegeben durch eine Gauß-Verteilung. **b, c** Der erste angeregte Zustand wird als p -Zustand bezeichnet und ist zweifach entartet. Die kartesischen Lösungen besitzen einen Knoten entlang x oder y . **d** Es gibt auch radialsymmetrische Lösungen für den p -Zustand, die für ein isotropes Potential gleichwertig sind.

mit der Kreisfrequenz ω_0 und der effektiven Masse m^* . Eine ausführlichere Herleitung für die Form des effektiven Potentials findet sich in [Riel08]. Die quantenmechanischen Lösungen für einen zweidimensionalen harmonischen Oszillator werden Fock und Darwin zugesprochen [Fock28, Darwin31] und sind deshalb nach ihnen benannt. Löst man den Oszillator in den beiden Dimensionen einzeln, findet man für die Eigenenergien:

$$E_{n_x, n_y} = \hbar\omega_0(n_x + n_y + 1), \quad \text{mit } n_x, n_y \in \mathbb{N}_0. \quad (2.3)$$

Eine alternative Darstellung benutzt die Quantenzahlen $N = n_x + n_y$ und $L = n_x - n_y$, wobei L ein Maß für den Drehimpuls ist und besonders für Messungen im Magnetfeld von Bedeutung ist. Das energetisch niedrigste Niveau hat die Quantenzahlen ($N = 0, L = 0$) und wird in Analogie zur Atomphysik auch als s -Niveau bezeichnet. Das zweite Energieniveau ist zweifach entartet ($N = 1, L = \pm 1$) und wird als p -Niveau bezeichnet. Das dritte Energieniveau ist dreifach entartet ($N = 2, L \in \{-2, 0, 2\}$) und wird als d -Niveau bezeichnet. In dieser Betrachtung haben wir den Spin der Elektronen vernachlässigt. In Abwesenheit eines Magnetfeldes würde dieser eine zusätzliche zweifache Entartung der Niveaus bedeuten. Die allgemeine Lösung für die Fock-Darwin-Zustände in kartesischen Koordinaten ergibt sich zu:

$$\psi_{n_x, n_y}(x, y) = \exp\left(-\frac{x^2}{2x_0^2} - \frac{y^2}{2y_0^2}\right) H_{n_x}\left(\frac{x}{x_0}\right) H_{n_y}\left(\frac{y}{y_0}\right), \quad (2.4)$$

mit den Hermiteischen Polynomen $H_n(x)$. Da wir von einem symmetrischen effektiven Potential ausgehen (vgl. Gl. (2.2)), gilt für die Längeneinheiten: $x_0 = y_0 = l_0 = \sqrt{\hbar/(m_e\omega_0)}$. Die Wellenfunktion des s -Zustandes (vgl. Abb. 2.4(a)) ist demnach eine einfache Gauß-Glockenfunktion

$$\psi_s = \psi_{0,0} = \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{2l_0^2}\right) \quad (2.5)$$

und für den p -Zustand (vgl. Abb. 2.4(b) und (c)) finden wir die beiden Lösungen:

$$\psi_{p_x} = \psi_{1,0} = 2\frac{x}{l_0} \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{2l_0^2}\right), \quad (2.6)$$

$$\psi_{p_y} = \psi_{0,1} = 2\frac{y}{l_0} \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{2l_0^2}\right). \quad (2.7)$$

Für diese Lösungen des p -Zustandes gibt es jedoch auch Darstellungen mit radialer Symmetrie (vgl. Abb. 2.4(d)), die sich als Linearkombination der kartesischen Darstellung ergeben:

$$\psi_{p_{\pm}} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\psi_{p_x} \pm i\psi_{p_y}) = \frac{\sqrt{2}}{l_0}(x \pm iy) \exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{2l_0^2}\right) = \frac{\sqrt{2}}{l_0} \exp(\pm i\varphi) \cdot r \exp\left(-\frac{r^2}{2l_0^2}\right). \quad (2.8)$$

Diese Lösungen sind gleichwertig für ein laterales isotropes Bindungspotential, wie wir es in Gleichung (2.2) angenommen haben. Jedoch besteht auch ein radialsymmetrischer realer Quantenpunkt aus einzelnen Atomen, sodass sein Potential nicht zuletzt die Anisotropie des Kristallgitters beinhaltet. So zeigen Messungen an Mehrelektronenzuständen beispielsweise eine Brechung der radialen Symmetrie [Zhou22]. In Kapitel 6 wird dieser Aspekt und der Einfluss weiterer Ladungsträger auf die Form der Wellenfunktionsamplitude mit weiteren Messungen und Modellberechnungen ausführlicher diskutiert.

Die bisherigen Überlegungen wurden für ein einzelnes Elektron im Quantenpunkt formuliert, mit einigen Besonderheiten gelten sie allerdings auch für Löcher. Dazu muss berücksichtigt werden, dass die Banddiskontinuität von InAs und GaAs für das Valenzband deutlich geringer ist als für das Leitungsband ($\Delta E_L = 0,9 \text{ eV}$ und $\Delta E_V = 0,17 \text{ eV}$ [Kowalczyk82]). Dies sorgt dafür, dass die Löcher deutlich schwächer im Quantenpunkt gebunden sind (vgl. Abb. 2.3). Außerdem gibt es im Valenzbandmaximum am Γ -Punkt gleich mehrere Zustände: die leichten Löcher, die schweren Löcher und die *split-off* Löcher. Diese gehören zu den atomaren p -Orbitalen und haben verschiedene Gesamtdrehimpulsconfigurationen \vec{j} [Schubert06, Kap. 15, S. 14]. Die Zustände mit $|\vec{j}| = 1/2$ sind die *split-off* Löcher. Sie liegen aufgrund der Spin-Bahn-Wechselwirkung weiter von der Bandkante entfernt als die anderen Zustände und tragen nicht zu den gebundenen Lochzuständen im Quantenpunkt bei. Die übrigen Loch-Zustände haben eine Gesamtdrehimpulsconfiguration von $|\vec{j}| = 3/2$. Die Entartung dieser Zustände wird durch Gitterverspannungen im Quantenpunkt aufgehoben, sodass schließlich vor allem die schweren Löcher mit $|\vec{j}| = 3/2$ und $\vec{j}_z = \pm 3/2$ zu den Zuständen beitragen und die leichten Löcher mit $|\vec{j}| = 3/2$ und $\vec{j}_z = \pm 1/2$ üblicherweise vernachlässigt werden [Bayer02]. Mit Pseudopotential-Berechnungen für verschiedene Quantenpunktformen [Bester03] konnte jedoch gezeigt werden, dass die gebundenen Loch-Zustände eine Mischung aller Lochzustände sind. Die schweren Löcher tragen jedoch einen überwiegenden Anteil bei ($\approx 90\%$). Diese Mischung führt unter anderem dazu, dass in den Quantenpunkten optische Übergänge möglich sind, die die Auswahlregeln ansonsten nicht erfüllen würden (vgl. Kap. 4).

2.3. Vielteilchenzustände

Bisher haben wir ausschließlich die Fock-Darwin-Zustände und damit die Einteilchen-Zustände im Quantenpunkt betrachtet. Diese sind zwar von fundamentaler Bedeutung für das System, im weiteren Interesse von sowohl Forschung als auch Anwendung stehen allerdings die Vielteilchenzustände im Quantenpunkt.

Ein Modell, das sich zur quantitativen Beschreibung bewährt hat, wurde von *Warburton et al.* [Warburton98] etabliert. Dabei wird davon ausgegangen, dass ähnlich wie auch bei Atomen, die Quantisierungsenergie $\hbar\omega_0$ in selbstorganisierten Quantenpunkten größer ist als die Coulomb-Wechselwirkung zwischen einzelnen Ladungsträgern. Dadurch kommt es bei den Vielteilchenzuständen nur zu einem sehr geringen Mischen von Einteilchenzuständen [Wojs96] und die Wechselwirkung kann als Störung zwischen den Ladungsträgern angesehen werden. Die Gesamtenergie E eines Vielteilchenzustandes aus N Teilchen ergibt sich deshalb als Summe aller Einteilchenenergien E_i sowie aller Wechselwirkungsbeiträge:

$$E = \sum_i^N E_i + \frac{1}{2} \sum_{i,j \neq i}^N (E_{ij}^c - E_{ij}^x). \quad (2.9)$$

Da die Elektronen und Löcher geladene Teilchen sind, betrachtet man die Coulomb-Wechselwirkung. Diese hat für ununterscheidbare Teilchen sowohl einen direkten Term E_{ij}^c , als auch einen indirekten Austausch-Term E_{ij}^x . Diese lassen sich mit den Einteilchenwellenfunktionen (vgl. Gl. (2.4)) analytisch berechnen mit

$$E_{ij}^c = \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \int \int \frac{|\psi_i(\vec{r}_1)|^2 |\psi_j(\vec{r}_2)|^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \quad (2.10)$$

und

$$E_{ij}^x = \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \int \int \frac{\psi_i^*(\vec{r}_1)\psi_j^*(\vec{r}_2)\psi_i(\vec{r}_2)\psi_j(\vec{r}_1)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2 \quad (2.11)$$

siehe [Warburton98]. Bei der Betrachtung von Löchern muss darauf geachtet werden, dass diese im Vergleich zu Elektronen schwacher gebunden sind ($\omega_0 \rightarrow \omega_e, \omega_h$) und eine andere effektive Masse besitzen ($m_e \rightarrow m_e^*, m_h^*$).

Bei Quantenpunkt-Ensembles betrachtet man eine Vielzahl von Quantenpunkten, die sich jeweils in ihrer Größe leicht unterscheiden. Dies spiegelt sich direkt in einer Energieänderung des harmonischen Oszillators $\hbar\Delta\omega_0$ wieder. Da die Größenverteilung jedoch recht schmal ist, lassen sich in Messungen an Ensembles typischerweise gaußverbreiterte Niveaus beobachten, an denen allerdings sowohl die Quantisierung des harmonischen Oszillators ($\hbar\omega_0$; einige 10 meV) als auch typische direkte und Austausch-Terme der Coulomb-Wechselwirkung (wenige 10 meV) studiert werden können [Fricke96, Russ04, Marquardt11b, Beckel14a]. Diese Ensemble-Verbreiterung lässt sich auch bei optisch aktiven Vielteilchenzuständen in Quantenpunkt-Ensembles beobachten [Leon95, Raymond99, Raymond04]. Allerdings ist es mit einem entsprechenden Mikroskop (vgl. Kap. 3.2.1) auch möglich optische Messungen an einzelnen Quantenpunkten durchzuführen. In diesen Messungen ist die Ensemble-Verbreiterung nicht vorhanden und eine weitaus feinere Energiestruktur lässt sich erkennen. Dies ist zum Beispiel der Fall für das einfache (neutrale) Exziton im Grundzustand (ein Elektron und ein Loch gebunden im jeweiligen s-Zustand). Die Energie des optischen Übergangs zwischen dem unbesetzten Quantenpunkt und dem mit einem Exziton besetzten Quantenpunkt (vgl. Abb. 2.5(a)) ist gegeben über die Einteilchenenergien des Elektrons E_e und des Lochs E_h , sowie ihrer Coulomb-Wechselwirkung E_{eh}^c :

$$E = E_e + E_h + E_{eh}^c. \quad (2.12)$$

In hochaufgelösten Messungen zeigt sich allerdings eine Feinstruktur des Exzitons von einigen 100 μeV [Seguin05]. Diese entsteht aufgrund der Gesamtdrehimpulsprojektionen \vec{J} des Exzitons. Das Elektron besitzt einen Spin $|\vec{s}|$ von 1/2 mit den möglichen Projektionen auf die z -Achse \vec{s}_z von $\pm 1/2$. Bei dem Loch handelt es sich um ein schweres Loch (vgl. Kap. 2.2) mit einem Gesamtdrehimpuls $|\vec{j}| = 3/2$ und den möglichen Projektionen $\vec{j}_z = \pm 3/2$. Damit ergeben sich vier zunächst entartete Zustände für das Exziton, die wir anhand ihrer Gesamtdrehimpulsprojektionen \vec{J}_z charakterisieren: $|-2\rangle$, $|-1\rangle$, $|+1\rangle$ und $|+2\rangle$ [Bayer00]. Die Zustände mit $\vec{J}_z = \pm 2$ sind optisch nicht aktiv, da der Quantenpunkt nach der Exziton-Rekombination unbesetzt ist und keinen Gesamtdrehimpuls besitzt. Diese Zustände werden darum auch als *dunkle* Exzitonen bezeichnet. Die Zustände mit $\vec{J}_z = \pm 1$ hingegen sind optisch aktiv und werden als *helle* Exzitonen bezeichnet. Die Entartung dieser beiden Klassen von Exzitonen wird aufgehoben durch die Austauschwechselwirkung zwischen dem Elektron und dem Loch [Bayer02]. Die Entartung der hellen Exzitonen würde erhalten bleiben, wenn der Quantenpunkt ideal rund wäre (vgl. Abb. 2.5(c)). Reale Quantenpunkte lassen sich allerdings häufig eher als elliptisch beschreiben. Mögliche Ursachen dafür sind piezoelektrische Felder an den Facetten des Quantenpunktes [Grundmann95, Schliwa07, Eisele08] oder eine Elongation der Quantenpunkte, zu der es beim Wachstumsprozess kommen kann [Penev01]. Dadurch treten bei der Austauschwechselwirkung weitere Beiträge auf und auch die Entartung der hellen Exzitonen wird aufgehoben. In einem solchen Fall stellen die Zustände $|\pm 1\rangle$ keine Eigenzustände mehr dar, sondern deren Superpositionen $|-1\rangle + |+1\rangle$ und $|-1\rangle - |+1\rangle$ (vgl. Abb. 2.5(d)). Da bei der Rekombination der Zustände $|\pm 1\rangle$ zirkularpolarisierte Photonen emittiert werden, ergeben sich bei der Rekombination der Superpositionen linearpolarisierte Photonen [Högele04, Kurzmann17].

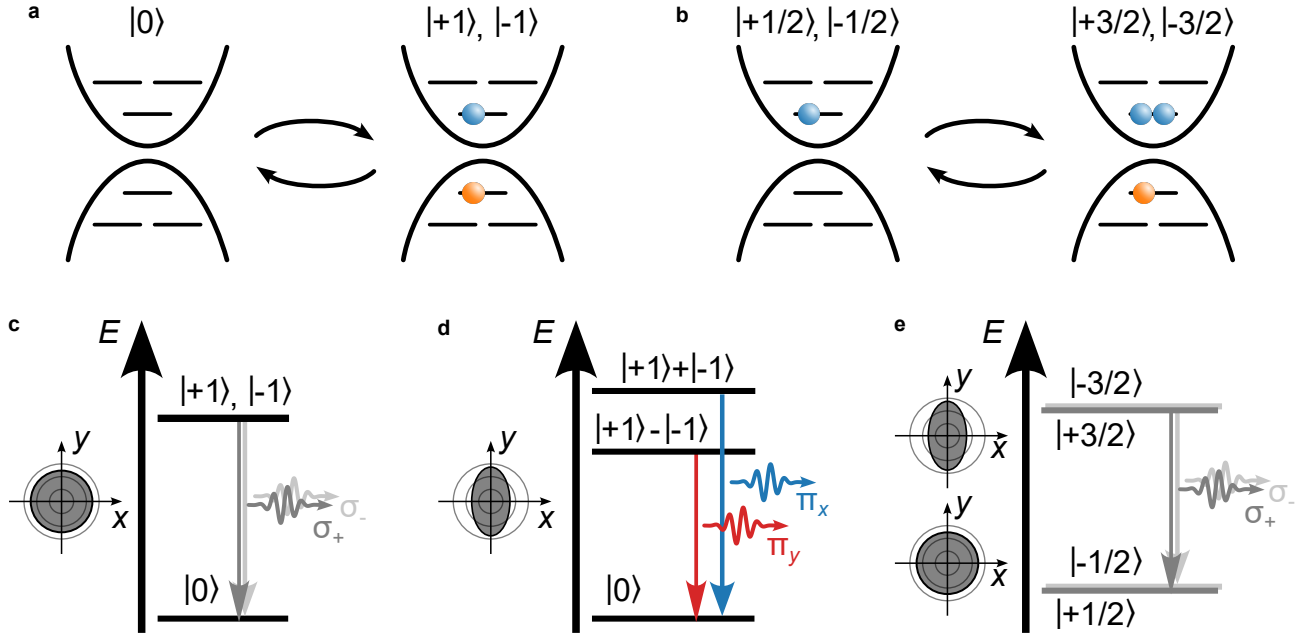


Abbildung 2.5.: Optische Übergänge zwischen Vielteilchenzuständen. **a** Übergang zwischen dem unbesetzten Quantenpunkt $|0\rangle$ und dem von einem Exziton besetzten Quantenpunkt. Optisch aktiv sind nur die *hellen* Exzitonen mit antiparallelem Elektronen-Spin und Loch-Gesamtdrehimpuls $|\pm 1\rangle$. **c** Für einen runden Quantenpunkt sind die beiden Übergänge $|\pm 1\rangle \rightarrow |0\rangle$ entartet und emittieren rechtsdrehend bzw. linksdrehend zirkular polarisierte Photonen (σ_+ bzw. σ_-). **d** Für elliptische Quantenpunkte stellen die Superpositionen $|\pm 1\rangle \pm |-\pm 1\rangle$ Eigenzustände dar und die Entartung der optischen Übergänge wird durch die Austauschwechselwirkung zwischen dem Elektron und dem Loch aufgehoben. Die Übergänge emittieren jeweils linear polarisiertes Licht (π_x bzw. π_y). **b** Übergänge zwischen dem mit einem Elektron besetzten Quantenpunkt $|\pm 1/2\rangle$ und dem von einem Trion besetzten Quantenpunkt $|\pm 3/2\rangle$. **e** Die optisch erlaubten Trion-Übergänge sind $|\pm 3/2\rangle \rightarrow |\pm 1/2\rangle$. Weder im Anfangszustand noch im Endzustand herrscht eine Austauschwechselwirkung, sodass die Übergänge auch für elliptische Quantenpunkte entartet sind.

Ein weiterer Vielteilchenzustand, der in dieser Arbeit Erwähnung findet, ist das negativ geladene Exziton. Dieses wird auch als Trion bezeichnet. Dieses besteht aus zwei Elektronen im s -Zustand mit entgegen-gesetzten Spins und einem Loch im s -Zustand (vgl. Abb. 2.5(b)). Der Gesamtdrehimpuls dieses Teilchenkomplexes ist aufgrund der gepaarten Elektronen ausschließlich durch das Loch gegeben ($|\pm 3/2\rangle$). Es gibt keinen Energiebeitrag durch die Austauschwechselwirkung. Damit die optischen Übergänge der Trion-Zustände eine Feinstruktur aufweisen, müssten die Endzustände unterschiedliche Energien aufweisen. Der optisch erlaubte Übergang eines Trions ist allerdings die Rekombination des Lochs mit einem Elektron entgegengesetzten Spins, sodass der Endzustand ein einzelnes Elektron im s -Zustand $|\pm 1/2\rangle$ ist. Aufgrund dessen besitzt das Trion im Gegensatz zum Exziton keine Feinstruktur (vgl. Abb. 2.5(e)) [Bayer02].

2.4. Stark-Effekt

Um die Quantenpunkte zu untersuchen werden sie in eine Dioden-Struktur eingebracht. Diese ermöglicht die Einteilchen- bzw. Vielteilchenzustände einem elektrischen Feld \vec{F} auszusetzen. Dies bildet sich aus, wenn entlang der Diode der Dicke d_{Diode} eine elektrische Spannung V abfällt. Häufig besitzen die Diodenstrukturen eine sogenannte eingebaute Spannung (Potentialdifferenz) V_g . Deshalb ergibt sich die Spannung V , die an der Diode abfällt, als Summe der eingebauten Spannung und einer von außen an die Diode angelegten Spannung V_g . Die Details der Struktur werden in Kapitel 3.1 erklärt. An

dieser Stelle nehmen wir einfach an, dass das elektrische Feld innerhalb der Diode konstant ist: $F = |\vec{F}| = V/d_{\text{Diode}}$. Dieses Feld beeinflusst die Zustände der Quantenpunkte auf zwei verschiedene Arten, einerseits durch einen elektrostatischen Energiebeitrag [Warburton98] und andererseits durch den sogenannten *Stark-Effekt* [Fry00]. Der elektrostatische Beitrag eines Zustandes mit Ladung Q im elektrischen Feld der Diode ist gegeben als Kurvenintegral $\Delta E = Q \int \vec{F} \cdot d\vec{r}$ und bedarf eines Bezugspunktes.

Dazu wird üblicherweise ein benachbartes Reservoir gewählt. Die Ladung Q ergibt sich aus der Anzahl an Elektronen N und Löchern M . Mit der Annahme des konstanten Feldes ergibt sich

$$\Delta E = Q \int_{\vec{r}_{\text{Reservoir}}}^{\vec{r}_{\text{QPe}}} \vec{F} \cdot d\vec{r} = e(N - M)V \frac{d_{\text{Reservoir-QPe}}}{d_{\text{Diode}}} = e(N - M)V/\lambda, \quad (2.13)$$

mit der Elementarladung e und dem Hebelarm $\lambda = d_{\text{Diode}}/d_{\text{Reservoir-QPe}}$. Für einen optischen Übergang bei dem sich durch die Rekombination von einem Elektron und einem Loch die Anzahl beider Ladungsträgersorten um 1 verändert, ändert sich der elektrostatische Beitrag nicht.

Allerdings gibt es auch noch den Stark-Effekt. Wir betrachten dazu ein einzelnes Elektron-Loch-Paar in einem einfachen Potentialtopf (vgl. Abb. 2.6), wie er für Quantenpunkte in der Wachstumsrichtung z angenommen wird. Ohne elektrisches Feld ergeben sich für die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten und damit die Ladungsverteilungen der Grundzustände symmetrische Lösungen. Die Schwerpunkte befinden sich also im Zentrum des Kastenpotentials. In der Gegenwart eines elektrischen Feldes verkippen die Potentiale jedoch in unterschiedliche Richtungen für die Ladungsträger mit Ladung q : $E_{\text{el}} = qFz$. In dieser veränderten Potentiallandschaft sind die Schwerpunkte der Ladungsverteilungen jedoch verschoben und von einander entfernt. Dieses induzierte elektrische Dipolmoment \vec{p} hängt von der Stärke des Feldes und der Polarisierbarkeit β des Zustandes ab. Ein Dipol, dessen Moment parallel zu einem elektrischen Feld ausgerichtet ist, besitzt wiederum die potentielle Energie $E = -pF = -\beta F^2$, mit $p = |\vec{p}|$. Allerdings ist die Form realer Quantenpunkte eher Linsen- oder Pyramidenförmig. Dies sorgt bereits ohne angelegtes Feld für eine Ladungstrennung und damit zu einem statischen Dipolmoment p_0 [Grundmann95]. Messungen dieses statischen Dipolmoments konnten zeigen, dass in Abwesenheit eines elektrischen Feldes die Löcher in selbstorganisierten InAs/GaAs Quantenpunkten eher in der Spitze oberhalb der Elektronen lokalisiert sind [Fry00]. Unter Berücksichtigung der beiden Beiträge ergibt sich eine Energieabhängigkeit für einen optischen Übergang von

$$E(F) = E_0 - p_0 F - \beta F^2, \quad (2.14)$$

wobei E_0 die Energie ohne elektrisches Feld ist.

2.5. Einfluss von magnetischen Feldern

Betrachtet man Quantenpunkte in einem Magnetfeld lassen sich viele der bisher diskutierten Entartungen aufheben. Dabei gibt es grundsätzlich zwei Effekte, die die Energie der Vielteilchenzustände beeinflusst,

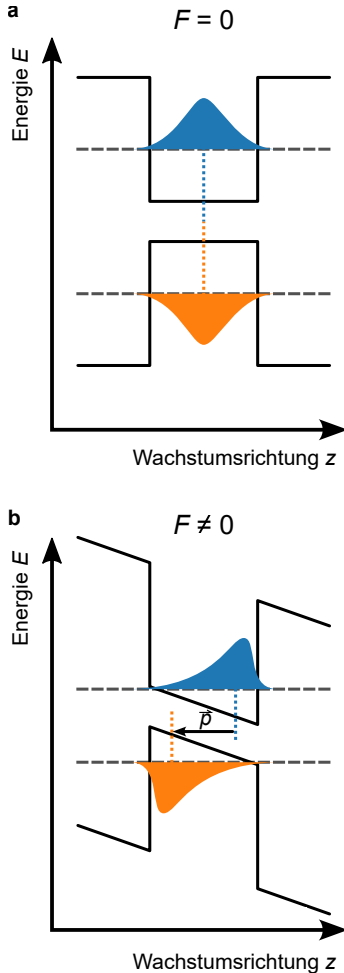


Abbildung 2.6.: Stark-Effekt in selbstorganisierten Quantenpunkten. **a** Ohne angelegtes elektrisches Feld der Stärke F ist der Potentialverlauf symmetrisch. Elektronen und Löcher haben die höchste Aufenthaltswahrscheinlichkeit im Zentrum. **b** Das elektrische Feld verkippt die Bandkanten. Es kommt zu einer Ladungstrennung und damit einem induzierten Dipolmoment \vec{p} . Dieses wechselwirkt mit dem elektrischen Feld und verringert die Energie des Vielteilchenzustandes.

die diamagnetische Verschiebung und die Zeeman-Aufspaltung. Bei der diamagnetischen Verschiebung handelt es sich um eine Erhöhung der Energie in einem magnetischen Feld. Der Effekt wurde zunächst in der Atomphysik beobachtet [Jenkins39] und wird auch als *quadratischer Zeeman-Effekt* bezeichnet. Klassisch lässt sich der Effekt so auffassen, dass das externe Magnetfeld ein magnetisches Moment in den Elektronenzuständen induziert und schließlich selber mit dem induzierten Moment wechselwirkt. In dieser Betrachtung erinnert die diamagnetische Verschiebung durchaus an den Stark-Effekt (vgl. Kap. 2.4), allerdings erhöht das Magnetfeld die Energie des Zustandes. In der quantenmechanischen Beschreibung von Fock (siehe Gl. (2.3)) lässt sich die diamagnetische Verschiebung über eine veränderte Kreisfrequenz beschreiben [Fock28]:

$$\omega_0 \rightarrow \omega'_0 = \sqrt{\omega_0^2 + \frac{\omega_c^2}{4}}, \quad (2.15)$$

mit der Zyklotronfrequenz $\omega_c = eB/m^*$.

Zur Aufhebung der Entartung trägt die Zeeman-Aufspaltung bei [Zeeman97], also die Energieänderung aufgrund von magnetischen Momenten in einem äußeren Magnetfeld. Für die Energien der Einteilchenzustände (siehe Gl. (2.3)) sind zunächst die Bahndrehimpulsquantenzahlen L zu berücksichtigen mit $\Delta E = L\hbar\omega_c/2$ [Warburton98]. Allerdings trägt auch der Spin der Elektronen bzw. der Gesamtdrehimpuls der Löcher ein magnetisches Moment. Allgemein gilt $\Delta E = g\mu_B B$, wobei g der Landé-Faktor des entsprechenden Vielteilchenzustandes ist und μ_B das Bohrsche Magneton [Kuther98]. Es sei an dieser Stelle darauf hingewiesen, dass die Zeeman-Aufspaltung aufgrund des Spins der Elektronen bzw. des Gesamtdrehimpulses der Löcher in selbstorganisierten Quantenpunkten deutlich geringer ist als die Aufspaltung durch den Bahndrehimpuls L . Dies liegt daran, dass man für den Bahndrehimpuls die Zyklotronfrequenz mit der effektiven Masse berücksichtigt. Für den Spin bzw. den Gesamtdrehimpuls geht jedoch die reine Elektronenmasse ein.

2.6. Auger-Effekt

Bisher wurden vor allem die Energien der Vielteilchenzustände in den Quantenpunkten beschrieben. Weitgehend unbeantwortet ist jedoch bisher die Frage, wie diese Zustände angeregt werden bzw. welche Übergänge zwischen den Zuständen möglich sind. Sehr häufig handelt es sich dabei um Elektronen, die in den Quantenpunkt hinein oder aus ihm heraus tunneln, um den energetisch günstigsten Vielteilchengrundzustand zu besetzen. Eine andere Möglichkeit sind optische Übergänge, also die Erzeugung oder Rekombination eines Elektron-Loch-Paares unter Absorption bzw. Emission eines Photons. Diese beiden Prozesse werden in Kapitel 3 im Detail besprochen. Ein weiterer Prozess, der an dieser Stelle erläutert werden soll, ist der sogenannte *Auger-Prozess*.

In der Atomphysik konnte zuerst gezeigt werden, dass die Energie, die bei der Relaxation eines Elektrons aus einem höheren in ein niedrigeres Niveau frei wird, nicht unbedingt als Photon emittiert, sondern auch an ein benachbartes Elektron übertragen werden kann. Das Elektron verlässt dabei die Atomhülle. Dieser nicht-strahlende Prozess wird auch als *Auger-Meitner-Effekt* oder häufig auch nur *Auger-Effekt* bezeichnet [Meitner22]. Nach dieser ersten Beobachtung wurde der Effekt auch für weitere eingeschränkte Systeme diskutiert, wie Nanopartikel [Wang03, Pietryga08, Robel09, Jin10, Rabouw15] und Ensembles von selbstorganisierten Quantenpunkten [Adler96, Ferreira99, Tomić11] und konnte schließlich auch an einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkten beobachtet werden [Kurzmann16a, Lochner20, Löbl20]. Bei einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkten wurde der Effekt vor allem bei den geladenen Exzitonen (Trionen) untersucht. Das negativ geladene Trion (X^-) besteht aus zwei Elektronen mit entgegengesetzten Spin in der s -Schale und einem Loch im s -Zustand (vgl. Abb. 2.7(a)). Zur vereinfachten Beschreibung diskutieren wir eine von zwei möglichen Ausrichtungen des

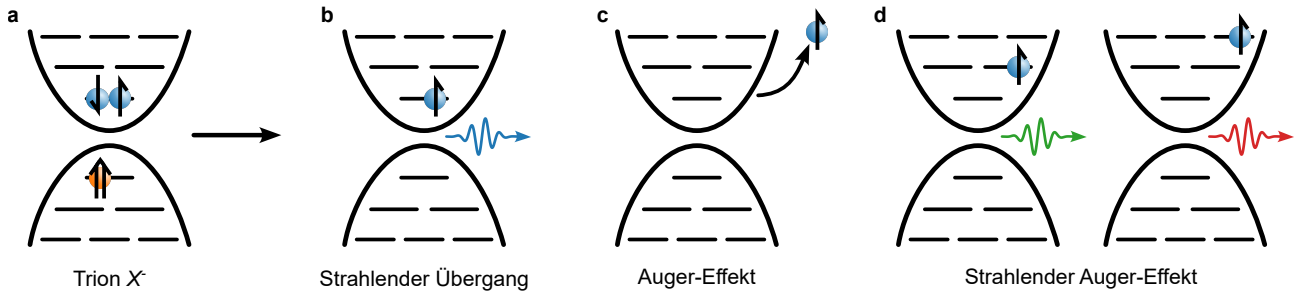


Abbildung 2.7.: Mögliche Zerfallsprozesse des Trions. **a** Das negativ geladene Trion besitzt eine abgeschlossene s-Schale mit zwei Elektronen und ein Loch im s-Zustand. Das Loch kann mit dem Elektron entgegengesetzten Spins über verschiedene Prozesse rekombinieren. **b** Beim optischen Übergang wird die gesamte Rekombinationsenergie als Photon emittiert und es verbleibt ein Elektron im Quantenpunkt übrig. Im Quantenpunkt kann erneut das Trion optisch angeregt werden. **c** Beim Auger-Effekt wird die Energie an das übrige Elektron übertragen. Dieses verlässt den Quantenpunkt, der unbesetzt zurückbleibt. **d** Beim strahlenden Auger-Effekt wird nur ein Teil der Energie emittiert bzw. auf das Elektron übertragen wird. Der Quantenpunkt bleibt dabei häufig besetzt, das Elektron befindet sich jedoch in einem angeregten Zustand.

Gesamtdrehimpuls des Lochs ($\vec{j}_z = +3/2 = \uparrow$). Das Loch (\uparrow) kann mit dem Elektron mit entgegengesetzten Spin (\downarrow) rekombinieren und ein Photon emittieren. Dabei bleibt das Elektron im Quantenpunkt zurück, dessen Spin parallel zum Loch Gesamtdrehimpuls stand (\uparrow). Dies ist der optische (strahlende) Übergang (vgl. Abb. 2.7(b)) an dessen Ende das Trion wieder angeregt werden kann. Kommt es zu einem Auger-Prozess, so wird die Rekombinations-Energie auf das zweite Elektron (\uparrow) übertragen und es verlässt den Quantenpunkt. Der Quantenpunkt wird in diesem Fall ionisiert und bleibt unbesetzt zurück (vgl. Abb. 2.7(c)). Dies führt dazu, dass die erneute resonante optische Anregung verboten ist, bis wieder ein Elektron den Quantenpunkt besetzt. In zeitaufgelösten Messungen lässt sich dies als zwischenzeitliches Ausbleiben der detektierten Emission beobachten [Lochner20]. Auch bei nicht-resonanten Anregungen, wie der Photolumineszenz, führt dies zu einer Verringerung der detektierten Emission. [Nirmal96, Efros97]. Schließlich existieren auch noch Mischformen der beiden präsentierten Prozesse, bei denen nur ein Teil der Energie an das Elektron übertragen wird und die übrige Energie als rotverschobenes Photon emittiert wird. Das Elektron besetzt bei diesem Prozess einen angeregten Zustand (vgl. Abb. 2.7(d)) und kann durch Relaxation den Grundzustand einnehmen. In Abgrenzung zum üblichen nicht-strahlenden Auger-Effekt wird diese Mischform auch als strahlender Auger-Effekt bezeichnet [Löbl20].

In Kapitel 4 wird erläutert, wie sich der nicht-strahlende Auger-Prozess im Magnetfeld verhält und wie er zur Nichtgleichgewichtsdynamik des negativ geladenen Trions beiträgt.

3. Experimenteller Aufbau und Methoden

Die physikalischen Prozesse, die in dieser Arbeit untersucht wurden, zeichnen sich nicht zuletzt dadurch aus, dass sie im Vergleich zur makroskopischen Alltagsrealität auf kleinen Größenskalen und in kurzen Zeiten geschehen. Außerdem sind sie zum Teil im archetypischen Sinn quantenmechanisch. Darum wird in diesem Kapitel erläutert, mit welchem Probendesign die Quantenpunkte experimentell zugänglich und manipulierbar gemacht wurden. Außerdem wird beschrieben mit welchen unterschiedlichen Charakterisierungsmethoden die verschiedenen Prozesse untersucht wurden. In dieser Arbeit wurden sowohl optische als auch elektrische Messungen durchgeführt, darum findet sich diese Unterscheidung auch in der Gliederung dieses Kapitels wieder.

3.1. Probenaufbau

Unabhängig von einer spezifischen Charakterisierungsmethode ist allen Messungen in dieser Arbeit gemein, dass die Quantenpunkte dafür in eine Art von Diodenstruktur einbettet wurden. Diese besteht in verallgemeinerter Form aus zwei leitfähigen Schichten, die durch eine Halbleiterheterostruktur aus undotiertem $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ voneinander getrennt sind. Für tiefe Temperaturen lässt sich die Struktur als eine Art von Plattenkondensator begreifen, bei der die leitfähigen Schichten durch ein isolierendes Dielektrikum von einander getrennt sind. Über eine Spannung V_g , die man an die Schichten anlegt, ist es dadurch möglich, die Quantenpunkte und ihre Umgebung einem elektrischen Feld auszusetzen (vgl. Kap. 2.4). Die Quantenpunkte befinden sich nicht in der Mitte der Struktur, sondern deutlich näher an einer der beiden leitfähigen Schichten. Diese fungiert als Elektronenreservoir. Dabei handelt es sich meistens um den Rückkontakt (Schicht unterhalb der Oberfläche). Die andere leitfähige Schicht wird als Gate bezeichnet. Über die angelegte Spannung lässt sich dann zusätzlich die Energie der Quantenpunkt-Vielteilchenzustände im Vergleich zum chemischen Potential μ des Elektronenreservoirs beeinflussen [Warburton98]. Dies geschieht durch den elektrostatischen Beitrag

$$\Delta E = e(N - M)V_g/\lambda, \quad (3.1)$$

mit der Anzahl an Elektronen N und Löchern M des Vielteilchenzustandes und der Elementarladung e (siehe auch Gl. (2.13)). Mit λ wird der sogenannte Hebelarm λ bezeichnet, der angibt, welcher Anteil der Energieänderung $e(N - M)V_g$, die für die gesamte Struktur gilt, am Ort der Quantenpunkte stattfindet. Unter der Annahme klar definierter Platten ergibt sich der Hebelarm als relative Position der Quantenpunkte zwischen den Platten $\lambda = d_{\text{Gate-Reservoir}}/d_{\text{QPe-Reservoir}}$. Mit dem elektrostatischen Energiebeitrag können die Vielteilchenzustände auch unter das chemische Potential μ gebracht werden. Dies führt dazu, dass Elektronen aus dem Reservoir in die Quantenpunkte tunneln. Die Rate des Tunnelprozesses kann sowohl über den Abstand $d_{\text{QPe-Reservoir}}$ als auch über eine zusätzliche Tunnelbarriere aus $\text{Al}_{0,34}\text{Ga}_{0,66}\text{As}$ zwischen den Quantenpunkten und dem Reservoir eingestellt werden. Damit keine Ladungsträger aus dem Gate in die Quantenpunkte tunneln und kein nennenswerter Strom zwischen dem Rückkontakt und dem Gate fließt, wird zwischen dem Gate und den Quantenpunkten ein Übergitter aus alternierenden Schichten GaAs und AlAs eingebracht.

In dieser Arbeit wurden zwei verschiedene Proben untersucht. An der einen Probe wurden die elektrischen Messungen zur Vermessung der Wellenfunktion an einem Quantenpunkt-Ensemble durchgeführt. An der anderen Probe wurden einzelne Quantenpunkt optisch untersucht. Wie das vorgestellte

allgemeine Konzept des Probenaufbaus für die jeweiligen Proben umgesetzt wurde, ist in den folgenden Unterkapiteln erklärt.

3.1.1. Probe zur elektrischen Charakterisierung

Die Probe zur elektrischen Charakterisierung wurde von der Firma Innolume [Innolume] in Dortmund hergestellt. Das Design entstammt einer Kooperation mit der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Andreas D. Wieck von der Ruhr Universität Bochum.

Das Substrat der Probe ist ein Wafer aus semiisolierendem GaAs mit (001) Oberfläche. Auf diesem wurden zunächst 200 nm GaAs, ein Übergitter mit 40 Perioden AlAs (2 nm) und GaAs (2 nm) und einer 300 nm dicken Schicht $\text{Al}_{0,34}\text{Ga}_{0,66}\text{As}$ aufgewachsen. Oberhalb von dieser Schicht wurde die Probe mit Si als Elektronendonator n-dotiert. Dabei handelt es sich in Abgrenzung zur üblicher Abscheidung von dotiertem Halbleitermaterial um eine sogenannte δ -Dotierung, die sich vorzugsweise nur an der Grenzfläche zwischen zwei Halbleiterschichten befindet. Auf dieser Dotierung wurde $\text{Al}_{0,34}\text{Ga}_{0,66}\text{As}$ mit 16 nm Dicke gefolgt von 15 nm GaAs abgeschieden. In die GaAs-Schicht diffundieren die Elektronen aus der δ -Dotierung. Da am Ort der Dotierung jedoch die positiv geladenen Si-Atome zurückbleiben, bildet sich in der GaAs-Schicht ein attraktives Dreieckspotential. Die freien Elektronen sammeln sich deshalb an der Grenzfläche zwischen dem $\text{Al}_{0,34}\text{Ga}_{0,66}\text{As}$ und dem GaAs und bilden dort ein zweidimensionales Elektronengas (2DEG) [Störmer79, Hwang08]. Dieses stellt den Rückkontakt für die beschriebene Diodenstruktur dar. Nach einer Tunnelbarriere aus 10 nm $\text{Al}_{0,34}\text{Ga}_{0,66}\text{As}$ und 5 nm GaAs wurden die Quantenpunkte aus InAs abgeschieden (vgl. Kap. 2.1). Nach den Quantenpunkten folgen 30 nm GaAs, ein zweites Übergitter mit 29 Perioden aus GaAs (1 nm) und AlAs (3 nm) und erneut 5 nm GaAs. Diese Heterostruktur stellt das von Innolume mit Molekularstrahlepitaxie hergestellte Probenmaterial dar. Auf der Oberfläche wurde abschließend mit physikalischer Gasphasenabscheidung noch eine 5 nm Schicht Ni als Haftvermittler und 150 nm Gold abgeschieden. Die Goldschicht bildet einen Schottky-Kontakt an der Oberfläche und stellt das Gate dar, also die zweite leitfähige Schicht für die angesprochene Diodenstruktur.

In der Abbildung 3.1 ist ein Ausschnitt der Probenstruktur von der δ -Dotierung bis zum zweiten Übergitter dargestellt. Dort finden sich außerdem die Ergebnisse einer Simulation der Leitungsbandkante und der Ladungsträgerdichte, die mit dem Programm *1D Poisson* [Snider] durchgeführt wurde. Dabei wurde auch berücksichtigt, wie sich eine angelegte Spannung V_g auswirkt. Die Leitungsbandkante besitzt zwischen dem Gate ($z = 0$) und dem 2DEG ($z > 165$ nm) auch für $V_g = 0$ eine konstante Steigung. Diese beruht auf der sogenannten *eingebauten Spannung*, die an der Oberfläche aufgrund des Schottky-Kontakts entsteht [Au/GaAs]. Mit V_g lässt sich diese Spannung entweder kompensieren oder aber erhöhen. Wir definieren die Richtung von V_g so, dass eine Erhöhung der Spannung zur Abflachung der Leitungsbandkante führt. In der GaAs-Schicht, die das 2DEG beinhaltet, sorgt die Spannung für eine Änderung des Ladungsträgerdichte. Man spricht davon, dass das 2DEG bevölkert oder aber verarmt werden kann. Da sich das 2DEG in einem Dreieckspotential befindet, sorgt eine Änderung der Ladungsträgerdichte auch für eine veränderte Ausdehnung des 2DEGs. Dieser Effekt sorgt dafür, dass sich der Hebelarm λ von seinem geometrischen Wert unterscheidet. Darum wurde in den spannungsabhängigen Ergebnissen in Abbildung 3.1 überprüft, welche Energieänderung am Ort der Quantenpunkte stattfindet. Dadurch konnte $\lambda \approx 7,8$ bestimmt werden. Die Abscheidung der Au-Schicht auf der Oberfläche der Probe erfolgte im Rahmen einer Mikrostrukturierung des Probenmaterials zu einem Feldeffekt-Transistor (FET). Diese war notwendig, um die elektrische Charakterisierung des Quantenpunkt-Ensembles durchführen zu können und wurde selber in Zusammenarbeit mit dem Masterstudenten Daniel Hecker im Rahmen der Masterarbeit [Hecker23] im Reinraum der Arbeitsgruppe Lorke mit Photolithographie durchgeführt. Eine schematische Darstellung des Transistors ist in Abbildung 3.2 zusammen mit einer Mikroskopaufnahme zu finden.

Ein Feldeffekttransistor besteht in verallgemeinerter Form aus einem leitfähigen Kanal, der mit den

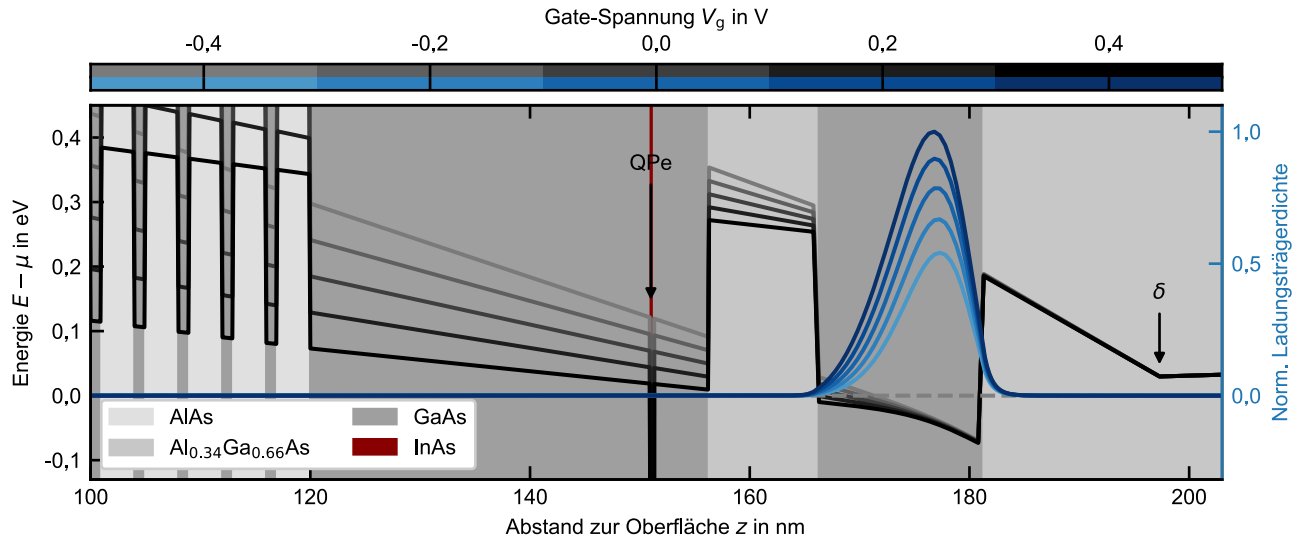


Abbildung 3.1.: Mit 1D Poisson [Snider] simulierter Verlauf der Leitungsbandkante und der Ladungsträgerdichte in der Probe zur elektrischen Charakterisierung. Die Quantenpunkte sind zwischen einer Au-Schicht an der Oberfläche (Gate) und einem 2DEG (Rückkontakt) eingebettet. Das 2DEG bildet sich an einer GaAs/ $\text{Al}_{0,34}\text{Ga}_{0,66}\text{As}$ Grenzfläche aufgrund einer tieferliegenden Si- δ -Dotierung. Mit einer elektrischen Spannung V_g zwischen dem Gate und dem Rückkontakt lässt sich die Ladungsträgerdichte im 2DEG einstellen. Außerdem ändert sich die Steigung der Leitungsbandkante. Dadurch können die Zustände im Quantenpunkt unter das chemische Potential μ im Rückkontakt gebracht werden. Dies führt dazu, dass Elektronen aus dem Rückkontakt in die Quantenpunktzustände tunneln können.

Kontakten Source und Drain verbunden ist, und einem Gate-Kontakt. Mit einer Spannung zwischen dem Gate und dem Kanal lässt sich über eine Änderung des elektrischen Feldes die Leitfähigkeit des Kanals beeinflussen. Im Falle der beschriebenen Probe wurde das 2DEG als leitfähiger Kanal benutzt. Dazu wurden zwei Prozessierungsschritte mit Photolithographie durchgeführt. Zunächst wurde eine sogenannte Mesa hergestellt. Dabei handelt es sich um eine räumliche Abgrenzung der Probenstruktur. Um dies zu erreichen wurde um einen mit Photolack geschützten Bereich herum die Probenstruktur mit einer Ätzlösung nasschemisch abgetragen. Der Abtrag betrug etwa 220 nm, sodass in dem geätzten Bereichen kein 2DEG mehr existierte bzw. das 2DEG auf den Bereich der Mesa eingeschränkt war. Die Mesa besteht aus zwei etwa quadratischen Bereichen ($a \approx 220 \mu\text{m}$), die mit einem Steg verbunden sind (vgl. Abb. 3.2(a)). Im zweiten Lithographieschritt wurden auf diesen quadratischen Bereichen die Source- und Drain-Kontakte abgeschieden. Diese bestehen aus 5 nm Ni, 200 nm AuGe (ausgehend von ihren Massen im Verhältnis 88:12 gemischt) und 170 nm Au. Um einen ohmschen Kontakt zum 2DEG herzustellen wird die Probe schrittweise erhitzt (5 min. bei 200°C \rightarrow 5 min. bei 300°C \rightarrow 5 min. bei 400°C \rightarrow 30 s bei 430°C). Um dabei Oxidation vorzubeugen findet dies unter einer leicht reduzierenden Gasatmosphäre aus Ar und H statt. Dieser Prozess wird auch als *Einlegieren* der Kontakte bezeichnet. Dabei bildet das Ni mit dem GaAs Komplexe, die das Kristallgitter lokal stören und damit die Diffusion von Ge in die Probenstruktur erlaubt. Dieses dotiert das GaAs. Gleichzeitig kommt es zu einem Materialtransport bei dem vor allem As an die Oberfläche tritt. Dies gibt den einlegierten Kontakten eine typische und leicht zu erkennende Textur. Die Prozesse sind in [Baca05, Kapitel 6.2.3] in deutlich detaillierterer Form beschrieben. Schließlich wurde mit einem dritten Lithographieschritt der Gate-Kontakt abgeschieden. Dieser befindet sich hauptsächlich im geätzten Bereich neben der Mesa und besteht aus einem quadratischen Bereich mit einem länglichen Kontaktfinger. Dieser ragt über den Steg der Mesa.

