
**Elektronen-Nichtgleichgewichtsdynamik
in selbstorganisierten Quantenpunkten:
Elektron-Elektron und
Elektron-Photon Streuprozesse**



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

- DISSERTATION -

von

MARCEL ZÖLLNER

geb. Ney

aus

Oberhausen

Tag der Abgabe: 27. Juni 2024

Tag der Disputation: 01. Oktober 2024

Mitglieder der Prüfungskommission:

1. Gutachter: Prof. Dr. Axel Lorke

2. Gutachter: Prof. Dr. Hubert Krenner

Prüfer: Jun. Prof. Dr. Manuel Gruber

Vorsitzender: Prof. Dr. Jürgen König

Zusammenfassung

Quanteninformationstechnologien [Kimble08] erfordern ununterscheidbare Photonen mit langen Kohärenzlängen von einem einzigen Quantenemitter [Müller14, Da Lio22]. Vielversprechende Kandidaten für diese Anwendung sind selbstorganisierte Quantenpunkte (QD) [Petroff01], die in eine Diodenstruktur eingebettet sind. Die schwache Tunnelkopplung der in dieser Arbeit verwendeten InAs-Quantenpunkte an ein Elektronenreservoir erlaubt die zeitliche Auflösung der Dynamik einzelner Elektronen [Beckel14, Kurzmann19]. Diese Nichtgleichgewichtsdynamik der Elektronen, der Auger-Meitner-Effekt und der interne Photoeffekt werden mit zeitaufgelöster resonanter Fluoreszenz (RF) beobachtet. Für das sogenannte Spin-Photon-Interface [Gao12, Javadi18] ist der gezielte Zugang zum Spinzustand des Elektrons, zum Beispiel durch die resonante Anregung zwischen dem einfach-besetzten Grundzustand und dem Trionzustand, von großer Bedeutung. Die Auger-Rekombination [Kurzmann16a], der interne Photoeffekt [Lochner21b] und der Elektroneneinfang durch Photoanregung [Kurzmann16c] sind Streuprozesse, die die Photonenkohärenzlänge reduzieren. In dieser Arbeit wird daher der Einfluss von elektrischen und magnetischen Feldern sowie der Energie der eingestrahlten Photonen auf die Raten der verschiedenen Streuprozesse diskutiert.

Der Auger-Meitner-Effekt in Quantenpunkten [Kurzmann16a] ist ein nicht-strahlender Elektron-Elektron Streuprozess, bei dem die Übergangsenergie eines Elektron-Loch-Paares auf ein zweites Elektron übertragen wird. Dieses verlässt den Quantenpunkt und streut in einen energetisch deutlich höheren Zustand im Leitungsband. Im äußeren Magnetfeld ist die Spinentartung der Trionübergänge aufgehoben, sodass durch eine resonante zeitaufgelöste Zwei-Farben Anregung beider Trionresonanzen die Auger-Rate als Funktion der Magnetfeldstärke direkt bestimmt werden kann. Unerwünschte Streuprozesse wie die Spin-Flip-Raman-Streuung werden durch diese verbesserte Methode gefiltert, sodass die Steigung der gemessenen exponentiell abfallenden Transienten direkt die Elektronenemissionsrate angibt. Wie bereits von Mannel et al. [Mannel23] beobachtet und hier mit mehr Datenpunkten und einer verbesserten direkten Bestimmung der Rate gezeigt wurde, nimmt die besetzungsunabhängige Auger-Rate mit steigender Magnetfeldstärke um etwa eine Größenordnung ab.

Durch die präzise Einstellung des elektrischen Feldes und die Anpassung der Frequenz aufgrund des Stark-Effekts, konnte in dieser Arbeit die Tunneldynamik des Elektrons [Luyken99] und die Verbindung zur Intensität des Trionübergangs mit hoher Auflösung untersucht werden. Das Verhältnis von Auger-Rate zur Tunnelrate bestimmt maßgeblich die Linienbreite und die Intensität der Trionresonanz. Zusätzlich zu den Messungen der Trionresonanz durch die Frequenzverstimmung hat eine Simulation der zeitaufgelösten Linienbreiten gezeigt, dass bereits nach etwa 0.2 ms die Trionresonanz deutlich verbreitert ist.

Der interne Photoeffekt in selbstorganisierten Quantenpunkten [Lochner21b], bei dem das Elektron durch Elektron-Photon Streuung in energetisch höhere Zustände gestreut wird, ist dem Auger-Meitner-Effekt sehr ähnlich. Beide Effekte begrenzen die Spinkohärenz des Elektrons und unterdrücken den strahlenden Trionübergang, wobei die Zeit bis zur erneuten Anregung von der Tunneldynamik des Elektrons aus dem Elektronenreservoir in den Quantenpunkt abhängt. Um herauszufinden, welchen Einfluss die Energie des absorbierten Photons auf die Rate hat, mit der das Elektron den Quantenpunkt verlässt, wurde die interne Photoemissions-Spektroskopie (iPES) entwickelt. Diese erlaubt die hochaufgelöste Bestimmung der Photoemissionsrate als Funktion der eingestrahlten Laserfrequenz. In dieser Arbeit wurden einige interessante Ergebnisse diskutiert, wie zum Beispiel die phononenassistierte Anregung der Trionresonanz, die über den nicht-strahlenden Auger-Meitner-Effekt beobachtet werden konnte.

Abstract

Quantum information technologies [Kimble08] require indistinguishable photons with long coherence time from a single quantum emitter [Müller14, Da Lio22]. Promising candidates for this application are self-assembled quantum dots (QD) [Petroff01] embedded in a diode structure. The weak tunnel coupling of the InAs quantum dots to an electron reservoir allows time-resolved dynamics of single electron tunneling [Beckel14, Kurzmann19]. These non-equilibrium dynamics of the electrons, the Auger-Meitner effect and the internal photoeffect are observed with time-resolved resonance fluorescence (RF). For the so-called spin-photon interface [Gao12, Javadi18], the targeted access to the spin state of the electron, for example by resonant excitation between the singly occupied ground state and the trion state, is of great importance. The Auger recombination [Kurzmann16a], internal photoeffect [Lochner21b] and electron capture by photoexcitation [Kurzmann16c] are scattering processes that reduce the photon coherence time. Therefore, this work discusses the influence of electric and magnetic fields as well as the energy of the irradiated photons on the rates of the various scattering processes.

The Auger-Meitner effect in quantum dots [Kurzmann16a] is a non-radiative electron-electron scattering process in which the transition energy of an electron-hole pair is transferred to a second electron. This electron leaves the quantum dot and scatters to a much higher energy state in the conduction band. In the external magnetic field, the spin degeneracy of the trion states is canceled, so that the Auger rate can be directly determined as a function of the magnetic field strength by resonant time-resolved two-color excitation of both trion resonances. Unwanted scattering processes such as spin-flip Raman scattering are filtered out by this improved method, so that the slope of the measured exponentially decreasing transients directly indicates the electron emission rate. As already described by Mannel et al. [Mannel23] and shown here with more data points and an improved direct determination of the rate, the occupation-independent Auger rate decreases by about one order of magnitude with increasing magnetic field strength.

By precisely tuning the electric field and controlling the frequency through the quantum-confined Stark effect, the tunneling dynamics of the electron [Luyken99] and the relationship to the intensity of the trion transition were studied with high resolution in this work. The ratio of the Auger rate to the tunneling rate significantly determines the linewidth and the intensity of the trion resonance. In addition to the measurements of the trion resonance by frequency detuning, a simulation of the time-resolved linewidths has shown that the trion resonance is already significantly broadened after about 0.2 ms.

The internal photoeffect in self-assembled quantum dots [Lochner21b], where the electron is scattered to energetically higher states by electron-photon scattering, is very similar to the Auger-Meitner effect. Both effects limit the spin coherence of the electron and suppress the radiative trion transition, with the re-excitation depending on the tunneling dynamics of the single electron from the electron reservoir into the quantum dot. Internal photoemission spectroscopy (iPES) was developed to determine the influence of the energy of the absorbed photon on the electron emission rate from the quantum dot. This allows the high-resolution determination of the photoemission rate as a function of the irradiated laser frequency. In this work interesting results were discussed, such as the phonon-assisted excitation of the trion resonance, which was observed via the non-radiative Auger-Meitner effect.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Optik an selbstorganisierten Quantenpunkten	5
2.1	Stranski-Krastanow-Wachstum	7
2.1.1	Indium-flush	7
2.2	Energiestruktur der selbstorganisierten Quantenpunkte	9
2.2.1	Vielteilchenzustände im Quantenpunkt	11
2.2.2	Feinstrukturaufspaltung	12
2.2.3	Quantenpunkt im elektrischen Feld	12
2.2.4	Quantenpunkt im magnetischen Feld	14
2.3	Optische Anregung eines Elektron-Loch-Paares	15
2.3.1	Elektronendynamik	16
2.3.2	Auger-Meitner-Effekt	17
2.3.3	Interner Photoeffekt	18
3	Methoden	19
3.1	Probenstruktur	21
3.2	Konfokalmikroskop	23
3.3	Messmethoden	27
3.3.1	Photolumineszenz-Spektroskopie	27
3.3.2	Resonante Fluoreszenz	27
3.3.3	Zeitaufgelöste N-Shot Messungen	28
3.3.4	Telegraphenrauschen	28
3.3.5	Interne Photoemissions-Spektroskopie (iPES)	31
4	Nicht-Strahlender Auger-Effekt im externen Magnetfeld	33
4.1	Optische Übergänge im Gleichgewicht	35
4.2	Zeitaufgelöste Messungen am Trionübergang	39
4.3	Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz der magnetfeldabhängigen Auger-Rekombination	43
4.4	Zusammenfassung	49
5	Nicht-Gleichgewichts-Tunneldynamik von einzelnen Elektronen	51
5.1	Photolumineszenz-Spektroskopie des selbstorganisierten Quantenpunktes	53

5.2	Exzitonübergang im Gleichgewicht	55
5.3	Zeitaufgelöste Messungen am Exzitonübergang	59
5.4	Trionübergang im Gleichgewicht	63
5.5	Zeitaufgelöste Messungen am Trionübergang	67
5.6	Zeitaufgelöste Trionresonanz zur Bestimmung der Dephasierungszeit	71
5.6.1	Simulation der Linienbreite des Trions in Abhängigkeit des Auger-Effektes . .	72
5.7	Tunneldynamik bei hohen positiven Spannungen	77
5.7.1	Optische Übergänge im Gleichgewicht	77
5.7.2	Zeitaufgelöste Messungen an den optischen Übergängen	78
5.8	Zusammenfassung	83
6	Zwei-Photonen Photoeffekt an einzelnen Elektronen im Quantenpunkt	85
6.1	Einfluss des resonanten Lasers auf die interne Photoemission in einem Quantenpunkt	87
6.1.1	Intensitätsabhängigkeit der internen Photoemission des resonanten Lasers . .	88
6.2	Resonante Fluoreszenz über die Phononenerzeugung in einem Quantenpunkt	91
6.2.1	Phononenassistierte Trionresonanz	91
6.2.2	Intensitätsabhängigkeit der Elektronenemissionsrate	93
6.3	Phononseitenbande der Exzitonresonanz	96
6.3.1	Intensitätsabhängigkeit der Phononseitenbande	97
6.4	Phononseitenbanden des Trions und des Exzitons im Vergleich	98
6.4.1	Exziton-Phonon-Wechselwirkung	99
6.5	Frequenzabhängige interne Photoemission an einem selbstorganisierten Quanten-	
	punkt	103
6.5.1	Frequenzabhängiger Zwei-Photon Photoeffekt	103
6.5.2	Intensitätsabhängigkeit der internen Photoemissionsrate	106
6.5.3	Intensitätsabhängigkeit der Tunnelrate in den Quantenpunkt	108
6.6	Zusammenfassung	111
7	Zusammenfassung und Ausblick	113
	Publikationsliste	117
	Literaturverzeichnis	119

Einleitung

Quantenpunkte sind atomähnliche Halbleiternanostrukturen [Bimberg01], die als vielversprechende Bausteine für die Entwicklung von Quantennetzwerken dienen [Kimble08, Michler00]. Aufgrund ihrer diskreten Zustandsdichte spielen sie eine entscheidende Rolle als Einzelphotonenemitter, das heißt, sie sind in der Lage, kontrolliert ein einzelnes Photon zu emittieren. Für die Quantenkommunikation muss die Information aber nicht nur transportiert [Lu03, Wagner19], sondern auch verstärkt [Azuma15] und als Qubit gespeichert werden können [Calarco03]. Für die Speicherung kommt zum Beispiel der Spin des Ladungsträgers im Quantenpunkt, auch als *stationärer Qubit* (quantenmechanisches Bit) bezeichnet, in Frage, da dieser sich wie ein Zwei-Zustands-Quantensystem verhält [Warburton13]. Durch die optische Anregung kann der Spinzustand anschließend ausgelesen [Berezovsky06] und manipuliert [Berezovsky08, Kim10] oder über eine Spin-Photon Interface [Javadi18] an das Photon mit langer Kohärenzlänge zum Transport [Jöns12], sogenannte *flying Qubits*, übertragen werden.

Auf der Suche nach dem perfekten Einzelphotonenemitter wurden bereits viele Festkörpermateriale gefunden [Atatüre18], die quantisierte Zustände aufweisen, etwa Defekte in zweidimensionalen Materialien [Aharonovich16], Stickstofffehlstellen (*NV-Zentren*) in Diamant [Aharonovich11] oder selbstorganisierte Quantenpunkte [Petroff01]. Letztere sind Gegenstand dieser Arbeit. Für die Anwendung als *flying Qubit* müssen neben dem Einzelphotonencharakter auch die Photonen des exzitonischen Übergangs ununterscheidbar sein [Gao12, Javadi18]. Daher ist es notwendig, Dephasierungsprozesse zu reduzieren oder ganz zu unterdrücken.

Für selbstorganisierte Quantenpunkte werden zwei Halbleitermaterialien mit stark unterschiedlichen Bandlücken schichtweise aufeinander aufgebracht, sodass sich ein attraktives Einschlusspotential für die Ladungsträger ausbildet. Aufgrund der starken räumlichen Einschränkung von wenigen Nanometern bilden sich in diesem Potential diskrete Zustände, analog zu den Energiezuständen eines Atoms, aus [Hawrylak96, Bimberg08], weshalb Quantenpunkte oft auch als *künstliche Atome* bezeichnet werden. In dieser Arbeit wird Indiumarsenid (InAs) auf Galliumarsenid (GaAs) abgeschieden. Durch die leicht unterschiedlichen Gitterkonstanten bilden sich an den Stellen der Verspannung wenige Nanometer große Inseln, die durch das epitaktische Wachstum auch in der Höhe gezielt eingeschränkt werden können [Leonard93, Moison94]. Diese InAs-Quantenpunkte können dann in eine p-i-n-Diodenstruktur eingebettet werden [Drexler94], sodass die quantisierten Zustände des Quantenpunktes mit einzelnen Elektronen beladen werden können. Die Dynamik der

im Quantenpunkt gebundenen Elektronen ist von großer Bedeutung für die Ununterscheidbarkeit der Photonen. Über die optische Anregung von Vielteilchenzuständen und deren spontan emittierten Photonen kann die Kohärenzlänge, das heißt, wie lange zwei Photonen voneinander ununterscheidbar sind, bestimmt werden [Matthiesen13]. Für InAs-Quantenpunkte wird aktuell eine Ununterscheidbarkeit von bis zu 93% erreicht [Müller14, Da Lio22].

In dieser Arbeit wird hochaufgelöst die Tunneldynamik einzelner Quantenpunkte, der Auger-Meitner-Effekt im Magnetfeld sowie der energieabhängige interne Photoeffekt an Quantenpunkten auf der Probe *BO14813* näher untersucht. Die Tunneldynamik der Elektronen aus dem schwach gekoppelten Elektronenreservoir (siehe Kapitel 5) [Luyken99, Beckel14, Kurzmann19] sorgt für die Besetzung des Quantenpunktes mit einzelnen Elektronen, sodass verschiedene Vielteilchenzustände, wie zum Beispiel das neutrale Exziton X oder das einfach-negativ geladene Trion X^- , optisch angeregt werden können. Zugleich bestimmt die Kopplung, also die Dicke der Tunnelbarriere zwischen dem Elektronenreservoir und dem Quantenpunkt, die Zeitskala, auf der ein Tunnelereignis statistisch stattfindet und somit, wie schnell ein Vielteilchenzustand nach einem Streuprozess erneut angeregt werden kann. Diese schwache Kopplung wird in dieser Arbeit für die Beobachtung der Nichtgleichgewichtsdynamik des Auger-Meitner-Effektes ausgenutzt [Kurzmann16a, Park14]. Zunächst wird die Tunneldynamik und der Einfluss der Tunnelrate auf die Intensität der Trionresonanz in einer zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenz Messung untersucht. Die präzise Bestimmung der Stark-Verschiebung erlaubt erstmals eine energetisch hochaufgelöste Messung der Tunnelraten als Funktion der angelegten Spannung.