Die Photolithographie erfolgt unter Maskenbelichtung, deshalb konnten mehrere Transistoren gleich-

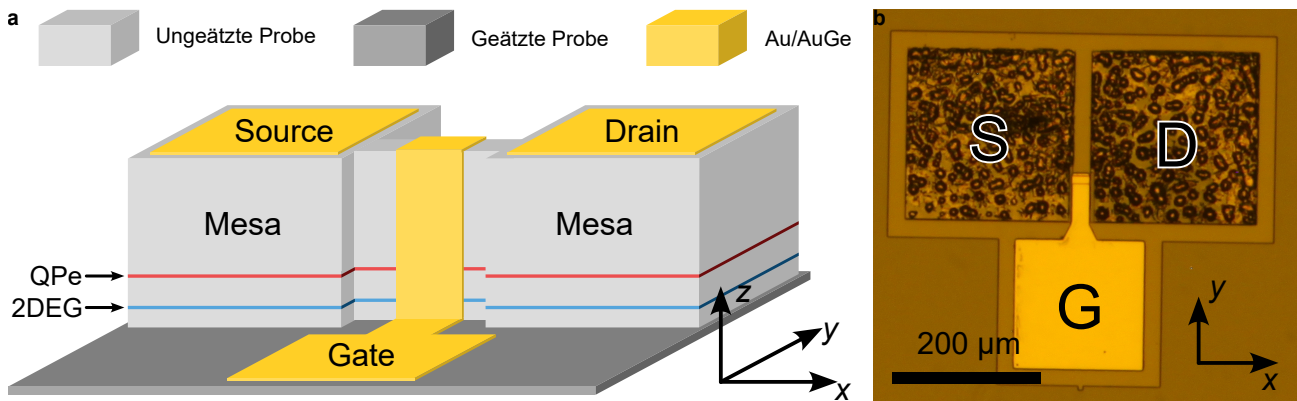


Abbildung 3.2.: Räumliche Struktur der Probe zur elektrischen Charakterisierung. **a** Schematische Darstellung der Struktur (nicht maßstabsgerecht). Das Probenmaterial wurde mithilfe von Photolithographie zu einem Feldeffekttransistor strukturiert. Dazu wurde eine Mesa bis unter das 2DEG geätzt. Auf der Mesa befinden sich die einlegierten Source- und Drain-Kontakte. Der Gate-Kontakt wurde neben der Mesa abgeschieden und ragt mit einem Leiterfinger über einen verbindenden Steg. **b** Mikroskopaufnahme des Transistors, der in Kapitel 6 untersucht wurde. Der geätzte Bereich ist etwas heller als der umgebene ungeätzte Bereich. Die Source- und Drain-Kontakte bedecken die Mesa fast vollständig und zeigen die Textur, die für einlegierte Kontakte typisch ist.

zeitig auf einem Stück des gewachsenen Wafers prozessiert werden. Dabei unterschieden sich die einzelnen Transistoren in der Größe des Stegs der Mesa. Diese bzw. das Verhältnis aus Länge L und Breite B beeinflusst den Leitwert des Kanals $G = \sigma B/L$. Für den Transistor, der in Kapitel 6 untersucht wurde, gilt $L \approx 20 \mu\text{m}$ und $B \approx 10 \mu\text{m}$. Eine entsprechende Mikroskopaufnahme ist in Abbildung 3.2(b) zu sehen.

3.1.2. Probe zur optischen Charakterisierung

Die Probe zur optischen Charakterisierung wurde in der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Andreas D. Wieck von der Ruhr Universität Bochum unter der Leitung von Dr. Arne Ludwig mit Molekularstrahlepitaxie gewachsen. Außerdem wurde die Probe von Dr. Annika Kurzmann prozessiert. An der Probe wurden bereits Arbeiten durchgeführt. Ausführliche Beschreibungen finden sich deshalb in [Lochner19, Lochner21a], an die die folgenden Ausführungen angelehnt sind.

Als Substrat wurde ein semiisolierender GaAs Wafer mit (001) Oberfläche benutzt. Auf diesem wurde zunächst eine 48 nm dicke GaAs-Schicht, ein Übergitter mit 20 Perioden aus 2 nm GaAs und 2 nm AlAs gewachsen. Darauf wurde ein sogenannter Bragg-Spiegel (englisch: distributed Bragg reflector; DBR) abgeschieden. Dabei handelt es sich ebenfalls um ein Übergitter mit jedoch deutlich dickeren Schichten (16 Perioden mit 68,6 nm GaAs und 81,45 nm AlAs). Die Aufgabe des DBRs ist es Licht, das in höheren Lagen der Probe in die Richtung des Substrates emittiert wird, zurück zur Oberfläche zu reflektieren. Dies geschieht besonders effizient für Licht, wenn dessen Wellenlänge in jeder Schicht des Übergitters dem Vierfachen der Schichtdicke entspricht ($\lambda_0/n_x = 4d_x$, mit der Vakuumwellenlänge λ_0 , dem Brechungsindex n_x und der Dicke d_x der Schicht $x \in \{\text{AlAs}, \text{GaAs}\}$). Diese Eigenschaft ist für Licht mit etwa 950 nm erfüllt und wurde ausgehend von der Emissionswellenlänge der Quantenpunkte gewählt. Eine genauere Betrachtung dieser Eigenschaft für die in dieser Arbeit untersuchten Probe ist in [Lochner19] zu finden. Auf dem DBR wurde eine 43 nm dicke Schicht GaAs abgeschieden. Dieser folgen 50 nm mit Si stark (entartet) n-dotiertes GaAs. Diese Schicht stellt für die Probe den Rückkontakt dar. Die InAs Quantenpunkte sind vom Rückkontakt durch eine Tunnelbarriere aus 30 nm GaAs, 10 nm $\text{Al}_{0,34}\text{Ga}_{0,66}\text{As}$ und 5 nm GaAs getrennt. Über den Quantenpunkten befinden sich eine GaAs-Schicht mit 30 nm Dicke und ein zweites Übergitter mit 41 Perioden aus 3 nm AlAs und

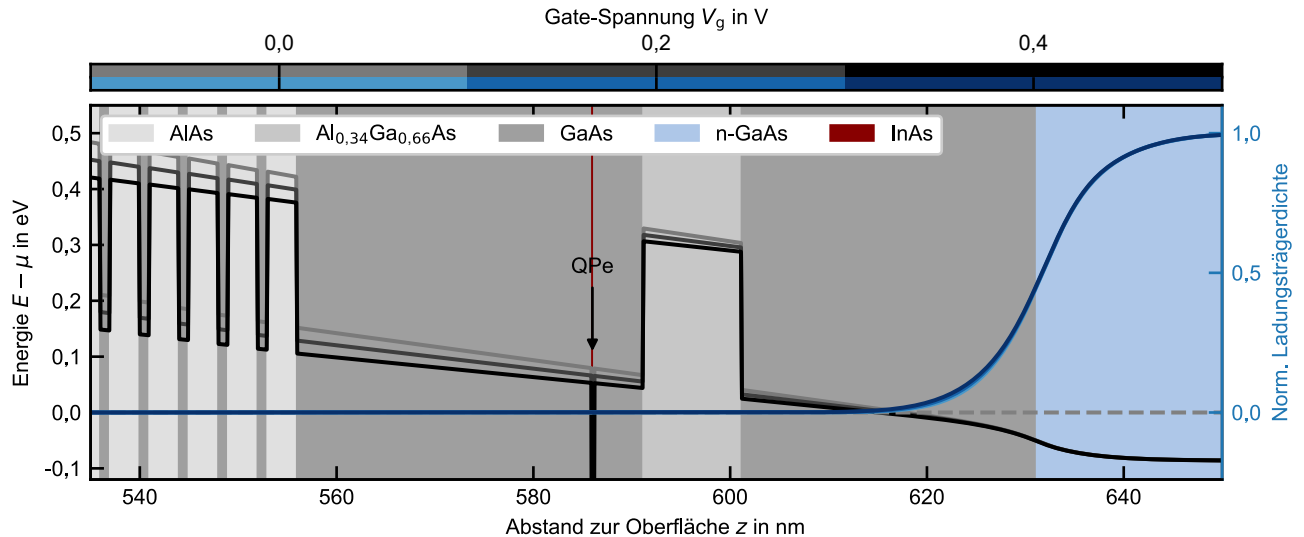


Abbildung 3.3.: Mit 1D Poisson [Snider] simulierter Verlauf der Leitungsbandkante und der Ladungsträgerdichte in der Probe zur optischen Charakterisierung. Die Quantenpunkte sind zwischen einer p-dotierten (Gate) und n-dotierten Schicht GaAs (Rückkontakt) eingebettet. Mit einer elektrischen Spannung V_g zwischen dem Gate und dem Rückkontakt lässt sich die Steigung der Leitungsbandkante einstellen. Dadurch können die Zustände im Quantenpunkt unter das chemische Potential μ im Rückkontakt gebracht werden. Dies führt wiederum dazu, dass Elektronen aus dem Rückkontakt in die Quantenpunktzustände tunneln können.

1 nm GaAs, 292 nm $\text{Al}_{0,34}\text{Ga}_{0,66}\text{As}$ und 10 nm GaAs. Darauf wurde das Gate aus 30 nm mit C stark (entartet) p-dotiertem GaAs, gefolgt von 15 nm noch stärker p-dotiertem GaAs abgeschlossen. Das Gate wurde schließlich noch mit 1 nm GaAs, 2 nm AlAs und 42 nm GaAs bedeckt. In der Abbildung 3.3 ist ein Ausschnitt der Probenstruktur vom n-dotierten Rückkontakt bis zum zweiten Übergitter dargestellt. Dort finden sich außerdem die Ergebnisse einer Simulation der Leitungsbandkante und der Ladungsträgerdichte, die mit dem Programm *1D Poisson* [Snider] durchgeführt wurde.

Die Probe beinhaltet einige Besonderheiten im Vergleich zu der Probe zur elektrischen Charakterisierung, die auf verbesserte optische Eigenschaften der Probe abzielen. So sind einige Schichten in dem Probedesign enthalten, die als eine Art Puffer dienen. Die 43 nm GaAs etwa, zwischen dem DBR und dem Rückkontakt, sorgen dafür, dass, wenn sich eine stehende Welle mit der Zielvakuumwellenlänge von $\lambda_0 = 950$ nm in der Probenstruktur ausbildet, an der ersten Grenzfläche des DBRs ein Wellenbauch vorliegt, sodass der Reflektor möglichst effizient reflektiert. Ähnlich wurde darauf abgezielt, dass sich am Ort (in der Mitte) des p-dotierten Gates und des n-dotierten Rückkontaktes Wellenknoten befinden. Dies soll verhindern, dass die freien Ladungsträger in den Schichten das Licht absorbieren. Das Überwachsen des Gates sorgt außerdem dafür, dass es vor Oxidation geschützt ist. Die Quantenpunkte wurden in einem Wellenbauch platziert, sodass diese möglichst stark mit dem Licht wechselwirken (sowohl bei der Absorption als auch der Emission). Die 292 nm dicke $\text{Al}_{0,34}\text{Ga}_{0,66}\text{As}$ Schicht oberhalb des zweiten Übergitters sorgt außerdem für eine zusätzliche Verlängerung der Diodenstruktur, was den geometrischen Hebelarm der Probe erhöht. Mit den Ergebnissen, die auch in Abbildung 3.3 dargestellt sind wurde ein Hebelarm von $\lambda \approx 15,2$ bestimmt.

Um die Spannung V_g an die dotierten Schichten anlegen zu können, wurde das Probenmaterial mithilfe von Photolithographie prozessiert. Anders als bei der Probe zur elektrischen Charakterisierung wurden an diese keine besonderen geometrischen Ansprüche gestellt. Der Rückkontakt wurde kontaktiert indem am Rand der Probe das Material bis zum zweiten Übergitter weggeätzt wurde und anschließend ohmsche Kontakte aus Ni/Ge/Au einlegiert wurden. Das p-dotierte Gate wurde kontaktiert, indem an einem weiteren abseitigen Bereich der Probe das Material bis zum Gate weggeätzt

wurde und anschließend 10 nm Au, 15 nm Cr und 200 nm Au als Kontakt abgeschieden wurden.

Abschließend wurde auf der Oberfläche der Probe eine Festkörperimmersionslinse (englisch: solid immersion lens; SIL) platziert. Dabei handelt es sich um eine Halbkugel aus Zirkonia mit einem Durchmesser von 1,5 mm. Diese dient dazu die Einsammeleffizienz von Photonen aus der Probe zu erhöhen. Diese ist dadurch nennenswert verringert, dass an der Grenzfläche GaAs/Luft ($n_{\text{GaAs}} = 3,5$ [nGaAs], $n_{\text{Luft}} \approx 1$) ab einem Winkel von etwa $16,6^\circ$ Totalreflexion auftritt. Licht, das unter einem größeren Winkel auf die Grenzfläche trifft verbleibt also innerhalb der Probe. Durch das Einbringen der Festkörperimmersionslinse aus Zirkonia ($n_{\text{ZrO}_2} \approx 2,21$ [nZrO2]) erhöht sich der Winkel auf insgesamt etwa $39,2^\circ$.

3.2. Optische Spektroskopie

In den Kapiteln 4 und 5 werden Messungen präsentiert, bei denen die Quantenpunkte optisch untersucht wurden. Dazu wurde ein Laser benutzt und mithilfe eines konfokalen Mikroskops auf die Probe, die in Kapitel 3.1.2 beschrieben wurde, fokussiert. Dieser regt die Quantenpunkte optisch an, die wiederum Photonen emittieren, die mit dem Mikroskop eingesammelt und schließlich detektiert werden. Diese Methode hat gegenüber der elektrischen Charakterisierung den Vorteil, dass mit ihr einzelne Quantenpunkte untersucht werden können. Dies ist möglich, wenn die Dichte der Quantenpunkte recht gering ist $\leq 1 \mu\text{m}^{-2}$ und der Laser stark fokussiert wird (maximale Fokussierung $\approx \lambda$, mit $\lambda \approx 950 \text{ nm}$). Allerdings können mit dieser Methode nur Zustände untersucht werden, die mit dem eingestrahnten Laser wechselwirken. Die Wellenlängen, die in dieser Arbeit benutzt wurden, liegen im nahinfraroten Spektrum, sodass excitonische Übergänge untersucht werden konnten, bei denen ein Elektron-Loch-Paar unter Absorption eines Lichtquants erzeugt wird bzw. unter Emission eines solchen rekombiniert. Im Folgenden wird zunächst der experimentelle Aufbau mit dem konfokalen Mikroskop erläutert und anschließend auf die Methode der resonanten Fluoreszenz eingegangen. Die folgenden Texte zur optischen Spektroskopie und die Abbildung 3.4 sind angelehnt an [Kerski18].

3.2.1. Aufbau

Alle optischen Experimente in dieser Arbeit wurden bei tiefen Temperaturen durchgeführt. Dazu befand sich die Probe in einem Probenstab, der sich wiederum in einem Helium-Badkryostaten befand. Der Badkryostat ist mit flüssigem ^4He ($T = 4,2 \text{ K}$) gefüllt. Der Probenstab ist geschlossen und mit Heliumgas bei leichtem Unterdruck gefüllt. Dies verhindert einerseits das andere Gase im Probenstab oder sogar auf der Probe selber kondensieren und sorgt andererseits für den thermischen Kontakt zwischen der Probe und dem Probenstab. Durch den leichten Unterdruck nimmt das Kontaktgas kaum Einfluss auf die optische Charakterisierung. Die Probe befindet sich an der Unterseite des Probenstabs (vgl. Abb. 3.4) unter einem Objektiv mit einer numerischen Apertur von $\text{NA} = 0,68$ und ist auf einem Stapel von drei Piezo Nanopositionierern (Attocube ANPz102 (für die z -Richtung entlang des Probenstabs) und Attocube ANPx101 (für die x - und y -Richtung)) befestigt. Auf der Höhe der Probe befindet sich außerdem das Zentrum einer supraleitenden Spule im Kryostaten, die es ermöglicht am Ort der Probe Magnetfelder bis zu 12 T zu erzeugen. An der Oberseite des Probenstabs befindet sich ein Fenster, das den optischen Zugang für den Laser ermöglicht.

Oberhalb des Probenstabs, also bei Normaldruck, in Luft und bei Raumtemperatur befindet sich der sogenannte *optische Kopf*. Dieser dient dazu den Laser zur Anregung in den Probenstab zu leiten und das von der Probe zurückkommende Licht separat weiterzuleiten. Für die Anregung ist seitlich am optischen Kopf ein Koppler für optische single-mode Fasern angebracht, der den Laserstrahl zunächst parallelisiert. Dieser trifft auf einen 90/10-Strahlteiler, der 90 % der Laserleistung transmittiert und 10 % reflektiert. Der transmittierte Anteil fällt auf eine Photodiode. Diese misst die eingestrahlte

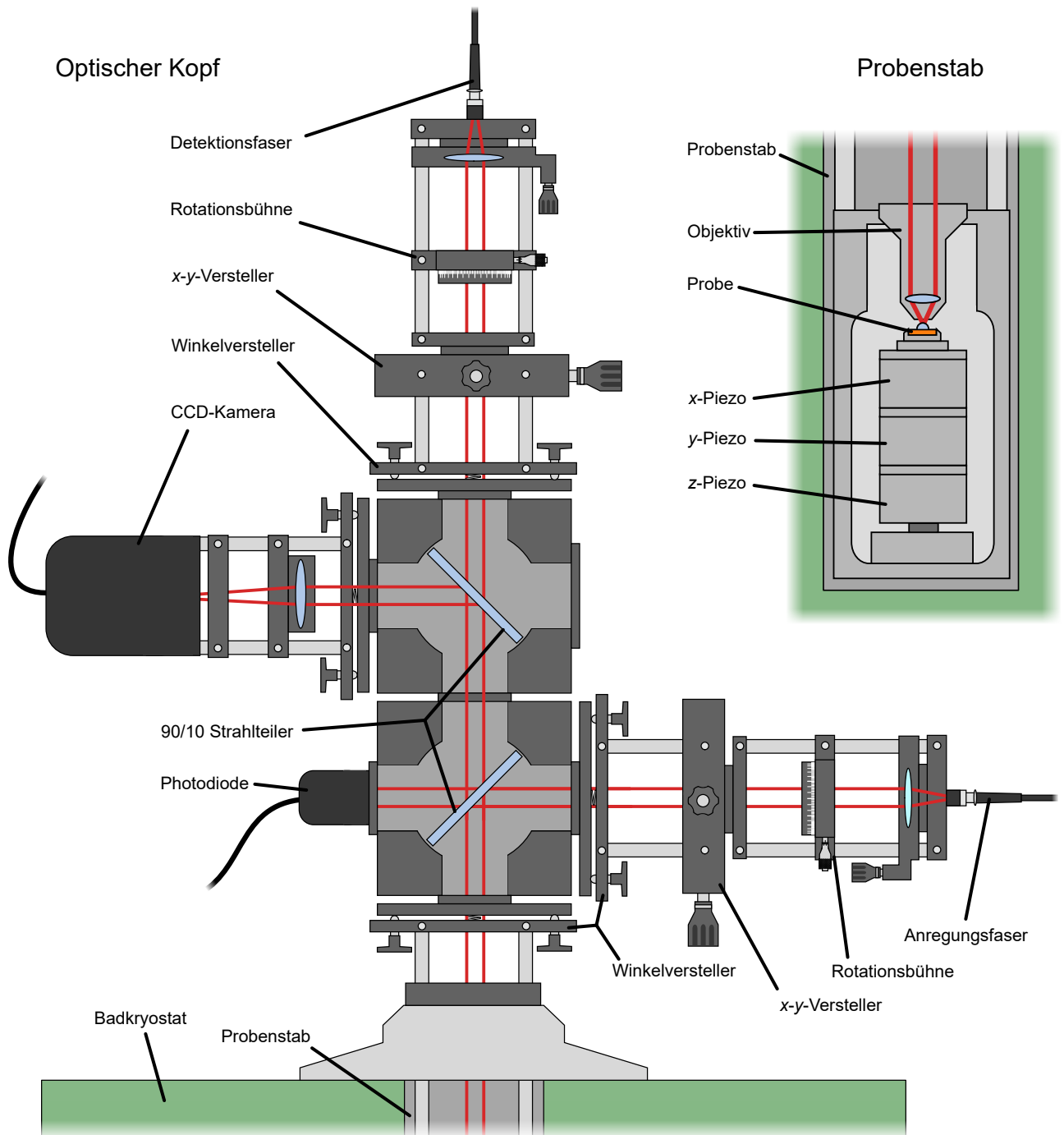


Abbildung 3.4.: Schematische Darstellung des konfokalen Mikroskops zur optischen Charakterisierung. Das Mikroskop besteht aus dem optischen Kopf und einem Objektiv. Optischer Kopf: Über einen Faser-Koppler kann ein Laser zur Anregung in den Kopf eingebracht werden. Dieser wird mit einem 90/10-Strahlteiler auf eine Photodiode zur Leistungsstabilisierung und in den Probenstab geleitet. Licht aus dem Probenstab gelangt durch insgesamt zwei Strahlteiler zum Koppler der Detektionsfaser. Zur Ausrichtung der Strahlengänge sind Komponenten zur mechanischen Verstellung und eine CCD-Kamera verbaut. Vor den Faserkopplern befinden sich Rotationsbühnen. Probenstab: Die Probe befindet sich unter einem Objektiv und auf einem Stapel von drei Piezo-Nanopositionierern. Das Objektiv fokussiert den einfallenden Laser und parallelisiert Licht von der Probe. Der Probenstab befindet sich in einem Badkryostaten mit flüssigem Helium ($T = 4,2\text{ K}$). Angelehnt an [Kerski18].

Leistung und wird dazu genutzt, um die Leistung mit einem PID-Regler zu stabilisieren. Der reflektierte Anteil des eingestrahnten Lasers fällt in den Probenstab und wird durch das Objektiv auf die Probe fokussiert. Der hohe Anteil an Laserleistung, der nicht zur Anregung genutzt wird, sondern verloren geht, ist eine Notwendigkeit, um im Folgenden nur einen sehr geringen Anteil der von der Probe kommenden Photonen zu verlieren. Die von der Probe kommenden Photonen bestehen aus denen, die von den angeregten Quantenpunkten emittiert wurden und reflektierten Laserphotonen, die mit den Quantenpunkten nicht gewechselwirkt haben. Beide Photonarten werden vom Objektiv oberhalb der Probe parallelisiert und gelangen zurück in den optischen Kopf. Dort werden nun 90 % vom Strahlteiler transmittiert und gelangen zu einem zweiten 90/10-Strahlteiler. Die transmittierten Photonen erreichen einen zweiten Koppler und werden dort in eine weitere optische single-mode Faser eingekoppelt, die zur Detektion benutzt wird. Zur geometrischen Ausrichtung der beiden Strahlengänge (1) Anregungsfaser→Objektiv und (2) Objektiv→Detektionsfaser sind zwischen den Strahlteilern und den Kopplern jeweils mechanische x - y -Versteller und Winkerversteller eingebaut. Ein weiterer Winkerversteller ist am Ausgang des optischen Kopfes zum Probenstab hin eingebaut, mit dem der Winkel der beiden Strahlgänge im Bezug zum Objektiv verändert werden kann. Zur Überprüfung der Ausrichtung der jeweiligen Strahlgänge ist eine CCD-Kamera verbaut, auf die das Licht fällt, das am zweiten Strahlteiler reflektiert wird. Außerdem befinden sich jeweils direkt vor den Kopplern mechanische Rotationsbühnen. In diese wurden Polarisatoren eingebaut, um die sogenannte resonante Fluoreszenz der Quantenpunkte zu untersuchen, die im folgenden Kapitel erklärt wird.

3.2.2. Resonante Fluoreszenz

Für die in dieser Arbeit präsentierten optischen Messungen wurde die sogenannte *resonante Fluoreszenz* (englisch: resonance fluorescence; RF) gemessen. Der Begriff bezeichnet sowohl die experimentelle Methode als auch die Messgröße. Im einfachsten Fall strahlt man dazu Photonen der Energie $\hbar\omega_1$ auf ein 2-Niveaus-System mit einem optischen Übergang der Energie $\hbar\omega_2$ ein. Stimmen die beiden Energien überein (Verstimmung $\delta = \omega_1 - \omega_2 = 0$), werden die eingestrahnten Photonen absorbiert, das System geht in einen angeregten Zustand über und relaxiert unter Aussendung eines Photons in den Anfangszustand. Dieser Ansatz ist nicht zuletzt von Interesse, weil das 2-Niveau-System mit dem eingestrahnten Lichtfeld wechselwirken kann. Dies führt zu Rabi-Oszillationen [Stievater01, Muller07, Ramsay10], bei denen man die Besetzungswahrscheinlichkeit des angeregten Zustandes manipulieren kann bzw. zum Mollow-Triplett, bei dem zusätzliche Frequenzen durch die starke Wechselwirkung des Feldes mit dem System entstehen [Mollow69, Vamivakas09, Wei14]. Die Details zu diesen Effekten und zum allgemeinen Wirkmechanismus der resonanten Fluoreszenz können in [Loudon00, Kapitel 8] nachgelesen werden.

Die Messung der resonanten Fluoreszenz ist jedoch experimentell nicht trivial, da die Photonen, die vom Quantenpunkt emittiert werden, die gleiche Energie besitzen wie die eingestrahnten Photonen. Würde man mit dem konfokalen Mikroskop lediglich das Licht, das von der Probe kommt einsammeln, so ließe sich nicht zwischen den Photonen unterscheiden, die vom Quantenpunkt emittiert wurden und den Laserphotonen, die reflektiert wurden. Auf diese Weise würde gerade bei Messungen an einzelnen Quantenpunkten das eigentliche Messsignal drastisch überschattet werden. Einer der ersten erfolgreichen Ansätze, um die resonante Fluoreszenz von selbstorganisierten Quantenpunkten zu messen war es, die Photonen orthogonal zur Anregungsrichtung einzusammeln [Muller07]. Bei diesem Ansatz, der aus der Atomphysik entliehen war [Schuda74], ist das Verhältnis aus emittierten Photonen zu eingestrahnten deutlich höher. Allerdings wurden die Quantenpunkte dafür in eine Resonatorstruktur aus zwei Bragg-Reflektoren eingebracht und die Anregung erfolgte über eine optische Faser, die auf wenige μm nah an der Probe positioniert wurde, um den Laser parallel zur Schichtstruktur in die Quantenpunktlage einzustrahlen.

Ein experimentell leichter umsetzbarer Ansatz, der auch in dieser Arbeit verwendet wurde, wurde von Vamivakas et al. [Vamivakas09] vorgestellt. Dieser besteht darin den Laser in einer einfacheren

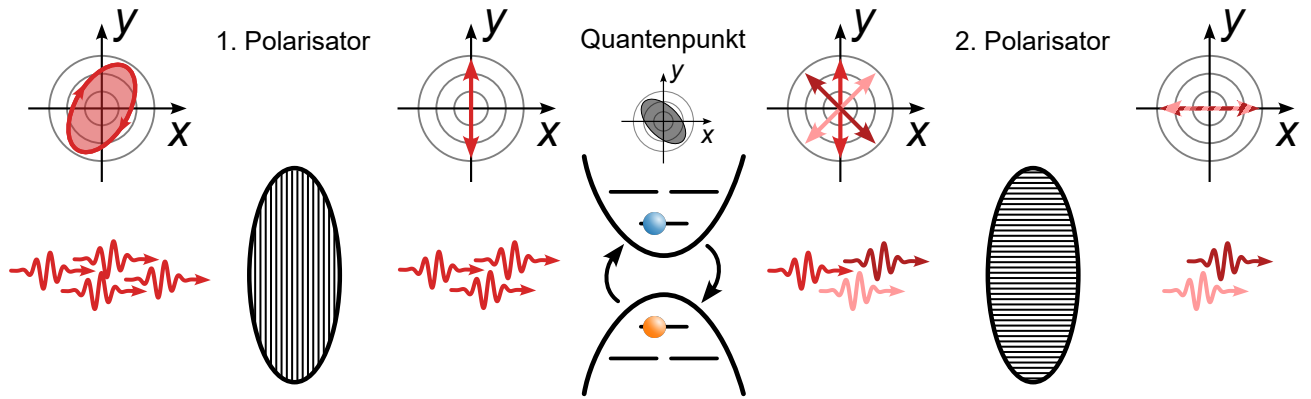


Abbildung 3.5.: Schematische Darstellung des Messprinzips der resonanten Fluoreszenz. Zur Anregung wird ein beliebig (z.B. elliptisch) polarisierter Laser benutzt. Dieser wird linear polarisiert. Beim Einfall auf den Quantenpunkt können die Photonen absorbiert und neu emittiert werden (hell und dunkel rot). Dabei ändert sich nicht ihre Energie aber ihre Polarisation. Alternativ können die Laser-Photonen auch reflektiert werden und ihre Polarisation erhalten (rot). Durch einen Polarisator, der orthogonal zur ursprünglichen Richtung ausgerichtet ist, lassen sich die reflektierten Laser-Photonen herausfiltern. Die emittierten Photonen passieren den Polarisator anteilig und können detektiert werden.

Messgeometrie (in unserem Fall in Reflexionsrichtung) zu benutzen, aber ihn vor dem Einstrahlen zu präparieren, sodass man ihn nach der Reflexion wieder herauszufiltern kann. Da die Photonen energetisch identisch sind, wird zum Filtern die Polarisation des Lichts ausgenutzt. Das Prinzip ist in Abbildung 3.5 schematisch dargestellt. Der Laser, der zunächst beliebig (z.B. elliptisch) polarisiert ist, wird dazu mit einem Polarisator (Thorlabs LPVIS050-MP) linear polarisiert. Anschließend wird der Laser auf die Probe eingestrahlt. Wenn die Laser-Photonen reflektiert werden, zum Beispiel an der Oberfläche der Probe oder am Bragg-Reflektor, ändert sich die präparierte Polarisation nicht. Wenn die Photonen allerdings vom Quantenpunkt absorbiert und anschließend neu emittiert werden, ändert sich die Polarisation. Für die beiden Übergänge des neutralen Exzitons etwa emittiert der Quantenpunkt Photonen, die parallel zu seinen Symmetrieachsen polarisiert sind (vgl. Kap. 2.3). Darum lässt man alle eingesammelten Photonen einen zweiten Polarisator durchlaufen, der senkrecht zum Ersten ausgerichtet ist. Dieser filtert zwar auch Anteile des Quantenpunktsignals heraus, vorwiegend jedoch den eingestrahlt Laser. Dieser Effekt ist sehr präzise, sodass der reflektierte Laserlicht auf ein Niveau von 1×10^{-7} unterdrückt werden kann [Kerski18]. Das Messsignal, das die Detektionsfaser des optischen Kopfes erreicht (vgl. Abb. 3.4) besteht deshalb fast ausschließlich aus den einzelnen Photonen, die vom Quantenpunkt emittiert werden. Um diese aufzulösen wird als Detektor eine sogenannte Avalanche-Photodiode (APD; Excelitas SPCM-AQRH-14-FC) verwendet.

Zur Vollständigkeit sei erwähnt, dass aufbauend auf dem Ansatz von Vamivakas et al. eine Variante entwickelt wurde, die nur einen Polarisator benutzt, zusätzlich aber eine $\lambda/4$ -Platte und polarisationsabhängige Strahlteiler [Kuhlmann13a]. Diese soll sich durch eine besonders hohe Langzeit-Stabilität auszeichnen. Der originale Ansatz hat jedoch den bedeutenden Vorteil, dass die Polarisatoren mit nur geringem Aufwand ein- und wieder ausgebaut werden können. Dies ermöglicht es schnell dem Aufbau für die resonante Fluoreszenz und einem Aufbau für andere optische Charakterisierungsmethoden (z.B. Photolumineszenz oder differentielle Transmission) zu wechseln, ohne die Gefahr die Ausrichtung des Mikroskops zu verlieren, die bei aufwändigeren Umbauten besteht.

Um die resonante Fluoreszenz als Spektroskopie benutzen zu können, benutzt man einen durchstimmbaren Dioden-Laser (Toptica DL pro) im Dauerstrichbetrieb zur optischen Anregung. In dem man die Frequenz schrittweise verändert kann man die Linienform des optischen Übergangs abtasten. Die Energieauflösung ist in diesem Fall durch die langzeitstabilisierte Linienbreite des Anregungslasers

gegeben. Diese betrug < 1 MHz, sodass die Spektroskopie eine Auslösung von < 4 neV besitzt. Als Alternative zur Energie des Lasers kann auch die Energie des optischen Übergangs verändert werden und so die Resonanzbedingung ($\delta = \omega_1 - \omega_2 = 0$) erfüllt werden. Mit der Diodenstruktur der Probe ist dies über die elektrische Spannung V_g und den Stark-Effekt (vgl. Kap. 2.4) möglich.

Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz

In den Kapiteln 4 und 5 wird jeweils die Quantenpunktdynamik im Nichtgleichgewicht untersucht. Darum soll in diesem Abschnitt erläutert werden, wie die zeitaufgelöste Detektion der resonanten Fluoreszenz stattfinden kann. Allgemein gibt es dazu zwei verschiedene Ansätze für beide wird jedoch das Signal der Avalanche-Photodiode an einen Zeit-in-Digital Umwandler (qutools quTAU) übergeben, der dieses mit einer Zeitauflösung von bis zu 81 ps aufzeichnet.

Für die Messungen in Kapitel 4 wird der Quantenpunkt in einem bestimmten Anfangszustand präpariert ($t < 0$) und dann einer Störung ($t \geq 0$) ausgesetzt. Während der ganzen Zeit werden die Photonen, die die APD detektiert, gemessen. Dies wird mehrfach (n -mal) wiederholt. Die Photonen werden anschließend für jede einzelne Messung (englisch: shot) aufaddiert und so gemittelt. Man spricht auch von einer n -shot Messung. Als Ergebnis erhält man eine Transiente, die die Zeitentwicklung der resonanten Fluoreszenz beschreibt. An die Störung des Quantenpunktes sind dabei zunächst keine Anforderungen gestellt. Häufig wird dabei aber die Gate-Spannung V_g [Kurzmann16c, Al-Ashouri18, Kerski21] gepulst oder aber die Laserintensität [Kurzmann16a, Lochner21b] oder beides [Kurzmann16b, Merkel17].

Für die Messungen in Kapitel 5 wird der Quantenpunkt nicht gezielt präpariert und dann einer Störung ausgesetzt. Vielmehr befindet sich der Quantenpunkt permanent in einem dynamischen Gleichgewicht mit dem Rückkontakt, in dem Elektronen zwischen dem Quantenpunkt und dem Reservoir hin- und hertunneln. Für das Experiment wird der Quantenpunkt durchgängig mit dem Anregungslaser bestrahlt und jedes einzelne Photonendetektionsereignis gespeichert. Zur Auswertung werden die einzelnen Ereignisse in diskreten Zeitintervallen gruppiert. Diese leicht gemittelte Zeitreihe der resonanten Fluoreszenz zeigt Sprünge in ihrer Intensität, die auf einzelnen Tunnelereignissen [Kurzmann19] oder ionisierenden Prozessen (wie dem Auger-Effekt [Lochner20]) beruhen, die die optische Anregung erlauben oder verbieten. Dieses Signal wird auch als *Telegraphen-Signal* bezeichnet.

3.3. Leitfähigkeitsspektroskopie

Im Kapitel 6 wird ein Ensemble von selbstorganisierten Quantenpunkten mit der sogenannten Leitfähigkeitsspektroskopie elektrisch charakterisiert. Die Probe wurde dazu in einen Kryostaten eingebaut (Cryogenics 9 Tesla CFM-VTI), der es ermöglicht die Probe auf Temperaturen bis zu 2 K herunterzukühlen. Durchgeführt wurden die Messungen bei 9,5 K. Eine Ausnahme bildet die Messung in Abbildung 6.3, die bei Außerdem ist in dem Kryostaten eine supraleitende Spule eingebaut, mit der es möglich ist am Ort der Probe ein Magnetfeld von bis zu 9 T zu erzeugen. Um das nicht nur entlang einer ausgezeichneten Richtung anzulegen wurde ein rotierbarer Probenhalter benutzt. Mit diesem konnte das Magnetfeld frei in der x - y -Ebene (senkrecht zur Wachstumsrichtung z) angelegt werden.

Bei der Leitfähigkeitsspektroskopie misst man den Strom I_{SD} , der durch den leitfähigen Kanal der Transistorstruktur der Probe (vgl. Kap. 3.1.1) fließt. Dazu legt man eine konstante Spannung V_{SD} an den Source-Kontakt an. Die Strommessung erfolgt über einen Transimpedanzverstärker (Femto DLPCA-200), auch Strom-Spannungs-Wandler, am Drain-Kontakt (vgl. Abb. 3.6(a), *AMP*). Dessen Ausgangssignal wiederum wird mit einer Oszilloskop-Karte (National Instruments PCI-5122) gemessen. Die Leitfähigkeit des Kanals und damit der gemessene Strom hängt von der Ladungsträgerdichte n im Kanal ab. Diese wiederum ist in der Transistorstruktur abhängig von dem elektrischen Feld, das am Ort des Kanals herrscht (vgl. Abb. 3.1). Dieses Feld kann sowohl durch die Gate-Spannung V_g ver-

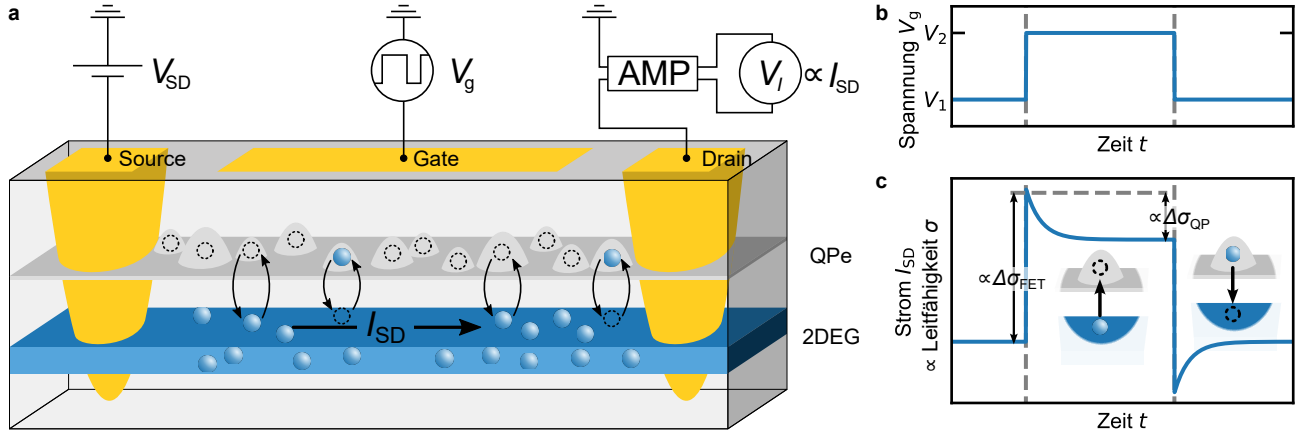


Abbildung 3.6.: Schematische Darstellung der elektrischen Charakterisierung mit Leitfähigkeitsspektroskopie. **a** An den Source-Kontakt wird eine konstante Spannung V_{SD} angelegt. Der dadurch induzierte Strom I_{SD} im 2DEG wird mit einem Transimpedanzverstärker (AMP) am Drain-Kontakt gemessen. An das Gate wird ein Spannungspuls V_g angelegt (**b**), der das Tunneln von Elektronen zwischen dem 2DEG und den Quantenpunkten kontrolliert. **c** Im gemessenen Strom I_{SD} ist eine Änderung aufgrund des Spannungspulses zu beobachten. Eine schnelle Änderung $\propto \Delta\sigma_{FET}$ findet durch das elektrische Feld der Spannung statt, eine langsamere exponentielle Transiente $\propto \Delta\sigma_{QP}$ tritt durch die tunnelnden Elektronen auf. Die Änderung $\Delta\sigma_{QP}$ ist entgegengesetzt zu der Änderung $\Delta\sigma_{FET}$.

ursacht werden, als auch durch eine elektrische Ladung in den Quantenpunkten erfolgen. Die Ladung in den Quantenpunkten kommt dadurch zustande, dass man mithilfe des elektrostatischen Beitrages (vgl. Gl. (3.1)) die Energie der verschiedenen Quantenpunkt-Vielteilchenzustände verändern kann in Bezug auf das chemische Potential des Rückkontaktes μ . Ist diese Energie tief genug ist es möglich, dass Elektronen aus dem Rückkontakt in die Quantenpunkte tunneln. Da der elektrostatische Beitrag über die Gate-Spannung V_g beeinflusst wird, gibt es zwei Beiträge zur Änderung der Leitfähigkeit, die eine Abhängigkeit von der Gate-Spannung besitzen: (1) Der Feldeffekt-Transistoranteil $\Delta\sigma_{FET}$, der direkt über die Veränderung des Leitungsbandkantenverlaufs (vgl. Abb. 3.1) erfolgt, die auch ohne Quantenpunkte in der Struktur geschehen würde; (2) Der Quantenpunktanteil $\Delta\sigma_{QP}$, der über die Ladung in den Quantenpunkten vermittelt wird, die besetzt werden aufgrund des elektrostatischen Beitrags (vgl. Gl. (3.1)) zu der Vielteilchenenergie.

Um die Besetzung der Quantenpunkte elektrisch zu charakterisieren müssen diese beiden Beiträge von einander getrennt werden. Dies ist möglich, da die Effekte auf unterschiedlichen Zeitskalen erfolgen. Die Veränderung $\Delta\sigma_{FET}$ erfolgt sehr schnell. Ultimativ wäre sie durch die Ausbreitungsgeschwindigkeit des elektrischen Feldes von V_g limitiert. In einer realen Probe wird sie jedoch hauptsächlich durch die RC -Konstante der Transistorstruktur bestimmt und liegt im Bereich von wenigen μs . Die Veränderung $\Delta\sigma_{QP}$ erfolgt im Vergleich dazu recht langsam, genau genommen kann sie sogar gezielt beeinflusst werden. Denn die Tunnelprozesse vom Rückkontakt in die Quantenpunkte, werden zwar auch durch die schnelle Veränderung des elektrischen Feldes von V_g initialisiert, die charakteristische Relaxationszeit wird jedoch durch die inverse Tunnelrate der Elektronen durch die Barriere bestimmt. In der untersuchten Probe lagen die höchsten Tunnelraten unterhalb von $\gamma_{max} < 10 \text{ ms}^{-1}$. Die dazugehörige inverse Tunnelrate beträgt also $1/\gamma_{max} > 100 \mu s$. Um die Beiträge zu trennen wird darum ein Spannungspuls als V_g an den Gate-Kontakt angelegt (vgl. Abb. 3.6(b)). In dem Strom I_{SD} durch den Kanal kann dann eine schnelle Veränderung aufgrund von $\Delta\sigma_{FET}$ beobachtet werden (vgl. Abb. 3.6(c)). Befindet sich in dem Spannungsbereich des Pulses die Tunnelspannung für einen oder mehrere Vielteilchenzustände, so ist die schnelle Veränderung gefolgt von einem exponentiellen Verlauf, der den Tunnelprozessen entspricht. In welcher Art und Weise die Spannungspulse angelegt werden und

welche Aussagen sich daraus ergeben, ist Gegenstand der nächsten beiden Kapitel.

Dafür welchen Einfluss die besetzten Quantenpunkte auf die Leitfähigkeit des Kanals haben wurde ausschließlich diskutiert, dass das elektrische Feld der besetzten Zustände die Ladungsträgerdichte beeinflusst. Allerdings ist eine nicht weniger wichtige Größe für die Leitfähigkeit die Beweglichkeit der Elektronen μ_{e^-} . Diese hängt selber von der Ladungsträgerdichte ab $\mu_{e^-} \propto n^\alpha$ und kann auch durch verschiedene weitere Prozesse beeinflusst werden [Hwang08]. Ein möglicher und viel diskutierter Einfluss ist, dass in den Quantenpunkten lokalisierte Ladungen zu einer lokalen räumlichen Modulation des Potentials im Kanal führen können. Man spricht auch davon, dass die Elektronen im Kanal an sogenannten *Coulomb-Streuern* streuen können. Dieser Effekt wurde in [Marquardt11a, Kurzmänn15] für eine nominell gleiche Tunnelbarriere, wie in dieser Arbeit gemessen. Es stellte sich heraus, dass der Coulomb-Streu-Anteil an der Mobilitätsänderung nicht nennenswert ist und man in sehr guter Näherung davon ausgehen kann, dass die Änderung der Leitfähigkeit aufgrund der Beladung der Quantenpunkte nur von einer Änderung der Ladungsträgerdichte verursacht wird.

3.3.1. Spektroskopie nahe am Gleichgewicht

Wenn man die Spannung V_g kontinuierlich erhöht, verringert sich die Energie der Elektronenzustände im Quantenpunkt im Vergleich zum chemischen Potential μ des 2DEGs. Dies führt dazu, dass die Zustände in den Quantenpunkten nach und nach mit Elektronen befüllt werden. Man spricht auch von den Mehrelektronengrundzuständen, die im Quantenpunkt besetzt werden bzw. von dem Gleichgewichtsspektrum [Marquardt09]. Versucht man dieses zu messen, indem man die Leitfähigkeit als Funktion der Spannung V_g misst, dann lassen sich die Beiträge der Transistorstruktur und der Quantenpunkte an der Veränderung kaum trennen. Darum nutzt man die Leitfähigkeitsspektroskopie, indem man einen Spannungspuls anlegt. Dieser kann allerdings auch Nichtgleichgewichtszustände anregen. Um dies zu minimieren nutzt man zur Messung der Grundzustände bzw. des Gleichgewichtsspektrums einen Spannungspuls mit kleiner Amplitude ΔV (im Vergleich zur Energie(-aufspaltung) der Zustände) und erhöht die mittlere Spannung schrittweise (vgl. Abb. 3.7(a)). Man spricht auch von Leitfähigkeitsspektroskopie nahe am Gleichgewicht. Durch die Spannungsmodulation tunneln die Elektronen periodisch zwischen den Quantenpunkten und dem 2DEG hin und her. Zur Auswertung bestimmt man sowohl für das Beladen der Quantenpunkte als auch für deren Entladen die Amplitude der Stromtransiente: $\Delta I = I(t = 0) - I(t \rightarrow \infty)$. Diese ist proportional dazu, wieviel Ladung tunnelt: $\Delta I \propto \Delta \sigma_{QP} \propto Q$ (vgl. Abb. 3.7(b)) [Marquardt11a, Kurzmänn15].

Trägt man die Amplitude gegen die mittlere Gate-Spannung auf, so erhält man das Transportspektrum (vgl. Abb. 3.7(c) unten). In diesem zeigt sich ein Maximum für die Tunnelspannung jedes Mehrelektronengrundzustandes. Die Maxima haben die Form einer Normalverteilung. Diese entsteht dadurch, dass keine einzelnen Quantenpunkte untersucht werden, sondern ein Ensemble. Dadurch, dass sich die Quantenpunkte leicht in ihrer Größe unterscheiden, besitzen sie jeweils leicht unterschiedliche Tunnelspannungen. Welcher Mehrelektronenzustand der Grundzustand ist, hängt von der Gesamtenergie der Zustände ab. Wie in Kap. 2.3 beschrieben, lässt sich diese als Summe der Einteilchenenergien der einzelnen Ladungsträger und der jeweiligen Paar-Wechselwirkungsterme beschreiben (vgl. Gl. (2.9)). Zusätzlich gibt es in der Diodenstruktur auch noch den elektrostatischen Beitrag (vgl. Gl. (3.1)). Da wir an dieser Stelle reine Elektronenzustände beschreiben gilt für die Anzahl an Löchern $M = 0$. Für eine reale Probe hängen die tatsächlichen Spannungswerte von verschiedenen Randbedingungen ab, wie zum Beispiel dem Material der Quantenpunkte, deren Größe, dem Hebelarm etc. Die prinzipielle Abhängigkeit der Energien von der Spannung V_g und damit die qualitative Form des Transportspektrums ist unter der Annahme eines isotropen zweidimensionalen harmonischen Oszillators jedoch universell. Eine ausführlichere Herleitung ist in [Warburton98] zu finden. Die Energien der sieben ersten Mehrelektronengrundzustände sind in der Tabelle 3.1 gelistet und in der Abbildung 3.7(c) oben als grau gestrichelte Linien dargestellt. Ihre Energie ändert sich aufgrund des elektrostati-

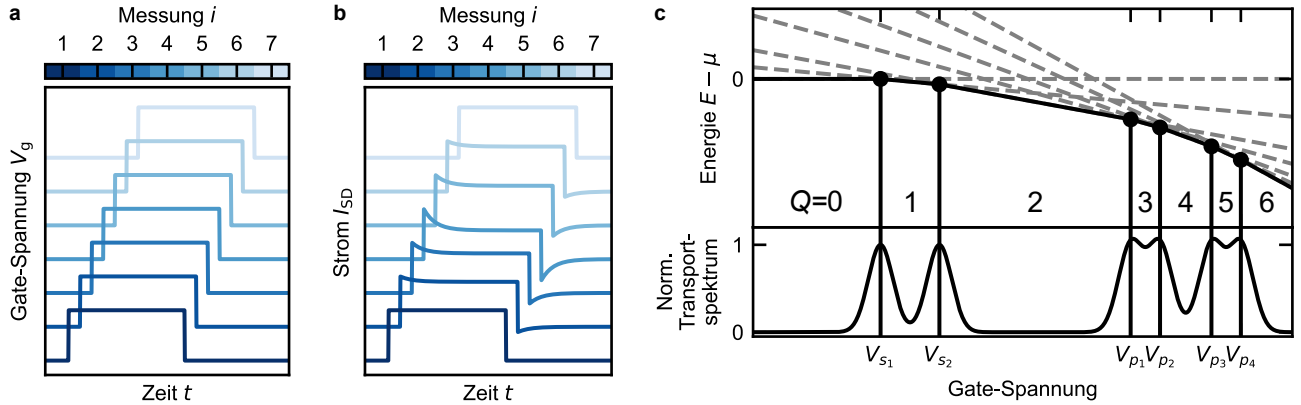


Abbildung 3.7.: Leitfähigkeitsspektroskopie nahe am Gleichgewicht. **a** Für die Leitfähigkeitsspektroskopie wird ein Spannungspuls V_g angelegt. Es wird eine kleine Amplitude ΔV gewählt, um keine Nichtgleichgewichtszustände anzuregen. **b** Der Strom I_{SD} zeigt eine periodische Modulation. Wenn sich in dem Spannungsintervall ΔV die Tunnelspannung eines Zustandes befindet zeigt sich eine exponentielle Transiente. Trägt man die Stromdifferenz $\Delta I = I(t = 0) - I(t \rightarrow \infty)$ gegen die mittlere Gate-Spannung auf ergibt sich das Gleichgewichtsspektrum (**c** unten). Dieses entsteht dadurch, dass durch den elektrostatischen Energiebeitrag für höhere Spannung V_g Mehrelektronenzustände immer höherer Ladung Q zum Vielteilchengrundzustand werden (**c** oben). Die Ladungsänderung erfolgt über Elektronen, die zwischen dem Rückkontakt und den Quantenpunkten tunneln.

schen Beitrags (vgl. Gl. (3.1)) ausgehend von Anzahl an Elektronen aus denen sie bestehen. Der jeweils energetisch günstigste Zustand (Grundzustand) ist jeweils als schwarze Linie hervorgehoben. Die Tunnelspannungen liegen vor, wenn die Energie eines angeregten Zustandes die des Grundzustandes kreuzt (vgl. Abb. 3.7 schwarze Kreise). Dabei ändert sich gleichzeitig die Ladung Q in den Quantenpunkten um 1. Unter dieser Energielandschaft ist das zugehörige normierte Transportspektrum dargestellt (vgl. Abb. 3.7(c) unten). Diese Form zeigt sich prinzipiell auch in realen Messungen. Bei der Befüllung der p -Zustände, also für die Grundzustände für $3 \rightarrow 6$ Elektronen gilt nach Warburton et al. allerdings die Hundsche Regel, sodass zunächst alle Orbitale aufgefüllt und anschließend die Spins gepaart würden. Energetisch wäre dies günstiger aufgrund des Austausch-Terms E_{pp}^x . In Messungen an realen Quantenpunkt-Ensembles konnte allerdings gezeigt werden, dass die Hundsche Regel nicht gilt [Beckel14a, Zhou22], da die Quantenpunkte nennenswert anisotrop sind [Wibbelhoff05, Vdovin07] und dies die Entartung der p -Orbitale aufhebt. Die möglichen Ursachen für eine solche Anisotropie werden in Kapitel 6.4 genauer erläutert.