Der nicht-strahlende Auger-Meitner-Effekt in Quantenpunkten sorgt dafür, dass beim angeregten Trionzustand die Energie, welche bei der Rekombination des Elektron-Loch-Paares frei wird, an das zweite Elektron im Quantenpunkt übertragen wird, sodass dieses den Quantenpunkt ohne die Emission eines Photons verlässt. Dadurch ist der Quantenpunkt anschließend unbesetzt und zur erneuten Anregung des Trionzustandes muss zunächst ein Elektron aus dem Elektronenreservoir in den Quantenpunkt tunneln. Dieser Effekt zerstört die Erhaltung des Elektronenspins und damit auch die Kohärenz der emittierten Photonen [Geller19]. In Kapitel 4 wird dieser Effekt in Abhängigkeit eines äußeren Magnetfeldes mit einer Feldstärke von bis zu 10 T dargestellt. Im Gegensatz zu den von Mannel et al. [Mannel23] veröffentlichten Beobachtungen, wird in dieser Arbeit die zeitliche Abhängigkeit der Auger-Rekombination im Magnetfeld über eine gepulste Zwei-Farben Anregung direkt gemessen. Die resonante Anregung beider Trionübergänge sorgt dafür, dass die zusätzlichen Übergänge die im Magnetfeld auftauchen, wie die Spin-Flip-Raman Streuung oder der Spin-Flip des Elektrons, nicht in der exponentiell abfallenden Transiente eingehen.

Ein weiterer Dephasierungsprozess ist der sogenannte interne Photoeffekt in selbstorganisierten Quantenpunkten [Lochner21b]. Dabei absorbiert das Elektron im Quantenpunkt ein Photon und streut in einen energetisch höheren Zustand weit oberhalb der Zustände des Quantenpunktes. Im Gegensatz zum Auger-Meitner-Effekt ist der interne Photoeffekt nicht an die Energie eines Vielteilchenzustandes gebunden. In Kapitel 6 wird der Einfluss der Energie des absorbierten Photons auf die statistische Rate, mit der das Elektron aus dem Quantenpunkt gelöst wird, beschrieben. Auf diese Weise liefern die Messungen Informationen über die Zustandsdichte energetisch oberhalb des Quantenpunktes. Verlässt ein Elektron den Quantenpunkt durch den internen Photoeffekt, hinterlässt es einen unbesetzten Quantenpunkt, der durch die Anregung des Exzitonzustands detektiert werden kann. Die zeitliche Abhängigkeit des Photoeffektes von der Energie der eingestrahlten Photonen wird mit Hilfe des Telegraphenrauschens [Matthiesen14, Kurzmann19, Lochner20] und der spektral hochaufgelösten internen Photoemissions-Spektroskopie (iPES) bestimmt.

Im ersten Kapitel dieser Arbeit werden die Grundlagen selbstorganisierter Quantenpunkte, ihre Herstellung und Eigenschaften sowie die drei genannten Effekte ausführlich beschrieben. Im zweiten Kapitel wird ein Überblick über das Probedesign, das konfokale Mikroskop, die verschiedenen optischen Messmethoden sowie die Datenverarbeitung gegeben. Es folgen die Ergebnisse der Mes-

sungen zum Auger-Meitner-Effekt im äußeren Magnetfeld, zur Tunneldynamik einzelner Elektronen und zum energieabhängigen internen Photoeffekt. Jedes Kapitel zeigt in einem kurzen Ausblick separat, was die nächsten Schritte sein könnten. Abschließend werden im Kapitel 7 die Ergebnisse dieser Arbeit noch einmal zusammengefasst.

Optik an selbstorganisierten Quantenpunkten

Im ersten Kapitel dieser Arbeit werden die grundlegenden Eigenschaften und das Wachstum von selbstorganisierten Quantenpunkten (engl. *self-assembled quantum dots*, *QD*) erläutert. Zunächst wird das sogenannte Stranski-Krastanow Wachstum beschrieben. Anschließend werden verschiedene Methoden zur Verbesserung der Quantenausbeute, wie der Indium-flush und das Aufbringen einer Festkörper-Immersionlinse vorgestellt. Die Einbettung der Quantenpunkte in eine p-i-n-Diodenstruktur, ermöglicht die gezielte Besetzung der diskreten Quantenpunktzustände mit Elektronen und die optische Anregung von Elektron-Loch Paaren durch Anlegen einer Spannung zwischen dem p-Gate und dem n-Rückkontakt.

Darüber hinaus wird auf die verschiedenen Vielteilchenzustände der Quantenpunkte und ihr Verhalten in elektrischen und magnetischen Feldern eingegangen. Im letzten Abschnitt der Grundlagen werden die drei Nichtgleichgewichtsdynamiken der Elektronen im Quantenpunkt; Tunneldynamik, Auger-Meitner-Effekt und interner Photoeffekt, detailliert erläutert. Diese Dynamiken sind die zentralen Themen dieser Arbeit.

2.1 Stranski-Krastanow-Wachstum

Zur Herstellung von Quantenpunkten in einer Halbleiterheterostruktur wird die Molekularstrahl-epitaxie (engl. *molecular beam epitaxy*, MBE) [Joyce85] mit einer speziellen Wachstumstechnik, dem Stranski-Krastanow-Wachstum [Stranski37], verwendet. Eine schematische Darstellung des Wachstumsprozesses ist in Abbildung 2.1.1 gezeigt.



Abbildung 2.1.1: Schematische Darstellung des Stranski-Krastanow-Wachstums für selbstorganisierte Quantenpunkte. a) Auf eine möglichst reine und glatte Galliumarsenid-Schicht (GaAs) werden b) 1.5 Monolagen Indiumarsenid (InAs) abgeschieden. Aufgrund der etwa 7% größeren Gitterkonstante von InAs gegenüber GaAs wächst die InAs-Schicht verspannt auf. c) Wird weiter InAs abgeschieden bilden sich linsenförmige Inseln aus, welche anschließend d) mit GaAs überdeckt werden.

Zunächst wird auf dem Galliumarsenid-Substrat (GaAs) eine etwa 100 nm dicke Galliumarsenid-Schicht aufgewachsen. Diese sorgt dafür, dass die Oberfläche möglichst rein und glatt ist. Darauf werden anschließend 1.5 Monolagen Indiumarsenid (InAs) abgeschieden [Leonard94], die aufgrund der etwa 7% größeren Gitterkonstante von InAs im Vergleich zu GaAs ($a_{\text{InAs}} = 6.058 \text{ \AA} \rightarrow a_{\text{GaAs}} = 5.653 \text{ \AA}$ [Ioffe]) verspannt aufwachsen. Diese ersten InAs-Schichten werden dabei als Benetzungsschicht (engl. *wetting layer*, WL) bezeichnet. Wird nun weiter InAs abgeschieden, entstehen kleine linsenförmige Inseln, die Quantenpunkte. Damit die Quantenpunkte in allen drei Raumrichtungen eingeschlossen sind, werden sie abschließend mit einer GaAs-Schicht bedeckt. In lateraler Richtung entstehen auf diese Weise runde Quantenpunkte mit einem Durchmesser von 20–30 nm [Leonard93] und einer Höhe, also in Wachstumsrichtung, von 3–5 nm [Moison94]. Abbildung 2.1.2) zeigt eine Rastertunnelmikroskopie-Aufnahme eines InAs-Quantenpunktes mit einem Durchmesser von etwa 15 nm und einer Höhe von etwa 3 nm [Márquez01].

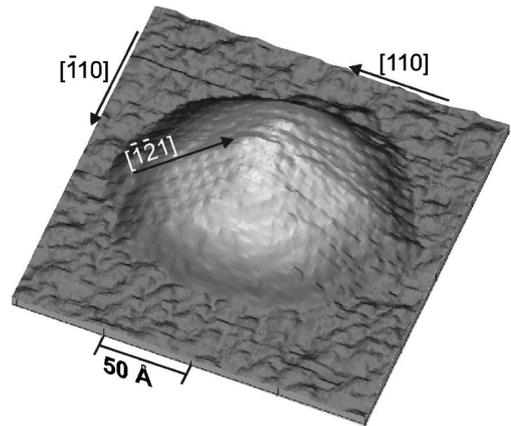


Abbildung 2.1.2: Rastertunnelmikroskopie-Aufnahme (STM) eines InAs-Quantenpunktes mit einem Durchmesser von etwa 15 nm und einer Höhe von etwa 3 nm [Márquez01].

2.1.1 Indium-flush

Um die quantisierten Energiezustände der Quantenpunkte zu höheren Energien zu verschieben (Blauverschiebung), kann ein sogenannter *Indium-flush* [Wasilewski99] oder eine schnelle thermische Ausheilung (engl. *rapid thermal annealing*, RTA [Malik97]) durchgeführt werden. Beim Indium-flush wird die Bedeckung der Quantenpunkte mit GaAs vor der vollständigen Bedeckung kurz unterbrochen und das Substrat aufgeheizt. Dadurch wird ein Teil des Indiums an der Oberfläche desorbiert und gleichzeitig diffundiert Indium aus dem Quantenpunkt heraus und Gallium in den Quantenpunkt hinein. Anschließend wird das Wachstum von GaAs auf die Quantenpunkte fortgesetzt.

2.2 Energiestruktur der selbstorganisierten Quantenpunkte

Durch den dreidimensionalen Einschluss des Quantenpunktes kann die Energiestruktur des Leitungsbandes beziehungsweise des Valenzbandes in allen Raumrichtungen durch einen Potentialtopf beschrieben werden. In Abbildung 2.2.1a) ist der räumliche Einschluss für ein 3D-Material (engl. *bulk*), ein 2D-Material (engl. *quantum well*), ein 1D-Material (engl. *quantum wire*) und ein 0D-Material (engl. *quantum dot*) dargestellt (angelehnt an [Edvinsson18]). Daraus ergibt sich für den Quantenpunkt eine diskrete Zustandsdichte $D(E)$ (siehe Abb. 2.2.1b)), die an die eines Atoms erinnert [Borovitskaya03]. Daher werden Quantenpunkte auch als *künstliche Atome* bezeichnet. Ein Ladungsträger im Quantenpunkt kann nur eine quantisierte Energie besitzen. Befinden sich mehrere Ladungsträger im Quantenpunkt, müssen, wie beim Atom, die entsprechenden Besetzungsregeln der Energieniveaus (Pauli-Prinzip) sowie deren Wechselwirkung untereinander berücksichtigt werden.

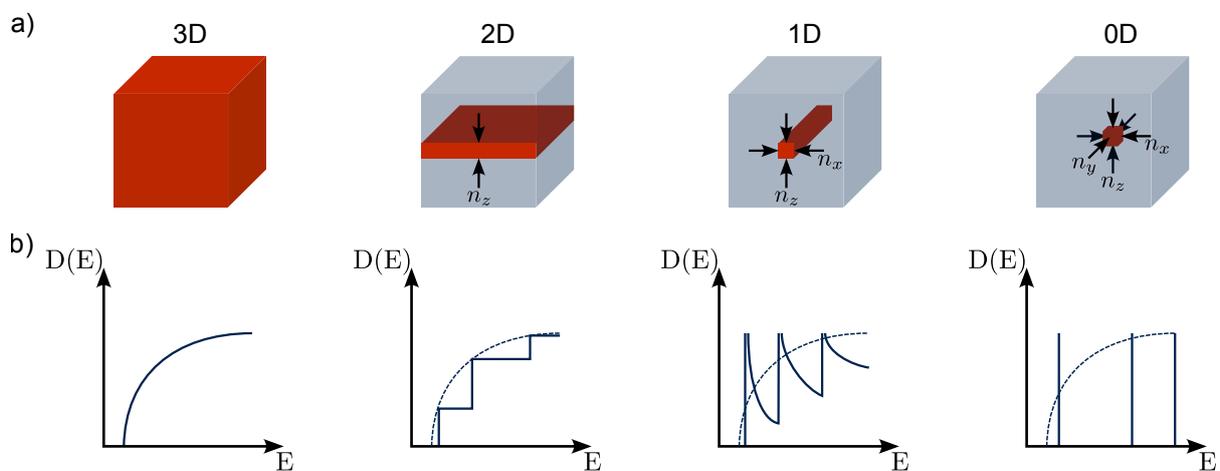


Abbildung 2.2.1: a) Schematische Darstellung des räumlichen Einschlusses für ein 3D-Material (*bulk*), ein 2D-Material (*quantum well*), ein 1D-Material (*quantum wire*) und ein 0D-Material (*quantum dot*). b) Zustandsdichte $D(E)$ als Funktion der Energie für den entsprechenden räumlichen Einschluss. Die Quantenpunkte haben eine diskrete Zustandsdichte, die der eines Atoms ähnelt (*künstliche Atome*). Angelehnt an [Edvinsson18]

Da in der Halbleiterheterostruktur InAs eine deutlich kleinere Bandlücke besitzt als GaAs ($E_g(\text{InAs}) = 0.42 \text{ eV}$ und $E_g(\text{GaAs}) = 1.52 \text{ eV}$ [Kittel13]) bilden sich im Quantenpunkt für die Elektronen im Leitungsband Potentialtöpfe mit niedrigerer Energie bezüglich des GaAs-Leitungsbandes und für die Löcher im Valenzband Potentialtöpfe mit höherer Energie bezüglich des GaAs-Valenzbandes aus (siehe Abb. 2.2.2a)). Die Form des Quantenpunktes und die Verteilung des Indiums im Quantenpunkt (siehe Indium-flush und schnelles thermisches Ausheilen in Abschnitt 2.1.1) bestimmen das Einschlusspotential in die verschiedenen Raumrichtungen (siehe Abb. 2.2.2). Aufgrund der sehr unterschiedlichen Ausdehnung des Quantenpunktes in Wachstumsrichtung z und in der x - y -Ebene (senkrecht zur Wachstumsrichtung) lassen sich die Potentiale in $V(z)$ und $V(x, y)$ zerlegen [Hawrylak96]. Da die Ausdehnung in der Wachstumsrichtung, das heißt die Höhe des Quantenpunktes, nur wenige Nanometer groß ist und der Übergang zwischen GaAs und InAs scharf ist, kann das Einschlusspotential $V(z)$ als Rechteckpotential beschrieben werden (siehe Abb. 2.2.2a)). Außerdem liegt bei niedrigen Temperaturen, aufgrund des starken Einschlusses, nur der Grundzustand im Quantenpunkt vor [Bimberg08].

In der x - y -Ebene (senkrecht zur Wachstumsrichtung) ist der Quantenpunkt einige Nanometer ausgedehnt (siehe Abb. 2.1.2) und leicht asymmetrisch (siehe Abschnitt 2.2.2), sodass das Potential $V(x, y)$ mit einem vereinfachten Modell als zweidimensionaler harmonischer Oszillator beschrieben werden kann (siehe Abb. 2.2.2b)) [Warburton98]. Dabei entspricht dies einem parabolischen Einschlusspotential der Form:

$$V(x, y) = \frac{1}{2}m^*\omega_0^2(x^2 + y^2), \quad (2.2.1)$$

mit der effektiven Masse m^* und der Eigenfrequenz ω_0 . Durch den schwächeren Einschluss liegen in dieser Ebene auch Zustände oberhalb des Grundzustandes, zum Beispiel die p - und d -Niveaus, innerhalb des Quantenpunktes. Für die genaue Beschreibung des Potential kann die 8-Band-k-p-Theorie [Stier99] oder die Pseudopotential-Methode [Bester03] verwendet werden. Durch die Lösung der Schrödingergleichung ergeben sich die folgenden Energieniveaus [Fock28]:

$$E_{n_x, n_y} = \hbar\omega_0(n_x + n_y + 1), \quad \text{mit } n_x, n_y \in \mathbb{N}_0, \quad (2.2.2)$$

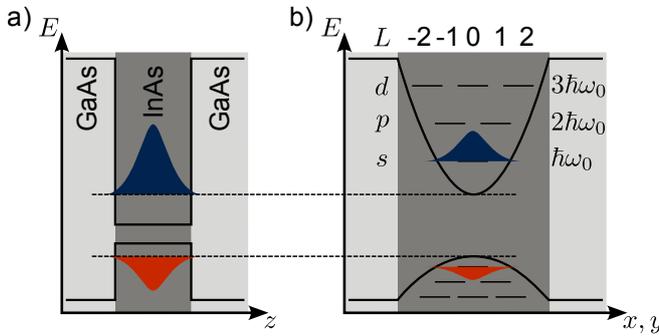


Abbildung 2.2.2: Einschlusspotential des Quantenpunkts a) in Wachstumsrichtung $V(z)$ und b) in lateraler Richtung $V(x, y)$. In Wachstumsrichtung z ergibt sich durch den starken Einschluss ein Rechteckpotential indem sich nur der Grundzustand befindet. In lateraler Richtung x, y ergibt sich ein parabolisches Einschlusspotential mit Energieniveaus äquivalent zum Atom. Angelehnt an [Kurzmann17, Kerski23a]

mit den Quantenzahlen n_x bzw. n_y für die beiden Dimensionen. Alternativ lässt sich die Hauptquantenzahl N für den zweidimensionalen Oszillator auch über $N = n_x + n_y$ und die Drehimpulsquantenzahl $L = n_x - n_y$ beschreiben. Der Grundzustand mit der Energie $E = \hbar\omega_0$ hat die Quantenzahlen $N = 0$ und $L = 0$ und ist aufgrund der magnetischen Spinaufspaltung zweifach entartet. Der nächst höhere Zustand mit der Energie $E = 2\hbar\omega_0$ hat die Quantenzahlen $N = 1$ und $L = \pm 1$ und ist vierfach spinentartet. Der dritte Zustand mit der Energie $E = 3\hbar\omega_0$ hat die Quantenzahlen $N = 2$ und $L = 0, \pm 2$ und ist sechsfach spinentartet. Analog zur Atomphysik werden diese als s -, p - und d -Zustände bezeichnet (siehe Abb. 2.2.2b)) [Riel08].

Zusätzlich zu den Elektronen im Leitungsband müssen auch die Löcher im Valenzband betrachtet werden. Im Gegensatz zu dem Leitungsband, welches s -artig ist, geht das Valenzband aus den atomaren p -Zuständen hervor, sodass es am Γ -Punkt mehrere mögliche Zustände gibt. Die Zustände mit der Gesamtdrehimpulskonfiguration $|\vec{j}| = l + s = 3/2$, mit dem Bahnquantenzahl l und dem Spinquantenzahl s , sind vierfach entartet. Diese teilen sich in die schweren Löcher mit der z -Komponente des Gesamtdrehimpulses $\vec{j}_z = \pm 3/2$ und die leichten Löcher mit $\vec{j}_z = \pm 1/2$ auf [Schubert06]. Die Entartung zwischen den schweren- und den leichten Löchern ist aufgrund der Gitterverspannung der Quantenpunkte aufgehoben, sodass hauptsächlich die Zustände der schweren Löcher beitragen und die leichten Löcher vernachlässigt werden können [Adler96, Bayer02]. Bester et al. [Bester03] zeigen jedoch mit einer ausführlichen Rechnung über die Pseudopotential-Methode, dass die Lochzustände sich aus der Mischung aller Lochzustände ergibt, sodass auch eigentlich optisch verbotene Übergänge, wie zum Beispiel bei der Spin-Flip-Raman-Streuung (siehe Abschnitt 4.3), möglich sind.

Zusätzlich gibt es durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung weitere Lochzustände, die sogenannten

split-off Löcher, welche um die Energie E_{so} nach unten verschoben sind. Diese haben den Gesamtdrehimpuls $|\vec{j}| = l - s = 1/2$ mit der z-Komponente $\vec{j}_z = \pm 1/2$ [Schubert06]. Durch die niedrigere Energie können diese ebenfalls vernachlässigt werden.

2.2.1 Vielteilchenzustände im Quantenpunkt

Bei der Anregung eines Elektrons vom Valenzband ins Leitungsband, zum Beispiel durch eine optische Anregung, hinterlässt dieses ein Loch, welches über die Coulomb-Wechselwirkung an das Elektron gebunden ist. Dieses Elektron-Loch-Paar wird auch als Exziton bezeichnet, wobei sich die Gesamtenergie E des Vielteilchenzustandes als die Summe der Einteilchenenergien E_i und der Wechselwirkung im Einteilchenbild beschreiben lässt [Warburton98]:

$$E = \sum_i^N E_i + \frac{1}{2} \sum_{i,j \neq j}^N (E_{ij}^c - E_{ij}^x). \quad (2.2.3)$$

Hierbei ist

$$E_{ij}^c = \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \int \int \frac{|\psi_i(\vec{r}_1)|^2 |\psi_j(\vec{r}_2)|^2}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2, \quad (2.2.4)$$

der direkte Austauschterm, mit der Ladung q , den Wellenfunktionen $\psi_i(\vec{r}_1)$ und $\psi_j(\vec{r}_2)$ und dem Abstand zwischen den Ladungsträgern $|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|$ und

$$E_{ij}^x = \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \int \int \frac{\psi_i^*(\vec{r}_1) \psi_j^*(\vec{r}_2) \psi_i(\vec{r}_1) \psi_j(\vec{r}_2)}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} d\vec{r}_1 d\vec{r}_2, \quad (2.2.5)$$

der indirekten Austauschterm für die Coulomb-Wechselwirkung. Für die Energie der Rekombination eines neutralen Exzitons im Quantenpunkt ergibt sich schließlich:

$$E_X = E_e + E_h - E_{eh}^c, \quad (2.2.6)$$

wobei die Energie des Exzitons aufgrund der attraktive Coulomb-Wechselwirkungsenergie E_{eh}^c kleiner ist, als die Energie eines ungebundenen Elektrons und Lochs [Dalgarno08].

Wie in Abbildung 2.2.3 gezeigt, können neben dem neutralen Exziton X auch weitere Vielteilchenzustände im Quantenpunkt vorliegen. Das einfach-negativ geladene Exziton, das heißt zwei Elektronen und ein Loch im Quantenpunkt, wird Trion X^- genannt und besitzt die Energie:

$$E_{X^-} = 2E_e + E_h - 2E_{eh}^c + E_{ee}^c, \quad (2.2.7)$$

mit der Coulomb-Wechselwirkungsenergie E_{ee}^c zwischen den beiden Elektronen. Das Biexziton XX besteht aus zwei Elektronen und zwei Löchern im Quantenpunkt. Im Gegensatz zu den zuvor genannten Vielteilchenzuständen werden zur Erzeugung dieses Exziton-Paares zwei Photonen benötigt und bei der Rekombination auch nacheinander zwei Photonen emittiert [Stevenson06].

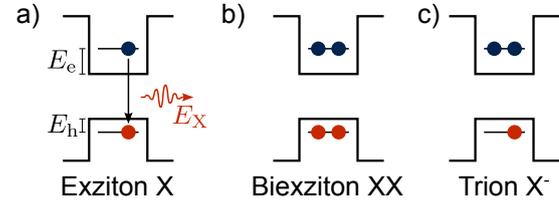


Abbildung 2.2.3: Vielteilchenzustände im Quantenpunkt. a) das neutrale Exziton X besteht aus einem Elektron und einem Loch, b) das Biexziton XX aus zwei Elektronen und zwei Löchern und c) das einfach-negativ geladene Trion X^- aus zwei Exzitonen und einem Loch. Bei der Rekombination des Exzitons X wird ein Photon mit der Energie E_X emittiert, welche sich aus der Quantisierungsenergie des Elektrons E_e und des Loches E_h sowie der Coulomb-Wechselwirkungsenergie E_{eh}^c zusammensetzt.

2.2.2 Feinstrukturaufspaltung

Für das neutrale Exziton X mit einem zweifach entarteten s -artigen Elektron $\vec{s}_z = \pm 1/2$ und einem zweifach entarteten p -artigen schweren Loch $\vec{s}_z = \pm 3/2$ ergeben sich vier Zustände mit den Gesamtdrehimpulskonfigurationen $\vec{J}_z = \pm 1, \pm 2$ [Bayer00]. Da der Quantenpunkt nach der Rekombination des Exzitons unbesetzt ist und somit keinen Gesamtdrehimpuls besitzt, sind die Zustände mit einem Gesamtdrehimpuls von $\vec{J}_z = \pm 2$ Dipol-verboden und werden als dunkle Exzitonen (engl. *dark excitons*) bezeichnet. Die beiden anderen Zustände mit $\vec{J}_z = \pm 1$ sind Dipol-erlaubt und werden als helle Exzitonen (engl. *bright excitons*) bezeichnet. Aus der Hamilton-Matrix der Elektron-Loch-Austauschwechselwirkung folgt, dass sich dunkle und helle Exzitonen nicht vermischen und sich in der Elektron-Loch-Austauschenergie unterscheiden. Damit ist die Entartung aufgehoben [Bayer02].

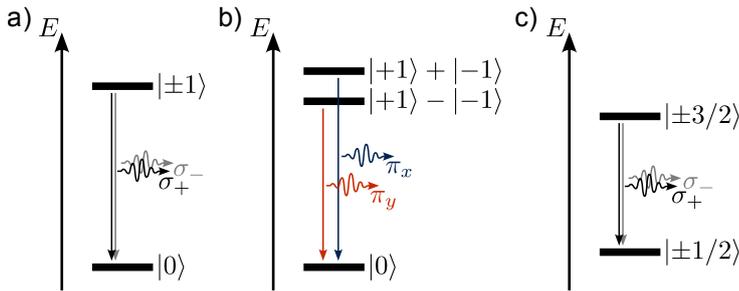


Abbildung 2.2.4: a) Für einen rotationssymmetrischen Quantenpunkt sind die beiden hellen Exzitonen X entartet und rekombinieren unter der Emission von rechts beziehungsweise links zirkular polarisierten Photonen (σ_+ bzw. σ_-). b) Aufgrund der Brechung der Rotationssymmetrie ist die Entartung der beiden hellen Exzitonen aufgehoben und es ergeben sich die beiden Zustände aus den Linearkombinationen $|1\rangle + |-1\rangle$ und $|1\rangle - |-1\rangle$, welche senkrecht zueinander polarisiert sind ($\pi_x \perp \pi_y$). c) Das einfach-negativ geladene Trion X^- besitzt keine Feinstrukturaufspaltung, weshalb auch für elliptische Quantenpunkte die Rekombination unter der Emission von rechts beziehungsweise links zirkular polarisierten Photonen stattfindet. Angelehnt an [Kerski23a]

Aufgrund der Brechung der Rotationssymmetrie der Quantenpunkte, welche durch das anisotrope Wachstum zustande kommt, ist auch die Entartung der hellen Exzitonen aufgehoben (siehe Abb. 2.2.4). Dadurch treten bei der Austauschwechselwirkung weitere Beiträge auf, was zu einer Mischung der beiden Zustände $\vec{J}_z = 1$ und $\vec{J}_z = -1$ führt. Die zuvor bei der Rekombination emittierten links beziehungsweise rechts zirkular polarisierten Photonen (σ_+ bzw. σ_- , siehe Abb. 2.2.4a)), sind durch die Mischung der Zustände nun linear polarisiert. Es ergeben sich die Linearkombinationen $|1\rangle + |-1\rangle$ und $|1\rangle - |-1\rangle$, welche senkrecht zueinander polarisiert sind ($\pi_x \perp \pi_y$, siehe Abb. 2.2.4b)) [Högele04, Kurzmänn17].

Das einfach-negativ geladene Trion X^- besitzt im Gegensatz zum Exziton X auch für einen rotationssymmetrischen Quantenpunkt keine Feinstrukturaufspaltung. Dies liegt daran, dass das s -Niveau im Leitungsband mit zwei Elektronen mit entgegengesetztem Spin vollständig besetzt ist und somit der Gesamtdrehimpuls ausschließlich durch das Loch mit $|\pm 3/2\rangle$ gegeben ist [Bayer02, Högele04]. Die beiden optisch-aktiven Zustände sind energetisch entartet, da es keinen zusätzlichen Energiebeitrag durch die Austauschwechselwirkung gibt. Bei der Rekombination werden rechts beziehungsweise links zirkular polarisierte Photonen (σ_+ bzw. σ_-) emittiert. In einem Magnetfeld kann diese Entartung der Trionzustände, aufgrund des Zeeman-Effektes (siehe Abschnitt 2.2.4), aufgehoben werden.

2.2.3 Quantenpunkt im elektrischen Feld

Die selbstorganisierten InAs-Quantenpunkte werden üblicherweise in eine Halbleiterheterostruktur eingebettet, die eine Diodenstruktur bildet [Drexler94]. Im Abschnitt 3.1 wird das genaue Wachstumsschema einer solchen p-i-n-Diode beschrieben. Um die Quantenpunkte in dieser Diodenstruktur elektrisch ansprechen zu können, wird jeweils ein elektrischer Kontakt unterhalb und oberhalb der

Quantenpunkte aufgebracht. Der Kontakt unterhalb der Quantenpunkte wird als Rückkontakt bezeichnet und besteht aus einer mit Silizium dotierten GaAs-Schicht (n-Dotierung). Zusätzlich wird zwischen dem Rückkontakt und den Quantenpunkten eine Tunnelbarriere aus GaAs und AlGaAs aufgebracht. Dadurch bildet sich im Leitungsband des Rückkontakts ein Elektronenreservoir, das je nach Dicke der Tunnelbarriere, die Kopplungsstärke an die Quantenpunkte definiert [Rochette19]. Der Kontakt oberhalb der Quantenpunkte wird Gate genannt und besteht aus einer mit Kohlenstoff dotierten GaAs-Schicht (p-Dotierung). Die Bandstruktur zwischen dem Gate und dem Rückkontakt ist aufgrund der eingebauten Spannung V_S (engl. *build-in voltage*), vergleichbar mit der Schottky-Spannung in einer Schottky-Diode [Schottky39], verkippt (siehe Abb. 3.1.1b)) [Warburton98, Sze07]. In Abbildung 2.2.5 ist die Verkipfung der Bandstruktur in Abhängigkeit der angelegten Gate-Spannung V_g schematisch dargestellt. Die Änderung der Energie ΔE durch das elektrische Feld am Quantenpunkt ist gegeben durch:

$$\Delta E = \frac{e(V_S + V_g)}{h}, \quad (2.2.8)$$

wobei e die Elementarladung und h der geometrische Hebelarm ist, das heißt das Verhältnis aus dem Abstand zwischen Gate und Rückkontakt d_g und dem Abstand zwischen Quantenpunkt und Rückkontakt d_{QD} [Drexler94, Medeiros-Ribeiro95]. Aus Abbildung 3.1.1b) berechnet sich der Hebelarm zu $h = 15.2$ mit den Abständen zur Probenoberfläche $z_g = 90$ nm, $z_{QD} = 586$ nm und $z_{rk} = 621$ nm.

In einem elektrischen Feld verkippen die Potentiale in entgegengesetzter Richtung, wodurch auch die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der Ladungsträger verschoben (siehe Abb. 2.2.6b)). Diese räumlich Trennung der Ladungsträger führt zur Bildung eines statischen Dipolmoments [Grundmann95]. Das daraus induzierte Dipolmoment \vec{p} hängt von der Stärke des elektrischen Feldes und von der Polarisierbarkeit β ab. Der sogenannte Stark-Effekt (engl. *quantum confined Stark effect, QCSE*) beschreibt dabei die Wechselwirkung zwischen dem Dipolmoment und dem angelegten elektrischen Feld F [Li00] und reduziert die Übergangsenergie des Vielteilchenzustandes. Es resultiert die feldabhängige Übergangsenergie des Vielteilchenzustandes (siehe auch Abb. 2.2.6) [Fry00, Warburton02]:

$$E(F) = E_0 - |\vec{p}|F + \beta F^2, \quad (2.2.9)$$

mit der Übergangsenergie E_0 ohne ein elektrisches Feld ($F = 0$).