3.3.2. Nichtgleichgewichtsspektroskopie

Die Leitfähigkeitsspektroskopie lässt sich nicht nur dazu nutzen die Mehrelektronengrundzustände eines Quantenpunkt-Ensembles zu untersuchen, sondern auch um angeregte Zustände zu studieren. Man spricht in diesem Zusammenhang auch von Nichtgleichgewichtsspektroskopie [Marquardt11b, Beckel14b]. Dazu nutzt man zwar ebenfalls eine Reihe von Spannungspulsen, jedoch mit gleich bleibender Spannung V_{prep} , mit der zunächst der Ausgangszustand präpariert wird (vgl. Abb. 3.8(a)). Wir wollen im Folgenden exemplarisch die Beladung des unbesetzten Ensembles erläutern, analoges gilt jedoch auch für die Entladung bzw. die Beladung anderer Zustände. Dafür würde man als den gemeinsamen Spannungswert V_{prep} aller Pulse den tieferen Spannungswert wählen. Dieser dient dazu, alle Quantenpunkte des Ensembles vor dem Spannungspuls ($t = 0$) in einem bestimmten Zustand zu präparieren. Um die Beladung des unbesetzten Quantenpunktes zu studieren würde man den Wert beispielsweise ausgehend von einem Gleichgewichtsspektrum so wählen, dass sich in den Quantenpunkten die Ladung $Q = 0$ befindet, also $V_{\text{prep}} < V_{s_1}$ (vgl. Abb. 3.7(c)). In unserem Beispiel würde man den oberen Wert

Tabelle 3.1.: Vielteilchenenergien in Abhängigkeit von der angelegten Gate-Spannung V_g und Elektronenkonfiguration für die ersten sieben Mehrelektronengrundzustände nach [Warburton98].

Anzahl an Elektronen N	Elektronenkonfiguration	Energie $E_N(V_g) - \mu$
0	-	0
1	s	$\hbar\omega - \lambda^{-1}eV_g$
2	ss	$2\hbar\omega - 2\lambda^{-1}eV_g + E_{ss}^c$
3	ssp_+	$4\hbar\omega - 3\lambda^{-1}eV_g + E_{ss}^c + 2E_{sp}^c - E_{sp}^x$ $= 4\hbar\omega - 3\lambda^{-1}eV_g + 9E_{ss}^c/4$
4	ssp_+p_-	$6\hbar\omega - 4\lambda^{-1}eV_g + E_{ss}^c + 4E_{sp}^c + E_{pp}^c - 2E_{sp}^x - E_{pp}^x$ $= 6\hbar\omega - 4\lambda^{-1}eV_g + 4E_{ss}^c$
5	$ssp_+p_-p_+$	$8\hbar\omega - 5\lambda^{-1}eV_g + E_{ss}^c + 6E_{sp}^c + 3E_{pp}^c - 3E_{sp}^x - E_{pp}^x$ $= 8\hbar\omega - 5\lambda^{-1}eV_g + 53E_{ss}^c/8$
6	$ssp_+p_-p_+p_-$	$10\hbar\omega - 6\lambda^{-1}eV_g + E_{ss}^c + 8E_{sp}^c + 6E_{pp}^c - 4E_{sp}^x - 2E_{pp}^x$ $= 10\hbar\omega - 6\lambda^{-1}eV_g + 39E_{ss}^c/4$

der Spannungspulse V_{sense} schrittweise erhöhen (vgl. Abb. 3.8(a)). Dadurch ermöglicht man nach und nach, das immer weitere Zustände beladen werden. In den Strommessungen V_{SD} sieht man ab der ersten Tunnelspannung einen exponentiellen Verlauf. Dieser Verlauf kann sich auf zwei Arten verändern. (1) Wenn mehr Ladung in die Quantenpunkte mit der gleichen Tunnelrate geladen werden kann, dann erhöht sich die Amplitude des Verlaufs: $A \exp(-\gamma t) + B \exp(-\gamma t) = (A + B) \exp(-\gamma t)$ (vgl. Abb. 3.8(b) oben). (2) Es kann sich ebenfalls die Rate der Beladung verändern, wobei die Amplitude identisch bleibt (vgl. Abb. 3.8(b) oben). Dazu kann es zum Beispiel kommen, wenn es für die Beladung eines bestimmten Prozesses zunächst nur einen Tunnelprozess gibt, jedoch schließlich ein zusätzlicher paralleler (schnellerer) Prozess die Besetzung des gleichen Zustandes ermöglicht.

Um diese beiden Veränderungen zu untersuchen bildet man die Differenz zweier aufeinander folgender Stromtransienten, man spricht auch von der (diskreten) differentiellen Stromtransiente $dI_{\text{SD}}/dV_g \approx \Delta I_{\text{SD}}[V_{\text{prep}}, V_{\text{sense},2}] - \Delta I_{\text{SD}}[V_{\text{prep}}, V_{\text{sense},1}]$ (vgl. Abb. 3.8(c)). Der Strom im Kanal I_{SD} verändert sich, aufgrund des elektrischen Feldes, das von der Ladung in den Quantenpunkten ausgeht. Darum ist die Zeitentwicklung der Stromänderung proportional zur Zeitentwicklung der Ladung: $\Delta I_{\text{SD}}(t) \propto Q(t)$. Daraus folgt wiederum, dass die Zeitentwicklung der differentiellen Stromtransiente proportional ist zur Zeitentwicklung der Ladungsdifferenz $dI_{\text{SD}}/dV_g(t) \propto \Delta Q(t)$. Sie zeigt also sowohl ob für die erhöhte Spannung V_{sense} (1) insgesamt mehr Ladung tunnelt (vgl. Abb. 3.8(c) oben) oder aber (2) ob die gleiche Menge an Ladung zu einem anderen Zeitpunkt tunnelt (vgl. Abb. 3.8(c) unten).

In der Literatur findet häufig eine alternative aber im Endeffekt äquivalente Betrachtung statt [Marquardt11b, Beckel14b]. Dabei berücksichtigt man anstelle der getunnelten Ladung die zeitabhängige Zustandsdichte des Endzustandes des Tunnelprozesses. Denn erhöht man die angelegte Spannung und damit die Menge an Ladung, die in die Quantenpunkte tunnelt, so geschieht dies, weil mehr Zustände (mehr aufintegrierte Zustandsdichte) unter dem chemischen Potential des 2DEGs liegen. Erhöht sich die Tunnelrate, so ist dies ebenfalls Ausdruck dessen, das weitere Zustände (schneller) beladen werden können.

Betrachtet man die differentiellen Stromtransienten $dI_{\text{SD}}/dV_g(t)$ für einen Zeitpunkt t und trägt ihre Werte gegen die Spannung V_{sense} auf, so erhält man wiederum Transportspektren (vgl. Abb. 3.8(d) unten). Für Zeitpunkte kurz man dem Spannungspuls $t \approx 0$ zeigen sich die Übergänge des präparierten Grundzustandes in die verschiedenen angeregten Zustände, die energetisch möglich sind. Für einen unbesetzt präparierten Quantenpunkt entspricht dies dem Tunnelprozess eines einzelnen Elektrons in den s -, den p - oder den d -Zustand. Die Tunnelspannungen ergeben sich durch die Kreuzungen der Energie

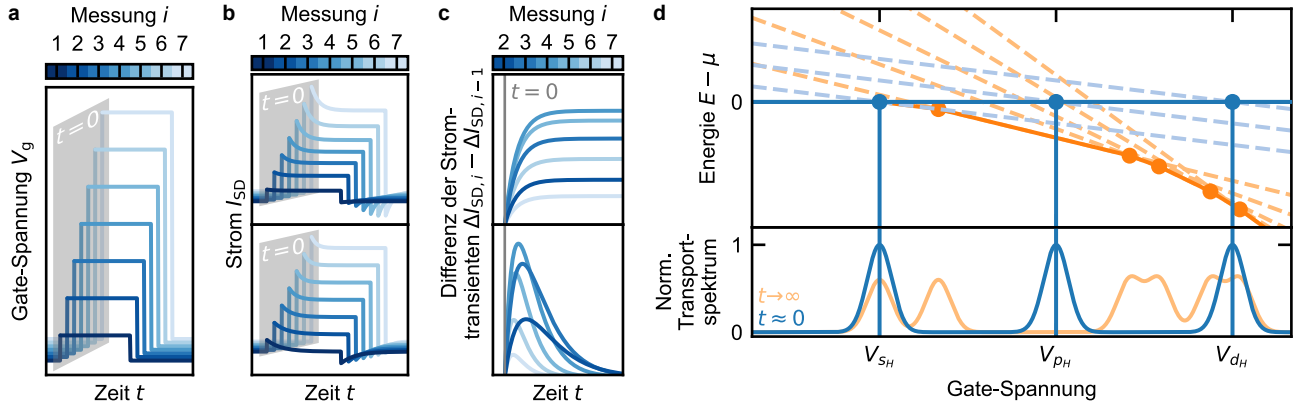


Abbildung 3.8.: Nichtgleichgewichts-Leitfähigkeitsspektroskopie. **a** Um angeregte Zustände zu untersuchen werden die Quantenpunkte zunächst mit der Spannung V_{prep} präpariert und anschließend zu hohen Spannungswerten V_{sense} gepulst. **b** Der Strom I_{SD} zeigt eine periodische Modulation. Wenn sich in dem Spannungsintervall ΔV die Tunnelspannung eines Zustandes befindet zeigt sich eine exponentielle Transiente. (Oben) Tunnelt bei höheren Spannungen mehr Ladung mit der gleichen Rate, so steigt die Amplitude. (Unten) Tunnelt die Ladung schneller, steigt die Rate der Transiente. **c** Die Differenzen der Stromtransienten $\Delta I_{\text{SD},i} - \Delta I_{\text{SD},i-1}$ zeigen, ob für die Spannung $V_{\text{sense},i}$ mehr Ladung tunnelt (oben) oder ob die gleiche Menge an Ladung schneller/langsamer tunnelt (unten) als bei der Spannung $V_{\text{sense},i-1}$. **d** Trägt man die differentielle Stromtransiente $dI_{\text{SD}}/dV_g(t) = \Delta I_{\text{SD}}[V_{\text{prep}}, V_{\text{sense},2}] - \Delta I_{\text{SD}}[V_{\text{prep}}, V_{\text{sense},1}]$ für einen Zeitpunkt ($t \approx 0$) gegen die Spannung V_{sense} auf ergibt sich das Nichtgleichgewichtsspektrum (blau). Dieses entsteht dadurch, dass die angeregten Zustände durch den elektrostatischen Energiebeitrag für höhere Spannung energetisch günstiger werden als der präparierte Zustand (**d** oben, horizontale blaue Linie). Trägt man die differentielle Stromtransiente für $t \rightarrow \infty$ auf ergibt sich das Gleichgewichtsspektrum (orange).

der Zustände (vgl. Abb. 3.8(d) oben, gestrichelte blaue Linien) mit dem leeren Quantenpunkt (vgl. Abb. 3.8(d) oben, senkrechte blaue Linie). Die Energien der angeregten Zustände sind in Tabelle 3.2 aufgeführt. Im Grenzwert für lange Zeiten $t \rightarrow \infty$ ergibt sich das Gleichgewichtsspektrum (vgl. Abb. 3.8(d) orange). Das Spektrum für kurze Zeiten $t \approx 0$ bezeichnet man auch als Nichtgleichgewichtsspektrum. Da es sich für verschiedene präparierte Zustände unterscheidet, gibt man diese üblicherweise mit an. Das Nichtgleichgewichtsspektrum für den unbesetzten Quantenpunkt bezeichnet man als das Spektrum des *Quantenpunkt-Wasserstoffs* [Marquardt11b]. Befänden sich die Quantenpunkte vor dem Spannungspuls bereits im 1-Elektronengrundzustand spräche man vom Quantenpunkte-Helium, für den 2-Elektronengrundzustand vom Quantenpunkt-Lithium etc.

Tabelle 3.2.: Energien der angeregten Einteilchenzustände des unbesetzten Quantenpunktes in Abhängigkeit von der angelegten Gate-Spannung V_g und deren Elektronenkonfigurationen nach [Warburton98], sowie geläufige Bezeichnungen.

Bezeichnungen	Elektronenkonfiguration	Energie $E(V_g) - \mu$
$s/s_H/s_1$	s	$\hbar\omega - \lambda^{-1}eV_g$
$p/p_H/p^*$	$p_+/p_-/p_x/p_y$	$2\hbar\omega - \lambda^{-1}eV_g$
$d/d_H/d^*$	$d_+/d_-/d_0$	$3\hbar\omega - \lambda^{-1}eV_g$

Teil II.

Nichtgleichgewichtsdynamik

„Was ich hasse [...] ist ein Römer namens Status Quo.“

– Ray Bradbury, *Fahrenheit 451* –

4. Auger- und Spin-Dynamik im Magnetfeld

In diesem Kapitel wurde ein optischer Trion-Übergang eines einzelnen Quantenpunktes im Magnetfeld untersucht (vgl. Abb. 4.1). Dieser Übergang ist von zentraler Bedeutung für die Anwendung von Quantenpunkten in der Quanteninformationstheorie. Denn nutzt man einen einzelnen Elektron-Spin in einem Quantenpunkt als Qubit, so lässt sich dessen Ausrichtung mithilfe eines einzelnen Photons auslesen. Man benutzt auch den Begriff eines Spin-Photon Interfaces [Yilmaz10]. Bei dem optischen Übergang regt man im Quantenpunkt ein Trion an (vgl. Kap. 2.3). Dies ist ein Vielteilchenzustand, der entsteht, wenn man in einem Quantenpunkt, der bereits mit einem einzelnen Elektron besetzt ist $|e^- \rangle$, zusätzlich ein Elektron-Loch-Paar erzeugt. Das Trion besteht deshalb aus zwei Elektronen in der s -Schale, die ein Spin-Singlett bilden ($\uparrow\downarrow$), und einem schweren Loch ($\vec{j}_z = \pm 3/2$, vgl. Kap. 2.2), das sich ebenfalls im s -Zustand befindet und ungepaart bleibt (\uparrow oder \downarrow). Sowohl der Anfangszustand $|e^- \rangle$ als auch der Trion-Zustand $|X^- \rangle$ sind Spin-entartet. In einem Magnetfeld (in Faraday-Geometrie, entlang der Wachstumsrichtung z) wird diese Entartung jedoch aufgehoben und es entsteht ein 4-Niveau-System (vgl. Abb. 4.2(a)). In diesem gibt es durch die optischen Auswahlregeln zwei energetisch unterschiedliche Übergänge ($|\uparrow \rangle \leftrightarrow |\uparrow\downarrow\uparrow \rangle$ und $|\downarrow \rangle \leftrightarrow |\uparrow\downarrow\downarrow \rangle$), mit denen man die Ausrichtung des einzelnen Elektron-Spins messen kann. Zusätzlich zu den optischen Übergängen gibt es auch noch solche, die eigentlich optisch verboten sind ($|\uparrow\downarrow\uparrow \rangle \rightarrow |\downarrow \rangle$ und $|\uparrow\downarrow\downarrow \rangle \rightarrow |\uparrow \rangle$), da sich der Gesamtdrehimpuls um $\Delta J = 2$ ändert. Dadurch entstehen zwei verknüpfte Λ -Schemata (vgl. Abb. 4.2(a) rötliche und bläuliche Übergänge). Die Ausnutzung dieser Schemata erlaubt es die Besetzungswahrscheinlichkeit der Spin-Zustände aus dem thermodynamischen Gleichgewicht zu bringen. Man spricht auch vom *optischen Spin-Pumpen* oder aber der *optischen Spin-Kühlung/-Heizung* [Atature06, Xu07, Dreiser08]. Dies kann genutzt werden um den Quantenpunkt gezielt in einem Spin-Zustand zu präparieren bzw. ein Qubit in einem bestimmten Zustand zu initialisieren. So wurde bereits die volle optische Kontrolle über den Spin-Zustand mithilfe dieses 4-Niveau-Schemas berichtet [Press08].

Allerdings wurde dabei bislang der Auger-Effekt vernachlässigt. Dieser wurde 2016 in einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkten beobachtet [Kurzmann16a]. Dabei handelt es sich um einen nicht-strahlenden Übergang des Trions, bei dem die Rekombinationsenergie des Elektron-Loch-Paares nicht als Photon emittiert, sondern an das zweite Elektron übertragen wird (vgl. Abb. 4.2(b)). Dadurch wird der Quantenpunkt ionisiert und der optische Trion-Übergang kann erst wieder angeregt werden, wenn ein Elektron aus dem benachbarten Reservoir in den Quantenpunkt tunnelt. Da dieser Tunnelprozess aus dem Reservoir Spin-unabhängig ist, könnte der Auger-Effekt sowohl dafür sorgen, dass es zu einer Änderung der Elektronen-Spins kommt (Spin-Pumpen), als auch eine Randomisierung des Elektronen-Spin verursachen, die bisher noch nicht berücksichtigt wurde. Allerdings wurde bisher auch noch nicht untersucht, wie sich die Dynamik des Auger-Effekt in selbstorganisierten Quantenpunk-

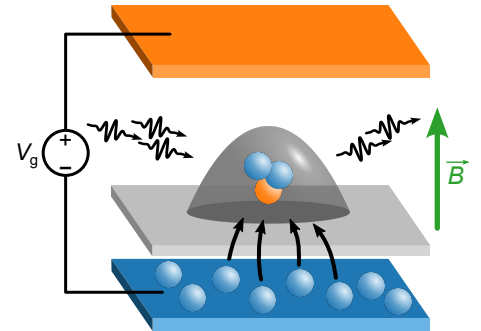


Abbildung 4.1.: Der Quantenpunkt ist in eine Diodenstruktur eingebracht und kann mit Elektronen aus dem Rückkontakt befüllt werden. Dadurch ist die optische Anregung eines Trions (zwei Elektronen und ein Loch) möglich. Der optische Trion-Übergang wird mit zeitaufgelöster resonanter Fluoreszenz charakterisiert. Entlang der Wachstumsrichtung z ist ein Magnetfeld \vec{B} angelegt.

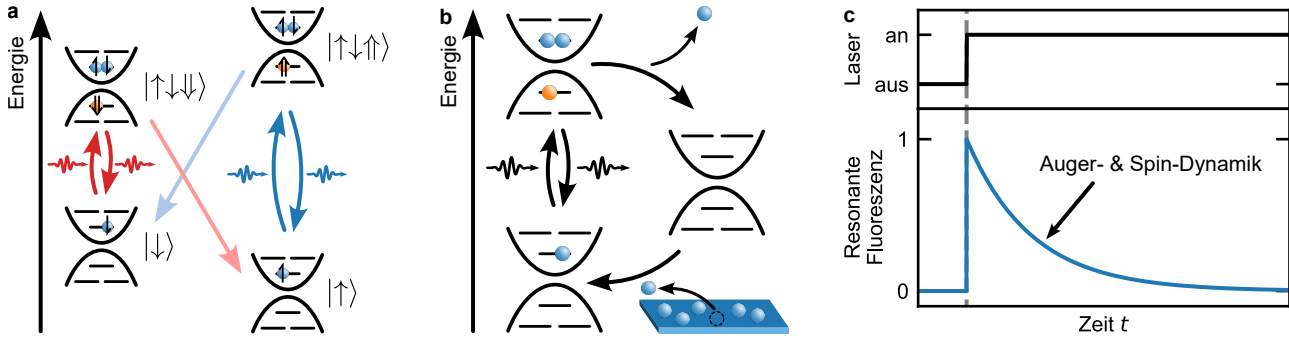


Abbildung 4.2.: Auger- und Spin-Dynamik in einzelnen Quantenpunkten im Magnetfeld. **a** Unter dem Einfluss des Magnetfeldes spaltet der Trion-Übergang in ein 4-Niveau-System auf. Zusätzlich zu den optisch erlaubten Übergängen (dunkel rot, dunkel blau) existieren weitere Übergänge (hell rot, hell blau), die die Spin-Orientierung des Elektronenzustandes ändern. **b** Ein zusätzlicher Prozess, der bisher nicht berücksichtigt wurde, ist der Auger-Effekt. Dabei zerfällt das angeregte Trion über einen nicht strahlenden Prozess, bei dem die Rekombinationsenergie eines Elektron-Loch-Paares an das zweite Elektron übergeht, das den Quantenpunkt verlässt. Anschließend kann im Quantenpunkt vorübergehend nicht der Trion-Übergang angeregt werden, bis ein Elektron aus dem Rückkontakt in den Quantenpunkt tunnelt. **c** Die Auger- und Spin-Dynamik, die durch die optische Anregung verursacht wird, lässt sich mit zeitaufgelöster resonanter Fluoreszenz messen. Dabei wird der eingestrahlte Laser gepulst und die Zeitentwicklung der detektierten Photonen untersucht.

ten selbst im Magnetfeld verändert [Kurzmann16a, Lochner20, Löbl20]. Um sowohl den Einfluss des Auger-Effektes auf die Spin-Dynamik als auch dessen Verhalten im Magnetfeld zu studieren, wurden im Rahmen dieser Arbeit Messungen der zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenz (vgl. Kap. 3.2.2) an einem optischen Trion-Übergang für verschiedene Magnetfelder durchgeführt (vgl. Abb. 4.2(c)). Dazu wurde mit der Spannung V_g zwischen dem Gate und dem Rückkontakt eingestellt, dass sich im Grundzustand (ohne optischen Anregung) ein Elektron im Quantenpunkt befindet. Um den Einfluss der optischen Anregung zu beobachten, wurde der eingestrahlte Laser gepulst ($t < 0$ Laser aus, $t \geq 0$ Laser an) und die Zeitentwicklung der detektierten resonanten Fluoreszenz gemessen. Um aus diesen Daten Informationen über die einzelnen beteiligten dynamischen Prozesse zu gewinnen, wurde ein Ratenmodell der Nichtgleichgewichtsdynamik aufgestellt und an die Messdaten angepasst. Dieses Modell wird im folgenden Kapitel erläutert.

Die Daten wurden im Rahmen der Masterarbeit und in Zusammenarbeit mit Hendrik Mannel aufgenommen. Die Ergebnisse wurden in ähnlicher Form bereits in der Masterarbeit [Mannel20] und dem Vorabdruck [Mannel21] veröffentlicht. Die Abbildungen und Formulierungen in diesem Kapitel sind an die beiden Arbeiten angelehnt.

4.1. Statistische Beschreibung der Dynamik im Magnetfeld

Zur Untersuchung der Spin-Dynamik wurden Messungen des optischen Trion-Überganges mit zeitaufgelöster resonanter Fluoreszenz durchgeführt. Zur statistischen Beschreibung wird in diesem Kapitel ein Ratenmodell aufgestellt. Dazu wird zunächst erklärt, welche Zustände an der Dynamik beteiligt sind und welche Übergänge berücksichtigt werden.

In einem externen Magnetfeld B entlang der Wachstumsrichtung z wird die Entartung des mit einem Elektron besetzten Quantenpunktes $|e^- \rangle$ und des mit dem negativen Trion besetzten Quantenpunktes $|X^- \rangle$ aufgehoben. Dies geschieht durch die Zeeman-Aufspaltung der Zustände (vgl. Kap. 2.5). Für den Elektron-Zustand ist ausschließlich der Spin $\vec{s}_z = \pm 1/2$ zu berücksichtigen: $|e^- \rangle \rightarrow |\uparrow \rangle, |\downarrow \rangle$. Wir nehmen an dieser Stelle an, dass die Spin-Richtung $|\uparrow \rangle$ energetisch günstiger ist. Für den Trion-Zustand ist der Gesamtdrehimpuls aller Ladungsträger relevant. Da die beiden Elektronen jedoch

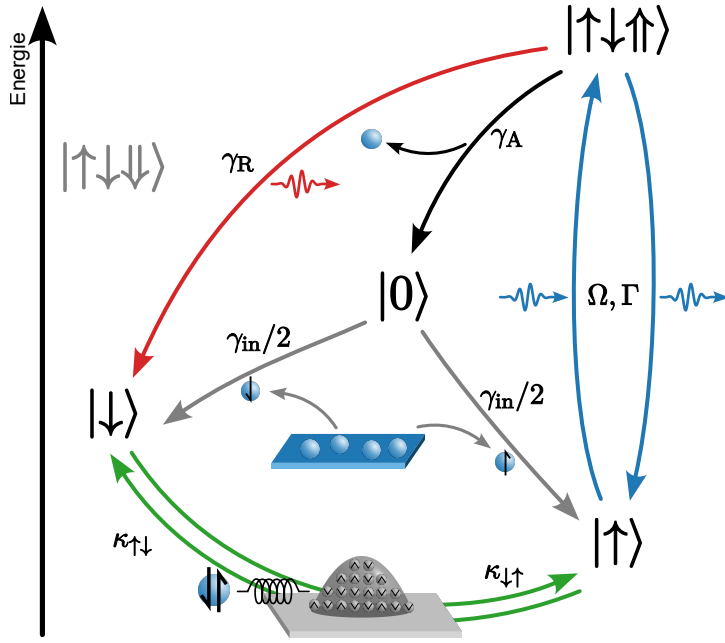


Abbildung 4.3.: Schematische Darstellung der Zustände und Prozesse bei der optischen Anregung des Trions im Magnetfeld. Der *blaue* optische Trion-Übergang $|\uparrow\rangle \leftrightarrow |\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$ wird mit einem resonanten Laser getrieben und führt dabei Rabi-Oszillationen mit der Frequenz Ω aus und emittiert Photonen mit der spontanen Emissionsrate Γ (blau). Der angeregte Zustand $|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$ kann über einen schwachen optischen Übergang ein Photon emittieren ($\rightarrow |\downarrow\rangle$) mit der Rate γ_R (rot) oder über einen Auger-Prozess ein Elektron ($\rightarrow |0\rangle$) mit der Rate γ_A (schwarz)). In den leeren Quantenpunkt tunneln Elektronen aus dem Reservoir mit jeweils der Rate $\gamma_{in}/2$ (grau). Die Elektronenzustände $|\downarrow\rangle$ und $|\uparrow\rangle$ können durch die Kopplung mit den Kern-Spins des Quantenpunktes mit einem Spin-Flip ineinander übergehen (mit den Raten $\kappa_{\uparrow\downarrow}$ und $\kappa_{\downarrow\uparrow}$ (grün)).

einen Gesamtdrehimpuls von 0 besitzen, ist der Gesamtdrehimpuls eines Trion-Zustandes gegeben durch das schwere Loch mit $\vec{j}_z = \pm 3/2$. Darum gilt für den Trion-Zustand $|X^- \rangle \rightarrow |\uparrow\downarrow\uparrow\rangle, |\uparrow\downarrow\downarrow\rangle$. Die Zeeman-Aufspaltung für das Trion ist der des Elektron entgegengesetzt, aufgrund der positiven Ladung des Loches. Auf diese Weise entsteht das bereits zuvor erwähnte 4-Niveau-System (vgl. Abb. 4.2(a)). Da wir im Folgenden auch den Auger-Effekt berücksichtigen, betrachten wir zusätzlich noch den leeren Quantenpunkt $|0\rangle$ (vgl. Abb. 4.3). Die Energie dieses Zustandes wird vom Magnetfeld nicht beeinflusst. Seine relative energetische Lage zu den Elektronenzuständen $|\uparrow\rangle$ und $|\downarrow\rangle$ hängt jedoch von der angelegten Spannung V_g ab. Diese wird im Experiment so gewählt, dass der Quantenpunkt mit einem Elektron besetzt ist, wenn er sich im thermodynamischen Gleichgewicht mit seiner Umgebung befindet. Darum liegt der unbesetzte Quantenpunktzustand oberhalb der Elektronenzustände. Auf diese Weise finden wir insgesamt fünf Zustände, die wir zu berücksichtigen hätten. Im Verlauf des Kapitels werden wir sie jedoch zu einem effektiven 3-Niveau-System reduzieren.

Für die Übergänge zwischen den Zuständen berücksichtigen wir zunächst die optisch erlaubten Übergänge mit einer Gesamtdrehimpulsänderung von 1: $|\uparrow\rangle \leftrightarrow |\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$ und $|\downarrow\rangle \leftrightarrow |\uparrow\downarrow\downarrow\rangle$. Da sie sich in ihrer Energie unterscheiden spricht man auch vom *roten* bzw. *blauen* Trion-Übergang ($\Delta E_{\text{blau}} > \Delta E_{\text{rot}}$). Mit der Frequenz des eingestrahnten Lasers lässt sich selektieren, welcher der beiden Übergänge angeregt wird. Da der blaue Trion-Übergang den energetisch günstigeren Elektronen-Zustand anregt, erhoffen wir uns eine größere Störung der Besetzungswahrscheinlichkeit der Elektronenzustände und damit der Spinbesetzung (Spin-Pumpen) zu erreichen, wenn wir diesen Übergang anregen. Darum wurde in den Messungen, die im Folgenden präsentiert werden, der blaue Trion-Übergang optisch angeregt (vgl. Abb. 4.3 blau). Zur optischen Anregung strahlen wir einen Laser ein, der die selbe Frequenz besitzt, wie der optische Übergang $\omega_{\text{Laser}} = \omega_{\text{blau}}$. Dabei kommt es zu Rabi-Oszillationen zwischen den Zuständen $|\uparrow\rangle$ und $|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$ unter Austausch von Photonen mit der eingestrahnten Lasermode. Aufgrund dieser Oszillation spricht man auch davon, dass man den optischen Übergang treibt. Die zeitlich gemittelte Besetzungswahrscheinlichkeit n des angeregten Zustandes $|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$ und die Rate Ω für die Übergänge zwischen den beiden Zuständen ($|\uparrow\rangle \leftrightarrow |\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$) hängen dabei von der eingestrahnten Laserleistung ab (vgl. [Loudon00, Kapitel 8]). Die Photonenemission dieses Überganges geschieht über spontane Emission mit der Rate Γ , wenn der Zustand angeregt ist und endet dabei im Grundzustand.

Wenn der Zustand $|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$ angeregt ist, gibt es allerdings noch zwei weitere mögliche Zerfallsarten. Eine Möglichkeit ist ein relativ schwacher optischer Übergang, der in der Literatur auch als *Spin-Flip-Raman*-Übergang bezeichnet wird [Atature06]. Bei diesem Prozess geht der angeregte Zustand in den Elektron-Zustand mit entgegengesetztem Spin $|\downarrow\rangle$ über, obwohl dies im Rahmen der optischen Auswahlregeln eigentlich nicht erlaubt wäre. Auf diesen Prozess ist üblicherweise das Spin-Pumpen zurückzuführen. Die Ursache dafür, dass der Übergang doch optisch erlaubt ist, ist eine Mischung der Basis-Zustände. Dies wurde ausführlich diskutiert und mit Experimenten untermauert in [Dreiser08]. Danach trägt bei geringen Magnetfeldstärken eine Mischung der Elektronenzustände den dominanten Anteil bei: $|\uparrow\rangle = \cos(\Phi)|\uparrow\rangle - \sin(\Phi)|\downarrow\rangle$ und $|\downarrow\rangle = \sin(\Phi)|\uparrow\rangle + \cos(\Phi)|\downarrow\rangle$, wobei $\Phi \ll 1$ die Stärke des Mischens beschreibt. Diese Mischung wird verursacht durch die Hyperfeinwechselwirkung des Elektronen-Spins mit den Kern-Spins der Quantenpunktatome. Für hohe Magnetfeldstärken wird dieser Effekt jedoch immer schwächer, da die Energien der Elektronen-Zustände durch den Zeeman-Effekt immer weiter aufspalten: $\Phi \propto \omega_{Z,e}^{-1}$. Allerdings gibt es zusätzlich eine magnetfeldunabhängige Mischung der leichten und schweren Loch-Zustände, sodass der vermeintlich reine Zustand $|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$ einen geringen aber endlichen Anteil eines leichten Loches mit $\vec{j}_z = 1/2$ besitzt. Für diesen Anteil erfüllt der Spin-Flip-Raman-Übergang auch für hohe Magnetfeldstärken die optischen Auswahlregeln. Die Resonanzfrequenz dieses schwachen optischen Überganges ist um die Zeeman-Aufspaltung der Elektronenzustände $\omega_{Z,e}$ verringert $\omega_{\text{Raman}} = \omega_{\text{blau}} - \omega_{Z,e}$. Da der eingestrahlte Laser auf den blauen optischen Trion-Übergang abgestimmt ist, wird der Spin-Flip-Raman-Übergang nicht bzw. nicht nennenswert durch den Laser getrieben. Zu der spontanen Emission eines Photons kann es trotzdem kommen und dadurch zu dem Übergang $|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle \rightarrow |\downarrow\rangle$ (vgl. Abb. 4.3 rot). Diese Möglichkeit berücksichtigen wir mit der Rate $\gamma_{\text{R}} = \Phi^2\gamma$ [Dreiser08]. Die letzte Zerfallsmöglichkeit für den angeregten Zustand $|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$ stellt der Auger-Prozess dar. Dabei rekombiniert das Loch mit einem der Elektronen. Die Rekombinationsenergie wird an das zweite Elektron übertragen, das den Quantenpunkt verlässt. Der Quantenpunkt verbleibt dabei vollständig unbesetzt $|0\rangle$ (vgl. Abb. 4.3 schwarz). Da $|0\rangle$ jedoch keinen Grundzustand darstellt, tunnelt ein Elektron aus dem Reservoir in den Quantenpunkt. Dies ist für beide Spin-Richtungen möglich und wir nehmen im Folgenden an, dass die Wahrscheinlichkeit für beide Varianten gleich ist und mit der Rate $\gamma_{\text{in}}/2$ beschrieben wird (vgl. Abb. 4.3 grau). Dies ist dadurch gerechtfertigt, dass wir im Experiment die Spannung V_g so wählen, dass sich die Zustände $|\downarrow\rangle$ und $|\uparrow\rangle$ deutlich unterhalb des chemischen Potentials des Rückkontaktes μ befinden. Dies soll sicherstellen, dass die resonanten Zustände im Rückkontakt, die die gleiche Energie besitzen, wie die Elektronenzustände und aus denen die Elektronen in den Quantenpunkt tunneln, vollständig besetzt sind. Die Tunnelbarriere sollte sich ebenfalls nicht nennenswert für die beiden Prozesse unterscheiden, da die Barriere einige 100 meV hoch ist (vgl. Abb. 3.3) und die vollständige Zeeman-Aufspaltung der Trion-Übergänge lediglich $E_Z < 0,8$ meV beträgt, wie wir im späteren zeigen werden (vgl. Abb. 4.5(c)).

Schließlich gibt es noch Übergänge zwischen den beiden Elektronenzustände $|\downarrow\rangle$ und $|\uparrow\rangle$ (vgl. Abb. 4.3 grün). Eine Möglichkeit dafür ist die bereits erwähnte Hyperfeinwechselwirkung des Elektronen-Spins mit den Kern-Spins der Quantenpunkt-Atome [Atature06]. Eine weitere Möglichkeit ist die Streuung der Elektronen mit einem einzelnen Phonon durch die Spin-Orbit Wechselwirkung [Kroutvar04, Lu10]. Wir beschreiben die Übergänge mit den beiden Raten $\kappa_{\downarrow\uparrow}$ und $\kappa_{\uparrow\downarrow}$. Im thermischen Gleichgewicht (ohne optische Anregung) ist die Besetzung der beiden Zustände durch die Boltzmann-Statistik gegeben

$$N_{\downarrow} = \exp(-E_Z/k_B T)/(1 + \exp(-E_Z/k_B T)) \quad \text{und} \quad N_{\uparrow} = 1/(1 + \exp(-E_Z/k_B T)), \quad (4.1)$$

siehe [Dreiser08]. Dadurch ergibt sich für die Raten die Abhängigkeit: $\kappa_{\uparrow\downarrow} = (N_{\downarrow}/N_{\uparrow}) \cdot \kappa_{\downarrow\uparrow}$.

Nach dieser Beschreibung aller Übergänge, die wir in unserem Ratenmodell berücksichtigen, fällt auf, dass der Zustand $|\uparrow\downarrow\downarrow\rangle$ an keinem Übergang beteiligt ist. Darum wird dieser im Folgenden nicht weiter berücksichtigt. Außerdem fassen wir die beiden Zustände $|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$ und $|\uparrow\rangle$ zusammen als optisch

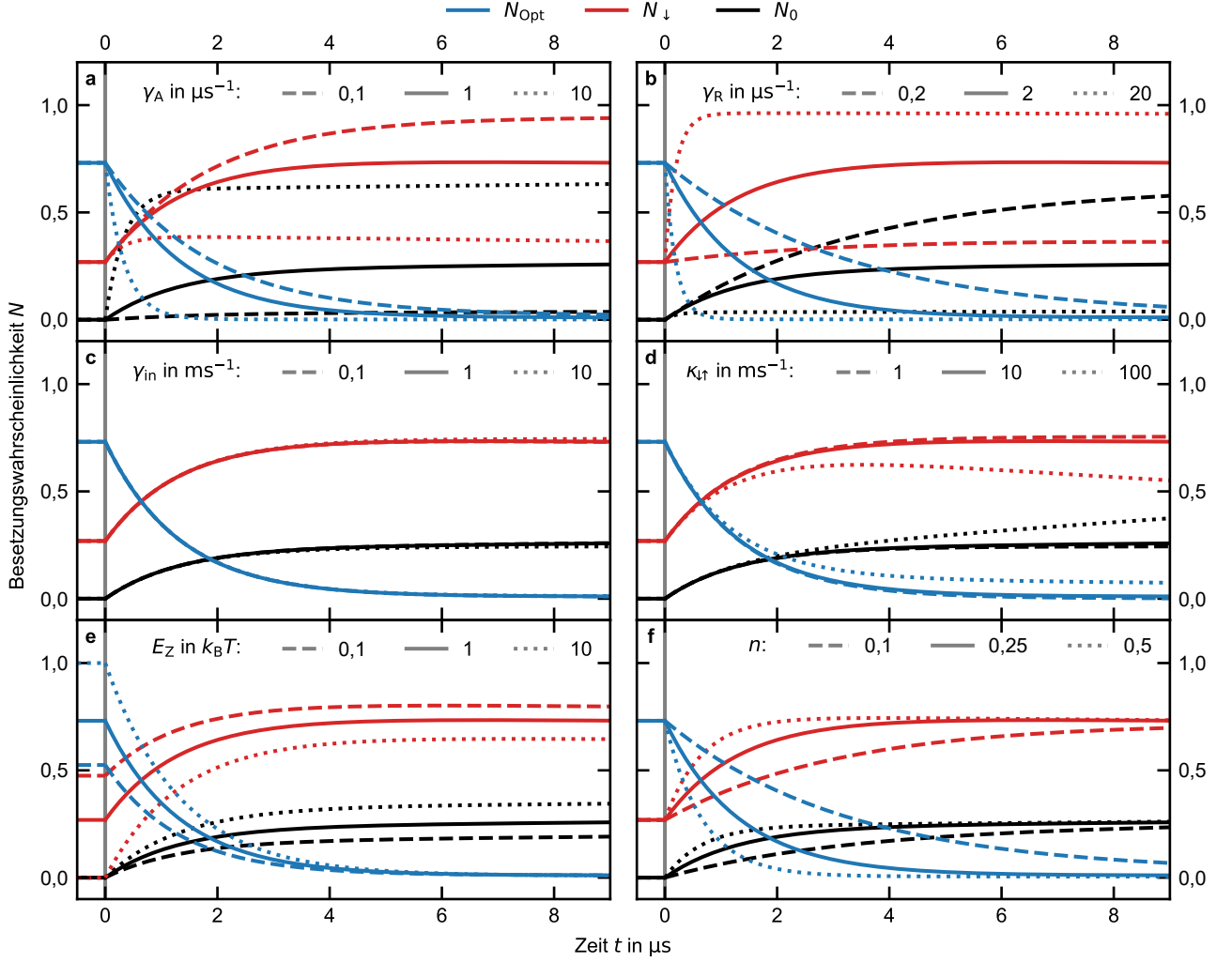


Abbildung 4.4.: Numerische Lösung des Ratenmodells für die Parameter: $\gamma_R = 2 \mu s^{-1}$, $\gamma_A = 1 \mu s^{-1}$, $\gamma_{in} = 1 ms^{-1}$, $\kappa_{\uparrow\downarrow} = 10 ms^{-1}$, $E_Z = k_B T$ und $n = 0,25$. Für $t < 0$ wird keine optische Anregung betrachtet ($n = 0$). Die Teilabbildungen zeigen jeweils den Einfluss eines Parameters auf die Zeitentwicklung der Besetzungswahrscheinlichkeiten: **a** Auger-Prozess, **b** Spin-Flip-Raman-Prozess, **c** Tunnelprozess in den leeren Quantenpunkten, **d** Spin-Flip zwischen den Elektronenzuständen, **e** Zeeman-Aufspaltung, **f** Optische Anregung bzw. relative Besetzungswahrscheinlichkeit.

aktiven (resonant angeregten) Zustand $|\text{Opt}\rangle$, da die Besetzungswahrscheinlichkeit zwischen den beiden Zuständen aufgrund der Rabi-Oszillationen deutlich schneller oszilliert als alle anderen Prozesse. Dass einige Prozesse nur für den Zustand $|\uparrow\downarrow\rangle$ oder $|\uparrow\rangle$ geschehen, berücksichtigen wir mit der zeitlich-gemittelten Besetzungswahrscheinlichkeit des Trion-Zustandes n : $N_{\uparrow\downarrow} = n \cdot N_{\text{Opt}}$ und $N_{\uparrow} = (1 - n) \cdot N_{\text{Opt}}$. Damit beschreibt n effektiv, wie stark die optische Anregung ist. Ist der eingestrahlte Laser verschwindend schwach gilt $n \rightarrow 0$, ist er sehr stark, sättigt $n \rightarrow 0,5$. Für die Beschreibung mit dem Rategleichungssystem betrachten wir also die drei Quantenpunkt-Zustände $|\downarrow\rangle$, $|0\rangle$ und $|\text{Opt}\rangle$ und die Prozesse: (1) Spin-Flip-Raman mit der Rate γ_R , (2) Auger mit der Rate γ_A , (3) Tunneln in den Quantenpunkt mit jeweils der Rate $\gamma_{in}/2$ und (4) Spin-Flip mit den Raten $\kappa_{\uparrow\downarrow}$ und $\kappa_{\downarrow\uparrow}$. Damit ergibt sich das Rategleichungssystem zu:

$$\frac{dN_0}{dt} = \gamma_A n \cdot N_{\text{Opt}} - \gamma_{in} N_0 \quad (4.2)$$

$$\frac{dN_{\downarrow}}{dt} = \frac{\gamma_{\text{in}}}{2} N_0 + \kappa_{\uparrow\downarrow}(1-n) \cdot N_{\text{Opt}} + \gamma_{\text{R}} n \cdot N_{\text{Opt}} - \kappa_{\downarrow\uparrow} N_{\downarrow} \quad (4.3)$$

$$\frac{dN_{\text{Opt}}}{dt} = \frac{\gamma_{\text{in}}}{2} N_0 + \kappa_{\downarrow\uparrow} N_{\downarrow} - \gamma_{\text{A}} n \cdot N_{\text{Opt}} - \gamma_{\text{R}} n \cdot N_{\text{Opt}} - \kappa_{\uparrow\downarrow}(1-n) \cdot N_{\text{Opt}}, \quad (4.4)$$

das vollständig durch die sechs Parameter γ_{R} , γ_{A} , γ_{in} , $\kappa_{\downarrow\uparrow}$, E_{Z} und n beschrieben wird. Eine einfache analytische Lösung konnte nicht gefunden werden. Allerdings lässt sich das System auch numerisch lösen. Zur Veranschaulichung des Verhaltens ist in Abbildung 4.4 die numerische Lösung für die Besetzungswahrscheinlichkeiten der drei Zustände $|\downarrow\rangle$, $|0\rangle$ und $|\text{Opt}\rangle$ und verschiedene Variationen der sechs Parameter dargestellt. Um den im Experiment gepulsten Laser zu berücksichtigen gilt vor dem Puls ($t < 0$) $n = 0$. Als Parameter wurden Werte gewählt, die mit den im Späteren experimentell bestimmten Werten grob übereinstimmen: $\gamma_{\text{R}} = 2 \mu\text{s}^{-1}$, $\gamma_{\text{A}} = 1 \mu\text{s}^{-1}$, $\gamma_{\text{in}} = 1 \text{ms}^{-1}$, $\kappa_{\downarrow\uparrow} = 10 \text{ms}^{-1}$, $E_{\text{Z}} = k_{\text{B}}T$ und $n = 0,25$. Diese Lösung ist in Abbildung 4.4 jeweils als durchgezogene Linien dargestellt. Für $t < 0$ zeigt sich keine Änderung der Besetzungswahrscheinlichkeit. Für den leeren Quantenpunkt gilt $N_0(t < 0) = 0$ und die Elektronenzustände sind entsprechend ihrer Zeeman-Aufspaltung thermisch verteilt $N_{\uparrow}(t < 0) = \exp(-E_{\text{Z}}/k_{\text{B}}T)/(1 + \exp(-E_{\text{Z}}/k_{\text{B}}T)) \approx 0,27$ und $N_{\text{Opt}}(t < 0) = 1/(1 + \exp(-E_{\text{Z}}/k_{\text{B}}T)) \approx 0,73$. Durch die optische Anregung ($t \geq 0$) verringert sich die Besetzungswahrscheinlichkeit des optisch aktiven Zustandes N_{Opt} und die der beiden anderen Zustände steigen entsprechend an. Für lange Zeiten ($t \rightarrow \infty$) verschwindet die Besetzungswahrscheinlichkeit N_{Opt} sogar. Ob dafür der Zustand $|\downarrow\rangle$ oder $|0\rangle$ vorwiegend besetzt ist, hängt vom Verhältnis der Raten γ_{A} und γ_{R} ab (vgl. Abb. 4.4(a) und (b)). Dies gilt zu mindestens für die von uns betrachteten Parameter und deren Verhältnisse ($\gamma_{\text{A}}, \gamma_{\text{R}} \gg \gamma_{\text{in}}, \kappa$). In diesem Sinne konkurrieren der Auger- und der Spin-Flip-Raman-Prozess. Eine Änderung der Tunnelrate γ_{in} hat in der betrachteten Größenordnung kaum einen Einfluss auf die Dynamik (vgl. Abb. 4.4(c)). Die Spin-Flip-Raten κ sorgen für eine langfristige Änderung der Besetzungswahrscheinlichkeiten N_{\uparrow} und N_0 . Allerdings können sie auf kleinen Zeitskalen, auch zu einer endlichen Besetzungswahrscheinlichkeit des optisch aktiven Zustandes N_{Opt} führen (vgl. Abb. 4.4(d)). Die Zeeman-Aufspaltung ändert vorallem die Anfangswerte für $t = 0$ (vgl. Abb. 4.4(e)). Schließlich lässt sich noch die Stärke der optischen Anregung in Form von n betrachten. Dabei finden wir, dass eine Erhöhung von n die Zeitentwicklung der Spin-Dynamik beschleunigt. Dies liegt daran, dass n in den Gleichungen (4.2) bis (4.4) als ein Skalierungsparameter für die Raten γ_{A} und γ_{R} auftaucht. Jedoch beeinflusst n nicht die Verhältnisse Besetzungswahrscheinlichkeiten der drei Zustände N_{\downarrow} , N_0 und N_{Opt} für $t \rightarrow \infty$.

Es soll an dieser Stelle betont werden, dass für die betrachteten Werte der Auger-Prozess nicht zum Spin-Pumpen beiträgt. Zwar zeigt sich, dass eine Erhöhung der Rate γ_{A} zu einem schnelleren Abfall der Besetzungswahrscheinlichkeit N_{Opt} führt (vgl. Abb. 4.4(a)), allerdings befindet sich der Quantenpunkt durch die recht geringe Tunnelrate γ_{in} dann in seinem unbesetzten Zustand $|0\rangle$. Eine zusätzliche Spin-Präparierung durch den Auger-Prozess ist demnach nur möglich mit einer größeren Tunnelrate.

Im Kapitel 4.3 wird dieses Modell an die Messdaten angepasst. Dabei handelt es sich um die Zeitentwicklung von N_{Opt} , die zunächst einzige experimentell zugängliche Größe des Modells. Diese wurde für verschiedene Magnetfeldstärken und Leistungen des Anregungslasers gemessen. Um die Anzahl an freien Parametern und damit die Komplexität der Anpassung zu verringern, wurden sowohl die Zeeman-Aufspaltung E_{Z} als auch die Tunnelrate γ_{in} in Abhängigkeit von der Magnetfeldstärke B im Rahmen einer Charakterisierung des Quantenpunktes bestimmt. Dabei wurde auch untersucht, bei welchen Spannungen V_{g} der Quantenpunkt mit einem Elektron besetzt ist. Die Ergebnisse dieser Charakterisierung werden im folgenden Kapitel präsentiert.