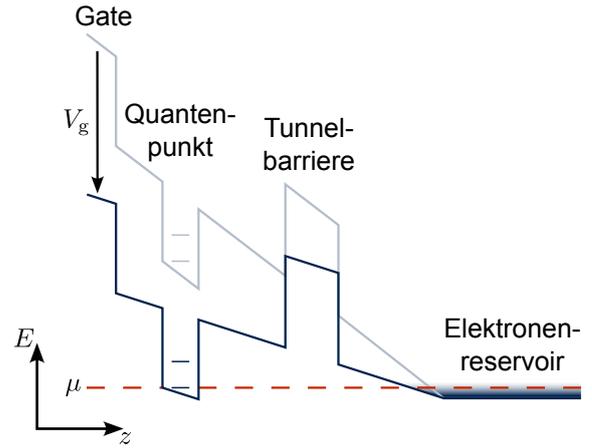


Abbildung 2.2.5: Schematische Darstellung des Leitungsbandes der p-i-n-Diodenstruktur. Die Quantenpunkte sind durch eine 45 nm dicke Tunnelbarriere vom Elektronenreservoir getrennt. Durch anlegen einer Spannung V_g können die Zustände des Quantenpunktes in Resonanz mit dem chemischen Potential des Elektronenreservoirs gebracht werden (siehe Abb. 2.3.1). Angelehnt an [Lochner21a]

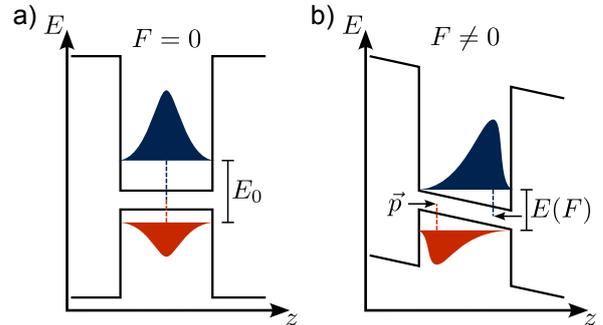


Abbildung 2.2.6: Potentialtopf des Quantenpunktes in Wachstumsrichtung z mit der Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Ladungsträger (blaue und rote Verteilungen), a) im Zentrum des Zustandes ohne elektrisches Feld ($F = 0$) und b) nach außen verschoben mit elektrischem Feld ($F > 0$). Angelehnt an [Kurzmann17]

2.2.4 Quantenpunkt im magnetischen Feld

Wie bereits kurz erwähnt lassen sich durch ein äußeres Magnetfeld weitere Entartungen der Zustände aufheben. In dieser Arbeit wurde eine supraleitende Spule zur Erzeugung eines Magnetfeldes parallel zur Richtung des einfallenden Lichts (Faraday-Geometrie) verwendet. Die Zeeman-Aufspaltung, also die Wechselwirkung zwischen den magnetischen Momenten der Elektronen und dem Magnetfeld, führt zu einer Aufspaltung der Spinzustände [Zeeman97]. Für die Zeeman-Aufspaltung ergibt sich die Energie des Vielteilchenzustandes im Magnetfeld zu [Kuther98]:

$$E(B) = E_0 \pm \frac{1}{2} \mu_B g^* B, \quad (2.2.10)$$

mit der Energie ohne äußeres Magnetfeld E_0 dem Bohrschen Magneton μ_B und dem Landé-Faktor g^* für den jeweiligen Vielteilchenzustand ($g_X^* = 1.8$, $g_{X^-}^* = 1.65$) [Högele04, Tischler02].

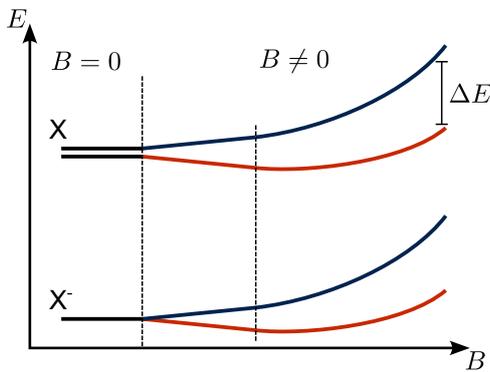


Abbildung 2.2.7: Schematische Darstellung der Zeeman-Aufspaltung und der diamagnetischen Verschiebung für die Exzitonenzustände X und die Trionzustände X^- in Abhängigkeit des äußeren Magnetfeldes, welches parallel zur Richtung des einfallenden Lichts (Faraday-Geometrie) angelegt wird. Angelehnt an [Högele04, Schulhauser03]

Außerdem tritt bei hohen Magnetfeldern eine diamagnetische Verschiebung auf, die auch als quadratischer Zeeman-Effekt bezeichnet wird [Segrè34, Jenkins39]. In der Atomphysik wird dieser Effekt durch die Erzeugung eines zusätzlichen magnetischen Moments in den Elektronenzuständen erklärt, das dann mit dem äußeren Magnetfeld wechselwirkt. Die magnetfeldabhängige Energie der Vielteilchenzustände folgt der quadratischen Gleichung [Sugisaki98]:

$$E(B) = E_0 \pm \frac{1}{2} \mu_B g^* B + \alpha B^2, \quad (2.2.11)$$

wobei α der diamagnetische Koeffizient ist. In Abbildung 2.2.7 ist schematisch die Aufspaltung der Zustände für das Exziton X und das Trion X^- in Anlehnung an die experimentellen Ergebnisse von Högele et. al [Högele04] und Schulhauser et. al [Schulhauser03] dargestellt. Aufgrund der sehr ähnlichen Landé-Faktoren, unterscheidet sich die Energiedifferenz ΔE für die Trionzustände und die Exzitonenzustände nicht (siehe auch Photolumineszenz-Messung in Abschnitt 4.3).

2.3 Optische Anregung eines Elektron-Loch-Paares

Für die optische Detektion der Vielteilchenzustände gibt es verschiedene etablierte Methoden, wie zum Beispiel die Photolumineszenz-Spektroskopie [Warburton00] oder die resonante Fluoreszenz [Muller07] (siehe Kapitel 3). Die Energie der jeweiligen optischen Übergänge ist abhängig vom Materialsystem und der Dimensionierung des Quantenpunktes. Jeder Quantenpunkt besitzt somit einen individuellen *Fingerabdruck*, bestehend aus den energetischen Positionen der optischen Übergänge. Für die resonante Anregung muss der Quantenpunkt jedoch, je nach Vielteilchenzustand, zunächst mit Elektronen besetzt werden. Durch Anlegen einer Gatespannung V_g werden die Zustände des Quantenpunktes in Resonanz mit dem Elektronenreservoir gebracht (siehe Abb. 2.2.5 und Abb. 2.3.1). Abhängig von dieser Spannung können dann Elektronen aus dem Elektronenreservoir in den Quantenpunkt oder aus dem Quantenpunkt zurück in das Reservoir tunneln. Die genaue Elektronendynamik ist im Abschnitt 2.3.1 beschrieben.

Nach der Erzeugung eines Elektron-Loch-Paares, unter Absorption eines Photons, kann dieses unter spontaner Emission eines Photons rekombinieren. Im Falle eines starken Feldes in einem Zwei-Niveau-System oszilliert die Besetzungswahrscheinlichkeit zwischen den beiden Zuständen mit der sogenannten Rabi-Frequenz Ω_R [Stievater01, Zrenner02], welche sich aus der Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung ergibt [Fox06, Kapitel 9.3]. Diese Rabi-Oszillation wird jedoch durch Dämpfungsmechanismen gestört. Die Zeitkonstante T_2 , auch Dephasierungszeit genannt, die die Dämpfung der Rabi-Oszillation beschreibt, setzt sich aus der spontanen Lebensdauer T_1 des angeregten Zustandes und der reinen Dephasierungszeit T_2^* wie folgt zusammen [Fox06]:

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2^*}. \quad (2.3.1)$$

Die T_2^* -Zeit wird hauptsächlich durch Ladungsfluktuationen in der Umgebung des Quantenpunktes beeinflusst. Diese Ladungen verschieben die Resonanzfrequenz des Übergangs über den Stark-Effekt, sodass der Zustand nicht mehr mit der ursprünglichen Laserfrequenz getrieben werden kann. Dieser Effekt ist besonders in Proben mit hoher Defektdichte zu beobachten [Wüst16]. Ein weiterer Einfluss auf die T_2^* -Zeit sind Spinfluktuationen, die durch die Wechselwirkung des Hyperfeinfeldes (Overhauser-Feld) der Kernspins und der Elektronen im Quantenpunkt entstehen [Kuhlmann13]. Beide Effekte verbreitern die Emissionslinie der Elektron-Loch-Rekombination. Die in dieser Arbeit verwendete Probenstruktur wurde jedoch darauf optimiert diese beiden Fluktuationen zu reduzieren [Ludwig17], sodass die reine Dephasierungszeit im Folgenden vernachlässigt werden kann. Da die Schrödinger-Gleichung nur reine Zustände beschreiben kann, kann sie das Zwei-Niveau-System mit der Dämpfung nicht beschreiben. Daher ist ein besserer Ansatz die Lösung der Dichtematrix ρ [Fox06, Kapitel 9.2.3], da diese auch die inkohärente Überlagerung der beiden Zustände beschreiben kann. Die resultierende Besetzungswahrscheinlichkeit des angeregten Vielteilchenzustandes in Abhängigkeit von der Anregungsintensität ist im Abschnitt 4.1 ausführlich beschrieben.

Die Breite der Emissionslinie wird noch durch weitere Prozesse beeinflusst. Beim neutralen Exziton X stört zum Beispiel der Einfang von Elektronen aus dem Reservoir im Quantenpunkt (*Elektroneneinfang* [Kurzmann16b]) die Oszillation und sorgt so für eine Verbreiterung der Emissionslinie. Diese Störung ist abhängig von der Anregungsintensität des Lasers und kann somit bei niedrigen Intensitäten vernachlässigt werden.

Beim einfach-geladenen Trion X^- gibt es gleich mehrere Prozesse, die die Emissionslinie verbreitern. Zum einen kann die Energie, die bei der Rekombination des Elektron-Loch-Paares frei wird, an das zweite Elektron abgegeben werden (*Auger-Meitner-Effekt* [Meitner22, Kurzmann16a], siehe Abschnitt 2.3.2). Dadurch verlässt dieses Elektron den Quantenpunkt und es findet eine nicht-strahlende Rekombination statt. Somit ist der Quantenpunkt nach diesem Effekt unbesetzt, sodass für eine weitere Anregung des Trionzustandes zunächst eine Elektron aus dem Elektronenreservoir

in den Quantenpunkt tunneln muss. Zum anderen kann bei hohen Anregungsintensitäten das einzelne Elektron ein Photon absorbieren und mit der gewonnenen Energie ebenfalls den Quantenpunkt verlassen (*interner Photoeffekt* [Lochner21b]). Auch in diesem Fall muss für die Rabi-Oszillation des Trionüberganges zunächst ein weiteres Elektron aus dem Elektronenreservoir in den Quantenpunkt tunneln. Da diese beiden Effekte in dieser Arbeit näher untersucht wurden, werden sie in den folgenden Abschnitten ausführlich beschrieben.

2.3.1 Elektronendynamik

Durch Anlegen einer Spannung V_g zwischen Gate- und Rückkontakt wird die Bandstruktur energetisch verkippt (siehe Abb. 2.2.5). Dabei ist das Elektronenreservoir der feste Kippunkt, sodass die Zustände im Leitungsband des Quantenpunktes beim Anlegen einer positiven Spannung näher an die Fermi-Energie des Elektronenreservoirs gekippt werden.

Ohne angelegte Spannung liegt der Grundzustand des ersten Elektrons, das den Quantenpunkt besetzt (s_1 -Zustand), oberhalb der Fermi-Energie des Elektronenreservoirs, sodass die Wahrscheinlichkeit für einen Tunnelprozess vom Elektronenreservoir in den Quantenpunkt γ_{in} sehr gering ist. Der Tunnelprozess in die entgegengesetzte Richtung γ_{out} ist dagegen sehr wahrscheinlich [Luyken99]. Daher ist der Quantenpunkt fast immer unbesetzt (siehe Abb. 2.3.1a)).

Wird nun eine Gatespannung V_g angelegt kann der s_1 -Zustand des Quantenpunktes energetisch so verschoben werden, dass er mit der Fermi-Energie des Rückkontakts in Resonanz ist. Da die Fermi-Verteilung [Dirac26] durch die Temperatur von etwa 4.2 K verschmiert ist, gibt es keine diskrete Gatespannung, bei der der Quantenpunkt von einem Elektron besetzt ist. Stattdessen ist hier das Tunneln in den Quantenpunkt γ_{in} und das Tunneln aus dem Quantenpunkt γ_{out} gleich wahrscheinlich (siehe Abb. 2.3.1b)). Der Quantenpunkt ist also die Hälfte der Zeit mit einem Elektron im s_1 -Zustand besetzt.

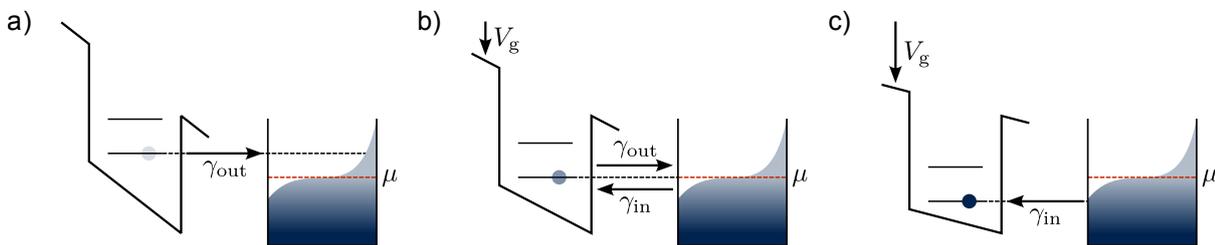


Abbildung 2.3.1: Verschiebung der s -Zustände des Quantenpunktes gegen die Fermi-Verteilung des Rückkontaktes durch anlegen der Gatespannung V_g . a) Die s -Zustände des Quantenpunktes sind nicht in Resonanz mit der Fermi-Verteilung des Rückkontaktes, daher kann ein Elektron zwar aus dem Quantenpunkt in das Elektronenreservoir tunneln, jedoch nicht andersherum. Der Quantenpunkt ist folglich unbesetzt. b) Durch Anlegen einer größeren Gatespannung V_g lässt sich der s_1 -Zustand des Quantenpunktes energetisch so verschieben, dass er in Resonanz mit dem chemischen Potential μ des Rückkontaktes ist. Hier sind das Tunneln in den Quantenpunkt γ_{in} und das Tunneln aus dem Quantenpunkt heraus γ_{out} gleich wahrscheinlich. c) Mit zunehmender Gatespannung steigt die Besetzungswahrscheinlichkeit der Quantenpunktzustände, sodass dieser nahezu immer mit einem Elektron besetzt ist.

Mit zunehmender Gatespannung steigt die Besetzungswahrscheinlichkeit des s_1 -Zustandes des Quantenpunktes, sodass dieser fast immer mit einem Elektron besetzt ist (siehe Abb. 2.3.1c)). Diese elektrische Steuerung ermöglicht eine präzise Ladung des Quantenpunktes und damit die optische Anregung von Elektron-Loch-Paaren, die auf eine dritte Ladung angewiesen sind, wie zum Beispiel das einfach-negativ geladene Trion X^- .

Sofern die angelegte Gatespannung groß genug ist, kann durch die Verkipfung der Bandstruktur auch mehr als ein Elektron in den Quantenpunkt tunneln. Die Rate, mit der ein Elektron in den

Quantenpunkt tunnelt γ_{in} , hängt davon ab, ob der Quantenpunkt bereits mit einem Exziton besetzt ist oder nicht. Aufgrund der Spinentartung des s -Zustandes gibt es im unbesetzten Quantenpunkt für ein Elektron aus dem Elektronenreservoir zwei mögliche Tunnelkanäle (siehe Gl. (5.3.7)). Bei einem besetzten Quantenpunkt hingegen ist eine der beiden Spinkonfigurationen bereits blockiert und die Anzahl der möglichen Tunnelkanäle reduziert sich auf einen Kanal (siehe Gl. (5.3.6)) [Kurzmann16c].

2.3.2 Auger-Meitner-Effekt

Der Auger-Meitner-Effekt oder auch Auger-Effekt genannt [Meitner22], beschreibt in der Atomphysik den nicht-strahlende Übergang eines angeregten Elektrons in einen niedrigeren Zustand. Die freiwerdende Energie wird dabei an ein anderes Elektron desselben Atoms übertragen.