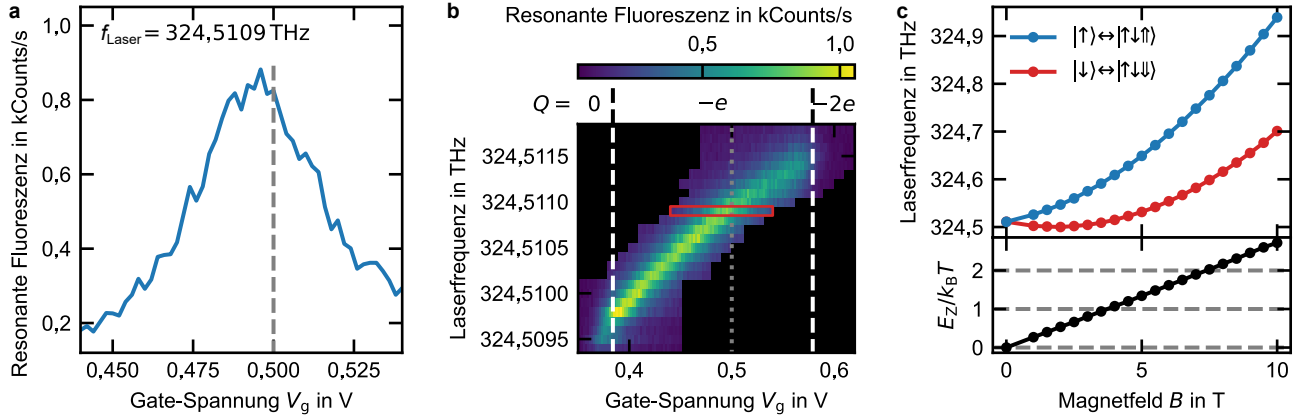


Abbildung 4.5.: Charakterisierung des optischen Trion-Überganges. **a** Resonante Fluoreszenz für die eingestrahelte Laserfrequenz $f_{\text{Laser}} = 324,5109$ THz in Abhängigkeit von der Spannung V_g . **b** Resonante Fluoreszenz für verschiedene Laserfrequenzen in Abhängigkeit von der Spannung V_g . Der optische Übergang kann zwischen etwa 0,384 V und 0,579 V (weiße Linien) angeregt werden. In diesem Bereich ist der Quantenpunkt mit einem Elektron besetzt (Ladung $Q = -e$). Die Messung **a** ist rot hervorgehoben. Die Daten in **a** und **b** wurden bereits veröffentlicht in [Lochner20, Lochner21a, Lochner21b]. **c** (Oben) Resonanzfrequenzen des optischen Übergangs im Magnetfeld entlang der Wachstumsrichtung z . Der Übergang spaltet im Magnetfeld auf ($|\downarrow\rangle \leftrightarrow |\uparrow\downarrow\downarrow\rangle$ und $|\downarrow\rangle \leftrightarrow |\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$) und verschiebt sich zu höheren Energien für höhere Magnetfeldstärken. **c** (Unten) Die Aufspaltung der Übergänge in Einheiten der thermischen Energie für $T = 4,2$ K.

4.2. Charakterisierung

Um die zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz des optischen Trion-Überganges messen zu können, musste zunächst bestimmt werden, in welchem Spannungsbereich V_g der Quantenpunkt mit einem einzelnen Elektron besetzt ist und welche Resonanzfrequenz der optische Übergang für verschiedene Magnetfelder besitzt. Dazu wurde der Anregungslaser mit der Frequenz f_{Laser} eingestrahlt und die Spannung V_g schrittweise ($\Delta V_g = 2$ mV) erhöht. In Abbildung 4.5(a) ist die detektierte resonante Fluoreszenz beispielhaft für eine eingestrahelte Laserfrequenz von $f_{\text{Laser}} = 324,5109$ THz (ohne angelegtes Magnetfeld $B = 0$) aufgetragen. Die resonante Fluoreszenz ist dabei angegeben in kCounts/s, was jeweils einer Anzahl von Tausend detektierten Photonen pro Sekunde entspricht. Für etwa $V_g = 0,5$ V zeigt die resonante Fluoreszenz ein globales Maximum. Bei dieser Spannung verschwindet die Verstimmung zwischen der eingestrahelten Laserfrequenz und der Resonanzfrequenz des optischen Übergangs. Um den Spannungsbereich, in dem der Quantenpunkt mit einem einzelnen Elektron besetzt ist, zu bestimmen, wurde die Messung für verschiedene Laserfrequenzen wiederholt (vgl. Abb. 4.5(b)). Dieser Bereich ist daran erkennbar, dass in ihm der optische Übergang angeregt und die resonante Fluoreszenz beobachtet werden kann. In den Daten zeigt sich, dass dies zwischen etwa 0,384 V und 0,579 V möglich ist. Die Verschiebung der Resonanzfrequenz des optischen Übergangs mit der angelegten Spannung V_g beruht auf dem Stark-Effekt (vgl. Kap. 2.4). Um für die weiteren Messungen sicherzustellen, dass der Quantenpunkt im thermodynamischen Gleichgewicht mit einem einzelnen Elektron besetzt ist, wurden alle weiteren Messungen aufbauend auf diesen Daten bei einer Gate-Spannung von 0,5 V durchgeführt. Die Verstimmung, die zwischen dem Laser und dem optischen Übergang für die verschiedenen Magnetfelder besteht, wurde darum im folgenden jeweils mit der Laser-Frequenz ausgeglichen. Die Daten, die in den Abbildungen 4.5(a) und 4.5(b) dargestellt sind, wurden im Rahmen einer anderen Arbeit aufgenommen und bereits in [Lochner20, Lochner21a, Lochner21b] veröffentlicht.

Um zu bestimmen, welche Resonanzfrequenzen der optische Übergang für verschiedene Magnetfelder besitzt, wurden mehrere Messungen, wie in Abbildung 4.5(a), durchgeführt. Dabei wurde bestimmt, bei welcher Laserfrequenz die resonante Fluoreszenz für $V_g = 0,5$ V maximal wird. Die Ergebnisse sind

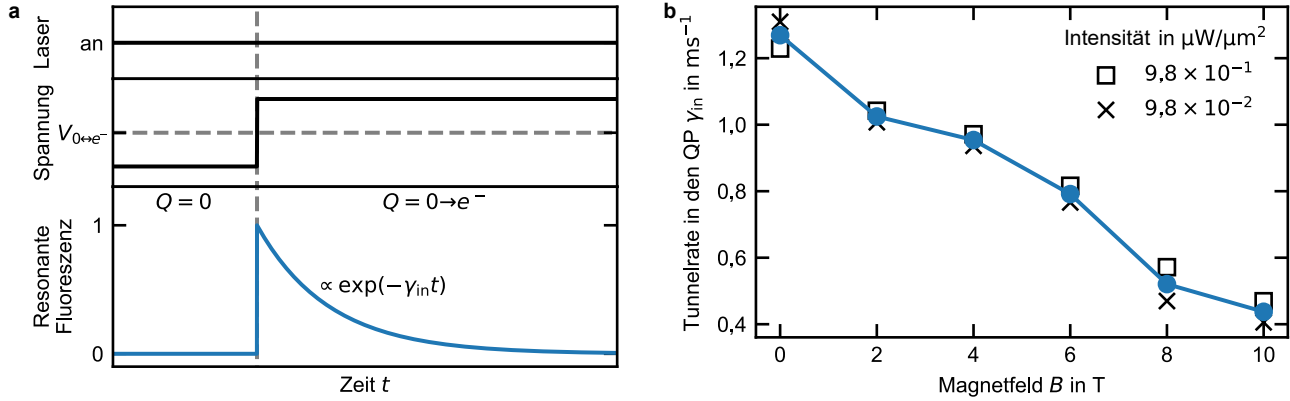


Abbildung 4.6.: Messung der Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{in} . **a** Schematische Darstellung zur Messung der zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenz. Als Störung wird die Spannung V_g gepulst. Zunächst wird der Quantenpunkt als unbesetzt präpariert ($t < 0$, $Q = 0$). Dann wird zu einem Wert über der Tunnelspannung gepulst ($t \geq 0$), sodass ein Elektron in den Quantenpunkt tunnelt ($Q = 0 \rightarrow e^-$). Der Laser ist durchgängig angeschaltet und regt für ($t \geq 0$) den Exziton-Übergang an. Dessen Intensität nimmt exponentiell mit der Tunnelrate ab γ_{in} . **b** Gemessene Tunnelrate bei $V_g = 0,5 \text{ V}$ für verschiedene Magnetfelder. Die Messung wurde für zwei Leistungen des Anregungslasers durchgeführt. Die Tunnelrate zeigt keine nennenswerte Abhängigkeit von dieser Leistung.

in Abbildung 4.5(c) oben zu sehen und zeigen, dass der optische Übergang im Magnetfeld aufgrund der Zeeman-Aufspaltung in den roten Trion-Übergang ($|\downarrow\rangle \leftrightarrow |\uparrow\downarrow\rangle$) und den blauen Trion-Übergang ($|\uparrow\rangle \leftrightarrow |\uparrow\downarrow\rangle$) aufspaltet. Für hohe Magnetfelder ist außerdem die diamagnetische Verschiebung zu beobachten, die dazu führt, dass die anfangs sinkende Energie der roten Resonanz schließlich auch mit steigendem Magnetfeld steigt (vgl. Kap. 2.5). Der Energieunterschied zwischen den beiden Übergängen entspricht der aufaddierten Zeeman-Aufspaltung für die Elektronenzustände und die Trion-Zustände. Für die Besetzungswahrscheinlichkeit ohne optische Anregung (vgl. Gl. (4.1)) und die Spin-Flip-Raten κ benötigen wir jedoch ausschließlich den Anteil der Elektronenzustände E_Z . Um diesen zu bestimmen, müsste der Landé-Faktor g sowohl für das Elektron als auch das Loch genau bekannt sein. Ergebnisse aus experimentellen und theoretischen Arbeiten zeigen für das Elektron zwar noch recht übereinstimmende Ergebnisse mit $g_e \approx 0,5 - 0,8$ [Debus14, Nakaoka04]. Für das Loch bzw. das Exziton zeigen sich jedoch enorme Schwankungen $|g_X| = |g_e - g_h| \approx 0,1 - 3$ [Nakaoka04, Nakaoka05, Yugova07]. In dieser Arbeit schreiben wir die gesamte Zeeman-Aufspaltung, die in 4.5(c) zu sehen ist, dem Elektron zu. Sollte sich das System jedoch so verhalten, wie wir es mit dem Ratenmodell vorhersagen (vgl. Abb. 4.4(e)), sorgt eine Fehleinschätzung von E_Z zunächst einmal nur für eine andere Anfangsbesetzungswahrscheinlichkeit.

Schließlich wurde noch die Tunnelrate in den Quantenpunkt bestimmt (vgl. Abb. 4.6). Dazu wurde der optische Exziton-Übergang ($|0\rangle \leftrightarrow |\uparrow\downarrow\rangle, |\downarrow\uparrow\rangle$) mit zeitaufgelöster resonanter Fluoreszenz gemessen. Um den Tunnelprozess eines Elektrons in den leeren Quantenpunkt zu beobachten, wurde ein Spannungspuls V_g angelegt. Dieser präpariert den Quantenpunkt zunächst als unbesetzt $|0\rangle$ ($t < 0$) und pulst dann zu einem Wert oberhalb der Tunnelspannung $V_{0 \leftrightarrow e^-}$, sodass der Tunnelprozess induziert wird $|0\rangle \rightarrow |e^- \rangle$ ($t \geq 0$). Als Wert oberhalb der Tunnelspannung wurde $V_g = 0,5 \text{ V}$ gewählt, bei dem auch die weiteren Experimente durchgeführt wurden. Da der Tunnelprozess nicht von der optischen Anregung abhängt, war der Laser durchgängig angeschaltet. Um dies zu bestätigen wurde die Messung jeweils bei zwei verschiedenen Laserintensitäten durchgeführt. Da der optische Exziton-Übergang nur getrieben werden kann, wenn sich im Quantenpunkt kein Elektron befindet, zeigt die resonante Fluoreszenz für $t \geq 0$ einen exponentiellen Abfall aus dem die Tunnelrate γ_{in} bestimmt werden kann (vgl. Abb. 4.6(a)). Diese Messung wurde für mehrere Magnetfeldstärken durchgeführt. Die Ergebnisse

sind in Abbildung 4.6(b) zusammengefasst und zeigen eine lineare Verringerung der Rate für steigende Magnetfelder.

In diesem Unterkapitel wurden wichtige Parameter für die folgenden Experimente bestimmt. Diese werden bei einer Gate-Spannung von $V_g = 0,5 \text{ V}$ durchgeführt, um sicher zu stellen, dass der Quantenpunkt ohne optische Anregung mit einem Elektron besetzt ist (vgl. Abb. 4.5(b)). Mit welcher Laserfrequenz der blaue optische Trion-Übergang ($|\uparrow\rangle \leftrightarrow |\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$) für die verschiedenen Magnetfelder bei der Spannung V_g angeregt werden kann und welche Zeeman-Aufspaltung E_Z die Übergänge besetzen, ist der Abbildung 4.5(c) zu entnehmen. Außerdem wurde bestimmt, wie groß die Tunnelrate eines Elektrons in den leeren Quantenpunkt γ_{in} ist (vgl. Abb. 4.6(b)). Mit diesen Parametern und dem bereits erläuterten Ratenmodell kann im folgenden Kapitel schließlich die Auger- und Spin-Dynamik im Magnetfeld untersucht werden.

4.3. Zeitaufgelöste Dynamik

Schließlich wurden Messungen der zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenz des blauen optischen Trion-Überganges durchgeführt. Das Messschema ist in Abbildung 4.7(a) dargestellt. Um die Nichtgleichgewichtsdynamik zu beobachten, die durch die optische Anregung verursacht wird, wird der Quantenpunkt zunächst präpariert ($t < t_L$). Der Anregungslaser ist dazu ausgeschaltet und es wird folglich keine resonante Fluoreszenz beobachtet. Mit der Spannung V_g wird sicher gestellt, dass der Quantenpunkt mit einem Elektron besetzt ist. Zum Zeitpunkt $t = t_L$ wird der Laser eingeschaltet, der optische Übergang wird getrieben und die resonante Fluoreszenz des Übergangs wird beobachtet. Diese ist proportional zur Besetzungswahrscheinlichkeit N_{Opt} bzw. deren Zeitentwicklung unter der optischen Anregung. Schließlich wird zum Zeitpunkt t_V die Spannung V_g so verändert, dass der weiterhin eingestrahlte Laser nicht resonant mit dem optischen Übergang ist. Dadurch wird gemessen, wieviele der detektierten Photonen reflektierte Laserphotonen sind, die nicht mit dem Quantenpunkt gewechselwirken haben. Auf diese Weise kann der Untergrund der detektierten resonanten Fluoreszenz gemessen und im Nachhinein korrigiert werden.

Die Messungen wurden für mehrere Laserleistungen und Magnetfelder durchgeführt. In der Abbildung 4.7(b) sind exemplarisch die Messungen für $B = 4 \text{ T}$ zu sehen. Diese zeigen einen Abfall, der mit steigender Leistung immer schneller wird. Im weiterem streben alle Messungen für lange Zeiten den Wert 0 an. Dies bedeutet, dass die Entvölkerung des Zustandes $|\text{Opt}\rangle$ durch die optische Anregung sehr effizient ist, also das Spin-Pumpen durch den Spin-Flip-Raman-Prozess und die Ionisation des Quantenpunktes durch den Auger-Prozess den Zustand $|\text{Opt}\rangle$ schneller entleeren, als er durch den Tunnelprozess bzw. den Spin-Flip wieder bevölkert werden kann. Um das Ratenmodell aus Kapitel 4.1 möglichst sicher an die Messdaten anpassen zu können, wurden vorbereitend die Zeeman-Aufspaltung E_Z und die Tunnelrate γ_{in} in den leeren Quantenpunkt bestimmt (vgl. Kap. 4.2). Zusätzlich lässt sich auch noch die relative Besetzungswahrscheinlichkeit des optisch aktiven Zustandes n bestimmen. Dazu wird die nicht normierte resonante Fluoreszenz direkt nach dem Einschalten des Anregungslasers ($t = 0$) aus den Messungen in Abbildung 4.7(b) bestimmt und mit einer Sättigungskurve für ein Zwei-Niveau-System angepasst [Loudon00, Gl. (8.2.7)]. Auf diese Weise wurden für die Anpassung des Ratenmodells nur drei freie Parameter benutzt: die Auger-Rate γ_A , die Spin-Flip-Raman-Rate γ_R und die Spin-Flip-Rate $\kappa_{\downarrow\uparrow}$. Die Anpassung an die Messungen in Abbildung 4.7(b) ist als rote gestrichelte Linie dargestellt. Augenscheinlich beschreibt das Modell die Zeitentwicklung sehr gut. In Abbildung 4.7(c) sind die angepassten Parameter für die jeweiligen Laserleistungen dargestellt. Dabei zeigt sich, dass die Parameter keine erkennbare Abhängigkeit von der Leistung besitzen. Dies ist zwar für alle drei Parameter zu erwarten, allerdings werden die Raten γ_A und γ_R im Ratenmodell durch die relative Besetzungswahrscheinlichkeit n skaliert. Bei einer systematisch fehlerhaften Bestimmung von n wäre darum eine vermeintliche Leistungsabhängigkeit der Raten γ_A und γ_R zu erwarten. Dass diese

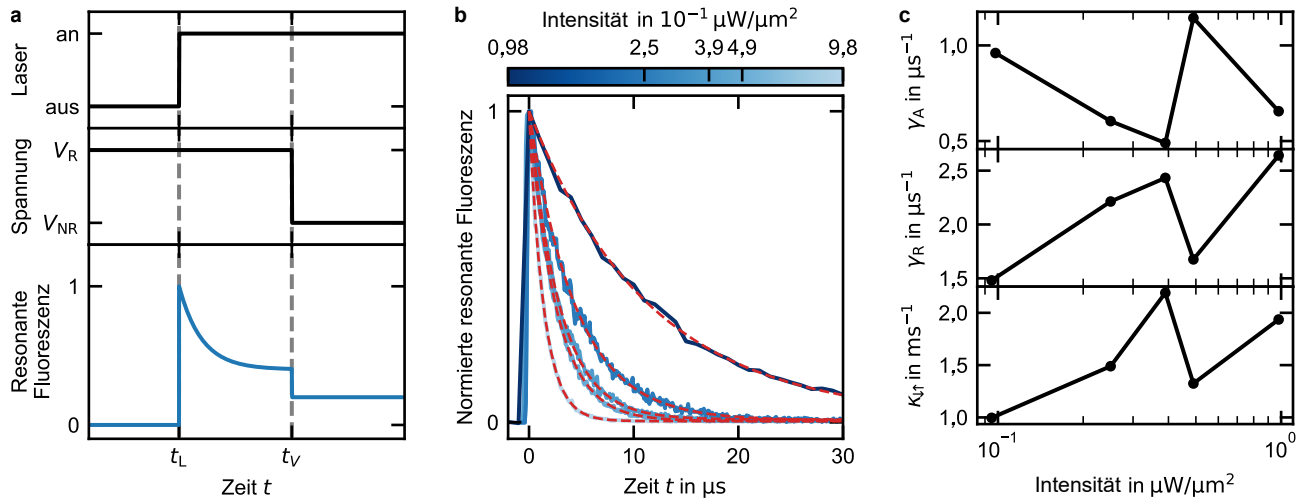


Abbildung 4.7.: Messung der Auger- und Spin-Dynamik. **a** Schematische Darstellung zur Messung der zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenz. Als Störung wird sowohl der eingestrahelte Laser als auch die Spannung V_g gepulst. Zunächst wird der Quantenpunkt als besetzt präpariert ($t < t_L$), dabei ist der Laser ausgeschaltet. Zum Zeitpunkt $t = t_L$ wird der Laser angeschaltet. Die optische Anregung verursacht die Auger- und Spin-Dynamik, was als Änderung der resonanten Fluoreszenz beobachtet werden kann. Zum Zeitpunkt $t = t_V$ wird die Gate-Spannung verändert, um den Untergrund der Messung zu bestimmen. **b** Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz für verschiedene Laserleistungen ($B = 4$ T). Eine höhere Laserleistung sorgt für einen schnelleren Abfall der resonanten Fluoreszenz, da die relative Besetzungswahrscheinlichkeit n die Raten γ_A und γ_R skaliert. Die Daten wurden mit dem Ratenmodell angepasst (rot gestrichelte Linien). **c** Angepasste Werte des Ratenmodells für γ_A , γ_R und $\kappa_{\downarrow\uparrow}$. Die Raten zeigen keine Abhängigkeit von der Laserleistung.

nicht zu beobachten ist, kann darum als Bestätigung für die Bestimmung von n angesehen werden. Die Raten γ_A und γ_R scheinen außerdem miteinander zusammen zu hängen. Dies ist durchaus der Fall, da beide Prozesse zu einer Verringerung der Besetzungswahrscheinlichkeit des optisch aktiven Zustandes führen N_{Opt} . Allerdings soll an dieser Stelle nicht der Eindruck entstehen, dass das Modell überdefiniert wäre und man die Messdaten ebenso gut beschreiben könnte mit einer immer größeren Auger-Rate und einer entsprechend kleineren Spin-Flip-Raman-Rate (oder anders herum). Dagegen spricht zum einen, dass die angepassten Werte für γ_A und γ_R in diesem Beispiel für $B = 4$ T alle in einem recht ähnlichen Bereich liegen. Zum anderen wurde diese Art der Kompensation der beiden Prozesse exemplarisch überprüft. Dazu wurde eine Messung ein zweites mal angepasst. Für die erneute Anpassung wurde allerdings die Auger-Rate fest vorgegeben mit der Hälfte des Wertes aus der ersten Anpassung. Dabei wurde jeweils gefunden, dass es nicht möglich ist eine veränderte Auger-Rate mit der Spin-Flip-Raman-Rate als freiem Anpassungsparameter zu kompensieren und dadurch eine ähnliche Übereinstimmung des Modells mit den Messdaten zu erzielen.

Schließlich wurden auch die Messungen für die weiteren Magnetfelder analog mit dem Ratenmodell angepasst. Die angepassten Werte für γ_A , γ_R und $\kappa_{\downarrow\uparrow}$ sind in Abbildung 4.8 zusammengefasst. Der Mittelwert aller Ergebnisse für die unterschiedlichen Laserleistungen ist jeweils in rot dargestellt. Für den Auger-Prozess zeigt sich ohne externes Magnetfeld $B = 0$ eine Rate von $\gamma_A \approx 3 \mu s^{-1}$. Diese liegt in einem ähnlichen Bereich, wie Ergebnisse, die für ähnlich gewachsene Quantenpunkte gefunden wurden [Kurzmann16a], als auch für Ergebnisse, die am gleichen Quantenpunkt aber mit einer anderen Methode erlangt wurden [Lochner20]. Für das Verhalten der Auger-Rate im Magnetfeld gibt es jedoch keine Vergleichswerte. Es ließe sich nur mutmaßen, dass das Magnetfeld zu einer zusätzlichen räumlichen Einschränkung der Ladungsträger-Wellenfunktion führt, wie es für die Zyklotronbewegung von Ladungsträgern typisch ist. Dass es in unserem Experiment tatsächlich zu einer räumlichen Einschränkung kommt, lässt sich aus der diamagnetischen Verschiebung schließen,

die wir deutlich für die optischen Übergänge beobachten (vgl. Abb. 4.5(c)). Eine zusätzliche räumliche Einschränkung wiederum könnte zu einer Erhöhung der Auger-Rate führen. Dies legen Messungen an Nano-Partikeln nahe [Rabouw15], die auch genutzt werden, um die Größenordnung des Auger-Prozesses in selbstorganisierten Quantenpunkten zu erklären [Kurzmann16a]. Unsere Ergebnisse widersprechen jedoch dieser heuristischen Theorie. So ist die Rate γ_A für 4 T um etwa einen Faktor 3 gesunken im Vergleich zu der Rate ohne Magnetfeld. Für höhere Magnetfelder ist die Rate im Rahmen unserer Auflösung konstant. Dies deutet an, dass die Auger-Rate für selbstorganisierte Quantenpunkte dominierend durch einen anderen Aspekt festgelegt ist, der in unseren Messungen unverändert blieb. Weitere Studien an Nanokristallen haben gezeigt, dass die Auger-Rate in diesen Systemen nur gering von der Wahl des Materials [Robel09] oder aber der Energie der Bandlücke [Pietryga08] abhängt. Sollte sich dies auch auf die selbstorganisierten Quantenpunkte übertragen lassen können, bliebe noch der Einfluss des Endzustandes zu diskutieren, in den das Auger-Elektron aus dem Quantenpunkt übergeht. Unter Berücksichtigung der Rekombinationsenergie des Elektron-Loch-Paares lässt sich vermuten, dass das Elektron nicht in einen einzelnen gebundenen Zustand übergeht, sondern in die lokale Zustandsdichte des Leitungsbandkontinuums. Um diese Theorie zu überprüfen, müssten weitere hochaufgelöste Messungen durchgeführt werden, in denen man durch elektrische oder magnetische Felder die Rekombinationsenergie verändert, um somit leichte Änderungen in der Endzustandsdichte zu messen.

Die Spin-Flip-Raman-Rate γ_R erhöht sich im Magnetfeld leicht von etwa $2 \mu\text{s}^{-1}$ für 4 T zu etwa $3 \mu\text{s}^{-1}$ für 10 T. Diese Erhöhung liegt allerdings an der Auflösungsgrenze unserer Experimente. Die Spin-Flip-Raman-Rate entspricht einem Übergang durch spontane Emission eines Photons. Diese wird nach Dreiser et al. [Dreiser08] durch mehrere Beiträge ermöglicht. Zunächst kommt es durch die Hyperfein-Wechselwirkung zu einer Mischung der Elektronen-Zustände $|\uparrow\rangle = \cos(\Phi)|\uparrow\rangle - \sin(\Phi)|\downarrow\rangle$. Dies sorgt dafür, dass es bei dem optischen Übergang $|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle \rightarrow |\uparrow\rangle$ auch eine Komponente $|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle \rightarrow |\downarrow\rangle$ gibt. Der Anteil dieser Komponente sinkt jedoch mit dem angelegten Magnetfeld $\propto B^{-2}$, was sich ebenso auf die Spin-Flip-Raman-Rate übertragen sollte. Allerdings gibt es einen weiteren Beitrag durch die Mischung der leichten und schweren Loch-Zustände, der unabhängig vom Magnetfeld ist. Bereits ab wenigen 100 mT beruht die Rate γ_R vorwiegend auf der Mischung der Loch-Zustände und ist demnach konstant. Dies scheint unsere Ergebnisse durchaus zu erklären. Es gäbe noch die Möglichkeit eines Loch-Spin-Flips. Dieser Prozess sollte jedoch mit Raten zwischen $0,1 \mu\text{s}^{-1}$ bis $1 \mu\text{s}^{-1}$ verbunden sein [Bulaev05, Fras12, Li12] und wird deshalb in der Literatur häufig vernachlässigt.

Schließlich bleibt noch die Spin-Flip-Rate $\kappa_{\downarrow\uparrow}$ zu diskutieren. Diese ist für alle gemessenen Magnetfelder einige Größenordnungen kleiner als die Raten γ_R und γ_A . Dies stimmt mit der qualitativen Beobachtung überein, dass die Besetzungswahrscheinlichkeit N_{Opt} durch die optische Anregung für $t \rightarrow \infty$ verschwindet. Dies liegt daran, dass der Quantenpunkt durch die langsame Rate $\kappa_{\downarrow\uparrow}$ in dem Zustand $|\downarrow\rangle$ verweilt. Für höhere Magnetfelder steigt die Rate jedoch deutlich an. Die Anpas-

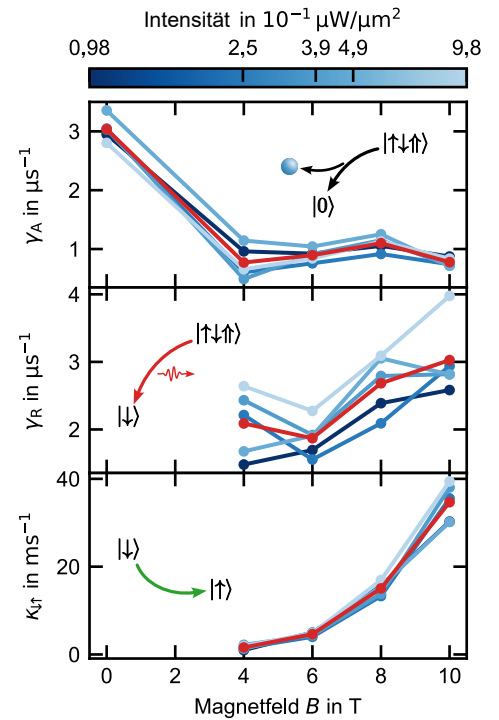


Abbildung 4.8.: Angepasste Werte für die Raten γ_A , γ_R und $\kappa_{\downarrow\uparrow}$ für verschiedene Magnetfelder und Laserleistungen, sowie ihre Mittelwerte (rot). Die Auger-Rate γ_A ist im Magnetfeld leicht reduziert, zeigt jedoch keine weitere Abhängigkeit von der Feldstärke. Die Spin-Flip-Raman-Rate γ_R zeigt eine leichte Erhöhung im Magnetfeld, bei der es sich jedoch auch um Rauschen handeln könnte. Die Spin-Flip-Rate zeigt eine deutliche Erhöhung im Magnetfeld, die einem Potenzgesetz mit $\propto B^{3,4}$ entspricht.

sung mit einem Potenzgesetz $\kappa_{\downarrow\uparrow} \propto B^i$ ergibt einen Exponenten von $i \approx 3,4$. In der Literatur wurden Exponenten von $4,0 \pm 0,6$ [Kroutvar04] bis $5,3 \pm 0,3$ [Kroutvar04, Lu10] berichtet, die sich jeweils für die Spin-Orbit-Kopplung in Verbindung mit einzelnen Phononen ergeben [Khaetskii01]. Es gibt allerdings auch die Möglichkeit für Spin-Flip-Prozesse aufgrund der Hyperfein-Wechselwirkung in Kombination mit einem Phonon [Khaetskii01, Erlingsson02]. Diese würden eine Abhängigkeit der Spin-Flip-Rate mit $\kappa_{\downarrow\uparrow} \propto B^3$ zeigen. Unsere Ergebnisse stimmen in diesem Sinne grob mit der Literatur überein.

4.4. Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde die Auger- und Spin-Dynamik eines optischen Trion-Überganges in einem einzelnen Quantenpunkt im Magnetfeld untersucht. Ein genaues Verständnis der Spin-Dynamik ist grundlegend für die Einsatzmöglichkeit von Quantenpunkten in der Quanteninformationstheorie. Diese Nichtgleichgewichtsdynamik hängt nämlich von der optischen Anregung des Trion-Übergangs ab. Diese sorgt durch einen Spin-Flip-Raman-Prozess für eine Änderung der Elektron-Spinrichtung. Ist dieser Prozess (deutlich) schneller als der Relaxationsprozess, kann dadurch die Spin-Richtung gezielt mit der optischen Anregung beeinflusst werden. Man spricht in diesem Zusammenhang auch vom Spin-Pumpen. Ein weiterer Prozess, der dies ermöglichen könnte, ist der Auger-Prozess. Dieser ionisiert den mit einem Trion angeregten Quantenpunkt und wird gefolgt von dem Tunnelprozess eines Elektrons aus einem Reservoir in den Quantenpunkt mit zufälliger Spin-Richtung. Da üblicherweise Proben mit einer starken Tunnelkopplung zwischen den Quantenpunkten und dem Reservoir benutzt werden, wurde der Auger-Effekt in einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkten erst vor kürzerer Zeit beobachtet und in bisherigen Arbeiten zur Spin-Dynamik vernachlässigt. Ob und wie stark der Auger-Prozess zum Spin-Pumpen beiträgt ist aufgrund dessen bisher unbekannt. Gleichzeitig ist noch nicht untersucht worden, wie sich der Auger-Prozess in einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkten im Magnetfeld überhaupt verhält.

Um diese beiden Fragestellungen zu bearbeiten, wurden im Rahmen dieser Arbeit Messungen der zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenz präsentiert, die am blauen optischen Trion-Übergang eines einzelnen Quantenpunktes in einem Magnetfeld in Faraday-Geometrie durchgeführt wurden. Zur theoretischen Beschreibung wurde ein Ratenmodell aufgestellt (vgl. Kap. 4.1). Dieses berücksichtigt zusätzlich zu den bereits früher untersuchten Prozessen (Spin-Flip-Raman und Spin-Flip) auch den Auger-Prozess. Dabei konnte bereits gezeigt werden, dass der Auger-Prozess zwar zu einer schnelleren Entvölkerung des optisch aktiven Zustandes führt, unter Berücksichtigung einer geringen Tunnelrate jedoch nicht zum Spin-Pumpen beiträgt. Stattdessen befindet sich der Quantenpunkt bei Erhöhung der Auger-Rate mit einer höheren Wahrscheinlichkeit im unbesetzten Zustand. Um mit Hilfe dieses Modells die gemessene zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz anzupassen, wurden im Rahmen einer Vorcharakterisierung des Quantenpunktes (vgl. Kap. 4.2) die Tunnelspannungen für den mit einem und dem mit zwei Elektronen besetzten Quantenpunkt bestimmt (vgl. Abb. 4.5(b)), die Zeeman-Aufspaltung der optischen Trion-Übergänge (vgl. Abb. 4.5(c)) und die Tunnelrate in den Quantenpunkt in Abhängigkeit vom Magnetfeld (vgl. Abb. 4.6(b)). In Kapitel 4.3 wurden die Ergebnisse dieser Anpassung präsentiert. Die Spin-Flip-Raman-Rate γ_R zeigte im Bereich von 4 T bis 10 T keine Abhängigkeit, die nicht auch durch die Auflösungsfähigkeit der Methode erklärt werden könnte. Die Spin-Flip-Rate $\kappa_{\downarrow\uparrow}$ zeigt in dem gleichen Magnetfeldbereich eine deutliche Erhöhung. Beide Beobachtungen sind in Übereinstimmung mit der Literatur. Für die Auger-Rate γ_A zeigte sich im Vergleich der Ergebnisse für $B = 0$ und $B = 4$ T eine Verringerung der Rate um einen Faktor von 3. Zwischen 4 T und 10 T änderte sich die Rate nicht merklich. Es gibt bis dato keine Theorie, die sich mit der Magnetfeldabhängigkeit der Auger-Rate für einzelne selbstorganisierte Quantenpunkte beschäftigt. Aufbauend auf vergleichenden Betrachtungen zum Auger-Prozess in Nano-Partikeln wurde jedoch eine Erhöhung der Rate aufgrund der zusätzlichen magnetischen Einschränkung vermutet. Diese konnten wir in unseren

Daten nicht beobachten.

An dieser Stelle soll betont werden, dass das Ergebnis dieser Arbeit zunächst einmal ein Modell ist, das die Dynamik des einfach besetzten Quantenpunktes beschreibt, die sich im Magnetfeld und unter Anregung eines optischen Überganges ergibt. Außerdem berücksichtigt es den Auger-Prozess, der diese Dynamik beeinflussen kann, aber in der Literatur bisher noch nicht in diesem Zusammenhang betrachtet wurde. Allerdings sind obwohl wir für zwei der drei betrachteten Parameter Ergebnisse erhalten haben, die mit der Literatur übereinstimmen, die Ergebnisse für die Auger-Rate mit Vorsicht zu betrachten. Dies liegt zum einen daran, dass das betrachtete Ratenmodell von einer großen Anzahl an Parametern abhängt. Um die Validität des Modells zu testen ist es darum sinnvoll einzelne Parameter (die in unabhängigen Messungen bestimmt werden) gezielt zu verändern und zu überprüfen, ob sich die Änderung mit dem Ratenmodell beschreiben lässt und mit der Literatur übereinstimmt. Dies wurde in dieser Arbeit für E_Z und n mithilfe des angelegten Magnetfeldes B und der eingestrahlten Laserleistung erfolgreich durchgeführt. Eine isolierte Änderung der weiteren Parameter ist durchaus herausfordernd aber eine wünschenswerte Aufgabe für zukünftige Arbeiten. Ein weiterer Grund zur Vorsicht ist, dass das Ratenmodell die Zeitentwicklung der Besetzungswahrscheinlichkeiten für alle Zustände des Systems beschreibt, also des optisch aktiven Zustandes N_{Opt} , des Elektronenzustandes mit umgedrehter Spin-Richtung N_{\uparrow} und des unbesetzten Quantenpunktes N_0 . Gemessen wurde jedoch nur die zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz des blauen Trion-Überganges $\propto N_{\text{Opt}}$, sodass nur ein unvollständiges Bild der gesamten Systemdynamik beobachtet werden konnte, die das Ratenmodell beschreibt. Für weitere Arbeiten wäre es deshalb durchaus erstrebenswert auch die Komponenten N_{\uparrow} und N_0 simultan zu beobachten. Dies wäre möglich, wenn man zusätzlich die resonante Fluoreszenz des roten Trion-Überganges ($\propto N_{\uparrow}$) oder die des Exiztons ($\propto N_0$) misst. Dazu müssten lediglich die detektierten Photonen spektral aufgelöst und den einzelnen Übergängen zugeordnet werden.

5. Postprozessierung einzelner Photonen zur Echtzeitmessung von Quantensprüngen

Dieses Kapitel beschäftigt sich mit dem Quantentransport durch einen einzelnen Quantenpunkt. Als Quantentransport bezeichnet man einen Strom aus Elektronen, der aufgrund sehr kleiner Leitungsabmessungen im Bereich von nur einigen Nanometern Quantisierungseffekte und Wechselwirkungen in Form von Fluktuationen zeigt [Landauer98]. Die Analyse dieser Fluktuationen mit statistischen Methoden ermöglicht tiefgehende Einblicke in die häufig komplexe zugrundeliegende Nichtgleichgewichtsdynamik [Blanter00]. Eine typische Messung in diesem Bereich ist es zu untersuchen, wie einzelne Elektronen zwischen einem Elektronenreservoir und einem einzelnen Quantenpunkt hin- und hertunneln. In solchen Systemen mit zwei Zuständen (der QP ist entweder mit einem Elektron besetzt oder unbesetzt) spricht man auch vom *Telegraphenrauschen* (englisch: *Random-Telegraph-Signal*) [Bagrets03, Kleinherbers18, Sifft21]. Solche Messungen werden üblicherweise an sogenannten lithographischen [Kouwenhoven01] oder aber elektrostatisch definierten Quantenpunkten durchgeführt [vanderWiel02]. Diese entstehen typischerweise, indem man ein zweidimensionales Elektronengas [Störmer79, Hwang08] durch Ätzverfahren oder aber mithilfe von metallischen Gate-Kontakten lokal verarmt. Auf diese Art abgegrenzte leitfähige Bereiche des 2DEGs zeigen dann eine diskrete Zustandsdichte, wie sie auch bei selbstorganisierten Quantenpunkten auftritt. Die Kontaktierung eines elektrostatisch definierten Quantenpunktes erfolgt über benachbarte nicht verarmte Bereiche des 2DEGs, die durch eine Tunnelbarriere vom QP getrennt sind. Ausgelesen wird der Besetzungszustand des QPs entweder über einen nahen *Quantenpunktkontakt* [vanWees88, Regul02] oder aber einen *Einzel-Elektronen-Transistor* [Matsumoto96, Keyser00]. Beide Methoden haben dabei eine endliche Zeitauflösung aufgrund von elektrischem Rauschen in den Leitungen, Verstärkern und weiteren elektrischen Bauteilen. Üblicherweise liegt die Bandbreite dieser Methoden zwischen 10 – 100 kHz [Gustavsson06, Wagner19] bis maximal 1 MHz [Lu03].

In dieser Arbeit wurden anstelle der elektrostatisch definierten Quantenpunkte, wie bereits in den vorherigen Kapiteln selbstorganisierte Quantenpunkte benutzt. In diesen sind solche Methoden nur schwer umsetzbar unter anderem, weil die selbstorganisierten Quantenpunkte üblicherweise bedeckt und eingebracht in eine Halbleiter-Heterostruktur sind. Sowohl Quantenpunktkontakte als auch Einzel-Elektronen-Transistoren werden aber an der Oberfläche prozessiert. Allerdings ist es an selbstorganisierten Quantenpunkten möglich den Besetzungszustand auch mit optischer Anregung auszulesen und damit das Telegraphenrauschen in diesen Strukturen zu untersuchen [Kurzmann19, Lochner20, Vamivakas10]. Allerdings wurde in diesen Arbeiten nicht untersucht, wie hoch die Bandbreite ist bzw. ob und wodurch sie limitiert ist. Es ist zu erwarten, dass diese höher ist als die Bandbreite in den erwähnten elektrischen Messungen mit Quantenpunktkontakten und Einzel-Elektronen-Transistoren, da die elektrischen Rauschquellen zum großen Teil bei der Detektion wegfallen. Diese Untersuchung ist Gegenstand dieses Kapitels. Die Ergebnisse wurden in ähnlicher Form bereits veröffentlicht [Kerski23].

5.1. Messaufbau

Die Messungen haben an der Probe, die in Kapitel 3.1.2 beschrieben wurde, stattgefunden. In dieser sind die Quantenpunkte zwischen einem p-dotierten Gate und einem n-dotierten Rückkontakt einge-

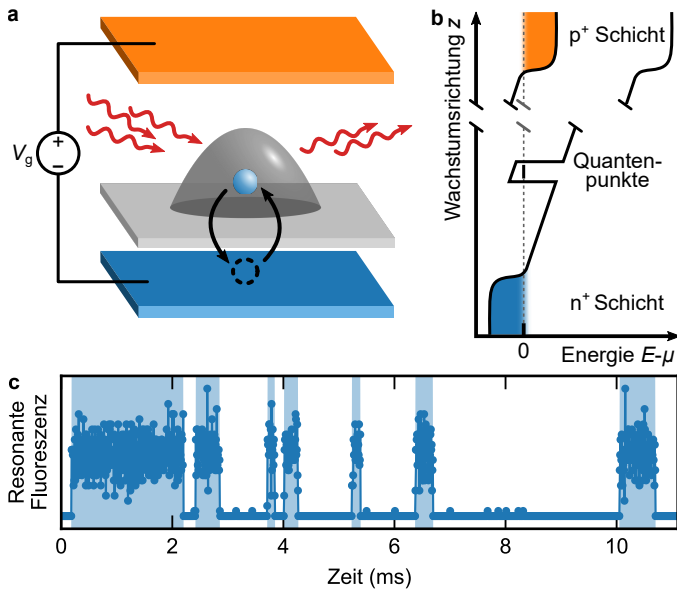


Abbildung 5.1.: Probenstruktur und Telegraphenrauschen. **a**, Schematische Darstellung der Probenstruktur. Der Quantenpunkt ist zwischen einer p⁺- und einer n⁺-dotierten Schicht eingebettet, die eine Diode bilden. An die Diode kann eine Gate-Spannung V_g angelegt werden. Der Quantenpunkt wird mit einem verstimmbaren Laser resonant angeregt. **b**, Schematische Darstellung der Leitungsband- und Valenzbandkante ohne angelegte Spannung. Der Elektronenzustand im Quantenpunkt kann in Resonanz mit dem chemischen Potential μ (gestrichelt) gebracht werden. **c**, Exemplarische Zeitreihe des Telegraphenrauschens. Die resonante Fluoreszenz (RF) wechselt zwischen zwei Niveaus in Abhängigkeit vom Besetzungszustand: RF an: Quantenpunkt ist unbesetzt; RF aus: Quantenpunkt ist mit einem Elektron besetzt. Abbildung nach [Kerski23].

bettet, die eine pin-Diode bilden (vgl. Abb. 5.1(a)). Der Rückkontakt stellt gleichzeitig ein Elektronen-Reservoir dar, aus dem Elektronen in die Quantenpunkte tunneln können oder aber aus diesem heraus. Die zeitlich gemittelte Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunktes ist gegeben über die Fermi-Verteilung des Rückkontaktes, die der Quantenpunkt austastet (vgl. Abb. 5.1(b)). Die relative Lage des Energieniveaus im Quantenpunkt zum chemischen Potential im Rückkontakt lässt sich über die Spannung V_g zwischen dem Gate und dem Rückkontakt einstellen und wurde im Experiment jeweils so gewählt, dass die zeitlich gemittelte Besetzung des Quantenpunktes zwischen 0 und 1 liegt. Zum Auslesen des Besetzungszustands wurde das Exziton mithilfe von resonanter Fluoreszenz (RF; vgl. Kap. 3.2.2) angeregt. In Abbildung 5.1(c) ist beispielhaft eine Zeitreihe der resonanten Fluoreszenz dargestellt. Diese fluktuiert zwischen zwei Niveaus: RF *an*: der Quantenpunkt ist unbesetzt und das Exziton kann angeregt werden; RF *aus*: der Quantenpunkt ist mit einem Elektron besetzt und die Anregung des Exzitons ist nicht möglich.

In selbstorganisierten Quantenpunkten kommt es allerdings häufig zur spektralen Diffusion [Robinson00], einer Energieverschiebung des optischen Übergangs aufgrund von Ladungs- und Spin-Rauschen in der Umgebung des Quantenpunktes [Kuhlmann13b, Kerski21]. Wenn man eine konstante Laserfrequenz einstrahlt und der optische Übergang würde eine solche Verschiebung erleben, würde man zeitweise abseits des Maximums der optischen Resonanz anregen. Dies würde dazu führen, dass die gemessene Intensität zeitlich variiert, wobei dies nicht auf eine Änderung der Besetzung zurück zu führen wäre. Um dies zu verhindern wurde ein Magnetfeld von 2 T entlang der Wachstumsrichtung z angelegt. Dies führt zu einer Kopplung mit den Kernspins des Quantenpunktes, was den optischen Übergang stabilisiert [Latta09, Xu09, Högele12]. Das endliche Magnetfeld in z -Richtung sorgt für eine Aufspaltung des einfach besetzten Quantenpunktzustandes in eine Spin-Up- und eine Spin-Down-Komponente, die über eine Spin-Relaxation miteinander gekoppelt sind. Es konnte allerdings in vorherigen Studien [Kurzmann19] gezeigt werden, dass für $B = 2$ T die Spin-Relaxationsrate so gering ist, dass sie vernachlässigt werden kann. Streng genommen müsste man das System demnach als zwei gekoppelte Zwei-Niveau-Systeme beschreiben (Leerer QP \leftrightarrow Spin-Up und Leerer QP \leftrightarrow Spin-Down). Da sich die Tunnelraten allerdings nicht nennenswert für die verschiedenen Spin-Richtungen unterscheiden, beschreiben wir das System im Folgenden trotzdem als ein Zwei-Niveau-System.

5.2. Auswertungsschema

Die Auswertung der Daten ist ein mehrstufiger Prozess, der beispielhaft in der Abbildung 5.2 dargestellt ist. Gemessen und gespeichert werden zunächst die einzelnen Photonen, die von der Avalanche-Photodiode detektiert werden, bzw. deren diskrete Detektionszeitpunkte (vgl. Abb. 5.2(a)). Um eine Aussage über den Besetzungszustand treffen zu können, müssen diese Zeitpunkte im ersten Auswertungsschritt gruppiert werden. Dazu wird jeweils gezählt, wieviele Photonen in einem Zeitintervall der Länge t_{bin} liegen. Im Folgenden bezeichnen wir t_{bin} auch als die *Binning-Zeit*. In der Abbildung 5.2(b) ist ein Ausschnitt einer solchen Zeitreihe für $t_{\text{bin}} = 20 \mu\text{s}$ dargestellt. Das Histogramm rechts zeigt zwei klar zu unterscheidende Maxima bei etwa $\mu_{\text{an}} \approx 35 t_{\text{bin}}^{-1}$ und $\mu_{\text{aus}} \approx 0$. Um den Besetzungszustand des Quantenpunktes festzulegen wird eine Grenze μ_{Grenz} definiert (vgl. Abb. 5.2(b) rot). Datenpunkte, die oberhalb dieser Grenze liegen, werden als *an* definiert und Datenpunkte, die darunter liegen, als *aus* (vgl. Abb. 5.2(b) blau hinterlegter Bereich). Da die beiden Maxima im Histogramm so klar von einander getrennt werden können, ist die Einschätzung des Besetzungszustandes die gesamte Messung möglich.

Dieses binäre Signal ist das Telegraphenrauschen, welches im letzten Schritt des Auswertungsprozesses untersucht wird. In dieser Arbeit benutzen wir dazu zwei verschiedene Methoden. Erstens lassen sich die an- und aus-Zeiten (auch *Wartezeiten* bzw. englisch: *waiting-times*) τ_{an} und τ_{aus} statistisch auswerten [Brandes08]. Wenn man die Verteilung der τ_{an} (der Quantenpunkt ist unbesetzt) normiert, entspricht sie der Wahrscheinlichkeit, dass nach einem Raustunnelereignis zum Zeitpunkt $\tau = 0$ der Quantenpunkt zum Zeitpunkt τ immer noch unbesetzt ist. Analoges gilt für τ_{aus} . Wie in Abbildung 5.2(d) zu sehen ist, zeigen die Wartezeitverteilungen einen exponentiellen Abfall und geben darüber Zugang zu der Rein- bzw. Raustunnelrate, entsprechend γ_{rein} bzw. γ_{raus} .

Die zweite Methode zum Auswerten des Telegraphenrauschens wird *vollständige Zählstatistik* (englisch: *full counting statistics*) genannt. Dabei wird die Anzahl an Tunnelereignissen N in einem gegebenem Zeitintervall Δt untersucht. Wir betrachten hier den Grenzfall für lange Zeitintervalle, d.h. Δt wird deutlich größer gewählt, als die mittlere inverse Tunnelrate. Diese liegen üblicherweise im sub-ms

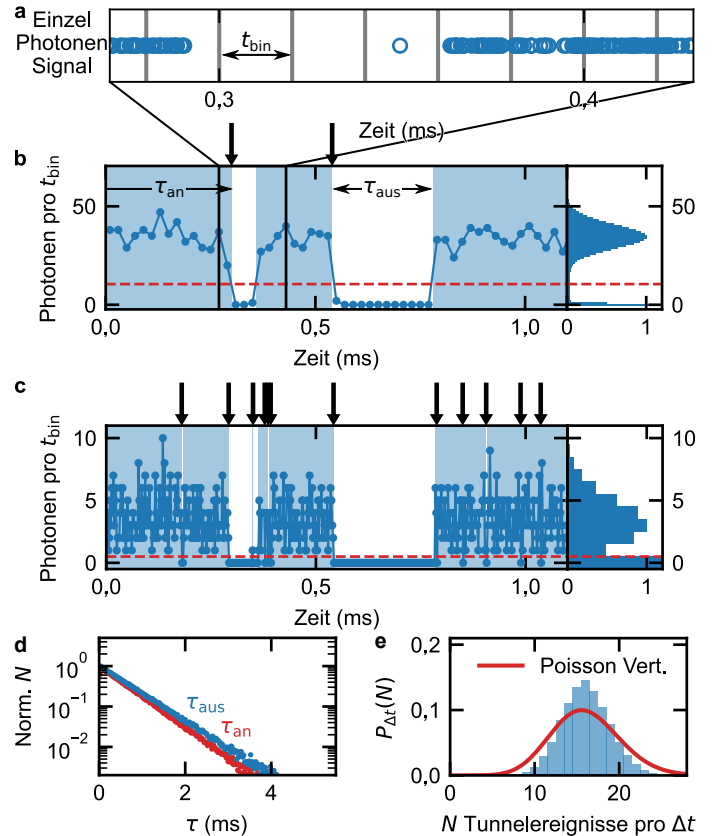


Abbildung 5.2.: Auswertungsschema des Telegraphenrauschens. **a**, Die diskreten Photonenergebnisse werden von einer Avalanche-Photodiode für etwa 5 min detektiert. **b**, **c**, Die diskreten Ereignisse werden mit einer gewählten Zeitauflösung t_{bin} gruppiert und ergeben so eine Zeitreihe mit äquidistanten Datenpunkten (links; **b**: $t_{\text{bin}} = 20 \mu\text{s}$ und **c**: $t_{\text{bin}} = 2 \mu\text{s}$). Die Histogramme der Photonenzahl (rechts) zeigen zwei Zustände. Mit der Grenzphotonenzahl (rot) ergibt sich die binäre Zeitreihe (links; blau hinterlegt). **d**, Die Wartezeitverteilungen ($t_{\text{bin}} = 20 \mu\text{s}$) ergeben sich als Histogramme der an- τ_{an} und aus-Zeiten τ_{aus} aus der binären Zeitreihe. **e**, Wahrscheinlichkeitsverteilung für N Tunnelereignisse pro Zeit Δt in der binären Zeitreihe. Bei der exemplarischen Verteilung handelt es sich um eine Sub-Poisson-Verteilung, weil sie schmaler und höher als eine Poisson-Verteilung (rot) ist. Die Tunnelereignisse sind in **b** und **c** mit Pfeilen hervorgehoben. Abbildung nach [Kerski23].

Bereich (vgl. Kap. 5.3), darum wählen wir $\Delta t = 20$ ms. Die Verteilung der Tunnelereignisse $P_{\Delta t}(N)$ ist beispielhaft in Abbildung 5.2(e) zu sehen. Physikalische Aussagen über den Transport und Wechselwirkungen im System lassen sich machen, indem man die Verteilung statisch untersucht. Dazu lassen sich statistische Momente und Kumulanten benutzen [Gustavsson06, Kurzmann19, Stegmann15, Kleinherbers22]. In dieser Arbeit soll allerdings keine tiefgehende Analyse des Transports selber stattfinden, sondern untersucht werden, wie hoch die Bandbreite der Messungen ist bzw. ob und wodurch sie limitiert ist. Darum wird im Folgenden ausschließlich der Fano-Faktor $F = c_2/c_1$ der Verteilung betrachtet, mit der ersten bzw. zweiten Kumulante, c_1 und c_2 . Bei der ersten Kumulante handelt es sich um den Erwartungswert und bei der zweiten Kumulante um die Varianz der Verteilung.

5.3. Festlegung der Grenzphotonenzahl

Wie im vorherigen Kapitel beschrieben, erfordert es die mehrstufige Auswertung des Telegraphenrauschens, geeignete Parameter zu wählen. Der wichtigste Parameter für die Fragestellung nach der Bandbreite ist die Binning-Zeit t_{bin} . Diese stellt für alle nachfolgenden Auswertungsschritte die Zeitauflösung dar. Die höchste Frequenz, die wir damit auflösen können, ist nach dem Abtasttheorem die halbe inverse Binning-Zeit: $f_{\text{max}} = 1/2t_{\text{bin}}$ [Shannon01]. Im Folgenden bezeichnen wir diese Frequenz auch als die Bandbreite der Messung. Die Tatsache, dass wir die Bandbreite *nach* der Messung wählen können, ist

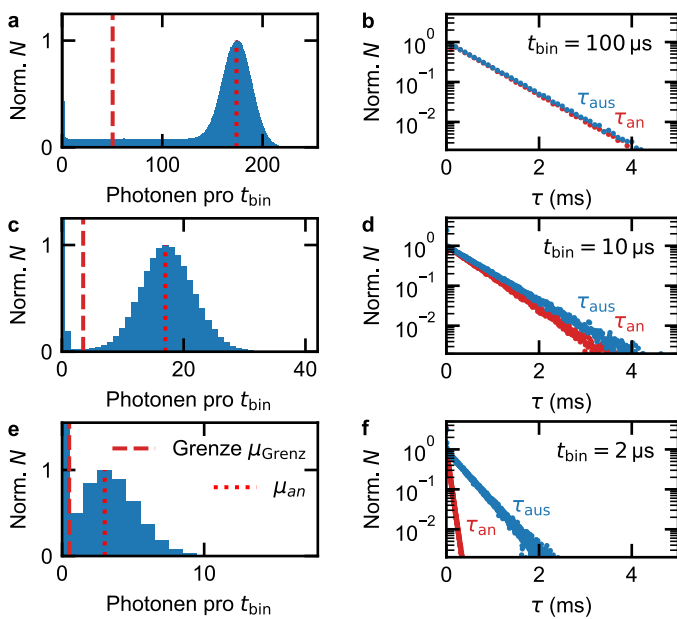


Abbildung 5.3.: Histogramme und Wartezeitverteilungen für verschiedene Binning-Zeiten t_{bin} . **a**, **c** und **e** Histogramme für jeweils $t_{\text{bin}} = 100 \mu\text{s}$, $10 \mu\text{s}$ und $2 \mu\text{s}$. Es sind zwei verschiedene Häufungen zu erkennen, die dem an-Zustand (Maximum μ_{an}) bzw. aus-Zustand entsprechen. Die Zustände werden in einer expliziten Auswertung mit der Grenzphotonenzahl μ_{Grenz} bestimmt. **b**, **d** und **f** Die entsprechenden Wartezeitverteilungen. Die Zeiten τ_{an} und τ_{aus} zeigen einen exponentiellen Zerfall, der Zugang zu den Tunnelraten γ_{rein} und γ_{raus} gibt. Für sehr kleine Binning-Zeiten ($t_{\text{bin}} = 2 \mu\text{s}$ (**f**)) unterscheiden sich die Tunnelraten nennenswert, weil die Photonenvverteilungen der beiden Zustände des Quantenpunktes überlappen. Abbildung nach [Kerski23].

sehr ungewöhnlich und beruht darauf, dass wir den Zeitpunkt jedes detektierten Photons aufzeichnen und erst in der Auswertung entscheiden, mit welcher Zeitauflösung wir „an“ und „aus“ unterscheiden. Um eine vergleichbare Methode in den elektrischen Messungen zu realisieren, bei denen die Stromänderungen durch den Detektor (Quantenpunktkontakt oder Einzel-Elektron-Transistor) beobachtet wird, müsste man den Ladungstransport mit Einzelelektron-Auflösung messen und zeitaufgelöst speichern.

Die Binning-Zeit lässt sich zwar zunächst frei wählen, dass aber auf diese Weise eine beliebig kleine Zeit (beliebig hohe Bandbreite) erzielt werden kann, widerspricht der Intuition. Zu Recht, denn wertet man die gleichen Daten mit zwei sehr verschiedenen Binning-Zeiten aus (vgl. Abb. 5.2(b): $t_{\text{bin}} = 20 \mu\text{s}$; Abb. 5.2(c): $t_{\text{bin}} = 2 \mu\text{s}$), so sieht man, dass das Signal-Rausch-Verhältnis deutlich sinkt und es erscheint unwahrscheinlich, dass der Quantentransport mit der gleichen Qualität aufgelöst werden kann. Bei Betrachtung des Histogramms in der Abbildung 5.2(c) zeigt sich außerdem, dass die Verteilungen des An- bzw. Aus-Zustandes für kleine Binning-Zeiten deutlich überlappen. Dies erschwert die Wahl des zweiten Auswertungsparameters, der Grenzphotonenzahl μ_{Grenz} . Um also iso-

liert den Einfluss von t_{bin} auf den beobachteten Quantentransport untersuchen zu können, muss zunächst eine schlüssige Wahl für μ_{Grenz} auch für geringe Signal-Rausch-Verhältnisse getroffen werden.

Um diese Wahl für μ_{Grenz} zu ermöglichen, nutzen wir die erste Auswertungsmethode der Wartezeitverteilungen. In Abbildung 5.3 wurde dafür derselbe Datensatz mit drei verschiedenen Werten für die Binning-Zeit ausgewertet. Die Gate-Spannung wurde dabei so gewählt, dass der Quantenpunkt je zur Hälfte der Zeit besetzt bzw. unbesetzt war, die gemittelten τ_{an} und τ_{aus} -Zeiten also recht genau übereinstimmten. Für $t_{\text{bin}} = 100 \mu\text{s}$ weist die Verteilung des An-Zustandes ein Maximum bei $\mu_{\text{an}} = 174 t_{\text{bin}}^{-1}$ auf und ist vom Aus-Zustand deutlich getrennt (vgl. Abb. 5.3(a)). In Abbildung 5.3(b) sind die entsprechende Wartezeitverteilungen für $\mu_{\text{Grenz}} = 50,5 t_{\text{bin}}^{-1}$ dargestellt. Beide Verteilungen lassen sich durch exponentielle Abfälle anpassen und ergeben: $\gamma_{\text{rein}} \approx 1,53 \text{ ms}^{-1}$ und $\gamma_{\text{raus}} \approx 1,48 \text{ ms}^{-1}$. Diese sind sehr ähnlich zueinander, der Quantentransport ist demnach gleichermaßen durch das Rein- wie durch das Raustunneln limitiert. Der Unterschied zwischen den Tunnelraten γ_{rein} und γ_{raus} wird durch den *Asymmetrie*-Parameter quantifiziert [Bagrets03, Gustavsson06]:

$$A = \frac{\gamma_{\text{raus}} - \gamma_{\text{rein}}}{\gamma_{\text{raus}} + \gamma_{\text{rein}}}. \quad (5.1)$$

Für große Binning-Zeiten wie in Abbildung 5.3(a) ist diese Auswertung der Wartezeiten sehr belastbar (die Asymmetrie A ändert sich kaum, wenn man die Grenzphotonenrate verändert). Sowohl die Raten selber als auch die Asymmetrie ergeben sich zunächst auch für kleinere t_{bin} identisch, wobei der Bereich, in dem man die Grenzphotonenzahl wählen kann, immer kleiner wird (vgl. Abb. 5.3(c) und (d)). Dies ist so zu erwarten, weil hier die gleiche Zeitreihe ausgewertet wird und sich die beobachtete Physik nicht ändern sollte.

Für sehr kleine t_{bin} überlappen die beiden Verteilungen stark (vgl. Abb. 5.3(e)). Dies führt dazu, dass die beiden Raten γ_{rein} und γ_{raus} steigen (vgl. Abb. 5.3(f)) und stark von der Wahl der Grenzphotonenzahl abhängen. Dies lässt sich damit erklären, dass bei einem zu geringen Signal-Rausch-Verhältnis die Photonenzahl beispielsweise unter die Grenze fällt und der Quantenpunkt als Aus betrachtet wird, obwohl sich der Quantenpunkt gerade im An-Zustand befindet. Dies führt dazu, dass besonders lange τ_{an} -Intervalle fälschlicherweise unterbrochen und anstelle dessen zwei kürzere gezählt werden. Dies führt zu der vermeintlichen Erhöhung der Tunnelraten. Analoges gilt für den Aus-Zustand und die τ_{aus} -Intervalle. Diese fehlerhafte Bestimmung der Raten lässt sich für kurze Binning-Zeiten nicht mehr durch eine geschickte Wahl von μ_{Grenz} unterdrücken, allerdings lässt sich darüber einstellen, welcher der Zustände starker beeinflusst wird und welcher schwächer. Unser Ansatz besteht nun darin, dass wir die Grenzphotonenzahl so wählen, dass die resultierende Asymmetrie der Raten möglichst nah an der tatsächlichen physikalischen Asymmetrie liegt, die wir im Langzeit-Limit für große t_{bin} bestimmen können. Da wir auf diese Weise die Auswertung der Wartezeitverteilungen bereits zur Bestimmung der Grenzphotonenzahl benötigen, nutzen wir im folgenden Kapitel die vollständige Zählstatistik. Damit untersuchen wir inwieweit die Messung des Quantentransports mit sinkendem t_{bin} noch verlässlich und frei von Artefakten ist oder aber wie weit die Zeitauflösung verbessert (t_{bin} verringert) werden kann, bevor Artefakte in der Auswertung die Ergebnisse wertlos machen.

5.4. Intrinsische Bandbreitenlimitierung

Wir benutzen im Folgenden die vollständige Zählstatistik, um das Telegraphenrauschen und damit den Quantentransport quantitativ zu beschreiben. Explizit betrachten wir den Fano-Faktor F . Das System aus Quantenpunkt und Elektronenreservoir beschreiben wir durch ein zwei Niveau-System. Die Tunnelraten zwischen den beiden Zuständen könnten zwar auch asymmetrisch sein (vgl. Gl. (5.1)), wir wollen unsere Betrachtung allerdings für den Fall einer verschwindenden Asymmetrie $A \approx 0$, also gleichen Tunnelraten beginnen.

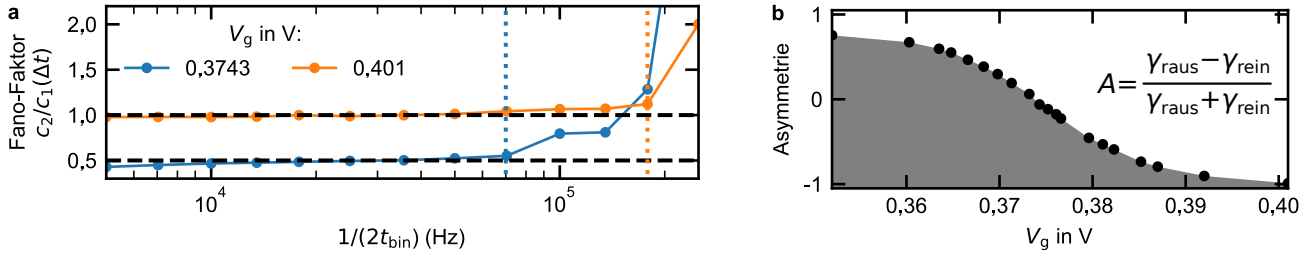


Abbildung 5.4.: Fano-Faktor gegen Bandbreite $1/(2t_{\text{bin}})$ für verschiedene Asymmetrien A . **a** Der Fano-Faktor lässt sich für kleine Bandbreiten durch ein Zwei-Niveau-System mit entsprechender Asymmetrie beschreiben (schwarze gestrichelte Linien). Aber einer kritischen Bandbreite divergiert der Fano-Faktor jedoch bei 70 kHz (0,3742 V; blaue gestrichelte Linie) und 179 kHz (0,401 V; orange gestrichelte Linie). **b** Die Asymmetrie wird aus den Rein- und Raustunnelraten Γ_{rein} und Γ_{raus} bestimmt. Die Abbildung zeigt diese für $t_{\text{bin}} = 20 \mu\text{s}$ und $\mu_{\text{Grenz}} = 5,5 t_{\text{bin}}^{-1}$ in Abhängigkeit von der Gate-Spannung V_g . Abbildung nach [Kerski23].

Die Asymmetrie wird, wie in Kapitel 5.3 beschrieben, aus den Wartezeitverteilungen und den entsprechenden Tunnelraten bestimmt. Wir betrachten an dieser Stelle dieselbe Zeitreihe, wie in Abbildung 5.3, sodass sich im Langzeitlimit für $t_{\text{bin}} = 100 \mu\text{s}$ eine Asymmetrie von $A \approx -0,018$ ergibt. In dieser Situation ist der Elektronentransport durch das Hereintunneln und Heraustunneln gleichermaßen limitiert, denn aufgrund der Coulomb-Blockade können nur genau 0 oder 1 Elektronen im Quantenpunkt sein. Damit sind Herein- und Heraustunneln korreliert: Zwei Hineintunnel-Prozesse können nicht direkt hintereinander erfolgen, ohne dass dazwischen ein Elektron wieder hinaus tunnelt. Analoges gilt für zwei Heraustunnel-Prozesse. Diese Korrelation führt zu einer statistischen Verteilung der Prozesse, die schmäler ist als die Poisson-Verteilung (siehe Abb. 5.2(e)). Diese Eigenschaft lässt direkt Rückschlüsse auf den Fano-Faktor zu, der als Verhältnis der zweiten zur ersten Kumulante definiert ist $F = c_2/c_1$. Die zweite Kumulante ist die Varianz der Verteilung und die erste Kumulante der Erwartungswert. Es wird deshalb bezeichnet: (1) $F < 1$: Sub-Poisson; (2) $F = 1$: Poisson; (3) $F > 1$: Super-Poisson. Für eine Asymmetrie von $A = 0$ erwarten wir einen Fano-Faktor von $F = 0,5$ [Gustavsson06]. In der Abbildung 5.4(a) ist in blau der berechnete Fano-Faktor über der gewählten Bandbreite $1/(2t_{\text{bin}})$ für 13 logarithmisch gleichverteilte Werte von t_{bin} dargestellt. Für Werte ≤ 10 kHz weicht der Fano-Faktor leicht von dem erwarteten Wert von 0,5 ab, insgesamt hängt der Fano-Faktor aber über einen weiten Bereich nicht von der gewählten Binning-Zeit t_{bin} ab. Dieses Verhalten lässt sich bis zu etwa 70 kHz beobachten (vgl. Abb. 5.4(a) blau gestrichelt), für höhere Bandbreiten (kleinere Binning-Zeiten) steigt der Fano-Faktor stetig an und scheint zu divergieren. Ab dieser kritischen Binning-Zeit $t_{\text{bin}}^{\text{krit}}$ lässt sich die Korrelation im Quantentransport also nicht mehr auflösen.

Um sicher zu gehen, dass dieses divergente Verhalten des Fano-Faktors kein Artefakt in der einzelnen Messung oder der spezifischen Asymmetrie $A = 0$ ist, wurde die Messung für mehrere Gate-Spannungen wiederholt. Die bestimmte Asymmetrie für die einzelnen Messungen ist in Abbildung 5.4(b) dargestellt. Für höhere Gate-Spannungen strebt die Asymmetrie dabei den Wert $A = -1$ an. Dies geschieht, weil der Elektronenzustand im Quantenpunkt mit steigender Spannung relativ zum chemischen Potential des Rückkontaktes abgesenkt wird. Dadurch sinkt die Rate für das Raustunneln des Elektrons aus dem Quantenpunkt ($\gamma_{\text{raus}} \rightarrow 0$) und der Reintunnelprozess bzw. die entsprechende Rate dominiert. Da für $A = -1$ also nur ein Tunnelprozess dominiert, erwarten wir einen veränderten Fano-Faktor von 1 für eine solche Messung. In der Abbildung 5.4(a) ist darum in orange der Fano-Faktor für eine Messung bei $V_g = 0,401$ V ($\gamma_{\text{rein}} \approx 2,9 \text{ ms}^{-1}$; $\gamma_{\text{raus}} \approx 42,5 \text{ s}^{-1}$; $A \approx -0,97$) dargestellt. Dieser zeigt wieder das divergente Verhalten und wird für $1/(2t_{\text{bin}}) < 179$ kHz ebenfalls gut durch einen konstanten Fano-Faktor $F = 1$ beschrieben.

Damit konnten wir zeigen, dass man beim optischen Auslesen des Quantenpunktbesetzungszustandes mit einzelnen Photonen die Binning-Zeit und damit die Zeitauflösung in der *Postprozessierung* in

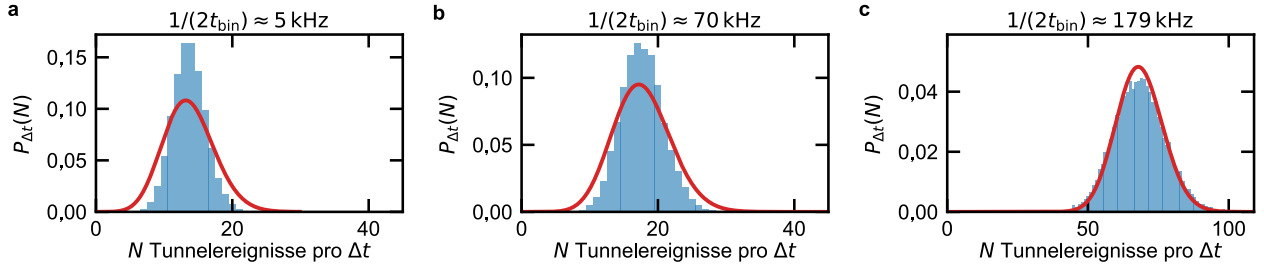


Abbildung 5.5.: Wahrscheinlichkeitsverteilungen für N Tunnelereignisse pro Δt für verschiedene Bandbreiten. Dargestellt sind die Verteilungen, die den Daten in 5.4(a) für $0,3743\text{ V}$ zugrunde liegen. In rot ist jeweils eine Poisson-Verteilung mit gleichem Erwartungswert dargestellt. Bis zu einer Bandbreite von 70 kHz (a und b) ergeben sich Sub-Poisson-Verteilungen. Mit einem Erwartungswert von $10 < \mu < 20\ \Delta t^{-1}$. Für höhere Bandbreiten (c) erhöht sich der Erwartungswert deutlich und es ergibt sich eine Super-Poisson-Verteilung.

einem weiten Bereich frei wählen kann. Allerdings besitzen die Messungen eine kritische Binning-Zeit $t_{\text{bin}}^{\text{krit}}$. Wenn man versucht die Messung mit höherer Zeitaufösung auszuwerten, lässt sich die Korrelation im Quantentransport nicht richtig auflösen. Die Messungen besitzen also eine Art von *intrinsischer Bandbreite*. In Analogie zur Definition der Bandbreite $f = 1/2t_{\text{bin}}$, wie wir sie weiter oben eingeführt haben, definieren wir deshalb mit Hilfe der kritischen Binning-Zeit $t_{\text{bin}}^{\text{krit}}$ die *intrinsische Bandbreite* $f = 1/2t_{\text{bin}}^{\text{krit}}$. Im Folgenden soll nun untersucht werden, wodurch diese Bandbreite gegeben ist bzw. wie sie sich erhöhen lässt. Dies geschieht am Beispiel der Messung mit $A \approx 0$ aus Abbildung 5.4(a) ($V_g = 0,3743\text{ V}$).

Wir untersuchen den Quantentransport mithilfe des Fano-Faktors. Dieser charakterisiert wiederum die Verteilungen $P_{\Delta t}(N)$, die angeben, wie wahrscheinlich es ist in einem Zeitintervall der Länge Δt die Anzahl N an Tunnelereignissen zu beobachten. Als Tunnelereignis zählen dabei aber nur *entweder* das Reintunneln *oder* das Raustunneln. Welche Sorte von Ereignissen man wählt ist irrelevant, da beide die selben Informationen beinhalten. Da wir Tunnelraten im Bereich von $> 1\text{ ms}^{-1}$ haben (vgl. Kap. 5.3) beträgt das Zeitintervall für alle unsere Auswertungen $\Delta t = 20\text{ ms}$, sodass der Erwartungswert für die Anzahl an Tunnelereignissen pro Zeitintervall deutlich größer als 1 ist und die Verteilungen $P_{\Delta t}(N)$ gut aufgelöst werden können. In Abbildung 5.5 sind diese Verteilungen $P_{\Delta t}(N)$ für verschiedene Werte von $1/(2t_{\text{bin}})$ dargestellt. Für Werte bis zur intrinsischen Bandbreite bei 70 kHz ähneln sich die Verteilungen sehr (vgl. Abb. 5.5(a) mit $F \approx 0,43$ und (b) mit $F \approx 0,55$). Es handelt sich jeweils um Sub-Poisson-Verteilungen, die schmäler sind als eine entsprechende Poisson-Verteilung mit dem gleichen Erwartungswert (jeweils dargestellt in rot).

Oberhalb der intrinsischen Bandbreite sind die $P_{\Delta t}(N)$ nennenswert verbreitert und stellen ab 179 kHz Super-Poisson-Verteilungen dar ($F \approx 1,27$, vgl. Abb. 5.5(c)). Allerdings ist nicht nur das Verhältnis der Varianz zum Erwartungswert deutlich höher, vielmehr ist der Erwartungswert selber von etwas weniger als 20 Tunnelereignissen pro Δt auf ein Vielfaches angestiegen. Bei sehr hohen Bandbreiten kommen also zu den tatsächlichen physikalischen (richtigen) Tunnelereignissen, die sich unterhalb der kritischen Bandbreite nahezu unverändert ergeben, auch noch weitere falsche Tunnelereignisse hinzu. Diese Ereignisse bezeichnen wir im Folgenden als *binning-induzierte* Tunnelereignisse, da sie keine physikalische Entsprechung oder Bedeutung haben. Sie entstehen, wie in Kapitel 5.3 für die Bestimmung der Raten diskutiert, wenn die Photonverteilungen des An- bzw. Aus-Zustandes überlappen und eine klare Trennung nicht mehr möglich ist. In diesem Fall über- oder unterschreitet die Photonenzahl fälschlicherweise kurz die Grenzphotonenzahl und es wird ein zusätzliches Tunnelereignis detektiert. Für kleine in der Postprozessierung gewählte Bandbreiten ist die Zahl der physikalischen Ereignisse sehr viel größer als die der binning-induzierten und dieser Effekt ist zu vernachlässigen. Oberhalb der intrinsischen Bandbreite ist dies nicht mehr gegeben und die Ergebnisse werden verfälscht.

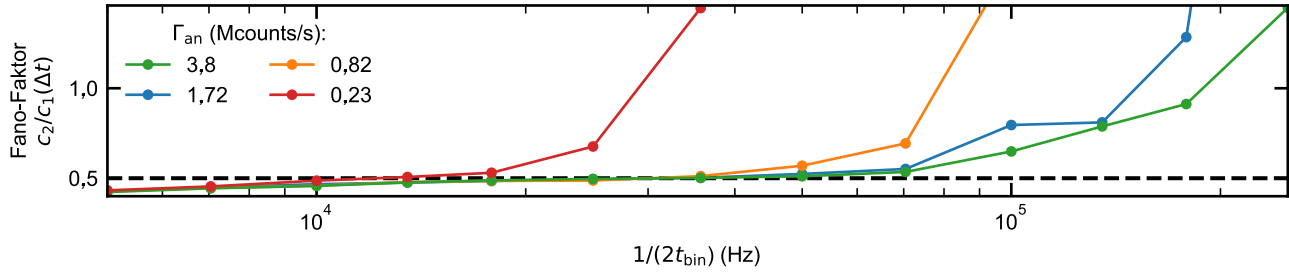


Abbildung 5.6.: Fano-Faktor gegen Bandbreite $1/(2t_{\text{bin}})$ für verschiedene Photonendektrationsraten Γ_{an} . Die Datenpunkte für die verschiedenen Messungen stimmen unterhalb ihrer intrinsischen Bandbreite gut überein und lassen sich durch ein Zwei-Niveau-System mit einer Asymmetrie $A = 0$ beschreiben (Fano-Faktor $F = 0,5$ (gestrichelte Linie)). Die intrinsische Bandbreite, ab der der Fano-Faktor deutlich vom theoretischen Wert $F = 0,5$ abweicht, steigt monoton aber nicht linear mit der Photonendektrationsrate an. Abbildung nach [Kerski23].

Aus dieser Erkenntnis, dass die physikalischen (richtigen) Tunnelereignisse mit den binning-induzierten (falschen) Tunnelereignissen konkurrieren, ergeben sich zwei Ansätze, um die intrinsische Bandbreite zu erhöhen. Ein Ansatz ist es die Anzahl an physikalischen Tunnelereignissen zu erhöhen. Denn gäbe es mehr physikalische Tunnelereignisse pro Zeitintervall Δt , dann könnten die binning-induzierten Tunnelereignisse für höhere Bandbreiten noch vernachlässigt werden. Dieser Ansatz ließ sich in unseren Messungen nicht überprüfen, denn die Anzahl an physikalischen Tunnelereignissen ist durch die Tunnelraten gegeben. Es müssten dazu also neue Messungen an anderen Probenstrukturen durchgeführt werden, in denen die Quantenpunkte vom Elektronenreservoir durch eine Tunnelbarriere mit höherer Transmissionsrate getrennt sind. Dieser Ansatz ist durchaus kontraintuitiv, denn man würde mit den höheren Tunnelraten quasi einen *schnelleren* Quantentransport untersuchen, der selber die Ursache dafür ist, dass man ihn mit einer höheren Zeitauflösung messen kann, weil er für mehr physikalische Tunnelereignisse pro Zeitintervall Δt sorgt.

Der zweite Ansatz basiert darauf, die Menge an binning-induzierten (falschen) Tunnelereignissen zu verringern. Da sie entstehen, wenn die Photonendektrationsraten des An- und des Aus-Zustandes überlappen, muss man zur Verringerung ihrer Anzahl diesen Überlapp verringern. Die Photonen, die im Aus-Zustand gemessen werden, sind allgemein unerwünscht. Im Aus-Zustand ist der Quantenpunkt mit einem Elektron besetzt und der optische Übergang des Exzitons, der resonant angeregt wird, ist verboten. Die Photonenergebnisse, die trotzdem gemessen werden, sind einerseits reflektierte Laserphotonen, die trotz der gekreuzten Polarisatoren im Mikroskopaufbau detektiert werden (siehe Kap. 3.2.2), und andererseits sogenannte *dark counts*, die von der Avalanche-Photodiode registriert werden, ohne dass tatsächlich ein Photon detektiert wird. In unseren Messungen sind diese beiden Quellen bereits nah an der technischen Grenze und eine weitere Verringerung würde die intrinsische Bandbreite nicht nennenswert erhöhen. Dieser Aspekt wird in Kapitel 5.4.1 ausführlicher diskutiert. Schließlich lässt sich aber der Erwartungswert der Photonendektrationsrate des An-Zustandes μ_{an} erhöhen: $\mu_{\text{an}} = t_{\text{bin}} \cdot \Gamma_{\text{an}}$. Dieser hängt neben der Binning-Zeit t_{bin} auch von der Photonendektrationsrate Γ_{an} ab. Diese lässt sich experimentell über die eingestrahlte Laserleistung variieren. Um diesen Ansatz zu überprüfen, wurde die Messung mit $A \approx 0$ aus Abbildung 5.4(a) ($V_g = 0,3743$ V) für drei weitere Laserleistungen wiederholt.

Die entsprechenden Ergebnisse sind in Abbildung 5.6 dargestellt. Wir charakterisieren die Messungen anhand der gemessenen Photonendektrationsrate Γ_{an} . Die bereits präsentierte Messung wurde mit $\Gamma_{\text{an}} = 1,72$ MCounts/s aufgenommen. Der Fano-Faktor zeigt für alle vier Messungen qualitativ das gleiche Verhalten, indem er ab einer jeweils bestimmten Bandbreite $1/(2t_{\text{bin}})$ divergiert. Diese intrinsischen Bandbreiten steigen mit der Photonendektrationsrate Γ_{an} , wie erwartet. Allerdings scheint der Zusammenhang der beiden Größen nicht linear zu sein, was vor allem beim Vergleich der Mes-

sungen für $\Gamma_{\text{an}} = 1,72 \text{ MCounts/s}$ (blau) und $\Gamma_{\text{an}} = 3,8 \text{ MCounts/s}$ (grün) ersichtlich wird. Darum wird im folgenden Kapitel 5.4.1 eine statistische Beschreibung etabliert, mit der die Abhängigkeit der intrinsischen Bandbreite von den Photonverteilungen μ_{an} und μ_{aus} quantitativ untersucht werden kann.

Die Daten in Abbildung 5.6 zeigen noch einen weiteren Aspekt. Für Bandbreiten unterhalb der intrinsischen Bandbreite wird der Fano-Faktor jeweils durch den zu erwartenden Wert von 0,5 beschrieben. Bei genauerer Betrachtung zeigt sich allerdings, dass die Datenpunkte zum großen Teil sogar deckungsgleich sind. Dies bedeutet, dass der Quantentransport in dieser einfachen Analyse mit dem Fano-Faktor nicht von der Leistung der optischen Anregung abhängt. Dies könnte einen experimentellen Beitrag zu der Fragestellung leisten, ob die optische Anregung eines einzelnen Quantenpunktes im quantenmechanischen Sinne eine starke oder schwache Messung darstellt [Sifft21], wie sie beispielsweise für den Quanten-Zeno-Effekt notwendig wäre [Ahmadinia22].

5.4.1. Statistische Beschreibung

In diesem Kapitel wollen wir das (scheinbare) Divergieren des Fano-Faktors quantitativ beschreiben. Wir betrachten dazu ein Intervall der Zeitreihe der Länge Δt und die entsprechenden Verteilungen der Tunnelereignisse $P_{\Delta t}(N)$. Zur Divergenz kommt es spätestens, wenn die Anzahl an fehlerhaften binning-induzierten Tunnelereignissen N_{fehl} die korrekte Anzahl an tatsächlichen physikalischen Tunnelereignissen N_{korrr} übertrifft. Wenn die Anzahl der detektierten Tunnelereignisse aber ausschließlich oder zum Großteil durch die tatsächlichen physikalischen Tunnelereignisse gegeben ist, sind die Verteilungen $P_{\Delta t}(N)$ kaum beeinflusst und der Quantentransport lässt sich korrekt auswerten. Wir betrachten im Folgenden die Situation, dass es gleich viele fehlerhafte und korrekte Tunnelereignisse gibt

$$N_{\text{korrr}} = N_{\text{fehl}} \quad (5.2)$$

und bezeichnen die Binning-Zeit, bei der es zu dieser Situation kommt, als kritische Binning-Zeit $t_{\text{bin}}^{\text{krit}}$.

Die Anzahl an korrekten Tunnelereignissen ist dabei gegeben durch die effektive Tunnelrate γ_{tun} und die Länge des Zeitintervalls Δt :

$$N_{\text{korrr}} = \gamma_{\text{tun}} \cdot \Delta t, \quad \text{mit} \quad \frac{1}{\gamma_{\text{tun}}} = \frac{1}{\gamma_{\text{raus}}} + \frac{1}{\gamma_{\text{rein}}}. \quad (5.3)$$

Die Anzahl an binning-induzierten Tunnelereignissen ist etwas komplizierter. Ein solches Ereignis entsteht dadurch, dass der Zustand des Quantenpunktes zu einem Zeitpunkt in der Zeitreihe falsch eingeschätzt wird. Demnach ergibt sich die Anzahl an binning-induzierten Tunnelereignissen N_{fehl} als Summe der falsch eingeschätzten An- bzw. Aus-Zeitpunkte:

$$N_{\text{fehl}} = N_{\text{fehl}}^{\text{an}} + N_{\text{fehl}}^{\text{aus}}. \quad (5.4)$$

Die Anzahl $N_{\text{fehl}}^{\text{an}}$ wiederum ergibt sich aus der Anzahl aller An-Zeitpunkte N^{an} im Zeitintervall Δt und der Wahrscheinlichkeit, dass ein An-Zeitpunkt falsch eingeschätzt wird $P_{\text{fehl}}^{\text{an}}$:

$$N_{\text{fehl}}^{\text{an}} = P_{\text{fehl}}^{\text{an}} \cdot N^{\text{an}}. \quad (5.5)$$

Analoges gilt für $N_{\text{fehl}}^{\text{aus}}$.

Wir vernachlässigen an dieser Stelle, dass ein falsch eingeschätzter Zeitpunkt nicht immer zur Detektion eines zusätzlichen Tunnelereignisses führt. Dies ist der Fall, wenn der falsch eingeschätzte Zeitpunkt am Anfang oder am Ende einer Zustandsdauer (τ_{an} oder τ_{aus}) liegt und somit nur den Zeitpunkt des Tunnelereignisses um eine Binning-Zeit t_{bin} verschiebt. In unserem Experiment liegt

die charakteristische Dauer der Zustände An und Aus allerdings bei etwa $\gamma_{\text{rein}}^{-1} \approx \gamma_{\text{raus}}^{-1} \approx 1 \text{ ms}$ und die kritischen Binning-Zeiten sind $< 10 \mu\text{s}$, sodass ein gegebener Zustand typischerweise mehr als 100 Binning-Intervalle andauert und die angesprochenen Rand-Effekte wohl vernachlässigt werden können. Ferner würden auch mehrere falsch eingeschätzte Zeitpunkte hintereinander nur zu einem einzelnen zusätzlichen Tunnelereignis führen. Da wir aber das Regime betrachten, in dem wir ähnlich viele korrekte und fehlerhafte Ereignisse detektieren (vgl. Gl. (5.2)) liegt im Mittel auch nur etwa ein falsch eingeschätzter Zeitpunkt pro Zustandsdauer vor, sodass wir dies ebenfalls vernachlässigen können.

Unter der Annahme, dass eine Asymmetrie von $A = 0$ vorliegt, sind die Rein- und Raustunnelrate gleich (vgl. Gl. (5.1)). Das bedeutet, dass der Quantenpunkt gleich lang an und aus ist. Für die Anzahl an Zeitpunkten gilt dann:

$$N^{\text{an}} = N^{\text{aus}} = \frac{1}{2} \Delta t / t_{\text{bin}}^{\text{krit}}. \quad (5.6)$$

Schließlich sind nur noch die Wahrscheinlichkeiten $P_{\text{fehl}}^{\text{an}}/P_{\text{fehl}}^{\text{aus}}$ unbestimmt. $P_{\text{fehl}}^{\text{an}}$ stellt die Wahrscheinlichkeit dar, dass ein Zeitpunkt, der dem An-Zustand zugeordnet gehört, fälschlicherweise dem Aus-Zustand zugeordnet wird. Sie lässt sich aus dem Anteil aller An-Zustandszeitpunkte bestimmen, die falsch eingeschätzt sind, also eine Photonenzahl unterhalb der Grenzphotonenzahl μ_{Grenz} besitzen. Für die Photonerverteilung des An-Zustandes betrachten wir die Abbildung 5.3. Diese stellt eine Poisson-Verteilung $P_{\mu}(k)$ mit dem Erwartungswert μ dar. Die Wahrscheinlichkeit ergibt sich also zu:

$$P_{\text{fehl}}^{\text{an}} = \sum_{k=0}^{\mu_{\text{Grenz}}} P_{\mu_{\text{an}}}(k) \quad \text{mit} \quad \mu_{\text{an}} = \Gamma_{\text{an}} \cdot t_{\text{bin}}^{\text{krit}}. \quad (5.7)$$

Für $P_{\text{fehl}}^{\text{an}}$ gilt Gleichung (5.7) analog, wobei die Summe von $k = \mu_{\text{Grenz}}$ bis ∞ läuft, da für den Aus-Zustand alle Zeitpunkte falsch eingeschätzt werden, die oberhalb der Grenzphotonenzahl liegen.

Mit den Gleichungen (5.2) bis (5.7) ergibt sich

$$\gamma_{\text{tun}} \Delta t = \sum_{k=0}^{\mu_{\text{Grenz}}} P_{\mu_{\text{an}}}(k) \frac{\Delta t}{2t_{\text{bin}}^{\text{krit}}} + \sum_{k=\mu_{\text{Grenz}}}^{\infty} P_{\mu_{\text{aus}}}(k) \frac{\Delta t}{2t_{\text{bin}}^{\text{krit}}}. \quad (5.8)$$

Dabei fällt auf, dass der Zusammenhang unabhängig von der Länge des betrachteten Zeitintervalls Δt ist. Dies liegt daran, dass wir die Anzahl an Ereignissen vergleichen (vgl. Gl. (5.2)) und die Relation auch für eine normierte Länge des Intervalls und damit die Raten gilt. Sodass wir die Gleichung auch umformen können zu:

$$2\gamma_{\text{tun}} t_{\text{bin}}^{\text{krit}} = \sum_{k=0}^{\mu_{\text{Grenz}}} P_{\mu_{\text{an}}}(k) + \sum_{k=\mu_{\text{Grenz}}}^{\infty} P_{\mu_{\text{aus}}}(k). \quad (5.9)$$

Die Gleichung muss nun nach der kritischen Binning-Zeit $t_{\text{bin}}^{\text{krit}}$ aufgelöst werden. Dies erscheint vielleicht zunächst trivial, allerdings hängen die Erwartungswerte μ der Poisson-Verteilungen ebenfalls von der Binning-Zeit ab. Die Gleichung ist deshalb transzendent und wurde numerisch mit dem Computeralgebrasystem Mathematica [Wolfram Research, Inc.] und der Funktion *NSolve* gelöst. Die experimentell bestimmte effektive Tunnelrate betrug $\gamma_{\text{tun}} = 752,3 \text{ s}^{-1}$ (vgl. Gl. (5.3) mit $\gamma_{\text{rein}} \approx 1,53 \text{ ms}^{-1}$ und $\gamma_{\text{raus}} \approx 1,48 \text{ ms}^{-1}$). Für Γ_{an} wurden 500 logarithmisch gleichverteilte Werte aus dem Intervall $[10^4 \text{ s}^{-1}, 10^8 \text{ s}^{-1}]$ und für Γ_{aus} aus dem Intervall $[10^1 \text{ s}^{-1}, 10^5 \text{ s}^{-1}]$ gewählt. Die Intervalle stellen typische experimentell realisierte bzw. realisierbare Werte dar. Die Grenzphotonenzahl μ_{Grenz} wurde jeweils als 0,5, 1,5 und $2,5 t_{\text{bin}}^{-1}$ gewählt.

Wenn man die Abhängigkeit der kritischen Binning-Zeit von der Photonenzahl des An-Zustandes Γ_{an} betrachtet (vgl. Abb. 5.7(a)), erkennt man in der doppellogarithmischen Auftragung eine leichte Krümmung der Kurven. Außerdem gibt es eine leichte Abhängigkeit von der Grenzphotonenzahl. Über den betrachteten Bereich der Parameter lässt sich die Abhängigkeit allerdings gut durch $t_{\text{bin}}^{\text{krit}} \propto \Gamma_{\text{an}}^{-0,8}$

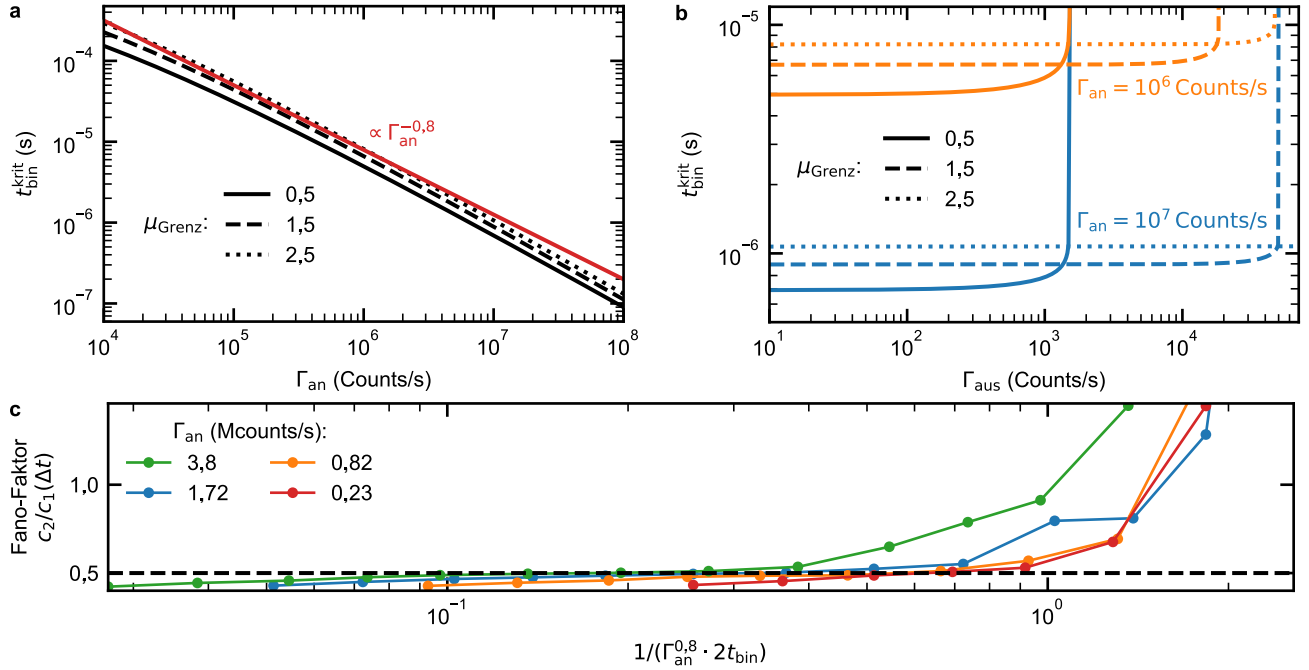


Abbildung 5.7.: Statistisches Modell für die kritische Binning-Zeit $t_{\text{bin}}^{\text{krit}}$ und Reskalierung der Messdaten. **a** Kritische Binning-Zeit in Abhängigkeit von der Photonendetectionsrate Γ_{an} für drei Werte μ_{Grenz} und $\Gamma_{\text{aus}} = 10^2$ Counts/s. Die Abhängigkeit lässt sich effektiv durch einen polynominalen Zusammenhang $t_{\text{bin}}^{\text{krit}} \propto \Gamma_{\text{an}}^{-0,8}$ (rot) beschreiben. **b** Kritische Binning-Zeit in Abhängigkeit von der Photonenzahl Γ_{aus} . Die kritische Binning-Zeit hängt im Allgemeinen nicht von Γ_{aus} ab, es bilden sich eher Plateaus mit annähernd konstanter $t_{\text{bin}}^{\text{krit}}$ aus. Bis zu einer bestimmten Rate ($\Gamma_{\text{aus}} \approx 1,6 \times 10^3$ Counts/s) ergibt sich der kleinste Wert für die kritische Binning-Rate mit einer Grenzphotonenzahl $\mu_{\text{Grenz}} = 0,5 t_{\text{bin}}^{-1}$. Oberhalb dieses Wertes erhöht sich die optimale Grenzphotonenzahl schrittweise mit Γ_{aus} . **c** Wenn man die Bandbreite mit der beobachteten Abhängigkeit von der Photonendetectionsrate Γ_{an} aus **a** reskaliert fallen die intrinsischen Bandbreiten fast alle zusammen. Die Abweichung für $\Gamma_{\text{an}} = 3,8$ MCounts/s und einen Datenpunkt für $\Gamma_{\text{an}} = 1,72$ MCounts/s lässt sich mit einem erhöhten Wert von Γ_{aus} erklären. Abbildung nach [Kerski23].

(vgl. Abb. 5.7(a) rot) beschreiben. Um dies an den Messdaten zu erproben, sind in der Abbildung 5.7(c) erneut die Daten für unterschiedliche Γ_{an} aufgetragen, wobei diesmal die Bandbreite mit der gefundenen Abhängigkeit reskaliert wurde. Die Graphen für $\Gamma_{\text{an}} = 1,72, 0,82$ und $0,23$ MCounts/s liegen auch im Bereich der Divergenz übereinander. Einzig die Daten für $\Gamma_{\text{an}} = 3,8$ MCounts/s und ein einzelner Punkt (bei $1/(\Gamma_{\text{an}}^{0,8} \cdot 2t_{\text{bin}}) \approx 10^0$) in den Daten für $\Gamma_{\text{an}} = 1,72$ MCounts/s liegen außerhalb dieses Bündels. Dies lässt sich mit der zusätzlichen Abhängigkeit der kritischen Binning-Zeit $t_{\text{bin}}^{\text{krit}}$ von der mittleren Photonenzahl des Aus-Zustandes Γ_{aus} erklären. In Abbildung 5.7(b) lassen sich Plateaus erkennen, in denen die Binning-Zeit nahezu konstant ist. Diese Plateaus enden bei bestimmten Werten von Γ_{aus} , an denen die Binning-Zeit divergiert. Das Plateau mit dem global tiefsten Wert für $t_{\text{bin}}^{\text{krit}}$ ergibt sich für eine Grenzphotonenzahl von $\mu_{\text{Grenz}} = 0,5 t_{\text{bin}}^{-1}$ und $\Gamma_{\text{aus}} < 1,5 \times 10^3$ Counts/s. Für höhere Werte von Γ_{aus} ergibt sich das nächst tiefste Plateau für $t_{\text{bin}}^{\text{krit}}$ erst für einen höheren Wert von μ_{Grenz} .

Im Experiment entsprechen die Photonen des Aus-Zustandes den dark counts der Avalanche-Photodiode und den reflektierten Laserphotonen. Für die Daten mit $\Gamma_{\text{an}} = 0,82$ und $0,23$ MCounts/s (orange und rot in Abb. 5.7(c)) können die reflektierten Photonen gut unterdrückt werden, weil mit wenig Laserleistung angeregt wird. Deshalb ist Γ_{aus} recht gering mit $0,19$ und $0,12$ kCounts/s, sodass die Daten auf dem tiefsten Plateau ausgewertet werden konnten. Für die Daten mit $\Gamma_{\text{an}} = 1,72$ und $3,8$ MCounts/s (blau und grün in Abb. 5.7(c)) wurde mit deutlich höherer Laserleistung angeregt, deshalb betrug Γ_{aus} jeweils $1,4$ und $1,3$ kCounts/s. Damit liegen sie in dem Bereich, in dem $t_{\text{bin}}^{\text{krit}}$ di-

vergiert und die nächst bessere Auswertung für eine Grenzphotonenrate von $1,5 t_{\text{bin}}^{-1}$ erzielt wird. Dies erklärt die relative Verschiebung der Daten bei $\Gamma_{\text{an}} = 3,8 \text{ MCounts/s}$. Außerdem kann es in einer realen Messung dazu kommen, dass sowohl Γ_{aus} als auch Γ_{an} nicht über die ganze Messdauer konstant sind, sodass sich sowohl die Grenzbereiche als auch die Werte der Plateaus in Abbildung 5.7(b) zeitverschieben. Vermutlich ist es für die Daten mit $\Gamma_{\text{an}} = 1,72 \text{ MCounts/s}$ dazu gekommen, sodass sich die Messung prinzipiell verhält, wie die Messungen mit $\Gamma_{\text{an}} = 0,82$ und $0,23 \text{ MCounts/s}$ und für den einzelnen Punkt (bei $1/(\Gamma_{\text{an}}^{0,8} \cdot 2t_{\text{bin}}) \approx 10^0$) eher wie die Messung mit $3,8 \text{ MCounts/s}$.