Kurzmann et al. [Kurzmann16a, Kurzmann17] konnten diesen Effekt erstmals auch in einem selbstorganisierten InAs-Quantenpunkt beobachten [Lochner20, Löbl20]. In Abbildung 2.3.2 ist schematisch der Auger-Effekt in einem einzelnen Quantenpunkt dargestellt. Zunächst muss der Quantenpunkt mit einem Elektron im s -Zustand besetzt sein. Anschließend findet die Rabi-Oszillation mit der Übergangsrate Ω_R für die resonante Anregung und die spontane Emission zwischen dem einfach-besetzten Zustand $|\uparrow\rangle$ bzw. $|\downarrow\rangle$ (spinentartet) und dem Trionzustand $|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$ bzw. $|\downarrow\uparrow\downarrow\rangle$ statt. Der Auger-Effekt sorgt nun dafür, dass diese Oszillation unterbrochen wird und die freiwerdende Energie aus der Rekombination des Elektron-Loch-Paares an das zweite Elektron im Quantenpunkt übertragen wird und dieses den Quantenpunkt verlässt. Dadurch relaxiert der Zustand ohne die Emission eines Photons (nicht-strahlend) und der Quantenpunkt ist anschließend unbesetzt.

Der Trionzustand bleibt folglich bis zum nächsten Tunneln eines Elektrons in den s -Zustand des Quantenpunktes dunkel. Bei einer starken Kopplung zwischen dem Elektronenreservoir und dem Quantenpunkt, also einer dünnen Tunnelbarriere, wird der Quantenpunkt so schnell wieder mit einem Elektron besetzt, dass der Auger-Effekt nur schwer zu beobachten ist. Dennoch trägt er zur Dephasierung des Trionzustandes bei. In dieser Arbeit wurde daher eine Probe untersucht bei der die Kopplung, aufgrund der dicken Tunnelbarriere von 45 nm, schwach ist. Die Tunnelrate in den Quantenpunkt liegt im Bereich von Millisekunden und ist damit deutlich größer als die Auger-Rate, welche üblicherweise im Bereich von Mikrosekunden liegt [Lochner21a].

In einer resonanten Fluoreszenz Messung im Gleichgewicht (Anregung mit einem Dauerstrichlaser) macht sich der Auger-Effekt nur durch die reduzierte Quantenausbeute beim Trionübergang bemerkbar. Mit Hilfe einer Zwei-Farben Anregung [Kurzmann16a] oder einer zeitaufgelösten Messung [Efros97, Lochner20, Mannel23] lässt sich der Auger-Effekt jedoch auch qualitativ untersuchen. Zur Bestimmung der Auger-Rate im Magnetfeld und abhängig von der Gatespannung wurden in dieser Arbeit daher zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz Messungen am Trionübergang durchgeführt (siehe Kapitel 4 und Kapitel 5).

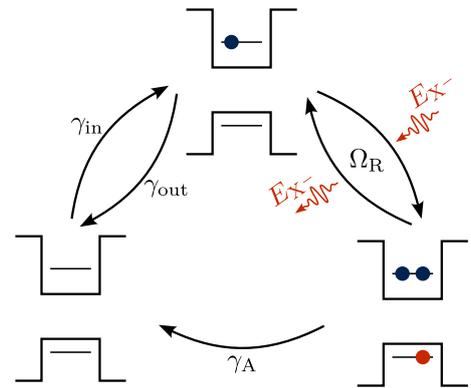


Abbildung 2.3.2: Schematische Darstellung des Auger-Effekts, bei dem die Energie, die bei der Rekombination des Elektron-Loch-Paares frei wird, an das zweite Elektron abgegeben wird. Dadurch verlässt dieses Elektron den Quantenpunkt und hinterlässt ihn anschließend unbesetzt. Der Trionübergang kann erst wieder resonant getrieben werden, wenn ein weiteres Elektron aus dem Elektronenreservoir in den Quantenpunkt getunnelt ist.

2.3.3 Interner Photoeffekt

Ein weiterer Effekt, der die Quantenausbeute beim Trionübergang reduziert ist der sogenannte interne Photoeffekt [Lochner21b]. Das Prinzip ähnelt dabei dem von Einstein [Einstein05] beschriebenen photoelektrischen Effekt. Die Energie eines absorbierten Photons wird auf einen Ladungsträger übertragen, sodass dieser den gebundenen Zustand verlässt. Voraussetzung für diesen Effekt ist, dass das Photon mindestens die Bindungsenergie des Ladungsträgers besitzt. Außerdem entspricht die Übergangsenergie zwischen dem ursprünglichen und dem angeregten Zustand des Elektrons genau der Energie des absorbierten Photons. Der interne Photoeffekt skaliert dabei linear mit der eingestrahlten Anregungsintensität [Lochner21b].

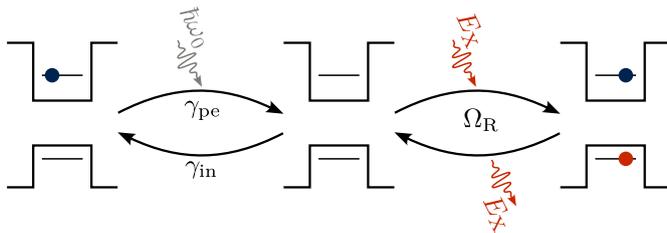


Abbildung 2.3.3: Schematische Darstellung des internen Photoeffektes, bei dem ein Photon seine Energie direkt an das Elektron im Quantenpunkt abgibt und so dieser anschließend unbesetzt ist. Solange kein Elektron aus dem Elektronenreservoir in den Quantenpunkt tunneln kann, der Exzitonübergang resonant angeregt werden. Im Gegensatz zum Auger-Effekt (siehe Abb. 2.3.2) muss die Energie des Photons nicht zwingend der des Trionüberganges entsprechen.

Für den Trionübergang im Quantenpunkt bedeutet dies, dass mit steigender Laserintensität die Wahrscheinlichkeit zunimmt, dass ein Photon vom Elektron absorbiert wird und den Quantenpunkt entlädt. Auch hier muss zunächst ein Elektron aus dem Elektronenreservoir in den Quantenpunkt tunneln, damit der Übergang wieder getrieben werden kann. Anders als beim Auger-Effekt ist, dass die Energie des Photons nicht zwingend der Energie des Trionüberganges entsprechen muss. Damit ist es möglich, die eingestrahlte Photonenenergie zu variieren und zu untersuchen, ob sich bestimmte Photonenenergien vorteilhaft auf die Photoemissionsrate auswirken.

Lochner et al. [Lochner21b] konnten zeigen, dass dieser Effekt auch in einem selbstorganisierten InAs-Quantenpunkt auftritt und linear von der Laserintensität abhängt. In dieser Arbeit wurden diese Messungen weitergeführt und die frequenzabhängige Photoemissionsrate untersucht (siehe Kapitel 6). In Abbildung 2.3.3 ist der Photoemissionsprozess am Exzitonübergang schematisch dargestellt. Ausgehend vom einfach-besetzten Quantenpunkt $|\uparrow\rangle$ bzw. $|\downarrow\rangle$ kann ein Photon mit hinreichend großer Energie diese auf das Elektron übertragen. Das Elektron verlässt daraufhin den Quantenpunkt. Werden zusätzlich Photonen mit der Resonanzfrequenz des Exzitonübergangs eingestrahlt, kann dieser nun so lange angeregt werden, bis ein Elektron aus dem Elektronenreservoir in den Quantenpunkt tunneln. Mit einer Zwei-Farben Anregung, bei der ein Laser den Exzitonübergang resonant treibt und der andere Laser in seiner Frequenz durchgestimmt wird, lässt sich dieses Schema realisieren. In Abschnitt 3.3.5 wird die verwendete Messmethode um diesen Effekt zeitlich aufgelöst zu beobachten noch einmal ausführlich beschrieben.

Methoden

Die selbstorganisierten InAs-Quantenpunkte sind in eine, für optische Messungen optimierte, Halbleiterheterostruktur eingebettet. Über ein Elektronenreservoir und ein epitaktisches Gate können die einzelnen Quantenpunkte elektrisch manipuliert werden [Drexler94, Warburton98]. Mit Hilfe der Stark-Verschiebung ermöglicht dies die gezielte optische Anregung von Vielteilchenzuständen in einem Quantenpunkt [Li00]. Für die Lokalisierung und Charakterisierung eines einzelnen Quantenpunktes ist nicht nur die Dichte der Quantenpunkte auf der Probe entscheidend, sondern auch die Kopplung der Quantenpunkte an das Lichtfeld. Außerdem spielt die Reflektivität der Probe eine entscheidende Rolle für die Einsammeleffizienz der emittierten Photonen [Ludwig17, Lochner19]. Unter Berücksichtigung dieser Optimierungsmerkmale wurde am Lehrstuhl für Angewandte Festkörperphysik von Prof. A. D. Wieck die Probenstruktur *BO14813* entwickelt und mittels der Molekularstrahlepitaxie gewachsen.

Für die optische Messung der Quantenpunkte wird ein Konfokalmikroskop verwendet, das auf einem Badkryostaten montiert ist. Das detaillierte Probendesign sowie der Messaufbau und die verschiedenen optischen Messmethoden werden im Folgenden beschrieben.

3.1 Probenstruktur

Die in dieser Arbeit untersuchten InAs-Quantenpunkte befinden sich in einer für die optische Spektroskopie optimierten Halbleiterheterostruktur, die mittels Molekularstrahlepitaxie schichtweise aufgewachsen wurde. Die elektrischen Kontakte wurden anschließend durch einen photolithographischen Prozess auf die Probenstruktur aufgebracht. Um die Einsammeleffizienz der emittierten Photonen zu verbessern, wurde im letzten Schritt eine Festkörper-Immersionlinse (engl. *solid immersion lens, SIL*) auf die Probe geklebt [Gerardot07].

In Abbildung 3.1.1a) ist die vollständige Probenstruktur der Probe *BO14813* in Wachstumsrichtung von rechts nach links dargestellt [Schott16]. Im ersten Schritt werden auf das GaAs-Substrat etwa 100 nm GaAs und ein 20-faches Übergitter mit jeweils 2.5 nm GaAs und 2 nm AlAs abgeschieden. Dies dient der Glättung der Oberfläche und zum Einfang möglicher Defekte auf dem Substrat [Petroff84]. Anschließend wird ein 16-facher Bragg-Spiegel (engl. *distributed Bragg reflector, DBR*) mit jeweils 68.6 nm GaAs und 81.45 nm AlAs aufgewachsen. Die Schichtdicken sind so gewählt, dass für die typische Wellenlänge der InAs-Quantenpunkte von 950 nm unter Berücksichtigung der Brechungsindizes von $n_{\text{GaAs}} = 3.51$ [Rakić96] und $n_{\text{AlAs}} = 2.96$ [Rakić96] die optische Weglänge 0.25λ beträgt (siehe Abb. 6.5.3). Aufgrund der größeren Brechungsindex von GaAs kommt es erst an der Grenzfläche von AlAs zu GaAs zu einem Phasensprung von 180° , sodass das reflektierte Licht konstruktiv interferiert und eine hohe Reflektivität von bis zu 83 % erreicht werden kann [Lochner19].

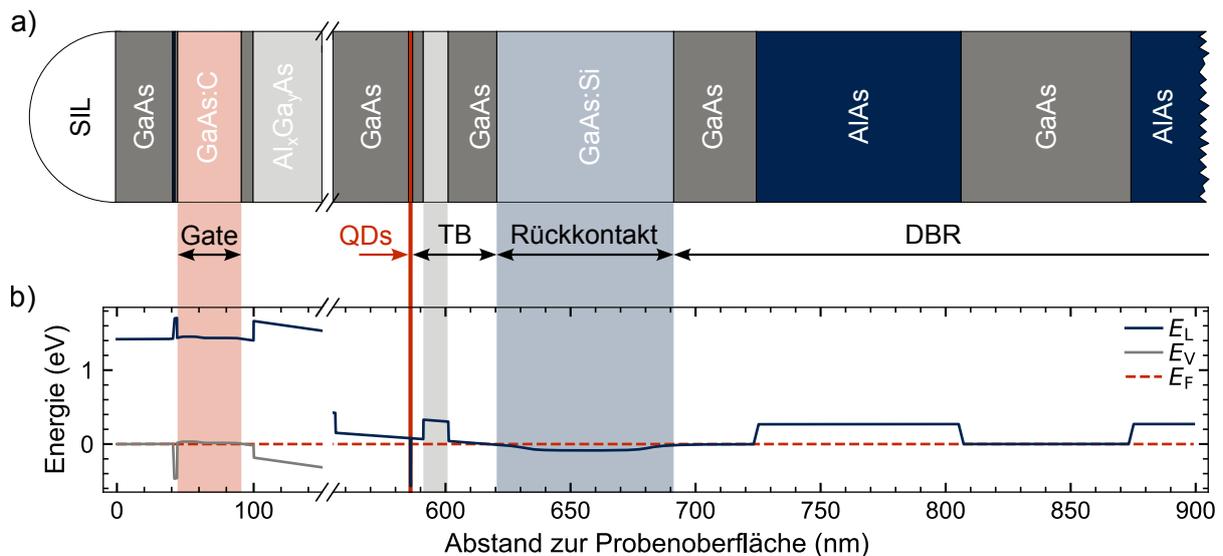


Abbildung 3.1.1: a) Schematische Darstellung der Probenstruktur *BO14813* in Wachstumsrichtung mit den InAs-Quantenpunkten (QDs), dem Bragg-Spiegel (DBR), dem mit Silizium dotierten Rückkontakt (GaAs:Si), der GaAs/AlGaAs-Tunnelbarriere (TB) und dem epitaktischen mit Kohlenstoff dotierten Gate (GaAs:C). Zur Verbesserung der Einsammeleffizienz der Photonen wird nach dem Wachstum eine Festkörper-Immersionlinse (SIL) auf die Probenoberfläche aufgebracht [Gerardot07]. b) Leitungsbandkante E_L (blaue Linie) und Valenzbandkante E_V (graue Linie) der Probenstruktur berechnet mit dem 1D-Poisson Solver Vers. 8j1 [Snider]. Angelehnt an [Lochner21a]

Bei senkrechtem Lichteinfall bildet sich im Bragg-Spiegel zusätzlich eine stehende optische Welle aus. Dazu wird der Anfang des Bragg-Spiegels mit einer 43 nm dicken GaAs-Schicht in einen Wellenbauch geschoben. Darauf folgt der Rückkontakt aus einer 50 nm dicken mit Silizium dotierten GaAs-Schicht, die durch die n-Dotierung als Elektronenreservoir für die Quantenpunkte

dient. Das Elektronenreservoir ist elektrisch von den Quantenpunkten durch eine Tunnelbarriere getrennt, die aus 30 nm GaAs, 10 nm $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$ und 5 nm GaAs besteht. Zur Kontrolle der Quantenpunktdichte wird anschließend die Substratrotation, während des Wachstums der InAs-Quantenpunktschicht, mehrfach angehalten. Aufgrund der um etwa 7% größeren Gitterkonstante von InAs gegenüber GaAs ($6.058 \text{ \AA} \rightarrow 5.653 \text{ \AA}$ [Ioffe]) wird die Quantenpunktschicht unter Spannung aufgewachsen, bis sich nach etwa 1.5 Monolagen kleine Inseln bilden (siehe Abschnitt 2.1). Um die Quantenpunkte auf die gewünschte Wellenlänge zu verschieben, wird die Schicht mit Indium geflusht (siehe Abschnitt 2.1) und anschließend mit einer 30 nm GaAs-Schicht abgedeckt. Damit kein Strom durch die Diode fließen kann, wird ein 41-faches Übergitter aus jeweils 3 nm AlAs und 1 nm GaAs aufgewachsen. Darauf wird eine 292 nm dicke $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$ -Schicht aufgewachsen, um die Quantenpunkte in einen Wellenbauch zu verschieben, sodass diese stärker an das Lichtfeld koppeln. Auf eine 10 nm dicke GaAs-Schicht folgt das epitaktische Gate, das aus einer 45 nm dicken mit Kohlenstoff dotierten GaAs-Schicht besteht. Wie beim Rückkontakt wird der Wellenknoten in die Mitte der Schicht verschoben, sodass das Lichtfeld nur schwach an die vielen freien Ladungsträger koppelt. Dies wird beim Gate durch die letzten drei Schichten aus 2 nm GaAs, 2 nm AlAs und 42 nm GaAs erreicht.