5.5. Zusammenfassung

Es wurde das Telegraphenrauschen eines einzelnen Quantenpunkten untersucht. Anders als bei elektrischen Messungen besteht dabei Zugriff auf die Zeitreihe der einzelnen Photonen, sodass die Zeitauflösung der Zeitreihe und damit die Bandbreite selber gewählt werden kann. Es konnte gezeigt werden, dass es trotzdem eine maximale und damit optimale Bandbreite gibt bis zu der man den Quantentransport untersuchen kann. Versucht man die Zeitreihe mit einer noch höheren Bandbreite auszuwerten verliert man statistische Informationen und kann den Transport nicht mehr auflösen. Dieses Verhalten hängt nicht von einer bestimmten Konfiguration der Tunnelraten ab, sondern gilt beispielsweise auch für sehr asymmetrische Systeme. Für eine Asymmetrie von ungefähr 1 konnte eine maximale Bandbreite von etwa 179 kHz gezeigt werden.

Es wurden mehrere Möglichkeiten zur Erhöhung der maximalen Bandbreite diskutiert und explizit demonstriert, wie dies über eine stärkere Laseranregung zu erzielen ist. Dazu wurde ein Modell aufgestellt, das den Einfluss einer zu groß gewählten Bandbreite auf die mittlere Anzahl an Tunnelereignissen beschreibt und numerisch gelöst. Aus dieser numerischen Lösung konnte eine Abhängigkeit der maximalen Bandbreite von der Rate an detektierten Photonen bestimmt werden, die die Messdaten gut beschreibt. In der numerischen Lösung des Modells konnte außerdem gezeigt werden, welchen Einfluss eine nicht perfekte Messung, mit einer nennenswerten Anzahl an reflektierten Laserphotonen, auf die maximale Bandbreite hat.

Im Experiment konnte keine Auswertung gezeigt werden mit Bandbreiten die oberhalb von 1 MHz liegen, wie es für elektrische Messungen durchaus berichtet wird [Lu03]. Allerdings erlaubt das hier aufgestellte Modell und die Übereinstimmung mit den experimentellen Daten die Vorhersage, dass mit modernen optischen Resonatoren dies durchaus möglich wäre. In diesen Systemen können sehr hohe Photonennraten von bis zu 40 MHz erzielt werden [Tomm21]. Mit einer hinreichend kleinen Rate von reflektierten Laserphotonen ($10^4 - 10^5 \text{ Counts/s}$) wären so einige MHz an Bandbreite möglich (vgl. Abb. 5.7(b)).

6. Wellenfunktionen von angeregten Zuständen

Elektrischer Strom in einem Festkörper unter dem Einfluss eines Magnetfeldes ist ein großes Forschungsfeld. Messungen an magnetischen Systemen beschäftigen sich häufig mit zum Beispiel dem Riesenmagnetowiderstand (englisch: *giant magnetoresistance*) [Binasch89, Baibich88] oder dem Kondo-Effekt [Kondo64]. In Halbleiterheterostrukturen beschäftigt man sich hingegen eher mit Energieänderungen, wie der Zeeman-Aufspaltung oder der diamagnetischen Verschiebung (siehe Kap. 2.5). Außerdem stehen auch Transportphänomene, wie der Hall-Effekt oder aber der Quanten-Hall-Effekt [v.Klitzing80] im Fokus. Dazu ist das Magnetfeld häufig entlang der Wachstumsrichtung (\vec{z}) und damit senkrecht zur Schichtstruktur ausgerichtet, da in dieser Dimension häufig die Wellenfunktionen der Elektronen am stärksten eingeschränkt ist. Nichtsdestotrotz ermöglichen Magnetfelder parallel zur Schichtstruktur spannende physikalische Einblicke. In diesem Kapitel werden Tunnelprozesse entlang \vec{z} untersucht und die Abhängigkeit der Tunnelrate im senkrechten Magnetfeld (\vec{B} entlang \vec{x} , \vec{y}). Damit werden Rückschlüsse auf die beteiligten Wellenfunktionen gezogen. Solche Messungen mit optischen Methoden durchzuführen ist nicht zuletzt technisch aufwändig. Häufig werden Magnetfelder in derselben Richtung angelegt in der auch die optische Achse liegt. Dies liegt daran, dass Magnetfelder typischerweise über supraleitende Spulen erzeugt werden. Das Magnetfeld zeigt dabei entlang der Öffnung, die auch für die optische Achse genutzt wird. Da die optische Anregung und Detektion meist senkrecht zur Oberfläche stattfindet, werden optische Experimente häufig mit \vec{B} entlang \vec{z} in der sogenannten Faraday-Geometrie durchgeführt.

In elektrischen Transportmessungen sind Messungen mit Magnetfeldern in \vec{x} , \vec{y} einfacher realisierbar. In diesem Kapitel präsentieren wir zeitaufgelöste gepulste Messungen des Tunnelstroms zwischen einem zweidimensionalen Elektronengas (2DEG) und einem Quantenpunkt-Ensemble mit einem Magnetfeld senkrecht zur Tunnelrichtung. Solche Messungen sind von wissenschaftlichem Interesse, da der Tunnelstrom quantenmechanisch vom Überlappungsintegral des Anfangs- und des Endzustandes abhängt, die am Tunnelprozess beteiligt sind [Bardeen61]. Wenn man einen wohl bekannten Anfangszustand nutzt, kann man durch solche Messungen den Endzustand bzw. dessen Wellenfunktion charakterisieren. Dies wurde bereits an einigen Systemen demonstriert, wie Quantenschichten (2D-2D) [Eisenstein91, Jang17], Quantendrähten (2D-1D) [Kardynał97] und Quantenpunkten (3D-0D [Patane02, Wibbelhoff05, Bester07] und 2D-0D [Beckel12, Zhou15]). An selbstorganisierten Quantenpunkten wurden bisher allerdings nur (Vielteilchen-) Grundzustände untersucht [Beckel12, Zhou15, Zhou22]. In dieser Arbeit geht es darum, dies auf angeregte Zustände zu übertragen. Dazu führen wir Nichtgleichgewichtsmessungen der Transkonduktanz durch. Dabei initiieren wir durch einen entsprechend hohen Spannungspuls eine Beladungskaskade, bei der der angeregte Zustand mit weiteren Zuständen gleichzeitig von Elektronen besetzt wird. Mit ein Ratenmodell des Ladungstransfers filtern wir die Tunnelraten für die einzelnen Prozesse aus dem Messsignal heraus.

Die Daten wurden im Rahmen der Masterarbeit und in Zusammenarbeit mit Daniel Hecker aufgenommen [Hecker23].

6.1. Vermessung von Wellenfunktionen

In diesem Kapitel wird erläutert, wie die Vermessung der Wellenfunktionen funktioniert und wie der dazu notwendige Tunnelstrom gemessen wird. Die Messungen wurden an der Probe durchgeführt, die

in Kapitel 3.1.1 beschrieben wird. Eine stark vereinfachte Darstellung ist in Abbildung 6.1(a) zu finden (siehe auch Abb. 3.6). In der Probe sind die Quantenpunkte in eine Transistorstruktur eingebracht. Wir messen den Strom I_{SD} durch den leitfähigen Kanal zwischen den Kontakten Source und Drain. Als Kanal benutzen wir ein zweidimensionales Elektronengas (2DEG). Der Strom lässt sich über die Spannung V_g beeinflussen, die als Rechteckpuls zwischen dem Kanal und dem Gate-Kontakt angelegt wird. Dabei sorgt eine Erhöhung der Gate-Spannung für eine Absenkung der Bandkante. Dadurch liegen weitere Zustände des 2DEGs unter dem chemischen Potential und der Kanal wird von zusätzlichen Elektronen besetzt. Die Leitfähigkeit des Kanals steigt und damit der gemessene Strom. Eine Verringerung der Gate-Spannung verarmt den Kanal entsprechend. Der Strom im Kanal fließt parallel zur Proben-Oberfläche in der x - y -Ebene. Übersteigt die angelegte Gate-Spannung jedoch die Tunnelspannung eines Quantenpunktzustandes (vgl. Kap. 3.3) fließt kurzfristig ein zusätzlicher Tunnelstrom senkrecht zum Kanal (in der z -Richtung). Dieser besteht aus Elektronen, die aus dem Kanal in die Quantenpunktzustände tunneln. Die damit verbundene Ladungsänderung in der Quantenpunktschicht wirkt sich über ihr elektrisches Feld wiederum auf die Leitfähigkeit des Kanals aus. Dadurch ist es uns möglich mit dem Strom I_{SD} in der x - y -Ebene den Tunnelstrom in der z -Richtung zu messen.

Die Rate Γ von diesem Tunnelstrom ist sowohl davon abhängig, wie viele Elektronenzustände mit der passenden Energie zur Verfügung stehen, als auch davon wie wahrscheinlich der Tunnelprozess jeweils ist [Bardeen61]. Die Wahrscheinlichkeit des Tunnelprozesses ist proportional zum Absolutbetragsquadrat des Produktes des Tunnelmatrixelements M und dem Bardeen Transfermatrixelement T , das den Transmissionskoeffizienten der Tunnelbarriere beschreibt. Somit gilt für die Tunnelrate: $\Gamma \propto |MT|^2$ [Patanè02]. Zur Vereinfachung und in Übereinstimmung mit der Literatur nehmen wir an, dass das Transfermatrixelement T konstant ist, sodass wir es bei dieser Betrachtung vernachlässigen können [Lei10]. Das Matrixelement M entspricht dem Überlappungsintegral der Wellenfunktionen im Quantenpunkt ψ_{QD} und im Kanal ψ_{E} , der in diesem Kontext auch als Emitter der Elektronen bezeichnet wird:

$$M = \iint \psi_{\text{QD}}^*(x, y) \psi_{\text{E}}(x, y) dx dy. \quad (6.1)$$

Für die Wellenfunktionen des Quantenpunktes betrachten wir die Fock-Darwin-Zustände (vgl. Gl. (2.4)). Da es sich beim dem leitfähigen Kanal um ein zweidimensionales Elektronengas handelt, betrachten wir für ψ_{E} ebene Wellen in der x - y -Ebene:

$$\psi_{\text{E}, \vec{k}_{2\text{D}}}(x, y) = \exp(ik_x x) \exp(ik_y y), \quad (6.2)$$

mit dem entsprechenden Wellenvektor $\vec{k}_{2\text{D}} = (k_x, k_y)^T$. Wenn wir diesen Ausdruck in die Gleichung (6.1) einsetzen, lässt sich erkennen, dass das Integral einer zweidimensionalen Fourier-Transformation der Quantenpunktwellenfunktion vom Ortsraum in den k -Raum entspricht:

$$M = \iint \psi_{\text{QD}}^*(x, y) \exp(ik_x x) \exp(ik_y y) dx dy = \psi_{\text{QD}}^*(k_x, k_y). \quad (6.3)$$

Die Tunnelwahrscheinlichkeit für ein Elektron aus dem Kanal mit dem Wellenvektor $\vec{k}_{2\text{D}}$ in den Quantenpunktzustand $\psi_{\text{QD}}(x, y)$ ist demnach proportional zu der entsprechenden Komponente des Absolutbetragsquadrats der fouriertransformierten Wellenfunktion: $\Gamma \propto |\psi_{\text{QD}}(\vec{k}_{2\text{D}})|^2$.

Hierbei handelt es sich um den Beitrag eines einzelnen Elektronenzustandes im Kanal. Im Experiment kann jedoch eine Vielzahl von Zuständen am Tunnelprozess teilnehmen, über die summiert bzw. integriert werden muss. Wir betrachten resonantes Tunneln ($E_{\text{QD}} = E_{\text{E}}$) und gehen davon aus, dass nur das unterste Subband im Kanal besetzt ist. Die Dispersion eines solchen Subbandes ist ein zweidimensionales Paraboloid, die Fläche konstanter Energie ist demnach ein Ring im k -Raum, mit Radius k_{T} (vgl. Abb. 6.1(b)). Den Radius k_{T} nennen wir auch die *Tunnelwellenzahl*. Somit ergibt sich die Tunnelrate als Kurvenintegral

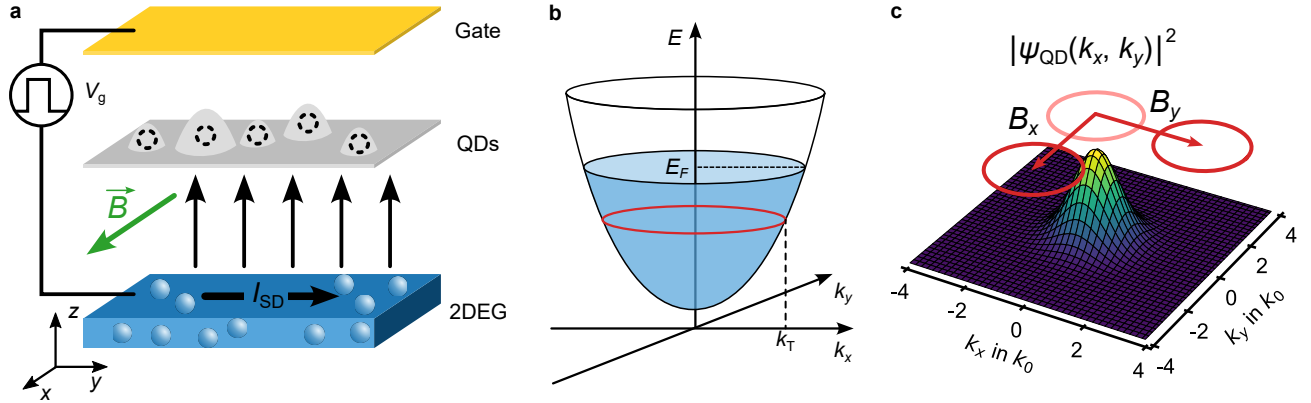


Abbildung 6.1.: Messung und Interpretation der Rate des Tunnelstroms. **a** Zwischen Kanal (2DEG) und Gate liegt eine Rechteckspannung V_g an. Wenn diese die Tunnelspannung übersteigt tunneln Elektronen aus dem Kanal in die Quantenpunkte (in z -Richtung). In dessen Folge ändert sich der Strom I_{SD} , der im Kanal in der x - y -Ebene fließt. Die Rate des Tunnelstroms kann durch ein Magnetfeld \vec{B} senkrecht zur Tunnelrichtung variiert werden. **b** Zum Tunnelprozess tragen alle Zustände bei, deren Energie resonant zum Endzustand in den Quantenpunkten ist. Für eine paraboliforme Dispersion im Kanal sind die Zustände konstanter Energie ringförmig verteilt (rot), mit dem Radius k_T . **c** Durch das angelegte Magnetfeld in der x - y -Ebene verschieben sich die ringförmig verteilten Anfangszustände im Kanal relativ zum Endzustand im Quantenpunkt im k -Raum.

$$\Gamma \propto \oint_C |\psi_{QD}(\vec{k}_{2D})|^2 d\vec{k}_{2D}, \quad (6.4)$$

mit dem Integrationspfad C entlang der Energiefläche. Es soll an dieser Stelle darauf hingewiesen werden, dass es sich bei der Energiefläche im Allgemeinen nicht um die sogenannte *Fermi-Fläche* des Kanals handelt. Dies ist die Fläche konstanter Energie im Kanal mit der Fermi-Energie E_F . Wir betrachten in diesem Modell jedoch das resonante Tunneln der Elektronen und müssen dafür alle besetzten Zustände im Kanal berücksichtigen, die bei der gleichen Energie liegen wie der Quantenpunktzustand ($E_{QD} = E_E$). Die Energie E_E stimmt deshalb nur genau für die Tunnelspannung mit der Fermi-Energie E_F überein. Wir betrachten jedoch einen Spannungspuls, dabei kann es dazu kommen, dass die Spannung zu einem höheren Wert gepulst wird als die Tunnelspannung. Wenn der resonante Tunnelprozess dabei immer noch erlaubt ist, besitzen die tunnelnden Elektronen im Kanal jedoch eine kleinere Energie als die Fermi-Energie $E_E < E_F$ und damit auch eine kleinere Energie-Fläche.

Um die Wellenfunktion zu Vermessen, verschieben wir die Wellenfunktion und den Integrationspfad C relativ zu einander im k -Raum. Dies erreichen wir über das Magnetfeld entlang der x - y -Ebene. Dies sorgt dafür, dass die Elektronen, die die Strecke Δz vom Emitter in die Quantenpunkte tunneln und einem Magnetfeld B_x ausgesetzt sind, eine Impulsverschiebung Δk_y erfahren [Hayden91, Lei10]:

$$\Delta k_y = \frac{eB_x}{\hbar} \Delta z. \quad (6.5)$$

Wir vernachlässigen an dieser Stelle das Vorzeichen der Verschiebung, dadurch gilt dies auch unter Vertauschung von x und y . In Analogie zur klassischen Elektrodynamik entspräche dies der Lorentzkraft. Diese relative Impulsverschiebung berücksichtigen wir in der Gleichung (6.4) mit $\vec{k}'_{2D} = (k_x + eB_y \Delta z / \hbar, k_y + eB_x \Delta z / \hbar)^T$, sodass wir abschließend

$$\Gamma \propto \oint_C \left| \psi_{QD} \left(k_x + \frac{e\Delta z}{\hbar} B_y, k_y + \frac{e\Delta z}{\hbar} B_x \right) \right|^2 d\vec{k}_{2D} \quad (6.6)$$

erhalten. Anschaulich lässt sich die Vermessung der Wellenfunktion als Faltung des Pfadrings mit dem Absolutbetragsquadrat der Wellenfunktion im k -Raum verstehen (vgl. Abb. 6.1(c)).

Für die verschiedenen Endzustände ψ_{QD} des Tunnelprozesses in den Quantenpunkten ergeben sich qualitativ unterschiedliche Verläufe für die Rate Γ in Abhängigkeit vom Magnetfeld. Für die bereits im Kapitel 2.2 diskutierten Zustände sind die Wellenfunktionen im k -Raum gegeben als:

$$\psi_s = \frac{1}{k_0^2} \exp\left(-\frac{k_x^2 + k_y^2}{2k_0^2}\right), \quad (6.7)$$

$$\psi_{p_x} = \frac{2i}{k_0^3} k_x \exp\left(-\frac{k_x^2 + k_y^2}{2k_0^2}\right), \quad (6.8)$$

$$\psi_{p_y} = \frac{2i}{k_0^3} k_y \exp\left(-\frac{k_x^2 + k_y^2}{2k_0^2}\right), \quad (6.9)$$

$$\psi_{p_{\pm}} = \frac{2i}{k_0^3} (k_x \pm ik_y) \exp\left(-\frac{k_x^2 + k_y^2}{2k_0^2}\right) = \frac{2i}{k_0^3} \exp(\pm i\varphi) \cdot r \exp\left(-\frac{r^2}{2k_0^2}\right), \quad (6.10)$$

mit $k_0 = 1/l_0$.

Da die Schrödingergleichung des harmonischen Oszillators symmetrisch im Wellenvektor \vec{k} und im Ort \vec{r} ist, ändern die Zustände ihre Form qualitativ nicht, wenn man sie fouriertransformiert. Mit den Gleichungen (6.6) und (6.7) bis (6.10) wurde das Kurvenintegral in Abhängigkeit von der Stärke und Ausrichtung des Magnetfeldes \vec{B} in der x - y -Ebene für verschieden große Ringe im k -Raum (Radius k_T) berechnet (vgl. Abb. 6.2). Für den Grundzustand (s ; vgl. Abb. 6.2(a) und (b)) ergibt sich ein klar zu erkennendes globales Maximum. Dessen Position liegt für höhere Tunnel-Wellenzahlen k_T bei höheren Magnetfeldstärken. Da die Wellenfunktion isotrop ist, zeigt sich keine Abhängigkeit von der Magnetfeldausrichtung. Diese Ergebnisse konnten experimentell von Beckel et al. mit zeitaufgelöster Transkonduktanzspektroskopie nahe am Gleichgewicht bestätigt werden [Beckel12].

Für den ersten angeregten Zustand (p) betrachten wir zwei Darstellungsarten, die mit den kartesischen Eigenfunktionen ψ_{p_x} , ψ_{p_y} (vgl. Gl. (6.8), (6.9)) und die mit den radialsymmetrischen Eigenfunktionen $\psi_{p_{\pm}}$ (vgl. Gl. (6.10)). Die mathematisch allgemeine Lösung ψ ergibt sich jeweils aus der Superposition der Funktionen $\psi = A\psi_{p_x} + B\psi_{p_y} = C\psi_{p_+} + D\psi_{p_-}$ mit den komplexen Amplituden A , B , C und D . Die allgemeine Lösung kann sowohl radialsymmetrisch sein, als auch kartesisch, die Wahl des Satzes an Eigenfunktionen ist irrelevant. Die physikalische Lösung spiegelt jedoch die Symmetrie des Quantenpunkt-Potentials wieder. Für einen radialsymmetrischen Quantenpunkt sind die Eigenfunktionen entartet und die physikalische Lösung ist ebenfalls radialsymmetrisch. Ist der Quantenpunkt asymmetrisch, lässt er sich besser in kartesischen Koordinaten beschreiben, die Entartung der Eigenfunktionen wird aufgehoben und die physikalische Lösung besitzt die Form der Eigenfunktionen ψ_{p_x} , ψ_{p_y} . Darum werden im Folgenden die Ergebnisse für die Eigenfunktionen ψ_{p_x} und $\psi_{p_{\pm}}$ diskutiert, da sie die Symmetrie der physikalischen Lösung für einen asymmetrischen oder aber symmetrischen Quantenpunkt widerspiegeln. Die Ergebnisse für ψ_{p_x} sind exemplarisch in Abbildung 6.2(c) und (d) dargestellt. Verschiebt man den Integralpfad entlang der Dimension ohne Knoten (entlang k_y für p_x ; vgl. Abb. 6.2(d) links) ähneln die Ergebnisse denen für den Grundzustand. Für sehr kleine Tunnel-Wellenzahlen ($k_T \approx 0,5k_0$) zeigt sich allerdings eine drastische Verringerung für den Wert des Integrals und $B = 0$. Dies lässt sich damit verstehen, dass der Integralpfad C einen Ring mit Radius k_T beschreibt. Für eine verschwindende $k_T \rightarrow 0$ geht dieser Ring in einen Punkt über. Die Integration erfolgt dann für p_x an einer Stelle, wo die Wellenfunktion verschwindet und nicht an ihrem Maximum, wie für den s -Zustand. Verschiebt man den Integralpfad senkrecht dazu, also entlang der Dimension des Knotens (entlang k_x ; vgl. Abb. 6.2(d) rechts) zeigt der Wert des Integrals ein lokales Minimum, das für größere k_T bei höheren Magnetfeldstärken liegt. Um das Minimum herum liegen zwei lokale

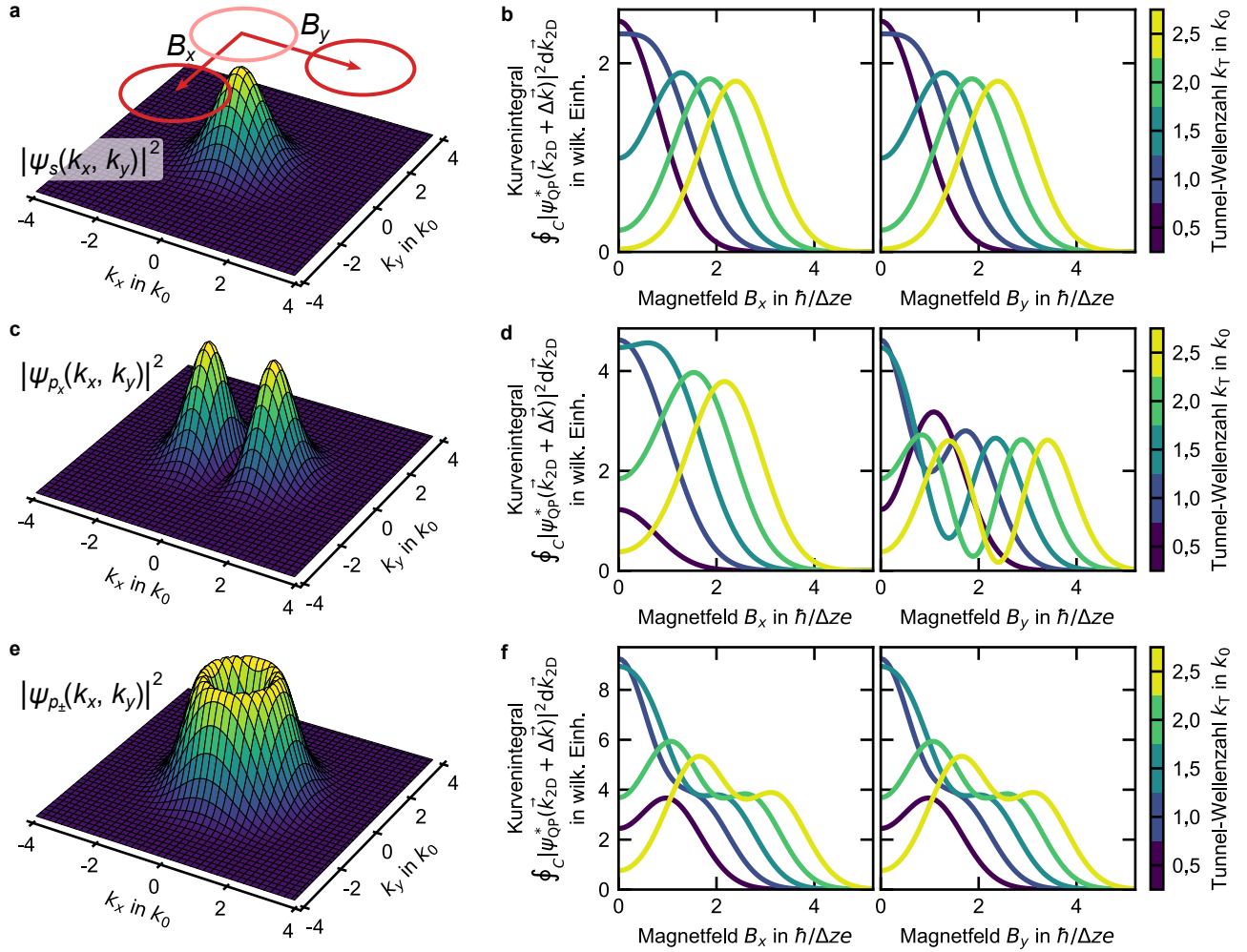


Abbildung 6.2.: Vermessung von Wellenfunktionen. **a** Wellenfunktion ψ_s im k -Raum. Für das Kurvenintegral wird über die Wellenfunktion im k -Raum entlang eines Kreisringes (rot) integriert. Der Ring wird durch die Magnetfeldstärke entlang x oder y verschoben. **b** Das Kurvenintegral ist für ψ_s symmetrisch in B_x , B_y und zeigt ein globales Maximum, das mit der Fermi-Wellenzahl k_F verschiebt. Für die Wellenfunktion ψ_{p_x} (**c**) ist das Kurvenintegral asymmetrisch (**d**) und zeigt für B_y ein lokales Minimum (**d**, rechts), das mit k_F verschiebt. Für die Wellenfunktion $\psi_{p_{\pm}}$ (**e**) ist das Kurvenintegral symmetrisch (**f**) und besitzt ein schwach ausgeprägtes lokales Minimum, das für kleine k_F zu einem Sattelpunkt wird.

Maxima. Das Maximum, das sich für kleinere Magnetfeldstärken zeigt, ist für einen großen Wertebereich $k_0 \lesssim k_T$ höher und gleicht sich für $k_T \rightarrow \infty$ dem zweiten Maximum an. Für sehr kleine k_T zeigt sich die diskutierte Verringerung des Integralwertes.

Schließlich wollen wir noch den Fall der radialsymmetrischen Darstellung des p -Zustandes betrachten (vgl. Gl. (6.10)). Für diese Wellenfunktion zeigt die Magnetfeldabhängigkeit des Integrals (vgl. Abb. 6.2(f)), wie auch für den Grundzustand ein globales Maximum. Für große Tunnel-Wellenzahlen $k_T \lesssim 2,5k_0$ zeigt sich ein eher schwach ausgeprägtes lokales Minimum. Dieses liegt für kleiner werdende Tunnel-Wellenzahlen bei kleineren Magnetfeldstärken und geht zunächst in einen Sattelpunkt und schließlich in eine ausgeprägte Schulter des globalen Maximums über. Für besonders kleine Tunnel-Wellenzahlen zeigt sich die Verringerung des Wertes des Integrals, die auch für p_x erkennbar ist. Prinzipiell ähneln die Ergebnisse durchaus denen für p_x entlang der Richtung des Knotens (vgl. Abb. 6.2(d) rechts). Allerdings ist das lokale Minimum deutlich schwächer ausgeprägt und die Ergebnisse für die radialsymmetrischen Darstellungen sind unabhängig von der Magnetfeldorientierung, sodass

die beiden Darstellungen durch die Vermessung der Wellenfunktion qualitativ unterscheidbar sind.

Sowohl das lokale Minimum, als auch die Anisotropie des p_x konnten bereits gemessen werden [Zhou22]. Dazu wurden, wie bei Beckel et al. um Messungen mit zeitaufgelöster Transkonduktanzspektroskopie nahe am Gleichgewicht durchgeführt. Allerdings waren dies keine Messungen des angeregten Einteilchenzustands p , sondern Messungen der Vielteilchengrundzustände p_1 bis p_4 (vgl. Abb. 3.8(d)). Bei diesen Zuständen ist der Quantenpunkt von zwei Elektronen im s -Zustand besetzt und einem bis vier Elektronen im p -Zustand. In Rahmen dieser Arbeit wurden Messungen am tatsächlichen angeregten Einteilchenzustand p gemacht, bei dem jegliche Vielteilchenwechselwirkung ausschaltet ist. Diese werden im Späteren (vgl. Kap. 6.4) diskutiert und sprechen den Ergebnissen der Vielteilchenzustände entgegen. Zunächst soll allerdings erklärt werden, wie die Messung des angeregten Einteilchenzustandes möglich ist.

6.2. Bestimmung der Quantenpunktzustände

Um den angeregten Einteilchenzustand p zu vermessen, wurden magnetfeldabhängige Nichtgleichgewichtsmessungen durchgeführt. Dazu wird ein Gate-Spannungspuls V_g an die Transistorstruktur angelegt und der Strom $I_{SD}(t)$, der durch das 2DEG fließt, gemessen (vgl. Abb. 6.1(a)). Durch den Spannungspuls werden die Quantenpunkte des Ensembles zunächst in einem Anfangszustand präpariert $V_g(t < 0) = V_{\text{prep}}$. Anschließend initialisiert der Puls $V_g(0 \leq t) = V_{\text{sense}}$ eine ganze Beladungskaskade, bei der Elektronen aus dem 2DEG in die verschiedenen Zustände der Quantenpunkte tunneln können. Dies spiegelt sich in einer zeitabhängigen Änderung des gemessenen Stroms wider: $\Delta I_{SD}(t)$. Zu den Tunnelprozessen tragen alle Vielteilchenzustände bei, deren Tunnelspannungen V_T in dem Spannungsintervall $[V_{\text{prep}}, V_{\text{sense}}]$ liegen. Um den Beitrag einzelner Vielteilchenzustände auf den Tunnelprozess zu untersuchen, bildet man die Differenz der Stromtransienten für leicht unterschiedliche Pulsspannungen $dI_{SD}/dV_g = \Delta I_{SD}[V_{\text{prep}}, V_{\text{sense},2}] - \Delta I_{SD}[V_{\text{prep}}, V_{\text{sense},1}]$. Diese Größe bezeichnen wir auch als (diskrete) differentielle Stromtransiente. In dieser ist der Beitrag der Vielteilchenzustände zu beobachten, deren Tunnelspannungen im Spannungsintervall $[V_{\text{sense},1}, V_{\text{sense},2}]$ liegen. Um die Spannungswerte des Pulses so wählen zu können, dass die Beladung des p -Zustandes erfolgt und um herauszufinden, welche weiteren Zustände an der Kaskade beteiligt sind wurden mithilfe von Transkonduktanzspektroskopie zunächst mehrere Transportspektren des Quantenpunktensembles aufgenommen.

In der Abbildung 6.3 ist ein Transportspektrum nahe am Gleichgewicht (auch Gleichgewichtsspektrum genannt) dargestellt (vgl. Kap. 3.3.1). Dafür wurde eine Rechteckspannung mit geringer Amplitude ($\Delta V = 20$ mV) an das Gate angelegt. Dies sorgt dafür, dass die Zustände des Quantenpunktes, die in dem Spannungsintervall ΔV liegen periodisch be- und entladen werden. Es wurden jeweils die entsprechenden Stromdifferenzen am Anfang und am Ende der Tunnelstromtransienten bestimmt: $\Delta I_{SD} = I_{SD}(t \approx 0) - I_{SD}(t \rightarrow \infty)$ (vgl. Kap. 3.3.1 und [Marquardt09]). Das Spektrum zeigt die Tunnelspannungen für alle Vielteilchengrundzustände, wobei sich die Elektronenzahl im Quantenpunkt mit steigender Spannung erhöht. Für etwa 0,6 V und 0,8 V zeigen die Stromdifferenzen jeweils ein Maximum. Diese liegen bei den mittleren Tunnelspannungen für die beiden Vielteilchenzuständen s_1 und s_2 (1-Elektron- und 2-Elektron-Grundzustand). Mit einem Hebelarm von $\lambda \approx 7,8$ (vgl. Kap. 3.1.1) ergibt sich ein Energieunterschied von etwa $e\Delta V/\lambda \approx 26$ meV. Die Vielteilchenzustände mit besetzten p -Zuständen (p_1 bis p_4 ; 3-Elektron- bis 6-Elektron-Grundzustand) beginnen bei etwa 1,2 V. Ihre Struktur lässt sich nicht genauer auflösen. Um im späteren Verlauf das Tunneln in den angeregten Einteilchen p -Zustand in Abwesenheit von weiteren Ladungsträgern beobachten zu können, präparieren wir die Quantenpunkte als unbeladen. Aus den vorliegenden Gleichgewichtsspektrum leiten wir ab, dass dazu die Präparationsspannung V_{prep} unterhalb von 0,4 V liegen muss. Um dies sicher zu stellen, wählen wir im Folgenden für alle weiteren Messungen $V_{\text{prep}} = 0,28$ V.

Um die Tunnelspannung des angeregten Zustandes p zu bestimmen, wurde eine Nichtgleichgewichts-

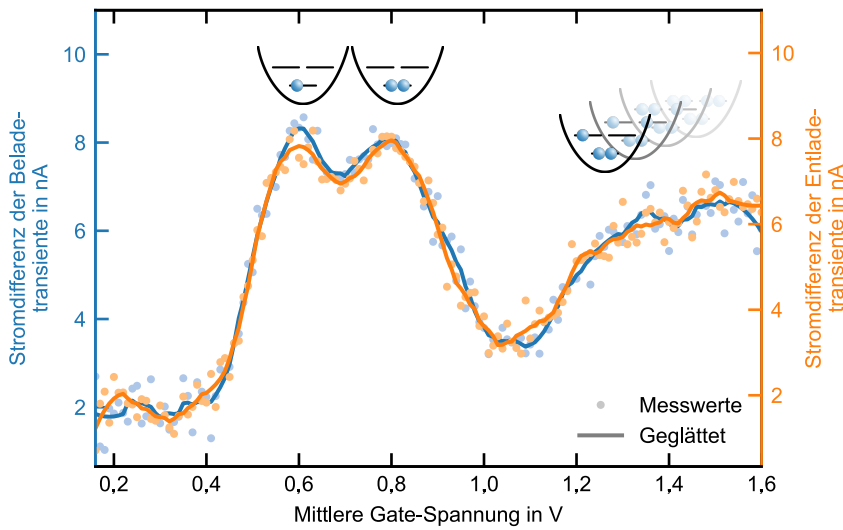


Abbildung 6.3.: Transportspektrum nahe am Gleichgewicht. Dargestellt ist die Stromdifferenz der Belade- (blau) und der Entladetransienten (orange). Aufgrund der hohen Streuung der Messwerte (Punkte) wurde ein Glättungsfilter benutzt. Die Amplitude der Rechteckspannung betrug $\Delta V = 20$ mV. Bei 0,6 V ist das Tunneln in den s_1 -Zustands zu erkennen, bei 0,8 V das in s_2 . Ab etwa 1,2 V ist das Tunneln in die Vielteilchenzustände p_1 bis p_4 zu sehen. Sie stellen $N = 1..,4$ besetzte p -Zustände in der Anwesenheit von zwei Elektronen in den s -Zuständen dar.

messung durchgeführt (vgl. Kap. 3.3.2). Dazu wurden die weiter oben beschriebenen Spannungspulse mit V_{sense} und V_{prep} angelegt. Die Spannung V_{sense} wurde in 10 mV Schritten von 0,3 V bis 1,65 V erhöht. In der Abbildung 6.4 ist die Zeitentwicklung der differentiellen Stromtransienten $dI_{\text{SD}}/dV_{\text{sense}}(t)$ in Abhängigkeit von der verstrichenen Zeit t seit dem Spannungspuls zu sehen. Ein Querschnitt durch die Daten für den Grenzwert $t \rightarrow \infty$ ergibt das Spektrum nahe am Gleichgewicht (vgl. Abb. 6.4(b) orange für $t = 10$ ms). Für kleine Δt ergibt sich das Nichtgleichgewichtsspektrum des unbeladenen Quantenpunkts (vgl. Abb. 6.4(b) blau für $t = 0,1$ ms). Dieses Spektrum zeigt die Tunnelspannungen aller Zustände, die ein einzelnes Elektron besetzen kann, wenn der Quantenpunkt unbeladen ist. In Analogie zur Atomphysik spricht man auch vom Quantenpunkt-Wasserstoff-Spektrum [Marquardt11b]. Das Spektrum zeigt drei Maxima. Bei 0,6 V liegt die mittlere Tunnelspannung für den s -Zustand, der identisch ist mit dem Vielteilchenzustand s_1 . Bei 0,98 V liegt die mittlere Tunnelspannung des angeregten p -Zustandes und bei etwa 1,35 V die des angeregten d -Zustandes. Der Energieunterschied der Zustände ist etwa äquidistant und entspricht jeweils der Quantisierung des harmonischen Oszillators $\hbar\omega_0$. Mit dem Hebelarm $\lambda \approx 7,8$ ergibt sich $\hbar\omega_0 \approx 48$ meV, in Übereinstimmung mit der Literatur [Schmidt96, Warburton98, Marquardt11b]. Die Hauptaussage dieses Nichtgleichgewichtsspektrums liegt jedoch zunächst in der Bestimmung der mittleren Tunnelspannung des angeregten p -Zustandes mit etwa 0,98 V. Für die differentielle Stromtransiente benötigen wir jedoch mehrere Messungen für leicht unterschiedliche Spannungen $V_{\text{sense},i}$. Diese wählen wir im Bereich der Ensembleverbreiterung, die sich in den Daten in Abbildung 6.4(c) als Gaußsche Normalverteilung um die mittlere Tunnelspannung äußert. So bestimmen wir, dass die Werte $V_{\text{sense},i}$ aus dem Intervall $[0,8 \text{ V}, 1,1 \text{ V}]$ gewählt werden müssen.

Durch die bisherigen Spektren konnten sowohl die notwendige Präparationsspannung V_{prep} als auch die Pulsspannungen $V_{\text{sense},i}$ bestimmt werden. Schließlich muss noch untersucht werden, welche Tunnelspannungen für weitere Vielteilchenzustände in dem Spannungsintervall $[V_{\text{prep}}, V_{\text{sense},i}]$ liegen, da diese an der Beladungskaskade teilnehmen, die durch den Spannungspuls initialisiert wird. Darum wurde eine weitere Nichtgleichgewichtsmessung aufgenommen, die in Abbildung 6.5(a) zu sehen ist. Dabei wurden die Quantenpunkte jedoch so präpariert, dass sie bereits mit einem Elektron im s -Zustand beladen waren ($V_{\text{prep}} = 0,64 \text{ V}$). Für $t = 0,1$ ms ergibt ein Querschnitt durch die Daten das Spektrum des bereits einfach besetzten Quantenpunktes (vgl. Abb. 6.5(b)). Dieses wird auch als Quantenpunkt-Helium-Spektrum bezeichnet [Marquardt11b, Beckel14b] und ist in seinem Zustandekommen komplexer als das Quantenpunkt-Wasserstoff-Spektrum. Denn aufgrund des Elektrons, das

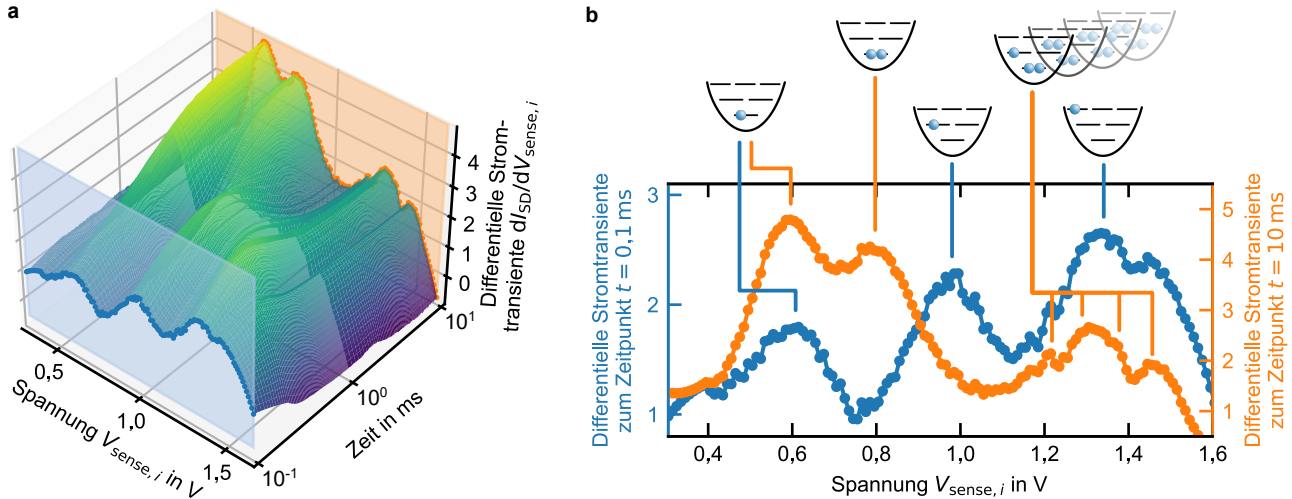


Abbildung 6.4.: Nichtgleichgewichtsmessung mit Transkonduktanzspektroskopie für den unbeladenen Quantenpunkt. **a** Zeitentwicklung der differentiellen Stromtransiente $dI_{SD}/dV_{sense,i}$. Bei kurzen Zeiten $t < 1$ ms tunneln die Elektronen in die unbeladenen Quantenpunkte. Für längere Zeiten $1 \text{ ms} < t$ ist die Beladung von komplexeren Vielteilchenzuständen möglich. Dies äußert sich in lokalen Maxima und Sattelpunkten. Die Zeit ist logarithmisch aufgetragen. Die Daten wurden mit einer Auflösung von 1 ms gemessen und ausgewertet. Aufgetragen sind sie zwischen 10^{-1} ms und 10^0 ms mit $10 \mu\text{s}$ und zwischen 10^0 ms und 10^1 ms mit $100 \mu\text{s}$ Auflösung. **b** Querschnitte durch die Zeitentwicklung der differentiellen Stromtransiente. Für $t = 0,1$ ms (blau) ergibt sich das Spektrum des leeren Quantenpunktes (Quantenpunkt-Wasserstoff) mit den mittleren Tunnelspannungen für die (angeregten) Zustände s ($\approx 0,6$ V), p (≈ 98 V) und d ($\approx 1,35$ V). Für $t = 10$ ms (orange) ergibt sich das Spektrum nahe am Gleichgewicht.

sich bereits im Quantenpunkt befindet, handelt es sich bei den entsprechenden s , p und d -Zustände um 2-Elektronen-Vielteilchenzustände. Dies sorgt zunächst dafür, dass die Tunnelspannungen zu höheren Energien verschoben sind. Dies liegt am direkten Term der Coulomb-Wechselwirkung (Coulomb-Blockade) zwischen den Elektronen (vgl. Gl. (2.10)). Zusätzlich gibt es einen Austausch-Term (vgl. Gl. (2.11)), der dafür sorgt, dass die Spin-Ausrichtung der beiden Elektronen zur Energie beiträgt. Eine ausführlichere Betrachtung ist in [Marquardt11b] zu finden. In unseren Daten in Abbildung 6.5(b) zeigt sich diese Struktur des Spektrums zunächst mit der Tunnelspannung des Grundzustandes bei etwa $0,8$ V (s_{He} oder s_2). Dabei handelt es sich um einen Spin-Singlett-Zustand. Für die geplanten Messungen des angeregten p -Zustandes bedeutet dies, dass wenn wir die Pulsspannungen $V_{sense,i}$, wie oben beschrieben ab einem Wert von $0,8$ V wählen würden, für die Hälfte des QD-Ensembles das Tunneln in den s_{He} verboten wäre. Dieser Anteil lässt sich durch eine Erhöhung dieser unteren Grenze verringern. Gleichzeitig möchten wir die Grenze möglichst gering halten, sodass wir mit den Pulsspannungen $V_{sense,i}$ einen möglichst großen Anteil der Verteilung des angeregten p -Zustandes (vgl. Abb. 6.4(b)) bedecken. Als Kompromiss wählen wir als untere Grenze für das Spannungsintervall $0,85$ V. Bei etwa $1,1$ V liegt die Tunnelspannung des angeregten p -Zustandes in Anwesenheit eines Elektrons im s -Zustand. Hier liegen jedoch zwei unterschiedliche Zustände vor: ein Spin-Triplett-Zustand (p_{He}^T), bei dem die Spins der beiden Elektronen parallel ausgerichtet sind und ein Spin-Singlett-Zustand (p_{He}^S), bei dem die Spins antiparallel ausgerichtet sind. Die Energieaufspaltung der Zustände sollte etwa 10 meV betragen [Marquardt11b, Beckel14b]. Dies entspräche etwa einem 78 mV Unterschied der Tunnelspannungen und konnte in unseren Ergebnissen nicht aufgelöst werden. Ausgehend von der mittleren Tunnelspannung der Zustände von $1,1$ V, wählen wir, analog zu der Diskussion für den s_{He} -Zustand, die obere Grenze für die $V_{sense,i}$ als $1,07$ V. Für etwa $1,45$ V tunneln Elektronen in noch weiter angeregte Zustände. Dabei handelt es sich unter anderem um Spin-Triplett und Spin-Singlett-Zustände mit einem Elektron im s -Zustand und einem im d -Zustand. Da allerdings schon die Zustände p_{He}^T und

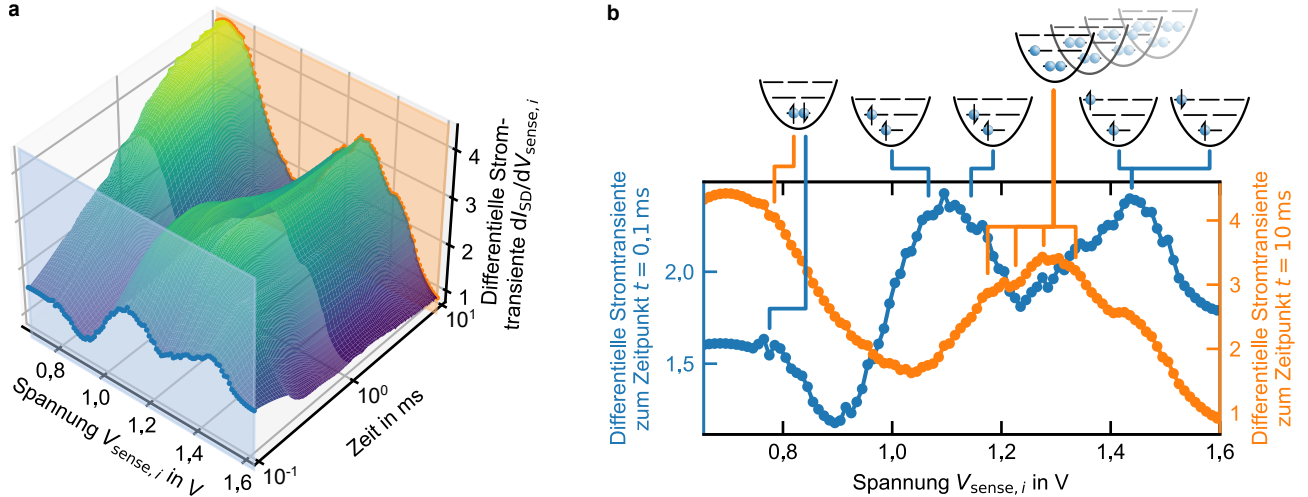


Abbildung 6.5.: Nichtgleichgewichtsmessung mit Transkonduktanzspektroskopie für den mit einem Elektron im s -Zustand beladenen Quantenpunkt. **a** Zeitentwicklung der differentiellen Stromtransiente $dI_{SD}/dV_{sense,i}$. Die Zeit ist analog zu Abbildung 6.4 aufgetragen. **b** Querschnitte durch die Zeitentwicklung der differentiellen Stromtransiente. Für $t = 0,1$ ms (blau) ergibt sich das Spektrum für den mit einem Elektron im s -Zustand beladenen Quantenpunkt (Quantenpunkt-Helium). Dies besteht aus 2-Elektronen-Vielteilchenzuständen. Der Zustand s_2 stellt ein Spin-Singlett dar ($\approx 0,8$ V). Der Zustand p_{He} ($\approx 1,1$ V) besteht aus einem Spin-Singlett und einem Spin-Triplett, dass in unseren Messungen nicht aufgelöst werden konnte. Für $\approx 1,45$ V ergeben sich weitere angeregte Zustände unter Beteiligung der d -Zustände. Für $t = 10$ ms (orange) ergibt sich das Spektrum nahe am Gleichgewicht.

p_{He}^S nicht unterschieden werden konnten, sehen wir von einer Diskussion dieser Zustände ab.

Zur Vermessung der Wellenfunktion des angeregten p -Zustandes wird ein externes Magnetfeld in der x - y -Ebene benutzt. Um sicherzustellen, dass dies keinen Einfluss auf die Tunnelspannungen der Zustände hat, wurden die Spektren, die in diesem Kapitel präsentiert wurden, für verschiedene Magnetfeldstärken und -ausrichtungen wiederholt (hier nicht dargestellt). Es konnte dabei kein Einfluss beobachtet werden, was auf die Tatsache zurückzuführen ist, dass bzgl. z nur der Grundzustand besetzt werden kann und dieser im Ortsraum stark lokalisiert ist.