Nachdem die Probe durch die Molekularstrahlepitaxie vollständig gewachsen wurde, werden das Elektronenreservoir und das Gate durch einen photolithographischen Prozess kontaktiert. Dazu wird ein Bereich bis unterhalb des Gates und ein Bereich bis zum Gate über ein nasschemisches Verfahren weggeätzt. Für die Kontaktierung des Elektronenreservoirs werden anschließend 10 nm Ni, 60 nm Ge, 120 nm Au, 10 nm Ni und 100 nm Au aufgedampft und in die Probe einlegiert. Für die Kontaktierung des Gates werden 10 nm Au, 15 nm Cr und 200 nm Au aufgedampft. Bis hierher wurden alle Schritte am Lehrstuhl für Angewandte Festkörperphysik von Prof. A. D. Wieck in Bochum durchgeführt.

Im Reinraum der Universität Duisburg-Essen von Prof. A. Lorke wurde im letzten Schritt der Probenprozessierung eine Festkörper-Immersionlinse auf das Gate aufgebracht und die vollständige Probe auf einen Probenträger (engl. *chip carrier*) aufgeklebt und elektrisch kontaktiert (Drahtbonden).

3.2 Konfokalmikroskop

Zur Detektion der Quantenpunktphotonen wurde die im Abschnitt 3.1 gezeigte Probe *BO14813* in ein Konfokalmikroskop eingebaut, wie es in Abbildung 3.2.2 dargestellt ist. Im Gegensatz zum konventionellen Lichtmikroskop leuchtet das konfokale Mikroskop nur einen kreisförmigen Bereich mit einem Durchmesser von etwa $1\ \mu\text{m}$ aus, sodass einzelne Quantenpunkte gezielt untersucht werden können. Eine entsprechende Freistrahloptik befindet sich oberhalb eines Badkryostaten, welcher die Probe mit Hilfe von flüssigem Stickstoff (äußere Kühlschicht) und flüssigem Helium (innere Kühlschicht) auf eine Temperatur von $4.2\ \text{K}$ bringt. Die Quantenpunktprobe wird mit einem etwa $1.5\ \text{m}$ langen Probenstab, welcher mit gasförmigen Helium als Kontaktgas gefüllt ist, in den Kryostaten geführt. Die Photonen der Anregung beziehungsweise der Detektion werden mit Hilfe von Single-Mode-Fasern (engl. *single mode optical fiber, SMF*) vom Laser zur Probe beziehungsweise von der Probe zum Detektor geleitet. Die Fasern [Schäfter+Kirchhoff] haben dabei eine *cut-off* Wellenlänge von $780\ \text{nm}$.

In die Faser für die Anregung der Quantenpunkte können verschiedene Diodenlaser eingekoppelt werden: ein $785\ \text{nm}$ Laser, ein von $910\ \text{nm}$ bis $980\ \text{nm}$ durchstimmbarer Laser und ein von $1000\ \text{nm}$ bis $1080\ \text{nm}$ durchstimmbarer Laser. Über einen oder mehrere Strahlteiler und weitere verschiedene optische Komponenten (wie Spiegel, Linsen und Faserkoppler) lassen sich auch mehrere Laser gleichzeitig in die Faser einkoppeln. Bei dem sogenannten Zwei-Farben Aufbau tragen zwei Laser unterschiedlicher Wellenlänge gleichzeitig zur Anregung des Quantenpunktes bei (siehe zum Beispiel in Kapitel 4 und Kapitel 6). Die Leistung dieser Laser wird zunächst auf dem optischen Tisch mit Hilfe von je einem akusto-optischen-Modulator (engl. *acousto-optic modulator, AOM*) in 0ter Ordnung und einer Photodiode stabilisiert. Anschließend werden die beiden Strahlengänge auf einem 50:50-Strahlteiler übereinander gelegt und in die Faser für die Anregung der Quantenpunkte eingekoppelt.

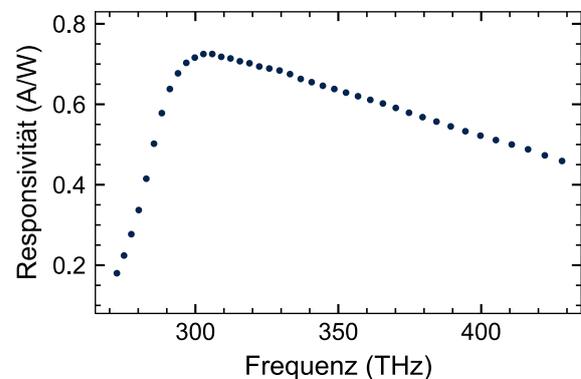


Abbildung 3.2.1: Wellenlängenabhängige Responsivität der Silizium-Photodiode, welche im Konfokalmikroskop, hinter dem 90:10-Strahlteiler, eingebaut ist. Mit Hilfe der Photodiode und einem Stromverstärker lässt sich abhängig von der Wellenlänge die Laserleistung in die an den Quantenpunkt anliegende Laserintensität nach Gleichung (3.2.1) umrechnen. (Datenblatt von [Thorlabs])

Die in Abbildung 3.2.2 dargestellte Freistrahloptik besteht im Zentrum aus einem 90:10-Strahlteiler, sodass 90% der Laserintensität transmittiert und nur 10% reflektiert wird. Der Vorteil dieser Orientierung ist, dass zwar nur 10% der Laserintensität auf die Probe fallen, dafür aber auf dem Weg von der Probe zur Detektion 90% der Photonen vom Quantenpunkt durchgelassen werden und so detektiert werden können. Bevor das Laserlicht auf die Probe fällt wird es mit einem Objektiv (Numerische Apertur, $NA = 0.68$) auf die Probenoberfläche fokussiert.

Die elektrischen Kontakte auf dem Probenhalter werden für die Ansteuerung nach oben aus dem Badkryostaten herausgeführt. Außerdem befindet sich der Probenhalter auf drei Piezomotoren, sodass die Probe auch bei tiefen Temperaturen in alle drei Raumrichtungen in μm -Schritten bewegt werden kann. Mit Hilfe von x - y - und Winkelverstellern, welche jeweils im Anregungs- und im Detektionspfad montiert sind, lassen sich die Strahlengänge parallel zueinander ausrichten. Die Laserintensität, welche an der Probe anliegt, wird über eine Silizium-Photodiode [Thorlabs] hinter dem 90:10-Strahlteiler und einem Strom-Spannung-Verstärker gemessen. Dabei geht die Responsi-

vität R (in Einheiten von (A/W)) der Photodiode wellenlängenabhängig in die Laserintensität I wie folgt ein:

$$I(\lambda) = \frac{L}{9R(\lambda)A}, \quad (3.2.1)$$

mit der Laserwellenlänge λ , der gemessenen Laserleistung L auf der Photodiode in (A) und der Querschnittsfläche A des Lasers. Die Querschnittsfläche ergibt sich aus dem aufbauspezifischen Radius r mit $0.5 \mu\text{m}$. In Abbildung 3.2.1 ist die vom Hersteller angegebene Responsivität abhängig von der Wellenlänge dargestellt.

Durch die Anregung der Vielteilchenzustände des Quantenpunktes (siehe Abschnitt 2.3) werden Photonen senkrecht zur Probenoberfläche emittiert. Diese werden von der Festkörper-Immersionslinse und dem Objektiv eingesammelt, parallelisiert und am oberen Ende der Freistrahloptik in eine Faser eingekoppelt. Zur Detektion stehen anschließend mehrere Möglichkeiten zur Auswahl. In dieser Arbeit werden die Photonen mit drei verschiedenen Detektoren gemessen. Für die spektral aufgelösten Messungen (siehe z.B. in Abschnitt 5.1) wird eine Spektrometer mit einem aus Silizium bestehenden ladungsgekoppelten Sensor (engl. *charge-coupled device*, *CCD*) mit 1024 px verwendet. Im Spektrometer sind drei Blazegitter mit unterschiedlicher Auflösung beziehungsweise Anzahl der Gitterstriche und Blazewellenlängen verbaut: 150 Striche/mm, $\lambda_{blz} = 500 \text{ nm}$, 1200 Striche/mm, $\lambda_{blz} = 750 \text{ nm}$, 1800 Striche/mm, $\lambda_{blz} = 500 \text{ nm}$. Daraus resultieren die Auflösungen von 0.34 nm, 0.03 nm und 0.01 nm. Des Weiteren stehen Silizium-Photodioden für die Ausrichtung und Lawinenphotodioden (engl. *avalanche photodiode*, *APD* [Excelitas]) für die Einzelphotonen-Messungen zur Verfügung. Die verwendeten Lawinenphotodioden haben eine Totzeit von 24 ns und einen Jitter von 350 ps. Mit Hilfe einer Analog zu Digital-Wandlerkarte [National Instruments] oder einem Zeit-Digital-Wandler (engl. *time tagger* [quTools]) können die analogen Signale der Detektoren ausgewertet und zeitabhängig aufgetragen werden. Der Zeit-Digital-Wandler hat eine maximale zeitliche Auflösung (engl. *bin width*) von 81 ps.

Im Kryostaten ist des Weiteren eine supraleitende Spule verbaut, mit welcher ein Magnetfeld von bis zu 12 T in Faraday-Geometrie, das heißt parallel zur Richtung des einfallenden Lichts, angelegt werden kann.

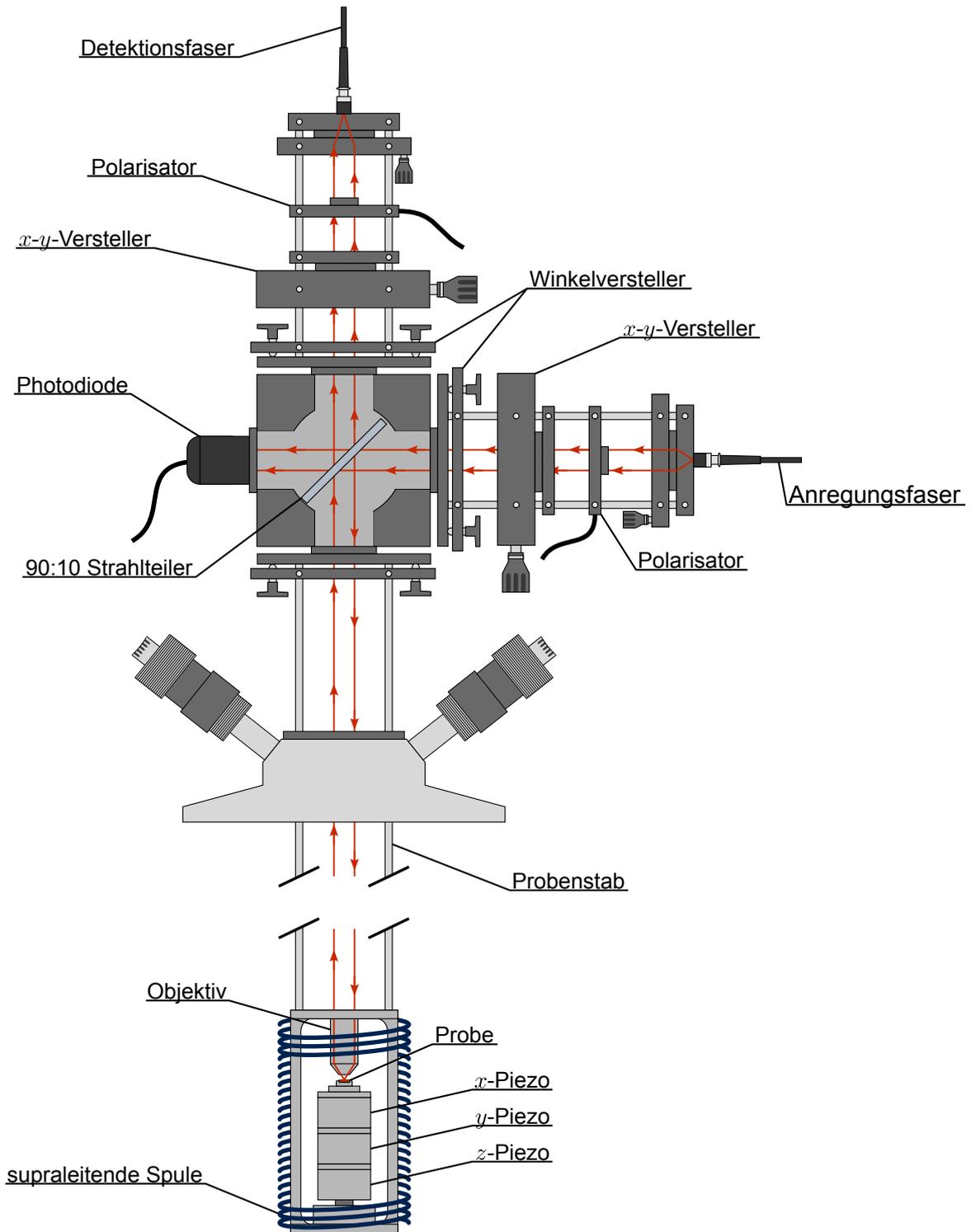


Abbildung 3.2.2: Schematische Darstellung des Konfokalmikroskops, bestehend aus der Freistrahloptik und dem mit flüssigem Helium gekühlten Badkryostaten. Die Probe wird auf drei Piezomotoren fixiert, sodass sie in alle drei Raumrichtungen bewegt werden kann. Außerdem umgibt sie eine supraleitende Spule, mit welcher ein Magnetfeld in Faraday-Geometrie angelegt werden kann. Die Freistrahloptik besitzt zwei unabhängig voneinander justierbare Pfade: Anregungs- und Detektionspfad. Über zwei Fasern wird das Licht (rote Linien) ein- bzw. ausgekoppelt. Im Zentrum der Optik befindet sich ein 90:10-Strahlteiler, welcher 90 % des Laserlichtes auf eine Photodiode transmittiert und 10 % auf die Probe reflektiert. Dort wird das einfallende Licht durch ein Objektiv auf die Probe fokussiert beziehungsweise das emittierte oder reflektierte Licht eingesammelt und parallelisiert. Über zwei motorgesteuerte gekreuzte Polarisatoren (siehe Abschnitt 3.3.2) lassen sich die Quantenpunktphotonen von den reflektierten Laserphotonen trennen. Angelehnt an [Kerski23a]

3.3 Messmethoden

In diesem Abschnitt werden die verschiedenen Messmethoden beschrieben, die alle mit dem zuvor gezeigten Konfokalmikroskop durchgeführt wurden. Nachdem ein Quantenpunkt auf der Probe identifiziert und das Mikroskop auf diesen ausgerichtet wurde, erfolgen Änderungen am Aufbau, wie beispielsweise das Einkoppeln eines zweiten Lasers oder die Detektion mit einem Spektrometer anstelle einer Photodiode, nur vor der Anregungs- beziehungsweise hinter der Detektionsfaser. Dies ermöglicht kontinuierliche Messungen am selben Quantenpunkt über einen langen Zeitraum.

3.3.1 Photolumineszenz-Spektroskopie

Die Photolumineszenz-Spektroskopie (PL) basiert auf dem photoelektrischen Effekt, bei dem ein Photon mit der Energie $E_p > E_g$ durch die Absorption seine Energie an ein Elektron im Valenzband abgibt. Sofern die Energie des Photons größer ist als die Bandlückenenergie wird das Elektron in das Leitungsband angehoben. Aufgrund der starken Elektron-Phonon Kopplung relaxiert das Elektron unter der Erzeugung von Phononen in den energetisch niedrigsten Leitungsbandzustand. Umgekehrt gilt das Gleiche für die Löcher, welche durch die Emission von Phononen in den höchsten Valenzbandzustand relaxieren. Bei diesen Kaskadenprozessen findet keine Emission von Photonen statt. In diesem Zustand bilden das Elektron und das Loch ein Elektron-Loch-Paar mit der Energie der optischen Bandlücke, die sich aus der Bandlücke und der Bindungsenergie des Exzitons zusammensetzt. Dieser exzitonische Zustand kann unter der Emission eines Photons rekombinieren und mit Hilfe eines Gittermonochromators detektiert werden. In einer typische Photolumineszenz-Messung zur Charakterisierung von selbstorganisierten Quantenpunkten wird ein Dauerstrichlaser (hier mit einer Wellenlänge von 785 nm) verwendet, um den energetischen Fingerabdruck des Quantenpunktes zu messen. Dabei werden durch die kontinuierliche Einstrahlung des Lasers verschiedene Vielteilchenzustände angeregt und anschließend im Gittermonochromator spektral aufgelöst.