Aufbauend auf den Erkenntnissen der Transportspektren in den Abbildungen 6.3, 6.4 und 6.5 können im Folgenden Nichtgleichgewichtsmessungen des Tunnelprozesses in den angeregten p -Zustand durchgeführt werden. Dazu werden die Quantenpunkte mit der Spannung $V_{prep} = 0,28$ V als unbeladen präpariert. Mit einem Puls zu den Spannungen $V_{sense,i}$ wird eine Beladungskaskade induziert, bei der Elektronen sowohl in den s -Zustand des leeren Quantenpunktes (s_1), als auch in den s -Zustand des einfach beladenen Quantenpunktes (s_{He} bzw. s_2) tunneln können. Die Tunnelspannungen, ab denen jeweils das Tunneln in den angeregten p -Zustand des leeren Quantenpunktes möglich ist, sind für die Quantenpunkte des Ensembles gaußartig verteilt. Die Spannungen $V_{sense,i}$ werden darum in dem Intervall $[0,85$ V, $1,07$ V] gewählt, sodass mit den differentiellen Stromtransienten gezielt der Einfluss des angeregten p -Zustandes untersucht werden kann. Wie genau die Beladungskaskade verläuft und wie sich der Tunnelprozess in den p -Zustand isolieren lässt, ist Gegenstand des nächsten Kapitels.

6.3. Modell des Ladungstransfers im Nichtgleichgewicht

Der Tunnelprozess in den angeregten p -Zustand des leeren Quantenpunktes lässt sich nicht einzeln mit einer Nichtgleichgewichtstranskonduktanz messen. Denn in einer solchen Messung präparieren wir die Quantenpunkte zunächst als unbeladen und erlauben dann durch einen Spannungspuls das

Tunneln in den angeregten Zustand, indem wir die Energie dieses Zustandes ausreichend verringern. Die Verringerung der Energie erfolgt jedoch für alle Zustände. Sodass das Tunneln in alle Zustände, deren Energie zwischen der des leeren Quantenpunktes und der des angeregten p -Zustandes liegt, erlaubt wird. Wir bezeichnen die Kombination bzw. Überlagerung dieser verschiedenen Tunnelprozesse auch als *Beladungskaskade*. Mit

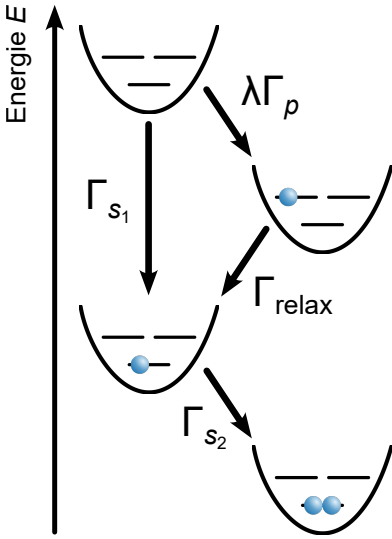


Abbildung 6.6.: Schematische Darstellung der induzierten Beladungskaskade. Die Quantenpunkte werden als unbeladen bzw. leer präpariert $|0\rangle$. Ein Spannungspuls ermöglicht das Tunneln in den Zustand $|s_1\rangle$ mit der Rate Γ_{s_1} und $|p\rangle$ mit $\lambda\Gamma_p$. Der Faktor λ beschreibt für welchen Anteil aller Quantenpunkte im Ensemble das Tunneln in $|p\rangle$ möglich ist. Im Zustand $|p\rangle$ ist das Elektron angeregt und es kann mit der Rate Γ_{relax} in $|s_1\rangle$ relaxieren. Ein zweites Elektron kann mit der Rate Γ_{s_2} in die Quantenpunkte tunneln, die dann im Zustand $|s_2\rangle$ sind.

zeit aufgelösten Messungen der Transkonduktanz und einem angemessenen Ratenmodell, das die Beladungskaskade beschreibt, kann der Beitrag des Tunnelprozesses in den angeregten p -Zustand jedoch isoliert werden. Dieses Kapitel erläutert das Ratenmodell, das in der Abbildung 6.6 grafisch veranschaulicht ist.

Im Kapitel 6.2 haben wir bestimmt, welche Zustände an der Beladung beteiligt sind. Diese sind der leere Quantenpunkt $|0\rangle$, der mit einem Elektron im s -Zustand beladene Quantenpunkt $|s_1\rangle$, der mit zwei Elektronen im s -Zustand beladene Quantenpunkt $|s_2\rangle$ und der mit einem Elektron im p -Zustand beladene Quantenpunkt $|p\rangle$. Die Quantenpunkte werden vor dem Spannungspuls als leer bzw. als unbeladen präpariert, deshalb stellt der Zustand $|0\rangle$ den Anfangszustand dar. Für die Besetzung zum Zeitpunkt des Spannungspulses gilt deshalb die Anfangsbedingung

$$N_0(t = 0) = 1. \tag{6.11}$$

Dieser Zustand kann ab dem Spannungspuls von Elektronen besetzt werden, die in den s -Zustand mit der Rate Γ_{s_1} oder den p -Zustand mit der Rate Γ_p tunneln. Dadurch, dass die Pulsspannungen $V_{\text{sense},i}$ weit oberhalb des s_1 -Zustandes liegen (vgl. Abb. 6.4) ist dessen Besetzung für alle Quantenpunkte des Ensembles möglich. Da die Spannungen $V_{\text{sense},i}$ allerdings im Bereich der Tunnelspannung des p -Zustandes liegen, kann nur für einen Teil des Ensembles der Zustand besetzt werden. Diesen Anteil des Ensembles charakterisieren wir mit $\lambda \in [0, 1]$. In den Ratengleichungen berücksichtigen wir dies damit, dass nur der Anteil λN_0 in den p -Zustand übergeht. Somit finden wir für die zeitliche Änderung der Besetzung des leeren Quantenpunktes:

$$\frac{dN_0}{dt} = -\Gamma_p \lambda N_0 - \Gamma_{s_1} N_0 \tag{6.12}$$

Das Elektron im angeregten p -Zustand kann mit der Rate Γ_{relax} innerhalb des Quantenpunktes in den s_1 -Zustand relaxieren ($|p\rangle \rightarrow |s_1\rangle$) und schließlich kann ein zweites Elektron in den bereits besetzten s -Zustand tunneln mit der Rate Γ_{s_2} ($|s_1\rangle \rightarrow |s_2\rangle$). Mit diesen Prozessen finden wir die zeitlichen Änderungen der Besetzungen für die Zustände $|p\rangle$, $|s_1\rangle$ und $|s_2\rangle$:

$$\frac{dN_p}{dt} = \Gamma_p \lambda N_0 - \Gamma_{\text{relax}} N_p \tag{6.13}$$

$$\frac{dN_{s_1}}{dt} = \Gamma_{s_1} N_0 + \Gamma_{\text{relax}} N_p - \Gamma_{s_2} N_{s_1} \tag{6.14}$$

$$\frac{dN_{s_2}}{dt} = \Gamma_{s_2} N_{s_1} \tag{6.15}$$

Wir können nun zusätzlich berücksichtigen, dass die Tunnelraten Γ_p , Γ_{s_1} und Γ_{s_2} in unseren Messungen deutlich geringer sind als die Rate Γ_{relax} . Dies liegt daran, dass die Tunnelkopplung zwischen dem 2DEG und den Quantenpunkten durch die Höhe und Dicke der Tunnelbarriere eingestellt werden kann und künstlich verringert wurde. Der Relaxationsprozess erfolgt jedoch innerhalb des Quantenpunktes und ist von der Barriere nicht beeinflusst. Wir nehmen darum im Folgenden an, dass $\Gamma_{\text{relax}} \rightarrow \infty$ und berücksichtigen dies indem wir die Zustände $|s_1\rangle$ und $|p\rangle$ zusammenfassen. Den gemeinsamen Zustand bezeichnen wir als den mit einem Elektron besetzten Quantenpunkt $|1e^-\rangle$. Den Zustand $|s_2\rangle$ bezeichnen wir analog als $|2e^-\rangle$. Dadurch vereinfachen wir das Gleichungssystem (6.12) bis (6.15) zu:

$$\frac{dN_0}{dt} = -(\Gamma_p\lambda + \Gamma_{s_1})N_0 \quad (6.16)$$

$$\frac{dN_{1e^-}}{dt} = (\Gamma_p\lambda + \Gamma_{s_1})N_0 - \Gamma_{s_2}N_{1e^-} \quad (6.17)$$

$$\frac{dN_{2e^-}}{dt} = \Gamma_{s_2}N_{1e^-}. \quad (6.18)$$

Dieses System ähnelt einer typischen Zerfallskette, wie sie in der Radioaktivität bekannt ist. Mit den effektiven Raten $\alpha = \Gamma_{s_1} + \lambda\Gamma_p$ und $\beta = \Gamma_{s_2}$ finden wir die analytischen Lösungen:

$$N_0(t) = \exp[-\alpha t] \quad (6.19)$$

$$N_{1e^-}(t) = \frac{\alpha(\exp[-\beta t] - \exp[-\alpha t])}{\alpha - \beta} \quad (6.20)$$

$$N_{2e^-}(t) = \frac{\alpha(1 - \exp[-\beta t]) - \beta(1 - \exp[-\alpha t])}{\alpha - \beta}. \quad (6.21)$$

Die Lösungen sind in der Abbildung 6.7(a) exemplarisch dargestellt. Wir haben dafür $\Gamma_p = 10\Gamma_{s_1}$, $\Gamma_{s_2} = \Gamma_{s_1}$ und $\lambda = 0,5$ gewählt. Wir nehmen dabei an, dass die Tunnelrate für den p -Zustand deutlich größer ist, als die für den s -Zustand. Dies begründen wir damit, dass der angeregte p -Zustand energetisch höher liegt als der entsprechende Grundzustand. Dies sorgt dafür, dass die Tunnelbarriere für die Elektronen effektiv weniger hoch ist. Bei der Annahme für die Tunnelrate in den s_2 -Zustand ließe sich mit der gleichen Erklärung argumentieren, dass die Rate schneller sein müsste als in den s_1 -Zustand. Allerdings liegt der s_2 -Zustand weniger hoch über dem s_1 -Zustand (vgl. Abb. 6.4). Außerdem gibt es für den Tunnelprozess von s_2 nur eine erlaubte Spin-Richtung des Elektrons (antiparallel zu dem Elektron, dass sich bereits im QP befindet), für den s_1 - und den p -Zustand nehmen Elektronen mit beiden Spin-Ausrichtungen am Tunnelprozess teil [Beckel14a]. Darum nutzen wir die Annahme $\Gamma_{s_2} = \Gamma_{s_1}$. In der exemplarischen Lösung in Abbildung 6.7(a) wird der Anfangszustand $|0\rangle$ sehr schnell durch die effektive Rate $\alpha = 6\Gamma_{s_1}$ entvölkert. Da die Rate $\beta = \Gamma_{s_1}$ im Vergleich dazu recht klein ist, baut sich eine zwischenzeitliche Besetzung des Zwischenzustandes $|1e^-\rangle$ von etwa 0,7 auf. Der Zustand $|2e^-\rangle$ stellt den Gleichgewichtszustand (vgl. Abb. 6.3) und damit den Endzustand dar. Für das Langzeitlimit ergibt sich deshalb $N_{s_2}(t \rightarrow \infty) = 1$.

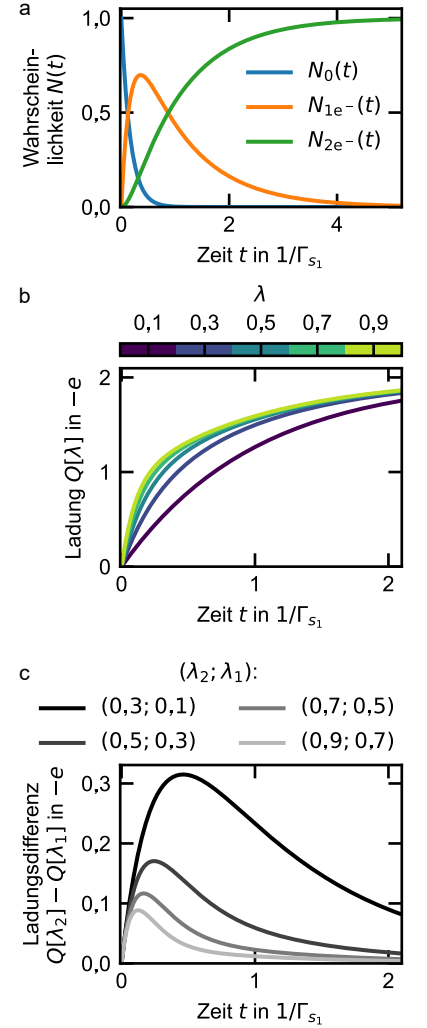


Abbildung 6.7.: Lösungen des Ratenmodells für die Beladungskaskade mit den Parametern: $\Gamma_p = 10\Gamma_{s_1}$, $\Gamma_{s_2} = \Gamma_{s_1}$. **a** Zeitentwicklung der Besetzungswahrscheinlichkeit für die verschiedenen Ladungszustände des Quantenpunktes. Dabei ist $N_{1e^-} = N_{s_1} + N_p$, $N_{2e^-} = N_{s_2}$ und $\Gamma_{\text{relax}} \rightarrow \infty$. **b** Zeitentwicklung der Ladungstransiente $Q = N_{1e^-} + 2N_{2e^-}$ für mehrere λ . **c** Zeitentwicklung der Ladungsdifferenzen $Q[\lambda_2] - Q[\lambda_1]$. Diese sind proportional zu der im Experiment gemessenen differentiellen Stromtransiente dI_{SD}/dV_g .

Diese Zeitentwicklung der einzelnen Zustände ist jedoch nicht experimentell zugänglich. Wir messen den Strom $I_{\text{SD}}(t)$, der im 2DEG fließt. Dessen Änderung $\Delta I_{\text{SD}}(t)$ ist wiederum proportional zu der Ladung Q , die sich in den Quantenpunkten befindet. Die Zeitentwicklung der Ladung in den Quantenpunkten können wir mit unserem Model jedoch beschreiben. Es gilt: $Q = -e(N_{1e^-} + 2N_{2e^-})$ und damit

$$Q[\lambda](t) = -e \frac{(2\beta - \alpha) \exp[-\alpha t] - \alpha \exp[-\beta t] + 2\alpha - 2\beta}{\alpha - \beta}. \quad (6.22)$$

In der Abbildung 6.7(b) ist für die gleichen Ratenverhältnisse wie zuvor und mehrere Werte für λ die Zeitentwicklung der Ladung Q dargestellt. Wenn für zunehmend mehr Quantenpunkte des Ensembles das Tunneln in den angeregten p -Zustand möglich ist (steigendes λ) führt das dazu, dass mehr Ladung zu Beginn der Transiente in die Quantenpunkte tunnelt. Da wir berücksichtigen, dass insgesamt (für $t \rightarrow \infty$) die gleiche Menge an Ladung tunnelt, eilt die Ladungstransiente für größere λ denen für kleinere λ voraus. Die Größe dieses Ladungsvorsprungs ist proportional zu der im Experiment gemessenen differentiellen Stromtransiente $dI_{\text{SD}}/dV_g \propto Q[\lambda_2] - Q[\lambda_1]$, da wir mit den Spannungswerten $V_{\text{sense},i}$ vor allem den Anteil λ verändern. In der Abbildung 6.7(c) ist $Q[\lambda_2] - Q[\lambda_1]$ für mehrere Kombinationen von λ_2 und λ_1 dargestellt, wobei $\lambda_2 - \lambda_1$ konstant gehalten wurde. Die Ladungsdifferenz besitzt jeweils ein globales Maximum und steigt zunächst mit einer recht schnellen Rate an und fällt dann mit einer deutlich langsameren Rate ab. Die genaue Wahl von λ_2 und λ_1 beeinflusst zwar die Position des globalen Maximums, die Form bleibt jedoch qualitativ erhalten. Es konnte kein einfacher geschlossener analytischer Ausdruck für die beiden Raten gefunden werden. Darum machen wir die Annahme, dass sich die Rate α nur wenig mit λ verändert, dann gilt: $A_1 \exp(-\alpha_1 t) - A_2 \exp(-\alpha_2 t) \approx A \exp(-\alpha t)$. Damit finden wir für die differentielle Stromtransiente einen verallgemeinerten Ausdruck:

$$dI_{\text{SD}}/dV_g \propto Q[\lambda_2] - Q[\lambda_1] \approx A \exp[-\alpha t] - B \exp[-\beta t] + C, \quad (6.23)$$

mit den Konstanten A , B und C . Für eine ideale Messung, wie in Abbildung 6.7(c) ist die Konstante $C = 0$.

6.4. Die Wellenfunktion des angeregten p -Zustandes

Mit den bis hierhin präsentierten Modellen und der Vorcharakterisierung sollen in diesem Kapitel die Ergebnisse zur Wellenfunktion des angeregten p -Zustandes vorgestellt werden. Dazu wurden magnetfeldabhängige Nichtgleichgewichtsmessungen durchgeführt. Die dafür notwendigen Spannungspulse hatten die Werte $V(t < 0) = V_{\text{prep}} = 0,28 \text{ V}$, wodurch die Quantenpunkte als leer präpariert wurden und $V(t > 0) = V_{\text{sense},i} \in \{0,85 \text{ V}, 0,905 \text{ V}, 0,960 \text{ V}, 1,015 \text{ V}, 1,07 \text{ V}\}$, um die Beladung der Quantenpunkte mit zwei Elektronen zu initialisieren. Die Messungen wurden für zwei Orientierungen des Magnetfeldes durchgeführt ($\vec{B} \parallel \vec{x} \parallel [110]$ und $\vec{B} \parallel \vec{y} \parallel [1\bar{1}0]$) und Magnetfeldstärken von 0 bis 9 T.

In der Abbildung 6.8 sind die differentiellen Stromtransienten exemplarisch dargestellt für das Spannungspaar $V_{\text{sense},i} = 0,905 \text{ V}$ und $V_{\text{sense},i-1} = 0,85 \text{ V}$ und ausgewählte Magnetfeldstärken entlang \vec{x} . Für alle Kurven wurde der Sättigungswert für $t \rightarrow \infty$ auf 0 gesetzt. Die Kurven zeigen wie in Abbildung 6.7(c) beschrieben einen zunächst schnellen Anstieg gefolgt von einem langsameren Abfall. Anders als im Modell beginnen die Kurven jedoch nicht bei 0, sondern werden für $t = 0$ negativ. Dies kann mehrere Ursachen haben. Es könnte daran liegen, dass der Anteil aller Quantenpunkte, die für $t \rightarrow \infty$ mit zwei Elektronen besetzt sind für die verschiedenen $V_{\text{sense},i}$ leicht unterschiedlich ist (vgl. Abb. 6.3). Dadurch wäre die Gesamtladung, die bei den beiden Spannungspulsen übertragen wird nicht exakt gleich und die differentielle Stromtransiente weicht wahlweise für $t = 0$ oder $t \rightarrow \infty$ von 0 ab. Eine nicht perfekte Bestimmung des Zeitpunktes $t = 0$ hätte den gleichen Effekt. Ein weiterer viel diskutierter Aspekt ist, dass sich für einen kleinen Anteil des Ensembles die Tunnelrate für höhere Spannungen

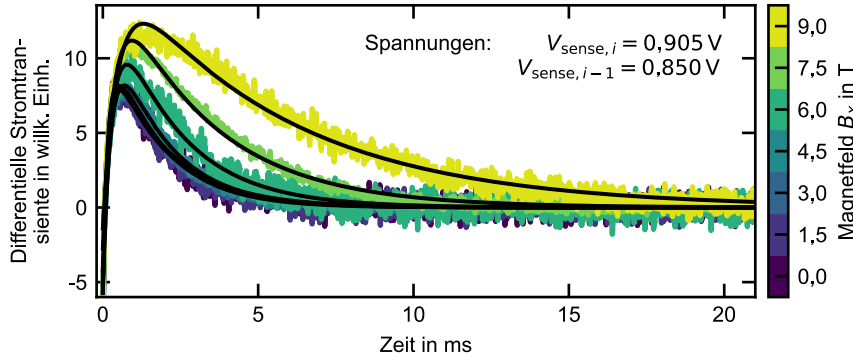


Abbildung 6.8.: Differenzielle Stromtransienten für das Spannungspaar $V_{\text{sense},i} = 0,905 \text{ V}$ und $V_{\text{sense},i-1} = 0,85 \text{ V}$ für ausgewählte Magnetfelder entlang \vec{x} . Zusätzlich dargestellt (schwarz) ist jeweils eine Anpassung mit dem Ratenmodell (vgl. Gl. (6.23)). Die Kurven wurden mit dem Wert der Anpassungen für $t \rightarrow \infty$ auf 0 verschoben.

leicht verringert [Beckel14b]. Nichtsdestotrotz, lassen sich die Kurven mit der verallgemeinerten Form in Gleichung (6.23) anpassen (vgl. Abb. 6.8 schwarze Linien). Für hohe Magnetfeldstärken lässt sich erkennen, dass beide Raten kleiner werden.

In der Abbildung 6.9 ist eine Übersicht der angepassten Rate β für den kompletten Datensatz zu sehen. Dabei ist links die Rate für Magnetfelder entlang \vec{x} mit invertierter \vec{B}_x -Achse dargestellt und rechts die Raten für Magnetfelder entlang \vec{y} . Für die Spannungen $V_{\text{sense},i} = 0,905 \text{ V}$ und $V_{\text{sense},i-1} = 0,85 \text{ V}$ zeigt die Rate ein globales Maximum bei etwa 4 T, welches für höhere Spannungspaare bei 0 T liegt. Für höhere angelegte Spannungen verringert sich die Energie der Quantenniveaus im Vergleich zum chemischen Potential im 2DEG. Dadurch nehmen an dem resonanten Tunnelprozess Elektronen aus dem 2DEG teil, die eine geringere Energie E_E und damit einen kleineren Wellenvektor k_T (vgl. Kap. 6.1) besitzen. Die Messungen für höhere Spannungspaare entsprechen also Vermessungen der Wellenfunktion mit kleinerem k_T . In den Messdaten ist demnach zu erkennen, dass sich das globale Maximum der Tunnelrate für kleinere k_T zu kleineren Magnetfeldstärken verschiebt. Außerdem ist die Form der Magnetfeldabhängigkeit unabhängig von der Orientierung des Magnetfeldes. Aufgrund dieser Eigenschaften wurden die Daten für die Rate β mit der Gleichung (6.6) für eine s -Wellenfunktion (vgl. Gl. (6.7)) angepasst. Für die Strecke zwischen den Quantenpunkten und dem 2DEG wurde $\Delta z = 30 \text{ nm}$ gewählt. Angepasst wurden alle acht Teildatensätze (vier Spannungspaare für zwei Magnetfeldorientierungen) gleichzeitig. Für jeden Teildatensatz wurde jedoch ein eigener k_T -Parameter benutzt. Für die Form bzw. die Größe der Quantenpunkte wurden insgesamt nur zwei freie Anpassungsparameter $x_0 = 1/k_{x,0}$ und $y_0 = 1/k_{y,0}$ benutzt und damit explizit berücksichtigt, dass die Quantenpunkte asymmetrisch sein können. Die Anpassung ist in der Abbildung 6.9 jeweils als Linie dargestellt.

Die konvergierten Größenparameter der Quantenpunkte und ihre Standardabweichungen durch die Anpassung betragen $x_0 = (5,15 \pm 0,08) \text{ nm}$ und $y_0 = (4,97 \pm 0,07) \text{ nm}$. Im Vergleich zu früheren Arbeiten an s -Zuständen sind sie sehr symmetrisch und etwas geringer (Messungen am s_1 -Zustand: $x_0 = 6,8 \text{ nm}$ und $y_0 = 8 \text{ nm}$ [Beckel12,Zhou22]; Messungen am s_2 -Zustand: $x_0 = 6,7 \text{ nm}$ und $y_0 = 7,5 \text{ nm}$ [Zhou22]). Der Unterschied in der mittleren Größe lässt sich vermutlich auf leicht unterschiedliche Wachstumsparameter bzw. Mengen an abgeschiedenem InAs erklären (vgl. Kap. 2.1). Eine nennenswerte Asymmetrie wäre allerdings durchaus in Übereinstimmung mit der Literatur. Diese kann beispielsweise in Messungen an einzelnen Quantenpunkten [Seguin05] beobachtet werden. Eine diskutierte Ursache sind piezoelektrische Felder. Diese können durch Verspannungen im Kristallgitter induziert werden, die wiederum an den verschiedenen Facetten an der Quantenpunkt-Oberfläche vorherrschen [Grundmann95,Schliwa07,Eisele08]. Eine andere Ursache für die Asymmetrie ist eine Elongation der Quantenpunkte also eine breitere Verteilung des InAs entlang einer Dimension parallel zur Oberfläche. Dazu könnte es beim Wachstum kommen, wenn die In-Atome nach der Adsorption auf der Oberfläche anisotrop diffundieren. Dies wäre dadurch möglich, dass die Quantenpunkte auf einer As-stabilisierten

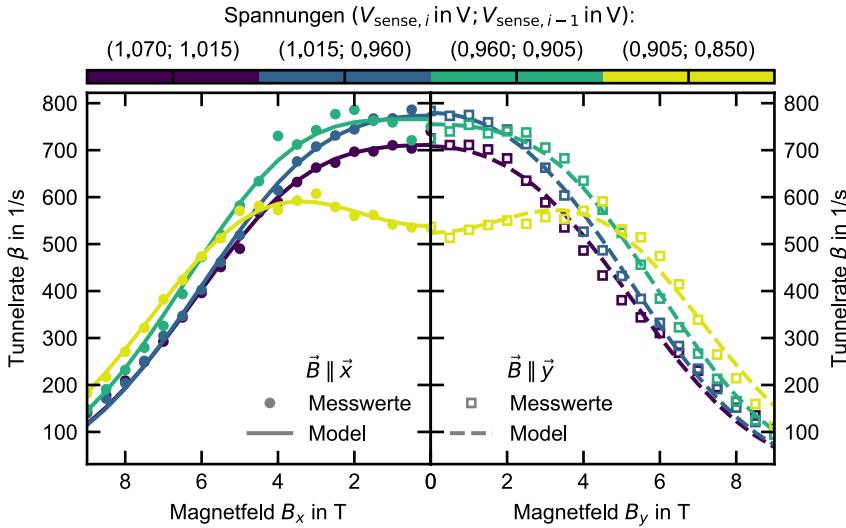


Abbildung 6.9.: Die Tunnelrate β (Datenpunkte) wurde mit dem Ratenmodell aus den differentiellen Stromtransienten bestimmt. Es wurden jeweils die Spannungen $V_{\text{sense},i}$, die Magnetfeldstärke und -orientierung verändert. Die Rate ist symmetrisch und zeigt ein globales Maximum, dass für größere Spannungen zu kleineren Magnetfeldern verschiebt. Die Rate lässt sich mit dem Modell (Linien) zur Wellenfunktionsvermessung und der Einteilchen- s -Wellenfunktion (vgl. Gl. (6.7)) beschreiben.

GaAs(001) Oberfläche abgeschieden werden. An der Oberfläche befinden sich ausgerichtete As-Dimere, die den Adsorbaten eine leichtere Diffusion entlang der [110] Richtung ermöglichen [Bressler-Hill95, Penev01]. Beide Effekte beruhen auf einer Anisotropie bezüglich des Kristallgitters. Da dies bereits vor den Experimenten diskutiert wurde, wurden die Magnetfeldausrichtungen \vec{x} und \vec{y} entlang dieser Richtungen gewählt. Die Anpassung beschreibt die Daten in Abbildung 6.9 jedoch in hoher Übereinstimmung, sodass wir aus diesen Daten folgern, dass die Wellenfunktion des s_2 -Zustandes von einer etwaigen Anisotropie nicht bzw. nicht nennenswert beeinflusst wird.

Tabelle 6.1.: Tabellarische Auflistung der Parameter k_T für die Anpassung der Rate β in Abbildung 6.9. Die Daten bestehen aus acht Teilsätzen für die beiden Magnetfeldorientierungen entlang \vec{x} und \vec{y} und die vier verschiedenen Spannungspaare. Der jeweilige Parameter k_T ist mit der Standardabweichung der Anpassung aufgeführt.

Spannungspaar in V	k_T in $\times 10^8 \text{ m}^{-1}$	
	$\vec{B} \parallel \vec{x}$	$\vec{B} \parallel \vec{y}$
0,85 0,905	2,3	2,3
0,905 0,96	2,0	1,9
0,96 1,015	1,9	1,7
1,015 1,07	1,9	1,7

Die konvergierten Werte für die Tunnel-Wellenzahl k_T sind für die verschiedenen Teildatensätze in der Tabelle 6.1 aufgelistet. Diese zeigen einen Abfall für steigende Spannungen, was, wie bereits diskutiert wurde, in Übereinstimmung mit der Verschiebung des globalen Maximums ist. Ein weiterer Aspekt, der sich in den k_T beobachten lässt ist, dass sich die Werte für die gleichen Spannungspaare aber unterschiedlichen Magnetfeldorientierungen unterscheiden. Dies lässt sich vermutlich darauf zurückführen, dass die Messungen für die unterschiedlichen Orientierungen hintereinander und damit an verschiedenen Tagen durchgeführt wurden. Dabei könnte es dazu gekommen sein, dass in der Probe langsame Umladungen geschehen sind und diese eine Verschiebung der Tunnelspannungen verursacht haben. Dieser Effekt beträgt häufig nur wenige mV und könnte die vergleichsweise geringe Verschiebung der Datensätze zu einander erklären.

Schließlich wollen wir die Magnetfeldabhängigkeit der Rate α untersuchen. Die Werte, die durch die Anpassung des Ratenmodells an die differentiellen Stromtransienten bestimmt wurden, sind in der Abbildung 6.10 analog zur Rate β dargestellt. Diese zeigen jedoch eine komplexere Struktur, die aber ebenfalls nicht von der Orientierung des Magnetfeldes abhängt. Für tiefere Spannungen (größere k_T) zeigen sie ein globales Maximum für 0 T und eine recht flache Schulter von etwa 5 T bis 8 T. Für größer werdende Spannungen (kleiner werdende

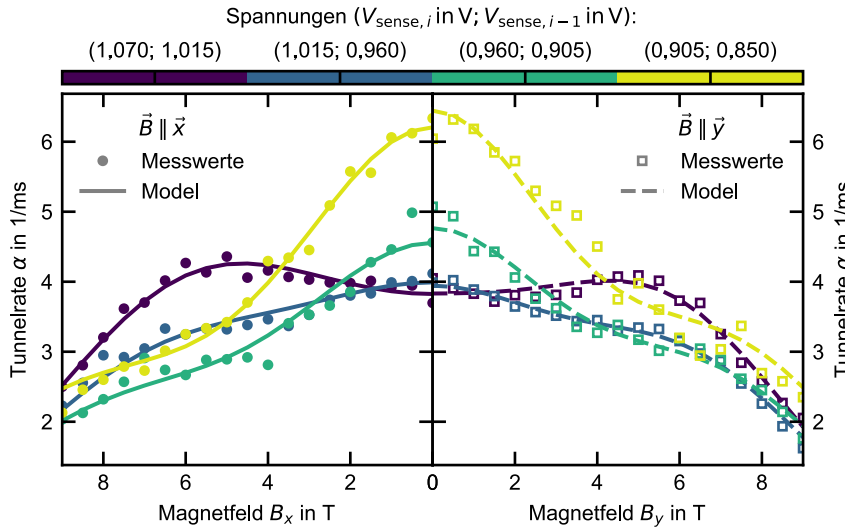


Abbildung 6.10.: Die Tunnelrate α (Datenpunkte) wurde mit dem Ratenmodell aus den differentiellen Stromtransienten bestimmt. Es wurden jeweils die Spannungen $V_{\text{sense},i}$, sowie die Magnetfeldstärke und -orientierung verändert. Die Rate ist symmetrisch und zeigt eine komplexe Struktur mit einer ausgeprägten Schulter für kleine Spannungspaare und einem globalen Maximum bei etwa 5 T für höhere Spannungen. Die Rate lässt sich mit dem Modell (Linien) zur Wellenfunktionsvermessung und der $\psi_{p_{\pm}}$ -Wellenfunktion (vgl. Gl. (6.10)) beschreiben.

k_T) sinkt das globale Maximum bei 0 T bis sich schließlich ein neues für etwa 5 T ergibt. Dieses Verhalten wurde bereits in Abbildung 6.2(f) für die radialsymmetrische Lösung des p -Zustandes beobachtet. Darum wurden die Datenpunkte mit dem Modell zur Wellenfunktionsvermessung (mit Gl. (6.6)) unter Berücksichtigung einer $\psi_{p_{\pm}}$ -Wellenfunktion (vgl. Gl. (6.10)) angepasst (vgl. Linien in Abb. 6.10).

Die konvergierten Größenparameter der Quantenpunkte und ihre Standardabweichungen durch die Anpassung betragen $x_0 = (4,63 \pm 0,07)$ nm und $y_0 = (4,11 \pm 0,08)$ nm. Bei der Betrachtung der Größenparameter fällt auf, dass sie für die Rate α und damit für den p -Zustand zunächst einmal kleiner aber auch asymmetrischer sind. Die Asymmetrie lässt sich auf die bereits diskutierten Mechanismen der piezoelektrischen Felder und die Verbreiterung der Quantenpunkte zurückführen. Das sie sich für den p -Zustand deutlicher zeigt könnte darauf zurückzuführen sein, dass er als angeregter Zustand eine höhere Energie besitzt als der s -Zustand und darum ein gebundenes Elektron in ihm weiter vom Zentrum des Quantenpunktes entfernt lokalisiert ist (vgl. Kap. 2.2 und Abb. 2.4). Dadurch wäre die mit dem Elektron verbundene Ladungsverteilung näher an den Facetten des Quantenpunktes an denen die piezoelektrischen Felder vorherrschen und die Wellenfunktion würde stärker von den anisotropen Effekten beeinflusst.

Ein direkter Vergleich mit Literaturwerten ist nicht möglich, weil dies die erste berichtete Vermessung des angeregten Einteilchen- p -Zustandes ist. Es ist jedoch ein Vergleich zu den Ergebnissen an den Vielteilchen p -Zuständen möglich [Zhou22], der unsere Diskussion stützt. In diesen Messungen wurden als Wellenfunktionen die kartesischen Lösungen ψ_{p_x} (p_1/p_2) und ψ_{p_y} (p_3/p_4) benutzt. Dies ist ein Indiz für eine noch stärkere Asymmetrie, als in unseren Messungen. Für die Vielteilchenzustände könnte dies zusätzlich zu der höheren Energie noch an den Elektronen in den s -Zuständen liegen. Diese sind im Zentrum des Quantenpunktes lokalisiert und stellen

Tabelle 6.2.: Tabellarische Auflistung der Parameter k_T für die Anpassung der Rate α in Abbildung 6.10. Die Daten bestehen aus acht Teilsätzen für die beiden Magnetfeldorientierungen entlang \vec{x} und \vec{y} und die vier verschiedenen Spannungspaare. Der jeweilige Parameter k_T ist mit der Standardabweichung der Anpassung aufgeführt.

Spannungspaar in V	k_T in $\times 10^8 \text{ m}^{-1}$	
	$\vec{B} \parallel \vec{x}$	$\vec{B} \parallel \vec{y}$
0,85 0,905	2,2	1,9
0,905 0,96	1,9	1,8
0,96 1,015	1,6	1,5
1,015 1,07	1,4	1,4

als negative Ladung eine Art von repulsivem Kern dar, der dazu führen könnte, dass die p -Elektronen weiter entfernt lokalisiert sind. Dies lässt sich mit den Größenparametern x_0 und y_0 von Zhou et al. untermauern. Diese betragen: p_1/p_2 mit $x_0 = 9,5$ nm und $y_0 = 9,9$ nm; p_3/p_4 mit $x_0 = 9,9$ nm und $y_0 = 9,9$ nm. Damit waren sie deutlich größer als die für die s -Zustände. Das sich die diskutierte Asymmetrie nicht in den Größenparametern widerspiegelt ist vermutlich darauf zurückzuführen, dass für eine ausgiebige Anpassung, wie sie in dieser Arbeit in den Abbildungen 6.9 und 6.10 dargestellt ist, nicht genügend Messwerte zur Verfügung standen.

Die konvergierten Werte für die Tunnel-Wellenzahl k_T sind für die verschiedenen Teildatensätze in der Tabelle 6.2 aufgelistet. Die Tunnel-Wellenzahlen k_T zeigen das erwartete Verhalten, dass sie mit steigender Spannung monoton sinken.

6.5. Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden magnetfeldabhängige Nichtgleichgewichtsmessungen mit zeitaufgelöster Transkonduktanzspektroskopie präsentiert. Damit wurden die Wellenfunktionen verschiedener Zustände von einem Ensemble aus selbstorganisierten Quantenpunkten untersucht. Ähnliche Untersuchungen wurden bereits vorher durchgeführt, waren jedoch bisher immer auf (Vielteilchen-)Grundzustände begrenzt. In dieser Arbeit wurde nun zum ersten mal die Wellenfunktion des angeregten p -Zustandes eines unbesetzten Quantenpunktes vermessen.

Um dies zu ermöglichen wurden Spannungspulse zwischen dem Gate und dem Kanal einer Feldeffekttransistorstruktur angelegt, um Elektronen aus dem Kanal in die Quantenpunkte tunneln zu lassen. Der Strom des Kanals wurde zeitaufgelöst gemessen, um die Ladungsänderung in den Quantenpunkten zu beobachten. Die Spannungswerte wurden mithilfe von Transkonduktanzspektroskopie (vgl. Kap. 6.2) so gewählt, dass eine bestimmte Beladungskaskade initialisiert wird. Diese wurde mit einem Ratenmodell beschrieben (vgl. Kap. 6.3), um die Tunnelraten in die verschiedenen Quantenzustände voneinander trennen zu können. Zur Vermessung der Wellenfunktionen wurden diese Messungen mit einem lateralen Magnetfeld (senkrecht zur Tunnel-/Wachstumsrichtung z) durchgeführt. Dieses sorgt dafür, dass die Elektronen beim Tunnelprozess eine Impulsänderung erfahren. Darum wurden die Messungen bei verschiedenen Magnetfeldstärken, -orientierungen und Spannungen durchgeführt (vgl. Kap. 6.4).

Die mit dem Ratenmodell bestimmten Raten konnten mit einem Modell für die Wellenfunktionsvermessung (vgl. Kap. 6.1) erfolgreich angepasst werden. Dabei zeigte sich, dass der Tunnelprozess in den Zustand s_2 mit der Wellenfunktion ψ_s beschrieben werden kann. Der Tunnelprozess in den angeregten p -Zustand konnte mit der radialsymmetrischen Wellenfunktion $\psi_{p_{\pm}}$ beschrieben werden. Dies steht zunächst einmal im Widerspruch zu früheren Messungen, bei denen die kartesischen Lösungen ψ_{p_x} und ψ_{p_y} beobachtet wurden [Zhou22]. Jedoch wurden diese Messungen an den (Vielteilchen-) Grundzuständen p_1 bis p_4 durchgeführt. Die Symmetriebrechung wird deshalb durch die zusätzlichen Elektronen im Quantenpunkt erklärt, die dazuführen, dass die p -Elektronen weiter entfernt vom Quantenpunktzentrum lokalisiert sind und dadurch stärker durch anisotrope Effekte beeinflusst werden.

Um den Einfluss zusätzlicher Ladungsträger auf die Wellenfunktion sowie weitere angeregte Zustände zu studieren sind weitere Messungen notwendig. Um präzise einzelne Vielteilchenzustände selektieren zu können benötigt man möglichst gleichverteilte Ensembles von Quantenpunkten. Bei der Anpassung der Raten und der eindeutigen Identifizierung der Wellenfunktionen hat es sich als überaus wichtig herausgestellt mehrere Messungen für verschiedene Tunnel-Wellenzahlen k_T durchzuführen. Der Variationsbereich ist dadurch gegeben, in welchem Spannungsbereich die Elektronen noch in den ausgewählten Zustand tunneln können. Um k_T unabhängig wählen zu können, wäre für zukünftige Messungen ein sogenanntes Backgate vorteilhaft. Mit diesem sollte man in der Lage sein die Ladungsträgerdichte des Kanals einzustellen. Dies würde die Tunnelspannungen verschieben, sodass

man bei einer anderen Gate-Spannung und damit einer anderen k_T resonant mit einem ausgewählten Zustand ist. Schließlich wäre es noch von grundsätzlichem Interesse die hier präsentierten Messungen an einem einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkt reproduziert zu sehen. Dafür würden sich optische Messungen anbieten, bei denen es jedoch experimentell aufwändiger ist das Magnetfeld lateral und veränderlich zur optischen Achse auszurichten.

7. Zusammenfassung der Ergebnisse und Ausblick

In dieser Arbeit wurden sowohl optische Messungen an einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkten durchgeführt als auch elektrische Messungen an Ensembles. Dabei wurden verschiedene Arten der Nichtgleichgewichtsdynamik untersucht. Im ersten Teil dieser Arbeit wurden die Grundlagen erklärt, die zum Verständnis der Arbeit notwendig sind. Dazu wurde in Kapitel 2 grundsätzlich erläutert, wie die Quantenpunkte hergestellt werden [Leonard93], welche gebundenen (Vielteilchen-)Zustände es gibt [Fock28, Darwin31], aus welchen Beiträgen sich die Energien dieser Zustände zusammensetzen [Warburton98] und wie sie auf elektrische [Fry00] und magnetische Felder [Kuther98] reagieren. In Kapitel 3 wurde der Aufbau und die Besonderheiten der untersuchten Proben erläutert und eine Einführung in die Methoden der resonanten Fluoreszenz [Vamivakas09, Kurzman16c, Kurzman19] und der Leitfähigkeitspektroskopie [Marquardt09, Marquardt11b, Beckel14b] gegeben. Im zweiten Teil wurden die Ergebnisse dieser Arbeit vorgestellt. Dazu zählen (Kapitel 4) optische Messungen an einem einzelnen Quantenpunkt im Magnetfeld zur Untersuchung der optisch induzierten Nichtgleichgewichtsdynamik eines Elektronen-Spins, (Kapitel 5) optische Messungen an einem einzelnen Quantenpunkt zum Quantentransport zwischen einem Reservoir und dem Quantenpunkt und (Kapitel 6) elektrische Transportmessungen an einem Ensemble von Quantenpunkten zur Untersuchung der Wellenfunktion von angeregten Zuständen.

Auger- und Spin-Dynamik im Magnetfeld

Es wurden Messungen der zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenz an einem einzelnen Quantenpunkt durchgeführt. Dabei wurde ein optischer Trion-Übergang in einem Magnetfeld in Faraday-Geometrie angeregt. In diesen Messungen wurde die Nichtgleichgewichtsdynamik der Elektronen-Spin-Zustände untersucht, die durch die optische Anregung induziert wird und dazu beitragen kann den Spin-Zustand gezielt zu präparieren (Spin-Pumpen) [Atature06, Xu07, Dreiser08]. Mit den Messungen der zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenz und einem aufgestellten Ratenmodell wurde sowohl untersucht, in wie weit der Auger-Effekt zu dieser Dynamik beiträgt, als auch, wie sich die Rate des Auger-Prozesses im Magnetfeld verändert. Dieser wurde in der Literatur bisher vernachlässigt. Mit dem Ratenmodell konnte die gemessene Zeitentwicklung der resonanten Fluoreszenz angepasst werden. Die Raten der Prozesse, die in früheren Arbeiten bereits untersucht wurden, zeigten eine Abhängigkeit vom Magnetfeld, die mit der Literatur übereinstimmt. Für den Auger-Prozess wurde gefunden werden, dass er für die gegebenen Parameter das Spin-Pumpen behindert. Eine Abhängigkeit der Auger-Rate vom angelegten Magnetfeld konnte nur im Vergleich von Ergebnissen bei 0 T und 4 T beobachtet werden. Für Magnetfelder oberhalb von 4 T konnte keine Veränderung der Auger-Rate beobachtet werden. Dies ist in Widerspruch zu allgemeinen Überlegungen, nach denen eine Erhöhung der Rate im Magnetfeld zu erwarten wäre.

Ausblick: Um die Validität des Ratenmodells weiter zu erproben, müssten weitere Messungen durchgeführt werden, bei denen gezielt einzelne Prozesse im System variiert werden. An unterschiedlichen Proben mit veränderten Tunnelbarrieren könnte der Einfluss der Tunnelrate beobachtet werden. Die Asymmetrie der Spin-Flip-Raten und die thermische Spin-Verteilung könnte variiert werden, indem die Messungen bei verschiedenen Temperaturen durchgeführt werden. Außerdem wäre es wünschens-

wert, die präsentierte Methodik zu erweitern und simultan die Besetzungswahrscheinlichkeit weiterer Zustände im System zu messen. Damit könnte das Spin-Pumpen außerdem direkt beobachtet werden. Um zu überprüfen, ob die Auger-Rate doch eine sehr schwache Magnetfeldabhängigkeit besitzt, könnten weitere Messungen mit der hier präsentierten Methodik aber deutlich höherer Auflösung der Magnetfeldstärke durchgeführt werden. Außerdem sollten weitere Ursachen berücksichtigt werden, von denen die Auger-Rate abhängt. Dazu zählen etwa elektrische Felder aber auch die Zustandsdichte der Endzustände für den Auger-Prozess. Die isolierte Betrachtung dieser Aspekte ist jedoch nicht trivial.

Postprozessierung einzelner Photonen zur Echtzeitmessung von Quantensprüngen

Mit zeitaufgelöster resonanter Fluoreszenz wurde das Telegraphenrauschen des fluktuierenden Ladungszustandes eines einzelnen Quantenpunktes untersucht. Damit der Ladungszustand fluktuiert (QP beladen/unbeladen), wurde der Ein-Elektron-Grundzustand des Quantenpunktes in Resonanz mit dem chemischen Potential eines benachbarten Elektronenreservoirs gebracht. Dies führte zum Quantentransport, bei dem Elektronen zwischen dem Quantenpunkt und dem Reservoir hin- und hergetunnelt sind. Die Messung solcher fluktuierender Transportprozesse erfolgt üblicherweise elektrostatisch [Matsumoto96, Regul02] an anderen Quantenpunkten und mit einer hohen Zeitauflösung [Lu03, Gustavsson06, Wagner19]. In dieser Arbeit wurden jedoch optische Messungen durchgeführt, bei denen der optische Exziton-Übergang resonant angeregt und die emittierten Photonen einzeln detektiert und gespeichert werden [Kurzmann19]. Die Zeitreihe dieser einzelnen Photonen erlaubt es die Zeitauflösung bzw. die Bandbreite, mit der die Fluktuationen ausgewertet werden, erst im Rahmen einer Postprozessierung nach dem Experiment zu wählen. Es konnte gezeigt werden, dass es eine maximale und damit optimale Bandbreite gibt, bis zu der der Quantentransport noch aufgelöst werden kann. Versucht man den Transport mit einer noch höheren Zeitauflösung zu messen, so lassen sich die Ladungszustände nicht von einander trennen und man verliert statistische Informationen. Für eine Asymmetrie der Tunnelraten von $A = 1$ konnte eine maximale Bandbreite von etwa 179 kHz demonstriert werden. Außerdem wurden mehrere Möglichkeiten zur Erhöhung der maximalen Bandbreite diskutiert und explizit demonstriert, wie eine Erhöhung mit einer stärkeren Laseranregung erzielt werden kann. Zur quantitativen Beschreibung der maximalen Bandbreite und ihrer Erhöhung wurde ein Modell aufgestellt. Mit diesem ließ sich der vorhandene Datensatz gut beschreiben.

Ausblick: Bisweilen konnte das Telegraphenrauschen noch nicht mit Bandbreiten oberhalb von 1 MHz untersucht werden, wie es für elektrische Messungen des durchaus berichtet wird [Lu03]. Allerdings erlaubt das aufgestellte Modell die Vorhersage, dass dies mit modernen optischen Resonatoren durchaus möglich wäre. In diesen Systemen können sehr hohe Photonenraten von bis zu 40 MHz erzielt werden [Tomm21]. Damit sollten Bandbreiten mit einigen MHz durchaus erreichbar sein.

Wellenfunktionen von angeregten Zuständen

Mit Nichtgleichgewichtsmessungen der zeitaufgelösten Leitfähigkeitsspektroskopie wurde die Wellenfunktion eines angeregten p -Elektronenzustandes für ein Ensemble von Quantenpunkten vermessen. Für die zeitaufgelöste Leitfähigkeitsspektroskopie wurde der Strom durch ein zweidimensionales Elektronengas (2DEG) gemessen, das sich in der Nähe der Quantenpunkte befindet und dessen Leitfähigkeit von dem Ladungszustand der Quantenpunkte beeinflusst wird. Mit einem Spannungspuls lassen sich Tunnelprozesse von Elektronen aus dem 2DEG in die Quantenpunkte induzieren [Marquardt09]. Verändert man die Tunnelrate mit einem Magnetfeld senkrecht zur Tunnelrichtung, so lassen sich aus ihr Rückschlüsse auf die am Tunnelprozess beteiligten Wellenfunktionen ziehen [Eisenstein91, Patanè02]. Auf diese Weise konnten bereits die Wellenfunktionen der (Vielteilchen-)Grundzustände in selbstorganisierten Quantenpunkten vermessen werden [Beckel12, Zhou15, Zhou22]. In dieser Arbeit wurde die Methodik zur Vermessung der Wellenfunktionen mit Nichtgleichgewichtsmessungen, bei

denen die Elektronen sowohl in den Grundzustand als auch in angeregte Zustände tunneln [Marquardt11b, Beckel14b], kombiniert. Dazu werden hohe Spannungspulse benutzt. Um die Tunnelraten in die verschiedenen Zustände zu isolieren, wurde ein Ratenmodell aufgestellt und an die Messdaten angepasst. Die aus diesem Modell stammenden Raten wurden mit einem weiteren Modell zur Vermessung der Wellenfunktionen angepasst. Dabei konnte zunächst die Methodik bestätigt werden, indem gezeigt wurde, dass die Ergebnisse zur Wellenfunktion des beteiligten Grundzustandes mit der Literatur übereinstimmen. Für die Wellenfunktion des angeregten p -Zustandes wurde überraschender Weise festgestellt, dass sie radialsymmetrisch ist. Dies deutet darauf hin, dass auch das Potential des Quantenpunktes symmetrisch ist. Dies widerspricht Ergebnissen, bei denen die Wellenfunktionen von Vielteilchenzuständen (p_1 bis p_4) vermessen wurden [Zhou22]. Der Unterschied ist vermutlich auf die weiteren Ladungsträger im Quantenpunkt für die Vielteilchenzustände zurückzuführen.