In Abbildung 5.1.1 ist eine Photolumineszenz-Messung in Abhängigkeit der angelegten Gatespannung V_g gezeigt. Diese bildet mit den verschiedenen Resonanzen den individuellen Fingerabdruck des Quantenpunktes ab. Während die Photolumineszenz-Spektroskopie für die wellenlängenabhängige Charakterisierung der Quantenpunkte eingesetzt werden kann, ist sie nicht für die Beobachtung von einzelnen Photonen- oder Elektronenprozessen geeignet, da immer viele Übergänge gleichzeitig involviert sind. Hier bietet sich die resonante Fluoreszenz an, da mit dieser gezielt ein Übergang angeregt werden kann.

3.3.2 Resonante Fluoreszenz

Bei der resonanten Fluoreszenz (RF) wird die Anregungsfrequenz genau resonant zum Vielteilchenübergang eingestellt. Die spontan emittierten Photonen des optischen Übergangs haben somit die gleiche Frequenz wie die von der Probe reflektierten Photonen des Anregungslasers. Zur Detektion der Quantenpunktphotonen müssen diese jedoch von den Laserphotonen getrennt werden. Eine mögliche Methode hierfür ist die sogenannte gekreuzte Polarisation (engl. *cross-polarization*). Dabei werden je ein Polarisator in den Anregungs- und den Detektionspfad der Freistrahl-optik eingebaut. Diese werden um etwa 90° zueinander verdreht, sodass das reflektierte Laserlicht den zweiten Polarisator nicht durchqueren kann. Die Quantenpunktphotonen hingegen werden mit einer leicht anderen Polarisation emittiert, sodass die meisten Photonen den Polarisator durchqueren können. Mit dieser Methode ist es möglich bis zu 10^7 Laserphotonen zu unterdrücken und so ein gutes Signal zu Rausch Verhältnis zu erhalten.

Viele Effekte im Quantenpunkt sind abhängig von der Besetzung des Vielteilchenzustandes und damit abhängig von der eingestrahlten Laserintensität. Wie bereits in Abschnitt 3.2 erläutert, kann die Laserleistung über die Photodiode in der Freistrahl-optik gemessen werden. Zusätzlich zu der

Messung kann die Leistung aber auch aktiv stabilisiert werden. Dazu wird in den Strahlengang, direkt hinter den Laser, ein akusto-optischer-Modulator eingebaut. Der Piezokristall erzeugt mit Hilfe von Schallwellen ein optisches Gitter, welches mit einer angelegten Spannung verschoben werden kann und so die Amplitude moduliert wird. Der Strahl 0ter Ordnung wird dabei nicht gebeugt, sodass dieser sich sehr gut für eine Amplitudenmodulation eignet. Über einen Regelkreis zwischen dem Modulator und der Photodiode lässt sich die Leistung aktiv stabilisieren.

Im Gegensatz zu der Photolumineszenz-Spektroskopie werden hier nun durchstimmbare Laser benötigt, welche aber weiterhin im Dauerstrichmodus betrieben werden. Durch das Anlegen eines elektrischen Feldes an die Probenstruktur können mit Hilfe des Stark-Effektes die verschiedenen Vielteilchenübergänge resonant getrieben werden (in dieser Arbeit das neutrale Exziton X und das einfach-negativ geladene Trion X^-). Die gemessenen Photonen auf der Lawinendiode werden in diesem Fall zeitlich gemittelt, sodass sich im Quantenpunkt, während der Messung, ein Gleichgewicht einstellt.

3.3.3 Zeitaufgelöste N-Shot Messungen

Um die Nichtgleichgewichtsdynamik der Elektronen- und der Photonenprozesse beobachten zu können, wird eine zeitliche Auflösung benötigt. Für die Quantenpunkte, bei denen das elektrische Feld und die Frequenz des Lasers über den Stark-Effekt gekoppelt sind, ist dies entweder mit einem Laser im Dauerstrichmodus und einer gepulsten Spannung (siehe Abschnitt 5.3) realisierbar oder die Anregungsleistung des Lasers wird gepulst (siehe Abschnitt 4.2). In dieser Arbeit wird für Letzteres der oben genannte akusto-optische-Modulator verwendet. Da der Strahl 0ter Ordnung immer eine Restintensität transmittieren lässt, wird der Anregungslaser für die zeitaufgelösten Messungen in die 1te Ordnung des Modulators eingekoppelt. Anschließend kann dieser über einen Funktionsgenerator [Keysight] im Bereich von Mikrosekunden gepulst werden. Für die Stabilisierung der Laserleistung werden weitere akusto-optische-Modulatoren in 0ter Ordnung sowie Photodioden in den Strahlengang des Anregungspfades eingebaut.

Für die zeitliche Messung wird das verwendete Pulsschema an den Zeit-Digital-Wandler weitergegeben und N -fach wiederholt. Der Zeit-Digital-Wandler sortiert dabei die Zeitstempel der gezählten Photonen entsprechend der Pulse in die sogenannten *bins* ein, welche üblicherweise eine Breite (engl. *bin width* oder *binning time*) von Mikrosekunden haben. Über die statistische Mittelung der N -fachen Wiederholung der Pulse ergeben sich schlussendlich zeitaufgelöste Messungen.

3.3.4 Telegraphenrauschen

In diesem Abschnitt wird eine weitere Messmethode beschrieben, mit welcher zeitaufgelöste Messungen der Vielteilchenübergänge durchgeführt werden können. Dabei ist der Quantenpunkt mit dem Elektronenreservoir in einem dynamischen Gleichgewicht zwischen einem strahlenden R_{on} und einem nicht-strahlenden Zustand R_{off} . Das sogenannte zufällige Telegraphenrauschen (engl. *random telegraph noise*) setzt sich dann aus den zufällig verteilten an- und ausgehenden Signalen zusammen (siehe Abb. 3.3.1b)). Zunächst wird in einer Echtzeitmessung jedem detektierten Photon am Zeit-Digital-Wandler ein Zeitstempel zugeordnet (siehe Abb. 3.3.1a)). Anschließend wird bei der Datenverarbeitung die zeitliche Auflösung festgelegt, wodurch sich diese Methode nicht nur für einzelne Quantenpunkte [Kurzmann16a, Lochner20], sondern zum Beispiel auch für Ionen [Hume11] als eine Echtzeitanalyse von Einzelphotonenprozessen bewährt hat. Für eine nicht-spektral aufgelöste Messung, wie sie in dieser Arbeit durchgeführt wurde, kann beim Telegraphenrauschen folglich zwischen zwei im dynamischen Gleichgewicht konkurrierenden Raten unterschieden werden. Im Beispiel der Publikation von Kurzmann et al. [Kurzmann19] wird zwischen dem Tunneln in den Quantenpunkt γ_{in} und dem Tunneln aus dem Quantenpunkt in das Elektronenreservoir γ_{out} unterschieden, wobei das neutrale Exziton X nach einem Tunnelereignis γ_{out} strahlend rekombinieren

kann und somit den X_{on} -Zustand repräsentiert. Der negativ-geladene Quantenpunkt nach einem Tunnelereignis γ_{in} repräsentiert folglich den X_{off} -Zustand. Zur Bestimmung des Auger-Effektes in einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkten kann das Telegraphenrauschen ebenfalls verwendet werden. Lochner et al. [Lochner20] haben dazu sowohl den einfach-negativ geladenen Trionübergang X^- , als auch den neutralen Exzitonübergang X über eine Zwei-Farben Anregung getrieben. Da der Auger-Effekt den Quantenpunkt entleert, kann bis zum nächsten Tunnelereignis das Exziton resonant getrieben werden. Die intrinsische Auger-Rate γ_A steht also mit der Tunnelrate eines Elektrons in den Quantenpunkt γ_{in} in Konkurrenz, wodurch die Auger-Rate den X_{off} -Zustand und die Tunnelrate den X_{on} -Zustand repräsentiert.

Im Vergleich zu der zuvor beschriebenen gepulsten Messmethode ist das Telegraphenrauschen experimentell deutlich einfacher umzusetzen. Dies liegt zum einen daran, dass die Laser nicht gepulst werden müssen und so eine einfachere Leistungsstabilisierung über die 0te Ordnung des akusto-optischen Modulators möglich ist. Zum anderen, wie im späteren Verlauf des Abschnitts detailliert beschrieben ist, muss die zeitliche Auflösung nicht vor dem Experiment gewählt werden. Diese wird beim Telegraphenrauschen erst in der Datenverarbeitung durch die Wahl der bin width t_{bin} festgelegt. Da jedes detektierte Photon in die Datenverarbeitung eingeht und nicht durch die Wahl der Pulslänge bereits während der Messung aussortiert wird, kann auch mit dieser Echtzeitmessung eine sehr gute Auflösung erreicht werden. Zusätzlich zeigen Kerski et al. [Kerski23b], dass mit dieser Methode eine Auswertung mit einer Bandbreite von bis zu 175 kHz möglich ist, wobei die obere Grenze durch die Quantenausbeute des Emitters gegeben ist. Ein Nachteil dieser Messmethode sind die großen Datenmengen, welche größtenteils aus Rauschen bestehen und sich erst durch die Wahl der Zeitauflösung einfach verarbeiten lassen.

Datenverarbeitung

In Abbildung 3.3.1a) sind beispielhaft die gemessenen Daten vor der Auswertung, das heißt die Zeitstempel jedes gemessenen Photons, eines Telegraphenrauschens aufgetragen. Anschließend wird die Zeitauflösung festgelegt. In Abbildung 3.3.1b) wurde eine Zeitauflösung t_{bin} von 0.2 ms gewählt. Der Einfluss der Wahl der Zeitauflösung auf die berechneten Ra-

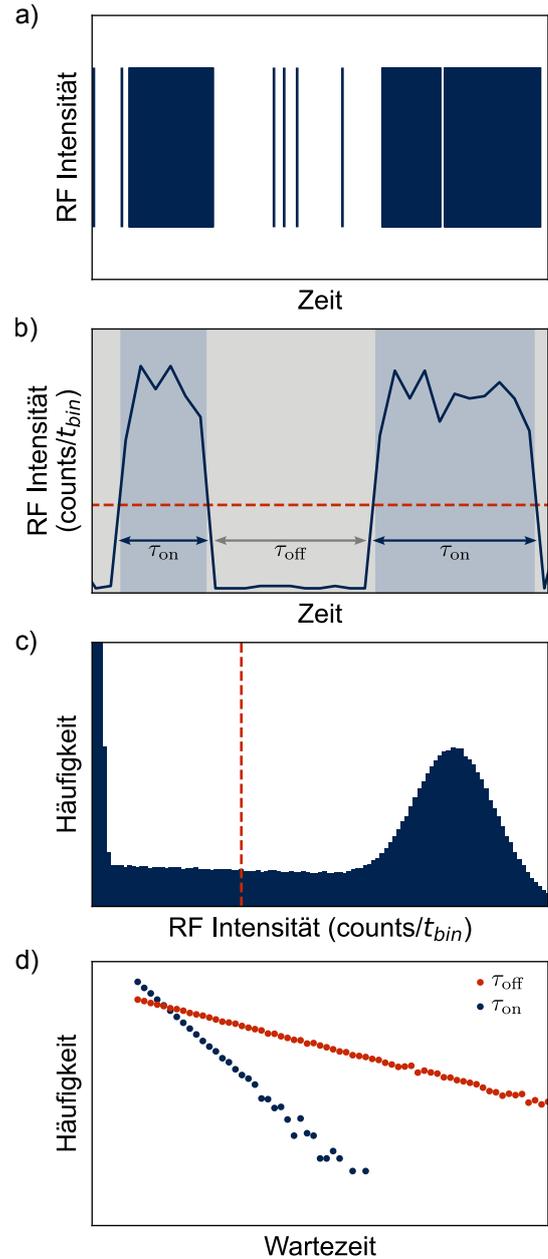


Abbildung 3.3.1: a) Zeitstempel des zufälligen Telegraphenrauschens gemessen an dem Zeit-Digital-Wandler. b) Telegraphenrauschen nach der Wahl der Zeitauflösung t_{bin} . Die rote gestrichelte Linie gibt den gewählten Grenzwert an, der zwischen den τ_{on} - und den τ_{off} -Intervallen trennt. c) Histogramm der RF Intensität in dem zwischen zwei Poisson-Verteilungen X_{off} (links) und X_{on} (rechts) unterschieden werden kann. Der Grenzwert liegt in der Mitte zwischen den beiden Poisson-Verteilungen. d) Wartezeitverteilung für die τ_{on} - und die τ_{off} -Intervalle.

ten ist in Abbildung 3.3.2a)-b) gezeigt. Durch dieses Verfahren kann nun die Anzahl der Photonen pro Zeitintervall ausgewertet werden. Hier wird zwischen dem Bereich τ_{off} (grau), bei dem sich der Quantenpunkt im nicht-strahlenden Zustand befindet und dem Bereich τ_{on} (blau), bei dem Photonen vom strahlenden Zustand gemessen werden, unterschieden. Die Bestimmung der internen Photoemission erfolgt über die Statistik der Zeitintervalle τ_{off} .

Im nächsten Schritt wird mit Hilfe der Häufigkeit als Funktion der Photonen pro Zeitintervall t_{bin} ein Grenzwert festgelegt. Dieser Grenzwert gibt die Schwelle an, ab welcher Photonenzahl pro Zeitintervall t_{bin} dieser unter den τ_{on} gelistet wird. In Abbildung 3.3.1c) ist dieses Histogramm mit dem Grenzwert (rote gestrichelte Linie) gezeigt. Der Einfluss der Wahl des Grenzwertes auf die Raten aus der Wartezeitverteilung ist in Abbildung 3.3.2d) gezeigt. In den Histogrammen kann zwischen zwei Poisson-Verteilungen X_{on} (rechts) und X_{off} (links) unterschieden werden. Das Plateau in der Mitte zwischen den beiden Verteilungen entsteht aufgrund der endlichen Zeitaufösung des Detektors, wobei die Größe des Plateaus abhängig von der Quantenausbeute des Emitters und der Größe des gewählten Zeitintervalls t_{bin} ist.

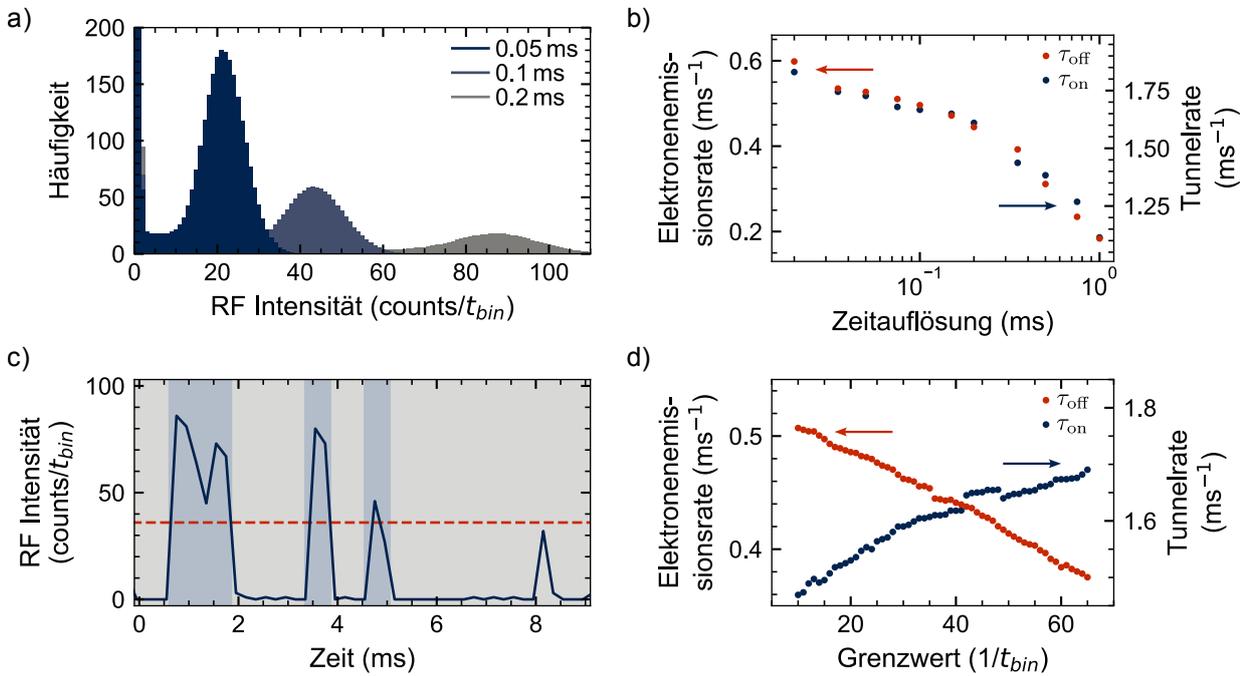


Abbildung 3.3.2: a) Histogramme der RF Intensität mit unterschiedlichen Zeitaufösungen. b) Elektronenemissionsrate γ_{ee} und Tunnelrate γ_{in} als Funktion der gewählten Zeitaufösung t_{bin} . c) Telegraphenrauschen mit unterschiedlichen Grenzwerten. d) Elektronenemissionsrate γ_{ee} und Tunnelrate γ_{in} als Funktion des gewählten Grenzwertes. Die jeweiligen Raten können mit einer Anpassung an die Wartezeitverteilungen der τ_{off} bzw. τ_{on} -Intervalle berechnet werden.