Ausblick: Um den Einfluss zusätzlicher Ladungsträger auf die Wellenfunktion sowie weitere angeregte Zustände zu studieren, sind weitere Messungen notwendig. Für eine möglichst aussagekräftige und eindeutige Vermessung der Wellenfunktionen ist es vorteilhaft, wenn man die Zustände, aus denen die Elektronen in die Quantenpunkte tunneln gezielt (frei) auswählen könnte. Um dies zu ermöglichen, wäre für zukünftige Messungen ein zusätzliches sogenanntes Backgate vorteilhaft, mit dem sich die Ladungsträgerdichte des 2DEGs einstellen ließe. Schließlich wäre es noch von grundsätzlichem Interesse die hier präsentierten Messungen an einem einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkt reproduziert zu sehen. Dafür würden sich optische Messungen anbieten, bei denen es jedoch experimentell aufwändiger ist das Magnetfeld senkrecht und veränderlich zur optischen Achse auszurichten.

Publikationsliste

Im Zusammenhang mit dieser Dissertation entstandene Arbeiten

- J. Kerski, H. Mannel, P. Lochner, E. Kleinherbers, A. Kurzmann, A. Ludwig, A. D. Wieck, J. König, A. Lorke und M. Geller, *Post-processing of real-time quantum event measurements for an optimal bandwidth*, Scientific Reports **13**, 1105 (2023).
- H. Mannel, J. Kerski, P. Lochner, M. Zöllner, A. D. Wieck, A. Ludwig, A. Lorke und M. Geller, *Auger and spin dynamics in a self-assembled quantum dot*, arXiv:2110.12213 (2021).

Weitere Publikationen

- D. Zhou, J. Kerski, A. Beckel, M. Geller, A. Lorke, A. Ludwig, A. D. Wieck, X. Chen und W. Lu, *The role of momentum conservation on the tunneling between a two-dimensional electron gas and self-assembled quantum dots*, Journal of Applied Physics **132**, 064401 (2022)
- J. Kerski, P. Lochner, A. Ludwig, A. Wieck, A. Kurzmann, A. Lorke und M. Geller, *Quantum Sensor for Nanoscale Defect Characterization*, Physical Review Applied **15**, 024029 (2021).
- P. Lochner, J. Kerski, A. Kurzmann, A. D. Wieck, A. Ludwig, M. Geller und A. Lorke, *Internal photoeffect from a single quantum emitter*, Physical Review B **103**, 075426 (2021).
- M. Sift, A. Kurzmann, J. Kerski, R. Schott, A. Ludwig, A. D. Wieck, A. Lorke, M. Geller und D. Hägele, *Quantum polyspectra for modeling and evaluating quantum transport measurements: A unifying approach to the strong and weak measurement regime*, Physical Review Research **3**, 033123 (2021)
- P. Lochner, A. Kurzmann, J. Kerski, P. Stegmann, J. König, A. D. Wieck, A. Ludwig, A. Lorke und M. Geller, *Real-Time Detection of Single Auger Recombination Events in a Self-Assembled Quantum Dot*, Nano Letters **20**, 1631 (2020).
- D. Oing, M. Geller, L. Stahl, J. Kerski, A. Lorke, N. Wöhrl, *Defect spectroscopy on the dielectric material aluminium oxide*, Scientific Reports **10**, 1-6 (2020)
- A. Kurzmann, P. Stegmann, J. Kerski, R. Schott, A. Ludwig, A. Wieck, J. König, A. Lorke und M. Geller, *Optical Detection of Single-Electron Tunneling into a Semiconductor Quantum Dot*, Physical Review Letters **122**, 247403 (2019).

Literaturverzeichnis

- [Adler96] F. Adler, M. Geiger, A. Bauknecht, F. Scholz, H. Schweizer, M. H. Pilkuhn, B. Ohnesorge und A. Forchel, *Optical transitions and carrier relaxation in self assembled InAs/GaAs quantum dots*, Journal of Applied Physics **80**, 4019 (1996).
- [Ahmadinia22] N. Ahmadinia, M. Geller, J. König, P. Kratzer, A. Lorke, G. Schaller und R. Schützhold, *Quantum Zeno manipulation of quantum dots*, Physical Review Research **4**, 1032045 (2022).
- [Al-Ashouri18] A. Al-Ashouri, A. Kurzmann, B. Merkel, A. Ludwig, A. D. Wieck, A. Lorke und M. Geller, *Photon Noise Suppression by a Built-in Feedback Loop*, Nano Letters **19**, 135 (2018).
- [Atature06] M. Atature, *Quantum-Dot Spin-State Preparation with Near-Unity Fidelity*, Science **312**, 551 (2006).
- [Au/GaAs] Au/GaAs, für GaAs hängt die Höhe der Schottky-Barriere nicht im eigentlichen von dem abgeschiedenen Metal ab, sondern von den Defekten an der Oberfläche [Landolt-Börnstein]. Außerdem wird häufig n- bzw. p-dotiertes GaAs untersucht. Für die Simulation wurde darum für die Barrierenhöhe der Mittelwert für Au auf n-GaAs und p-GaAs gebildet, der $\bar{\phi} = 0,73$ eV beträgt.
- [Baca05] A. Baca und C. Ashby, *Fabrication of GaAs Devices*, Institution of Engineering and Technology (2005).
- [Bagrets03] D. A. Bagrets und Y. V. Nazarov, *Full counting statistics of charge transfer in Coulomb blockade systems*, Physical Review B **67**, 085316 (2003).
- [Baibich88] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. V. Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich und J. Chazelas, *Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices*, Physical Review Letters **61**, 2472 (1988).
- [Balzaretti95] N. M. Balzaretti und J. A. H. da Jornada, *Pressure dependence of the refractive index of monoclinic and yttria-stabilized cubic zirconia*, Physical Review B **52**, 9266 (1995).
- [Bardeen61] J. Bardeen, *Tunnelling from a Many-Particle Point of View*, Physical Review Letters **6**, 57 (1961).
- [Bayer00] M. Bayer, O. Stern, A. Kuther und A. Forchel, *Spectroscopic study of dark excitons in In_xGa_{1-x}As self-assembled quantum dots by a magnetic-field-induced symmetry breaking*, Physical Review B **61**, 7273 (2000).

- [Bayer02] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. A. Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. L. Reinecke, S. N. Walck, J. P. Reithmaier, F. Klopff und F. Schäfer, *Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots*, Physical Review B **65**, 195315 (2002).
- [Beckel12] A. Beckel, D. Zhou, B. Marquardt, D. Reuter, A. D. Wieck, M. Geller und A. Lorke, *Momentum matching in the tunneling between 2-dimensional and 0-dimensional electron systems*, Applied Physics Letters **100**, 232110 (2012).
- [Beckel14a] A. Beckel, A. Kurzmann, M. Geller, A. Ludwig, A. D. Wieck, J. König und A. Lorke, *Asymmetry of charge relaxation times in quantum dots: The influence of degeneracy*, Europhys. Lett. **106**, 47002 (2014).
- [Beckel14b] A. Beckel, A. Ludwig, A. D. Wieck, A. Lorke und M. Geller, *Time-resolved transconductance spectroscopy on self-assembled quantum dots: Spectral evolution from single-into many-particle states*, Physical Review B **89**, 155430 (2014).
- [Bester03] G. Bester, S. Nair und A. Zunger, *Pseudopotential calculation of the excitonic fine structure of million-atom self-assembled In_{1-x}Ga_xAs/GaAs quantum dots*, Physical Review B **67** (2003).
- [Bester07] G. Bester, D. Reuter, L. He, A. Zunger, P. Kailuweit, A. D. Wieck, U. Zeitler, J. C. Maan, O. Wibbelhoff und A. Lorke, *Experimental imaging and atomistic modeling of electron and hole quasiparticle wave functions in InAs/GaAs quantum dots*, Physical Review B **76**, 075338 (2007).
- [Bimberg97] D. Bimberg, N. Kirstaedter, N. Ledentsov, Z. Alferov, P. Kop'ev und V. Ustinov, *InGaAs-GaAs quantum-dot lasers*, IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics **3**, 196 (1997).
- [Binasch89] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach und W. Zinn, *Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange*, Physical Review B **39**, 4828 (1989).
- [Blanter00] Y. Blanter und M. Büttiker, *Shot noise in mesoscopic conductors*, Physics Reports **336**, 1 (2000).
- [Brandes08] T. Brandes, *Waiting times and noise in single particle transport*, Annalen der Physik **17**, 477 (2008).
- [Bressler-Hill95] V. Bressler-Hill, S. Varma, A. Lorke, B. Z. Nosho, P. M. Petroff und W. H. Weinberg, *Island Scaling in Strained Heteroepitaxy: InAs/GaAs(001)*, Physical Review Letters **74**, 3209 (1995).
- [Bulaev05] D. V. Bulaev und D. Loss, *Spin Relaxation and Decoherence of Holes in Quantum Dots*, Physical Review Letters **95**, 076805 (2005).
- [Chaudhuri11] R. G. Chaudhuri und S. Paria, *Core/Shell Nanoparticles: Classes, Properties, Synthesis Mechanisms, Characterization, and Applications*, Chemical Reviews **112**, 2373 (2011).

- [Chinen15] A. B. Chinen, C. M. Guan, J. R. Ferrer, S. N. Barnaby, T. J. Merkel und C. A. Mirkin, *Nanoparticle Probes for the Detection of Cancer Biomarkers, Cells, and Tissues by Fluorescence*, Chemical Reviews **115**, 10530 (2015).
- [Darwin31] C. G. Darwin, *The Diamagnetism of the Free Electron*, Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society **27**, 86 (1931).
- [Debus14] J. Debus, V. F. Sapega, D. Dunker, D. R. Yakovlev, D. Reuter, A. D. Wieck und M. Bayer, *Spin-flip Raman scattering of the resident electron in singly charged (In,Ga)As/GaAs quantum dot ensembles*, Physical Review B **90**, 235404 (2014).
- [Dreiser08] J. Dreiser, M. Atatüre, C. Galland, T. Müller, A. Badolato und A. Imamoglu, *Optical investigations of quantum dot spin dynamics as a function of external electric and magnetic fields*, Physical Review B **77** (2008).
- [Efros97] A. L. Efros und M. Rosen, *Random Telegraph Signal in the Photoluminescence Intensity of a Single Quantum Dot*, Physical Review Letters **78**, 1110 (1997).
- [Eisele08] H. Eisele, A. Lenz, R. Heitz, R. Timm, M. Dähne, Y. Temko, T. Suzuki und K. Jacobi, *Change of InAs/GaAs quantum dot shape and composition during capping*, Journal of Applied Physics **104**, 124301 (2008).
- [Eisenstein91] J. P. Eisenstein, T. J. Gramila, L. N. Pfeiffer und K. W. West, *Probing a two-dimensional Fermi surface by tunneling*, Physical Review B **44**, 6511 (1991).
- [Erlingsson02] S. I. Erlingsson und Y. V. Nazarov, *Hyperfine-mediated transitions between a Zeeman split doublet in GaAs quantum dots: The role of the internal field*, Physical Review B **66**, 155327 (2002).
- [FernandesdaSilva] E. C. Fernandes da Silva, *InAs: effective mass parameters: Datasheet from Landolt-Börnstein - Group III Condensed Matter · Volume 44C: "New Data and Updates for III-V, II-VI and I-VII Compounds" in SpringerMaterials (https://doi.org/10.1007/978-3-540-92140-0_154)*, copyright 2010 Springer-Verlag Berlin Heidelberg.
- [Ferreira99] R. Ferreira und G. Bastard, *Phonon-assisted capture and intradot Auger relaxation in quantum dots*, Applied Physics Letters **74**, 2818 (1999).
- [Fock28] V. Fock, *Bemerkung zur Quantelung des harmonischen Oszillators im Magnetfeld*, Zeitschrift für Physik **47**, 446 (1928).
- [Fort08] E. Fort und S. Grésillon, *Surface enhanced fluorescence*, Journal of Physics D: Applied Physics **41**, 013001 (2008).
- [Fras12] F. Fras, B. Eble, P. Desfonds, F. Bernardot, C. Testelin, M. Chamarro, A. Miard und A. Lemaître, *Two-phonon process and hyperfine interaction limiting slow hole-spin relaxation time in InAs/GaAs quantum dots*, Physical Review B **86**, 045306 (2012).

- [Fricke96] M. Fricke, A. Lorke, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro und P. M. Petroff, *Shell structure and electron-electron interaction in self-assembled InAs quantum dots*, Europhysics Letters (EPL) **36**, 197 (1996).
- [Fry00] P. W. Fry, I. E. Itskevich, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, J. J. Finley, J. A. Barker, E. P. O'Reilly, L. R. Wilson, I. A. Larkin, P. A. Maksym, M. Hopkinson, M. Al-Khafaji, J. P. R. David, A. G. Cullis, G. Hill und J. C. Clark, *Inverted Electron-Hole Alignment in InAs-GaAs Self-Assembled Quantum Dots*, Physical Review Letters **84**, 733 (2000).
- [Geller19] M. Geller, *Nonequilibrium carrier dynamics in self-assembled quantum dots*, Applied Physics Reviews **6**, 031306 (2019).
- [Grundmann95] M. Grundmann, O. Stier und D. Bimberg, *InAs/GaAs pyramidal quantum dots: Strain distribution, optical phonons, and electronic structure*, Physical Review B **52**, 11969 (1995).
- [Gustavsson06] S. Gustavsson, R. Leturcq, B. Simovič, R. Schleser, T. Ihn, P. Studerus, K. Ensslin, D. C. Driscoll und A. C. Gossard, *Counting Statistics of Single Electron Transport in a Quantum Dot*, Phys Rev Lett **96**, 076605 (2006).
- [Hayden91] R. K. Hayden, D. K. Maude, L. Eaves, E. C. Valadares, M. Henini, F. W. Sheard, O. H. Hughes, J. C. Portal und L. Cury, *Probing the hole dispersion curves of a quantum well using resonant magnetotunneling spectroscopy*, Physical Review Letters **66**, 1749 (1991).
- [Hecker23] D. Hecker, *Magnetfeldabhängige Nichtgleichgewichtstransportspektroskopie an Quantenpunktensembles*, Masterarbeit, Universität Duisburg-Essen (2023).
- [Högele04] A. Högele, S. Seidl, M. Kroner, K. Karrai, R. J. Warburton, B. D. Gerardot und P. M. Petroff, *Voltage-Controlled Optics of a Quantum Dot*, Physical Review Letters **93** (2004).
- [Högele12] A. Högele, M. Kroner, C. Latta, M. Claassen, I. Carusotto, C. Bulutay und A. Imamoglu, *Dynamic nuclear spin polarization in the resonant laser excitation of an InGaAs quantum dot*, Physical Review Letters **108**, 197403 (2012).
- [Hwang08] E. H. Hwang und S. D. Sarma, *Limit to two-dimensional mobility in modulation-doped GaAs quantum structures: How to achieve a mobility of 100 million*, Physical Review B **77**, 235437 (2008).
- [Igarashi07] Y. Igarashi, M. Jung, M. Yamamoto, A. Oiwa, T. Machida, K. Hirakawa und S. Tarucha, *The Kondo resonance in a single InAs quantum dot probed by nanogap electrodes*, Journal of Physics: Conference Series **61**, 463 (2007).
- [Innolume] Innolume, konrad-Adenauer-Allee 11, 44263 Dortmund | Germany; www.innolume.com.
- [Jang17] J. Jang, H. M. Yoo, L. N. Pfeiffer, K. W. West, K. W. Baldwin und R. C. Ashoori, *Full momentum- and energy-resolved spectral function of a 2D electronic system*, Science **358**, 901 (2017).

- [Jenkins39] F. A. Jenkins und E. Segrè, *The Quadratic Zeeman Effect*, *Physical Review* **55**, 52 (1939).
- [Jin10] S. Jin, N. Song und T. Lian, *Suppressed Blinking Dynamics of Single QDs on ITO*, *ACS Nano* **4**, 1545 (2010).
- [Karachinsky05] L. Y. Karachinsky, *Continuous-wave Lasing of Single-Mode Metamorphic Quantum Dot Lasers for the 1.5- μ m Spectral Region*, *Semiconductors* **39**, 1415 (2005).
- [Kardynał97] B. Kardynał, C. H. W. Barnes, E. H. Linfield, D. A. Ritchie, J. T. Nicholls, K. M. Brown, G. A. C. Jones und M. Pepper, *Magnetotunneling spectroscopy of one-dimensional wires*, *Physical Review B* **55**, R1966 (1997).
- [Kerski18] J. Kerski, *Optische Detektion der Coulomb-Wechselwirkung zwischen selbst-organisierten Quantenpunkten*, Masterarbeit, Universität Duisburg-Essen (2018).
- [Kerski21] J. Kerski, P. Lochner, A. Ludwig, A. Wieck, A. Kurzmann, A. Lorke und M. Geller, *Quantum Sensor for Nanoscale Defect Characterization*, *Physical Review Applied* **15**, 024029 (2021).
- [Kerski23] J. Kerski, H. Mannel, P. Lochner, E. Kleinherbers, A. Kurzmann, A. Ludwig, A. D. Wieck, J. König, A. Lorke und M. Geller, *Post-processing of real-time quantum event measurements for an optimal bandwidth*, *Scientific Reports* **13** (2023).
- [Keyser00] U. F. Keyser, H. W. Schumacher, U. Zeitler, R. J. Haug und K. Eberl, *Fabrication of a single-electron transistor by current-controlled local oxidation of a two-dimensional electron system*, *Applied Physics Letters* **76**, 457 (2000).
- [Khaetskii01] A. V. Khaetskii und Y. V. Nazarov, *Spin-flip transitions between Zeeman sublevels in semiconductor quantum dots*, *Physical Review B* **64**, 125316 (2001).
- [Kim17] J. Kim, H. J. Shim, J. Yang, M. K. Choi, D. C. Kim, J. Kim, T. Hyeon und D.-H. Kim, *Ultrathin Quantum Dot Display Integrated with Wearable Electronics*, *Advanced Materials* **29**, 1700217 (2017).
- [Kleinherbers18] E. Kleinherbers, P. Stegmann und J. König, *Revealing attractive electron–electron interaction in a quantum dot by full counting statistics*, *New J. Phys.* **20**, 073023 (2018).
- [Kleinherbers22] E. Kleinherbers, P. Stegmann, A. Kurzmann, M. Geller, A. Lorke und J. König, *Pushing the Limits in Real-Time Measurements of Quantum Dynamics*, *Physical Review Letters* **128**, 087701 (2022).
- [Kondo64] J. Kondo, *Resistance Minimum in Dilute Magnetic Alloys*, *Progress of Theoretical Physics* **32**, 37 (1964).
- [Kouwenhoven01] L. P. Kouwenhoven, D. G. Austing und S. Tarucha, *Few-electron quantum dots*, *Reports on Progress in Physics* **64**, 701 (2001).

- [Kowalczyk82] S. P. Kowalczyk, W. J. Schaffer, E. A. Kraut und R. W. Grant, *Determination of the InAs–GaAs(100) heterojunction band discontinuities by x-ray photoelectron spectroscopy (XPS)*, Journal of Vacuum Science and Technology **20**, 705 (1982).
- [Kroutvar04] M. Kroutvar, Y. Ducommun, D. Heiss, M. Bichler, D. Schuh, G. Abstreiter und J. J. Finley, *Optically programmable electron spin memory using semiconductor quantum dots*, Nature **432**, 81 (2004).
- [Kuhlmann13a] A. V. Kuhlmann, J. Houel, D. Brunner, A. Ludwig, D. Reuter, A. D. Wieck und R. J. Warburton, *A dark-field microscope for background-free detection of resonance fluorescence from single semiconductor quantum dots operating in a set-and-forget mode*, Review of scientific instruments **84**, 073905 (2013).
- [Kuhlmann13b] A. V. Kuhlmann, J. Houel, A. Ludwig, L. Greuter, D. Reuter, A. D. Wieck, M. Poggio und R. J. Warburton, *Charge noise and spin noise in a semiconductor quantum device*, Nature Physics **9**, 570 (2013).
- [Kurzmann15] A. Kurzmann, A. Beckel, A. Ludwig, A. D. Wieck, A. Lorke und M. Geller, *The effect of charged quantum dots on the mobility of a two-dimensional electron gas: How important is the Coulomb scattering?*, Journal of Applied Physics **117**, 054305 (2015).
- [Kurzmann16a] A. Kurzmann, A. Ludwig, A. D. Wieck, A. Lorke und M. Geller, *Auger Recombination in Self-Assembled Quantum Dots: Quenching and Broadening of the Charged Exciton Transition*, Nano letters **16**, 3367 (2016).
- [Kurzmann16b] A. Kurzmann, A. Ludwig, A. D. Wieck, A. Lorke und M. Geller, *Photoelectron generation and capture in the resonance fluorescence of a quantum dot*, Applied Physics Letters **108**, 263108 (2016).
- [Kurzmann16c] A. Kurzmann, B. Merkel, P. Labud, A. Ludwig, A. Wieck, A. Lorke und M. Geller, *Optical Blocking of Electron Tunneling into a Single Self-Assembled Quantum Dot*, Physical Review Letters **117**, 017401 (2016).
- [Kurzmann17] A. Kurzmann, *Zeitaufgelöste optische Transportspektroskopie an einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkten*, Dissertation, Universität Duisburg-Essen (2017).
- [Kurzmann19] A. Kurzmann, P. Stegmann, J. Kerski, R. Schott, A. Ludwig, A. Wieck, J. König, A. Lorke und M. Geller, *Optical Detection of Single-Electron Tunneling into a Semiconductor Quantum Dot*, Physical Review Letters **122**, 247403 (2019).
- [Kuther98] A. Kuther, M. Bayer, A. Forchel, A. Gorbunov, V. B. Timofeev, F. Schäfer und J. P. Reithmaier, *Zeeman splitting of excitons and biexcitons in single InGaAs/GaAs self-assembled quantum dots*, Physical Review B **58**, R7508 (1998).
- [Ladd10] T. D. Ladd, F. Jelezko, R. Laflamme, Y. Nakamura, C. Monroe und J. L. O’Brien, *Quantum computers*, Nature **464**, 45 (2010).
- [Landauer98] R. Landauer, *The noise is the signal*, Nature **392**, 658 (1998).

- [Landolt-Börnstein] Landolt-Börnstein, *Gallium arsenide (GaAs), Schottky barriers: Datasheet from Landolt-Börnstein - Group III Condensed Matter · Volume 41A1β: "Group IV Elements, IV-IV and III-V Compounds. Part b - Electronic, Transport, Optical and Other Properties"* in SpringerMaterials (https://doi.org/10.1007/10832182_217), copyright 2002 Springer-Verlag Berlin Heidelberg.
- [Latta09] C. Latta, A. Högele, Y. Zhao, A. N. Vamivakas, P. Maletinsky, M. Kroner, J. Dreiser, I. Carusotto, A. Badolato, D. Schuh, W. Wegscheider, M. Atature und A. Imamoglu, *Confluence of resonant laser excitation and bidirectional quantum-dot nuclear-spin polarization*, Nature Physics **5**, 758 (2009).
- [Lei10] W. Lei, C. Notthoff, J. Peng, D. Reuter, A. Wieck, G. Bester und A. Lorke, *"Artificial Atoms" in Magnetic Fields: Wave-Function Shaping and Phase-Sensitive Tunneling*, Physical Review Letters **105**, 176804 (2010).
- [Leon95] R. Leon, S. Fafard, D. Leonard, J. L. Merz und P. M. Petroff, *Visible luminescence from semiconductor quantum dots in large ensembles*, Applied Physics Letters **67**, 521 (1995).
- [Leonard93] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C. M. Reaves, S. P. Denbaars und P. M. Petroff, *Direct formation of quantum-sized dots from uniform coherent islands of InGaAs on GaAs surfaces*, Applied Physics Letters **63**, 3203 (1993).
- [Leonard94] D. Leonard, K. Pond und P. M. Petroff, *Critical layer thickness for self-assembled InAs islands on GaAs*, Physical Review B **50**, 11687 (1994).
- [Li12] Y. Li, N. Sinitsyn, D. L. Smith, D. Reuter, A. D. Wieck, D. R. Yakovlev, M. Bayer und S. A. Crooker, *Intrinsic Spin Fluctuations Reveal the Dynamical Response Function of Holes Coupled to Nuclear Spin Baths in (In,Ga)As Quantum Dots*, Physical Review Letters **108**, 186603 (2012).
- [Löbl20] M. C. Löbl, C. Spinnler, A. Javadi, L. Zhai, G. N. Nguyen, J. Ritzmann, L. Midolo, P. Lodahl, A. D. Wieck, A. Ludwig und R. J. Warburton, *Radiative Auger process in the single-photon limit*, Nature Nanotechnology **15**, 558 (2020).
- [Lochner19] P. Lochner, A. Kurzmann, R. Schott, A. D. Wieck, A. Ludwig, A. Lorke und M. Geller, *Contrast of 83% in reflection measurements on a single quantum dot*, Scientific Reports **9** (2019).
- [Lochner20] P. Lochner, A. Kurzmann, J. Kerski, P. Stegmann, J. König, A. D. Wieck, A. Ludwig, A. Lorke und M. Geller, *Real-Time Detection of Single Auger Recombination Events in a Self-Assembled Quantum Dot*, Nano Letters **20**, 1631 (2020).
- [Lochner21a] P. Lochner, *Optische Untersuchung der statischen und dynamischen Eigenschaften von Ladungsträgern in einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkten*, Dissertation, Universität Duisburg-Essen (2021).
- [Lochner21b] P. Lochner, J. Kerski, A. Kurzmann, A. D. Wieck, A. Ludwig, M. Geller und A. Lorke, *Internal photoeffect from a single quantum emitter*, Physical Review B **103**, 075426 (2021).

- [Loss98] D. Loss und D. P. DiVincenzo, *Quantum computation with quantum dots*, Physical Review A **57**, 120 (1998).
- [Loudon00] R. Loudon, *The quantum theory of light*, Oxford University Press (2000).
- [Lu03] W. Lu, Z. Ji, L. Pfeiffer, K. W. West und A. J. Rimberg, *Real-time detection of electron tunnelling in a quantum dot*, Nature **423**, 422 (2003).
- [Lu10] C.-Y. Lu, Y. Zhao, A. N. Vamivakas, C. Matthiesen, S. Fält, A. Badolato und M. Atatüre, *Direct measurement of spin dynamics in InAs/GaAs quantum dots using time-resolved resonance fluorescence*, Physical Review B **81**, 035332 (2010).
- [Luyken98] R. Luyken, A. Lorke, M. Haslinger, B. Miller, M. Fricke, J. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro und P. Petroff, *Electronic coupling effects in self-assembled InAs quantum dots*, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures **2**, 704 (1998).
- [Mannel20] H. Mannel, *Optische Detektion der Nichtgleichgewichtsdynamik in Halbleiter-Quantenstrukturen*, Masterarbeit, Universität Duisburg-Essen (2020).
- [Mannel21] H. Mannel, J. Kerski, P. Lochner, M. Zöllner, A. D. Wieck, A. Ludwig, A. Lorke und M. Geller, *Auger and spin dynamics in a self-assembled quantum dot* (2021).
- [Marquardt09] B. Marquardt, M. Geller, A. Lorke, D. Reuter und A. D. Wieck, *Using a two-dimensional electron gas to study nonequilibrium tunneling dynamics and charge storage in self-assembled quantum dots*, Applied Physics Letters **95**, 022113 (2009).
- [Marquardt11a] B. Marquardt, A. Beckel, A. Lorke, A. D. Wieck, D. Reuter und M. Geller, *The influence of charged InAs quantum dots on the conductance of a two-dimensional electron gas: Mobility vs. carrier concentration*, Applied Physics Letters **99**, 223510 (2011).
- [Marquardt11b] B. Marquardt, M. Geller, B. Baxevanis, D. Pfannkuche, A. D. Wieck, D. Reuter und A. Lorke, *Transport spectroscopy of non-equilibrium many-particle spin states in self-assembled quantum dots*, Nature Communications **2** (2011).
- [Márquez01] J. Márquez, L. Geelhaar und K. Jacobi, *Atomically resolved structure of InAs quantum dots*, Applied Physics Letters **78**, 2309 (2001).
- [Matsumoto96] K. Matsumoto, M. Ishii, K. Segawa, Y. Oka, B. J. Vartanian und J. S. Harris, *Room temperature operation of a single electron transistor made by the scanning tunneling microscope nanooxidation process for the TiO_x/Ti system*, Applied Physics Letters **68**, 34 (1996).
- [Medintz05] I. L. Medintz, H. T. Uyeda, E. R. Goldman und H. Mattoussi, *Quantum dot bioconjugates for imaging, labelling and sensing*, Nature Materials **4**, 435 (2005).

- [Meitner22] L. Meitner, *Über die β -Strahl-Spektren und ihren Zusammenhang mit der γ -Strahlung*, Zeitschrift für Physik **11**, 35 (1922).
- [Merkel17] B. Merkel, A. Kurzman, J.-H. Schulze, A. Strittmatter, M. Geller und A. Lorke, *Charge-driven feedback loop in the resonance fluorescence of a single quantum dot*, Physical Review B **95**, 115305 (2017).
- [Michler00] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, w. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu und A. Imamoglu, *A quantum dot single-photon turnstile device*, Science **290**, 2282 (2000).
- [Mollow69] B. R. Mollow, *Power Spectrum of Light Scattered by Two-Level Systems*, Physical Review **188**, 1969 (1969).
- [Muller07] A. Muller, E. B. Flag, P. Bianucci, X. Y. Wang, D. G. Deppe, W. Ma, J. Zhang, G. J. Salamo, M. Xiao und C. K. Shih, *Resonance Fluorescence from a Coherently Driven Semiconductor Quantum Dot in a Cavity*, Physical Review Letters **99** (2007).
- [Nakaoka04] T. Nakaoka, T. Saito, J. Tatebayashi und Y. Arakawa, *Size, shape, and strain dependence of the g-factor in self-assembled In(Ga)As quantum dots*, Physical Review B **70**, 235337 (2004).
- [Nakaoka05] T. Nakaoka, T. Saito, J. Tatebayashi, S. Hirose, T. Usuki, N. Yokoyama und Y. Arakawa, *Tuning of g-factor in self-assembled In(Ga)As quantum dots through strain engineering*, Physical Review B **71**, 205301 (2005).
- [nGaAs] n GaAs, der Wert wurde der Seite www.refractiveindex.info entnommen. Diese stellt den Zugriff auf Daten aus [Papatryfonos21] bereit.
- [Nguyen11] H. S. Nguyen, G. Sallen, C. Voisin, P. Roussignol, C. Diederichs und G. Cassabois, *Ultra-coherent single photon source*, Applied Physics Letters **99**, 261904 (2011).
- [Nirmal96] M. Nirmal, B. O. Dabbousi, M. G. Bawendi, J. J. Macklin, J. K. Trautman, T. D. Harris und L. E. Brus, *Fluorescence intermittency in single cadmium selenide nanocrystals*, Nature **383**, 802 (1996).
- [Nowozin14] T. Nowozin, A. Beckel, D. Bimberg, A. Lorke und M. Geller, *3 ns single-shot read-out in a quantum dot-based memory structure*, Applied Physics Letters **104**, 053111 (2014).
- [Nozik02] A. Nozik, *Quantum dot solar cells*, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures **14**, 115 (2002).
- [nZrO2] n ZrO₂, der Wert wurde für eine Wellenlänge von 950 nm bestimmt ausgehend von dem Mittelwert $n = 2,4$ für 690 nm und einer Dispersion von $dn/d\lambda = -1,1 \text{ nm}^{-1}$ [Balzaretto95].
- [Papatryfonos21] K. Papatryfonos, T. Angelova, A. Brimont, B. Reid, S. Guldin, P. R. Smith, M. Tang, K. Li, A. J. Seeds, H. Liu und D. R. Selviah, *Refractive indices of MBE-grown Al_xGa_{1-x}As ternary alloys in the transparent wavelength region*, AIP Advances **11**, 025327 (2021).

- [Patanè02] A. Patanè, R. J. A. Hill, L. Eaves, P. C. Main, M. Henini, M. L. Zambrano, A. Levin, N. Mori, C. Hamaguchi, Y. V. Dubrovskii, E. E. Vdovin, D. G. Austing, S. Tarucha und G. Hill, *Probing the quantum states of self-assembled InAs dots by magnetotunneling spectroscopy*, Physical Review B **65**, 165308 (2002).
- [Penev01] E. Penev, P. Kratzer und M. Scheffler, *Effect of strain on surface diffusion in semiconductor heteroepitaxy*, Physical Review B **64**, 085401 (2001).
- [Petroff94] P. Petroff und S. DenBaars, *MBE and MOCVD growth and properties of self-assembling quantum dot arrays in III-V semiconductor structures*, Superlattices and Microstructures **15**, 15 (1994).
- [Petroff01] P. M. Petroff, A. Lorke und A. Imamoglu, *Epitaxially Self-Assembled Quantum Dots*, Physics Today **54**, 46 (2001).
- [Pietryga08] J. M. Pietryga, K. K. Zhuravlev, M. Whitehead, V. I. Klimov und R. D. Schaller, *Evidence for Barrierless Auger Recombination in PbSe Nanocrystals: A Pressure-Dependent Study of Transient Optical Absorption*, Physical Review Letters **101**, 217401 (2008).
- [Portalupi19] S. L. Portalupi, M. Jetter und P. Michler, *InAs quantum dots grown on metamorphic buffers as non-classical light sources at telecom C-band: a review*, Semiconductor Science and Technology **34**, 053001 (2019).
- [Press08] D. Press, T. D. Ladd, B. Zhang und Y. Yamamoto, *Complete quantum control of a single quantum dot spin using ultrafast optical pulses*, Nature **456**, 218 (2008).
- [Rabouw15] F. T. Rabouw, R. Vaxenburg, A. A. Bakulin, R. J. A. van Dijk-Moes, H. J. Bakker, A. Rodina, E. Lifshitz, A. L. Efros, A. F. Koenderink und D. Vanmaekelbergh, *Dynamics of Intraband and Interband Auger Processes in Colloidal Core-Shell Quantum Dots*, ACS Nano **9**, 10366 (2015).
- [Ramsay10] A. J. Ramsay, A. V. Gopal, E. M. Gauger, A. Nazir, B. W. Lovett, A. M. Fox und M. S. Skolnick, *Damping of Exciton Rabi Rotations by Acoustic Phonons in Optically Excited InAsGaAs/GaAs Quantum Dots*, Physical Review Letters **104**, 017402 (2010).
- [Raymond99] S. Raymond, X. Guo, J. L. Merz und S. Fafard, *Excited-state radiative lifetimes in self-assembled quantum dots obtained from state-filling spectroscopy*, Physical Review B **59**, 7624 (1999).
- [Raymond04] S. Raymond, S. Studenikin, A. Sachrajda, Z. Wasilewski, S. J. Cheng, W. Sheng, P. Hawrylak, A. Babinski, M. Potemski, G. Ortner und M. Bayer, *Excitonic Energy Shell Structure of Self-Assembled InGaAs/GaAs Quantum Dots*, Physical Review Letters **92**, 187402 (2004).
- [Regul02] J. Regul, U. F. Keyser, M. Paesler, F. Hohls, U. Zeitler, R. J. Haug, A. Malavé, E. Oesterschulze, D. Reuter und A. D. Wieck, *Fabrication of quantum point contacts by engraving GaAs/AlGaAs heterostructures with a diamond tip*, Applied Physics Letters **81**, 2023 (2002).

- [Riel08] B. J. Riel, *An introduction to self-assembled quantum dots*, American Journal of Physics **76**, 750 (2008).
- [Robel09] I. Robel, R. Gresback, U. Kortshagen, R. D. Schaller und V. I. Klimov, *Universal Size-Dependent Trend in Auger Recombination in Direct-Gap and Indirect-Gap Semiconductor Nanocrystals*, Physical Review Letters **102**, 177404 (2009).
- [Robinson00] H. D. Robinson und B. B. Goldberg, *Light-induced spectral diffusion in single self-assembled quantum dots*, Physical Review B **61**, R5086 (2000).
- [Roescu08] R. M. Roescu, *Wavefunctions and carrier-carrier interactions in InAs quantum dots studied by capacitance-voltage spectroscopy*, Dissertation, Ruhr-Universität Bochum (2008).
- [Russ04] M. Russ, A. Lorke, D. Reuter und P. Schafmeister, *Self-assembled quantum dots as probes for Landau-level spectroscopy*, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures **22**, 506 (2004).
- [Ruß06] M. Ruß, C. Meier, A. Lorke, D. Reuter und A. D. Wieck, *Role of quantum capacitance in coupled low-dimensional electron systems*, Physical Review B **73**, 115334 (2006).
- [Saha12] K. Saha, S. S. Agasti, C. Kim, X. Li und V. M. Rotello, *Gold Nanoparticles in Chemical and Biological Sensing*, Chemical Reviews **112**, 2739 (2012).
- [Schliwa07] A. Schliwa, M. Winkelkemper und 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**, 205324 (2007).
- [Schmidt96] K. H. Schmidt, G. Medeiros-Ribeiro, M. Oestreich, P. M. Petroff und G. H. Döhler, *Carrier relaxation and electronic structure in InAs self-assembled quantum dots*, Physical Review B **54**, 11346 (1996).
- [Schubert06] E. F. Schubert, *Physical foundations of solid-state devices*, E. Fred Schubert (2006).
- [Schuda74] F. Schuda, C. R. S. Jr. und M. Hercher, *Observation of the resonant Stark effect at optical frequencies*, Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics **7**, L198 (1974).
- [Seguin05] R. Seguin, A. Schliwa, S. Rodt, K. Pötschke, U. W. Pohl und D. Bimberg, *Size-Dependent Fine-Structure Splitting in Self-Organized InAs/GaAs Quantum Dots*, Physical Review Letters **95**, 257402 (2005).
- [Shannon01] C. E. Shannon, *A Mathematical Theory of Communication*, SIGMOBILE Mob. Comput. Commun. Rev. **5**, 3 (2001).
- [Sift21] M. Sift, A. Kurzmann, J. Kerski, R. Schott, A. Ludwig, A. D. Wieck, A. Lorke, M. Geller und D. Hägele, *Quantum polyspectra for modeling and evaluating quantum transport measurements: A unifying approach to the strong and weak measurement regime*, Physical Review Research **3**, 033123 (2021).

- [Snider] G. Snider, *1D Poisson/Schrödinger: A Band Diagram Calculator*, University of Notre Dame, <https://www3.nd.edu/~gsnider/>.
- [Stangl04] J. Stangl, V. Holý und G. Bauer, *Structural properties of self-organized semiconductor nanostructures*, *Reviews of Modern Physics* **76**, 725 (2004).
- [Stegmann15] P. Stegmann, B. Sothmann und A. H. and, *Detection of interactions via generalized factorial cumulants in systems in and out of equilibrium*, *Physical Review B* **92**, 155413 (2015).
- [Stievater01] T. H. Stievater, X. Li, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi und L. J. Sham, *Rabi Oscillations of Excitons in Single Quantum Dots*, *Physical Review Letters* **87**, 133603 (2001).
- [Störmer79] H. Störmer, R. Dingle, A. Gossard, W. Wiegmann und M. Sturge, *Two-dimensional electron gas at a semiconductor-semiconductor interface*, *Solid State Communications* **29**, 705 (1979).
- [Stranski37] I. N. Stranski und L. Krastanow, *Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von Ionenkristallen aufeinander*, *Monatshefte für Chemie und verwandte Teile anderer Wissenschaften* **71**, 351 (1937).
- [Tomić11] S. Tomić, A. Martí, E. Antolín und A. Luque, *On inhibiting Auger intraband relaxation in InAs-GaAs quantum dot intermediate band solar cells*, *Applied Physics Letters* **99**, 053504 (2011).
- [Tomm21] N. Tomm, A. Javadi, N. O. Antoniadis, D. Najer, M. C. Löbl, A. R. Korsch, R. Schott, S. R. Valentin, A. D. Wieck, A. Ludwig und R. J. Warburton, *A bright and fast source of coherent single photons*, *Nature Nanotechnology* **16**, 399 (2021).
- [Vamivakas09] A. N. Vamivakas, Y. Zhao, C.-Y. Lu und M. Atatüre, *Spin-resolved quantum-dot resonance fluorescence*, *Nature Physics* **5**, 198 (2009).
- [Vamivakas10] A. N. Vamivakas, C.-Y. Lu, C. Matthiesen, Y. Zhao, S. Fält, A. Badolato und M. Atatüre, *Observation of spin-dependent quantum jumps via quantum dot resonance fluorescence*, *Nature* **467**, 297 (2010).
- [vanderWiel02] W. G. van der Wiel, S. D. Franceschi, J. M. Elzerman, T. Fujisawa, S. Tarucha und L. P. Kouwenhoven, *Electron transport through double quantum dots*, *Reviews of Modern Physics* **75**, 1 (2002).
- [vanWees88] B. J. van Wees, H. van Houten, C. W. J. Beenakker, J. G. Williamson, L. P. Kouwenhoven, D. van der Marel und C. T. Foxon, *Quantized conductance of point contacts in a two-dimensional electron gas*, *Physical Review Letters* **60**, 848 (1988).
- [Vdovin07] E. E. Vdovin, Y. N. Khanin, O. Makarovskiy, Y. V. Dubrovskii, A. Patané, L. Eaves, M. Henini, C. J. Mellor, K. A. Benedict und R. Airey, *Magnetoanisotropy of electron-correlation-enhanced tunneling through a quantum dot*, *Physical Review B* **75**, 115315 (2007).

- [v.Klitzing80] K. v. Klitzing, G. Dorda und M. Pepper, *New Method for High-Accuracy Determination of the Fine-Structure Constant Based on Quantized Hall Resistance*, Physical Review Letters **45**, 494 (1980).
- [Wagner19] T. Wagner, P. Talkner, J. C. Bayer, E. P. Rugeramigabo, P. Hänggi und R. J. Haug, *Quantum stochastic resonance in an ac-driven single-electron quantum dot*, Nature Physics **15**, 330 (2019).
- [Wang03] L.-W. Wang, M. Califano, A. Zunger und A. Franceschetti, *Pseudopotential Theory of Auger Processes in CdSe Quantum Dots*, Physical Review Letters **91**, 056404 (2003).
- [Warburton98] R. J. Warburton, B. T. Miller, C. S. Dürr, C. Bödefeld, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, P. M. Petroff und S. Huant, *Coulomb interactions in small charge-tunable quantum dots: A simple model*, Physical Review B **58**, 16221 (1998).
- [Wei14] Y.-J. Wei, Y. He, Y.-M. He, C.-Y. Lu, J.-W. Pan, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, D. P. McCutcheon und A. Nazir, *Temperature-Dependent Mollow Triplet Spectra from a Single Quantum Dot: Rabi Frequency Renormalization and Sideband Linewidth Insensitivity*, Physical Review Letters **113**, 097401 (2014).
- [Wibbelhoff05] O. S. Wibbelhoff, A. Lorke, D. Reuter und A. D. Wieck, *Magnetocapacitance probing of the many-particle states in InAs dots*, Applied Physics Letters **86**, 092104 (2005).
- [Wojs96] A. Wojs und P. Hawrylak, *Charging and infrared spectroscopy of self-assembled quantum dots in a magnetic field*, Physical Review B **53**, 10841 (1996).
- [Wolfram Research, Inc.] Wolfram Research, Inc., *Mathematica 13.0*.
- [Xu07] X. Xu, Y. Wu, B. Sun, Q. Huang, J. Cheng, D. G. Steel, A. S. Bracker, D. Gammon, C. Emary und L. J. Sham, *Fast Spin State Initialization in a Singly Charged InAs-GaAs Quantum Dot by Optical Cooling*, Physical Review Letters **99**, 097401 (2007).
- [Xu09] X. Xu, W. Yao, B. Sun, D. G. Steel, A. S. Bracker, D. Gammon und L. J. Sham, *Optically controlled locking of the nuclear field via coherent dark-state spectroscopy*, Nature **459**, 1105 (2009).
- [Yilmaz10] S. T. Yilmaz, P. Fallahi und A. Imamoğlu, *Quantum-Dot-Spin Single-Photon Interface*, Physical Review Letters **105**, 033601 (2010).
- [Yugova07] I. A. Yugova, A. Greilich, E. A. Zhukov, D. R. Yakovlev, M. Bayer, D. Reuter und A. D. Wieck, *Exciton fine structure in InGaAs/GaAs quantum dots revisited by pump-probe Faraday rotation*, Physical Review B **75**, 195325 (2007).
- [Zeeman97] P. Zeeman, *The Effect of Magnetisation on the Nature of Light Emitted by a Substance*, Nature **55**, 347 (1897).

- [Zhou15] D. Zhou, A. Beckel, A. Ludwig, A. D. Wieck, M. Geller und A. Lorke, *Tuning the tunneling probability between low-dimensional electron systems by momentum matching*, Applied Physics Letters **106**, 243105 (2015).
- [Zhou18] Y. Zhou, H. Zhao, D. Ma und F. Rosei, *Harnessing the properties of colloidal quantum dots in luminescent solar concentrators*, Chemical Society Reviews **47**, 5866 (2018).
- [Zhou22] D. Zhou, J. Kerski, A. Beckel, M. Geller, A. Lorke, A. Ludwig, A. D. Wieck, X. Chen und W. Lu, *The role of momentum conservation on the tunneling between a two-dimensional electron gas and self-assembled quantum dots*, Journal of Applied Physics **132**, 064401 (2022).
- [Zieliński13] M. Zieliński, *Valence band offset, strain and shape effects on confined states in self-assembled InAs/InP and InAs/GaAs quantum dots*, Journal of Physics: Condensed Matter **25**, 465301 (2013).

Danksagung

Die vorliegende Dissertation stellt sowohl große Teile meiner bisherigen wissenschaftlichen Arbeit dar, als auch den Abschluss eines intensiven und prägenden Lebensabschnitts. Die wissenschaftliche Arbeit, die ich hier präsentieren darf, hätte ich vollkommen auf mich allein gestellt wohl niemals vollbringen können. Ich möchte mich darum zunächst herzlich bei meinen Ko-Autoren für die Zusammenarbeit bedanken. Besonderer Dank gilt Prof. Dr. Andreas Wieck und Dr. Arne Ludwig für die vermutlich weltbesten Proben. Außerdem danke ich Prof. Dr. Jürgen König, Dr. Phillip Stegmann und Dr. Eric Kleinherbers für viele bereichernde Erklärungen und Diskussionen zum Telegraphenrauschen.

Da ich ihr ebenfalls viel zu verdanken habe, möchte mich bei der Fakultät für Physik der Universität Duisburg-Essen bedanken, bei ihren zum Teil begnadeten Dozenten und ihren Mitarbeitern, da sie dafür verantwortlich sind, dass ich nach fast 10 Jahren die Welt mit anderen Augen sehe.

Zum Teil für die wissenschaftliche Zusammenarbeit aber vor allem für so viel mehr, möchte ich an dieser Stelle einige weitere Personen namentlich erwähnen und ihnen meinen Dank aussprechen.

Zunächst möchte ich Prof. Dr. Axel Lorke für die Betreuung meiner Doktorarbeit danken und dafür, dass er mir die Möglichkeit gegeben hat diese Arbeit in seiner Arbeitsgruppe anzufertigen. Ich danke ihm für seine inhaltlichen und stilistischen Anregungen für diese Arbeit. Ich bin ihm dankbar für die vielen langen Diskussionen, nach denen ich mich immer ein wenig schlauer aber vor allem ermutigt und motiviert gefühlt habe. Seine Faszination und Hingabe für die Physik im Allgemeinen hat mich nachhaltig beeindruckt und inspiriert. Einen besseren Betreuer hätte ich mir nicht wünschen können!

PD Dr. Martin Paul Geller danke ich für die fachliche Anleitung im Labor, das immer offene Ohr bei Fragen, seine ab und zu skeptische aber immer (!) bereichernde Perspektive, sowie die inhaltlichen und stilistischen Anregungen für diese Arbeit. Besonders möchte ich mich bei ihm dafür bedanken, dass er mich mit dem nötigen Druck dazu gebracht hat, über mich selbst hinaus zu wachsen.

Bei Dr. Pia Lochner möchte ich mich dafür bedanken, dass sie mir während der Masterarbeit eine tolle Betreuerin war, während der Doktorarbeit eine verlässliche Kollegin und darüber hinaus eine gute Freundin geworden ist. Danke auch für die vielfältige seelische Unterstützung, um dem nötigen Druck standzuhalten.

Ich danke Carl Nelson Creutzburg, Daniel Hecker, Hendrik Mannel und Felix Schaumburg für das Vertrauen bei der Begleitung ihrer Abschlussarbeiten, deren Ergebnisse teilweise Einzug in diese Arbeit erhalten haben. Ich sehe es als Privileg an, dass ich an ihrer Entwicklung teilhaben durfte und wünsche ihnen alles Gute auf ihren weiteren Lebenswegen.

Ich möchte mich bei allen Mitgliedern der Arbeitsgruppe für die angenehme Zeit und die Unterstützung bedanken. Besonders Dr. Aswin Vijai Asaithambi, Dr. Vasilis Dergianlis, Dr. Dennis Oing, Fabio Rimek, Dr. Sebastian Tigges, Timo Wagner und Marcel Zöllner waren zusätzlich zu den bereits erwähnten Personen dafür verantwortlich, dass die Arbeitsgruppe Lorke für mich in den letzten Jahren mehr als nur ein Arbeitsplatz war.

Ich bedanke mich außerdem bei meinen Freunden innerhalb wie außerhalb der Universität für ihre Unterstützung und ihr Verständnis in den Zeiten, in denen ich nur wenig Zeit mit ihnen verbringen konnte.

Schließlich gilt mein ganz besonderer Dank meiner Familie. Dafür, dass sie über diese lange Zeit an mich geglaubt hat und mich in einem Maß unterstützt hat, das ich nicht für möglich gehalten hätte. Danke für eure Unterstützung, eure Liebe und eure Geduld.

Danke.

DuEPublico

Duisburg-Essen Publications online

UNIVERSITÄT
DUISBURG
ESSEN

Offen im Denken

ub | universitäts
bibliothek

Diese Dissertation wird via DuEPublico, dem Dokumenten- und Publikationsserver der Universität Duisburg-Essen, zur Verfügung gestellt und liegt auch als Print-Version vor.

DOI: 10.17185/duepublico/79086

URN: urn:nbn:de:hbz:465-20231018-093415-7

Alle Rechte vorbehalten.