In Abbildung 3.3.2a) ist gezeigt wie sich das Histogramm für kürzere Zeitintervalle verändert. Die Bestimmung des optimalen Grenzwertes zwischen den beiden Verteilungen wird bei einer zu kleinen Zeitaufösung (große Zeitintervalle t_{bin}) deutlich erschwert, weshalb die Wahl der Zeitaufösung hier einheitlich und entsprechend der zu beobachteten Prozesse sinnvoll getroffen werden sollte. Die Wahl des Grenzwertes beeinflusst ob eine der Raten überschätzt und entsprechend die andere Rate unterschätzt wird (siehe Abb. 3.3.2d)). Für eine akkurate Datenauswertung sollte der Grenzwert also möglichst mittig zwischen den beiden Verteilungen festgelegt werden.

Im letzten Schritt der Datenverarbeitung können die Daten als sogenannte Wartezeitverteilung (engl. *waiting time distribution*) aufgetragen werden, das heißt die Häufigkeit der Bereiche τ_{on}

bzw. τ_{off} als Funktion der Länge der Bereiche (siehe Abb. 3.3.1d)). Diese Verteilungen zeigen ein exponentielles Verhalten, welches mit der entsprechenden Rate (γ_{in} für τ_{on} bzw. γ_{ee} für τ_{off}) abfällt. Wie auch bei den gepulsten N-Shot Messungen erhalten wir letzten Endes eine statistische Wahrscheinlichkeit für einen Elektronenprozess abhängig von dem gewählten Experiment, zum Beispiel in Abhängigkeit der Anregungsfrequenz oder der Anregungsintensität.

3.3.5 Interne Photoemissions-Spektroskopie (iPES)

Der interne Photoeffekt in selbstorganisierten Quantenpunkten bei dem das Elektron im Quantenpunkt mit Hilfe der Absorption eines Photons den Quantenpunkt, in einen energetisch höheren Zustand, verlässt, wurde bereits in gepulsten N-Shot Messungen von Lochner et al. [Lochner21b] veröffentlicht. Diese Ergebnisse beziehen sich jedoch ausschließlich auf eine feste Frequenz beziehungsweise Energie, welche an das Elektron weitergegeben wird. Um diesen Prozess besser verstehen zu können und die freien Zustände oberhalb des Quantenpunktes detektieren zu können, wurde in dieser Arbeit die sogenannte interne Photoemissions-Spektroskopie (iPES) entwickelt. Dabei handelt es sich, ähnlich wie bei Lochner et al. [Lochner20] für den Auger-Effekt, um eine Zwei-Farben Anregung. Der erste Laser wird dazu bei konstanter Leistung im Dauerstrichmodus auf die Frequenz des neutralen Exzitons X im Gatespannungsbereich des einfach-negativ geladenen Quantenpunktes eingestellt. Im Gleichgewicht ist der Quantenpunkt also, durch die Wahl der Gatespannung, mit einem Elektron besetzt und der Exzitonübergang kann nicht angeregt werden. Der zweite Laser wird ebenfalls im Dauerstrichmodus mit konstanter Leistung und variabler Anregungsfrequenz betrieben. Dieser Laser sorgt für die Elektronenemission, sodass der Quantenpunkt anschließend unbesetzt ist und der Exzitonübergang getrieben werden kann. Damit repräsentiert die interne Photoemission γ_{pe} bis zum Entleeren des Quantenpunktes den nicht-strahlenden X_{off} -Zustand und die Tunnelrate den strahlenden X_{on} -Zustand, analog zum Auger-Effekt. Da die Laser sich teilweise stark in der Leistung unterscheiden müssen, wird der Laser mit der Exzitonfrequenz, welcher tendenziell mit einer geringeren Leistung betrieben wird, auf einer zweiten Photodiode vor der Anregungsfaser stabilisiert. Die Leistung des zweiten Lasers wird mit der, in der Freistrahloptik, eingebauten Photodiode stabilisiert.

Als Messmethode wird aus den oben genannten Gründen in dieser Arbeit das Telegraphenrauschen verwendet. Dies erleichtert die Leistungsstabilisierung der Laser über die Photodioden und die akusto-optischen-Modulatoren in 0ter Ordnung. In dieser Methode müssen die Laser nicht gepulst werden, sodass die Zeitauflösung nachträglich gewählt werden kann. Dies hat zur Folge dass sich die Durchführung der Messung leichter automatisieren lässt. Dabei wird ein Frequenzbereich von 45 THz (180 meV) mit einer durchschnittlichen Schrittweite von 109 GHz vermessen, was 413 Datenpunkten mit je 8 min Messzeit entspricht. Diese Frequenzverstimmung ermöglicht die sensitive Messung der Zustandsdichte der GaAs-Leitungsbandstruktur, welche aufgrund der Einbettung der InAs-Quantenpunkte in eine GaAs-Heterostruktur nach Lochner et al. [Lochner21b] der Endzustand des Elektrons ist. Aus der Einleitung dieser Arbeit geht hervor, dass die Beobachtung dieser Zustände für die Intensität und die Dephasierung der Trionresonanz und für zukünftige Anwendungen entscheidend ist.

Nicht-Strahlender Auger-Effekt im externen Magnetfeld

Der Auger-Effekt in einem selbstorganisierten Quantenpunkt ist der nicht-strahlende Elektron-Elektron Streuprozess, zum Beispiel am Trionübergang, bei dem das zweite Elektron die freiwerdende Energie der Rekombination erhält. Anschließend ist der Quantenpunkt unbesetzt und zur Anregung des Trionübergangs muss zunächst ein Elektron aus dem Elektronenreservoir in den Quantenpunkt tunneln. Um diesen Effekt beobachten zu können, ist daher eine schwache Tunnelkopplung des Quantenpunktes mit dem Elektronenreservoir notwendig. Kurzmann et al. [Kurzmann16a] konnten den nicht-strahlenden Auger-Effekt direkt und in resonanter Fluoreszenz an einem einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkt beobachten. Dazu wurden zeitaufgelöste Messungen am Exzitonübergang beziehungsweise Trionübergang durchgeführt. Nachdem Mannel et al. [Mannel23] gezeigt haben, dass die Auger-Rate sich abhängig von der Magnetfeldstärke eines parallel zur Richtung des einfallenden Lichts angelegtem Magnetfeldes (Faraday-Geometrie) verändert, wird in dieser Arbeit dort mit detaillierten Messungen und einer verbesserten Messmethode angeknüpft. Im Folgenden wird zunächst ein Quantenpunkt (QDI) auf der Probe *BO14318* charakterisiert und die Messungen zur Bestimmung des Auger-Effektes an diesem durchgeführt. Anschließend wird der Auger-Effekt in Abhängigkeit vom angelegtem Magnetfeld über eine Zweifarben Anregung bestimmt.

Die in diesem Kapitel gezeigten Daten wurden im Rahmen der Bachelorarbeit von Britta Maib [Maib20] sowie der Masterarbeit von Fabio Rimek [Rimek21] erhoben. Die Abbildungen und Formulierungen sind an diese beiden Arbeiten angelehnt.

4.1 Optische Übergänge im Gleichgewicht

Zur Charakterisierung des Quantenpunktes (QDI) werden resonante Fluoreszenz Messungen im Gleichgewicht als Funktion der Anregungsfrequenz und der Gatespannung V_g durchgeführt. Aus diesen Messungen lassen sich zum einen die im folgenden beschriebenen Bereiche identifizieren und zum anderen die Stark-Verschiebung der jeweiligen Vielteilchenzustände bestimmen. Dazu werden diese in zwei Bereiche aufgeteilt; niedrige Frequenzen für den Trionübergang X^- , hohe Frequenzen für den Exzitonübergang X . Die Gatespannungsachse kann in drei Bereiche unterteilt werden; im Bereich I ist der Quantenpunkt unbesetzt und der Exzitonübergang kann resonant getrieben werden. Im Bereich II ist der Quantenpunkt mit einem Elektron aus dem Elektronenreservoir besetzt, sodass der Trionübergang X^- resonant getrieben werden kann. Im Bereich III ist die Leitungsbandstruktur bereits so weit verkippt, dass ein zweites Elektron aus dem Elektronenreservoir in den Quantenpunkt tunneln kann und damit die s -Zustände vollständig besetzt sind.

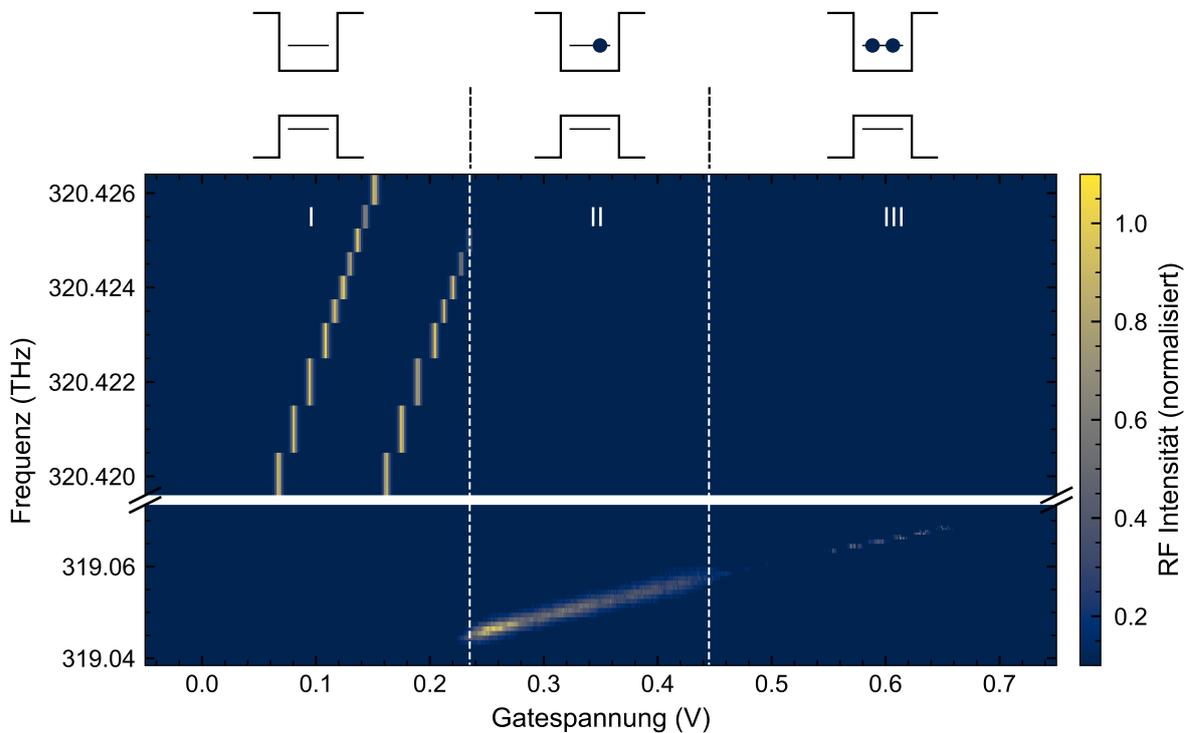


Abbildung 4.1.1: Resonante Fluoreszenz am Exzitonübergang und Trionübergang als Funktion der angelegten Gatespannung und der Anregungsfrequenz des Lasers. Dieser treibt die beiden optisch-aktiven Exzitonen mit einer Anregungsleistung von $2.0 \times 10^{-4} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ und das optisch-aktive Trion mit einer Anregungsleistung von $8.1 \times 10^{-4} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$. Die Farbskala stellt die normierte resonante Fluoreszenz Intensität dar (jeweils normiert auf die größte Intensität des Exzitons bzw. des Trions). Im Bereich I ist der Quantenpunkt unbesetzt, sodass die beiden Exzitonen im oberen Frequenzbereich angeregt werden können. Im Bereich II ist die angelegte Gatespannung bereits so groß, dass ein Elektron aus dem Elektronenreservoir in den s_1 -Zustand des Quantenpunktes tunneln kann, sodass dieser besetzt ist. Im unten dargestellten Frequenzbereich ist es nun möglich, den Trionübergang zu treiben. Im Bereich III ist die Leitungsbandstruktur so weit verkippt, dass bereits ein zweites Elektron in den s_2 -Zustand tunneln kann. Damit sind alle s -Zustände besetzt und das einfach-negativ geladene Trion kann nicht weiter angeregt werden.

In Abbildung 4.1.1 ist die Anregungsfrequenz als Funktion der Gatespannung V_g für eine Anregungsintensität von $8.1 \times 10^{-4} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ im Bereich des Trionübergangs und $2.0 \times 10^{-4} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ im Bereich des Exzitonübergangs dargestellt. Die Anregungsintensität wird mit Hilfe eines akusto-optischen-

Modulators in 0ter Ordnung und einer Silizium-Photodiode aktiv stabilisiert (siehe Abschnitt 3.2). Die Farbskala stellt die normierte resonante Fluoreszenz Intensität dar (jeweils normiert auf die größte gemessene Intensität des Exzitons bzw. Trions). Aufgrund des Auger-Effekts ist die absolute RF Intensität für den Trionübergang deutlich geringer als für die beiden Exzitonübergänge [Kurzmann16a]. Die beobachtete Aufspaltung der optisch-aktiven Exzitonzustände in Bereich I kann durch die Symmetriebrechung des Quantenpunktes erklärt werden (siehe Abschnitt 2.2.2) [Högele04]. Für alle Resonanzen kann der Stark-Effekt beobachtet werden (siehe Abschnitt 2.2.3), der für die Trionresonanz deutlich schwächer ist als für die Exzitonresonanz.

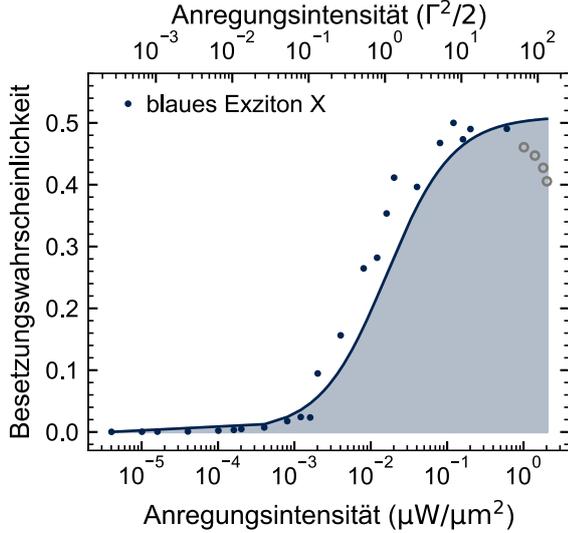


Abbildung 4.1.2: Besetzungswahrscheinlichkeit des angeregten blauen Exzitons X als Funktion der Laseranregungsintensität, angegeben in Einheiten von $\mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ (unten) und $\Gamma^2/2$ (oben). Als Anpassungsfunktion wird die vereinfachte Gleichung (4.1.1) verwendet.

Überlagerungszuständen für den Resonanzfall $\nu = \nu_0$. Zur besseren Vergleichbarkeit der Laserintensitäten kann die Besetzung über die Leistungsverbreiterung (engl. *power broadening*) [Loudon00]:

$$\tilde{\rho}_{22} = n(\Delta\omega) = \frac{1}{2} \frac{\Omega_0^2 T_1 / T_2}{\Delta\omega^2 + 1/T_2^2 + \Omega_0^2 T_1 / T_2}, \quad (4.1.2)$$

in Einheiten von $\Gamma^2/2$ dargestellt werden. Dabei ist $\tilde{\rho}_{22}$ das Dichtematrixelement, das die Besetzung des angeregten Exzitons angibt, Ω_0 die Rabi-Frequenz, $\Delta\omega = \omega - \omega_0 = 2\pi(\nu - \nu_0)$ die Frequenzverstimmung, mit ν_0 der Resonanzfrequenz (hier des blauen Exzitons), T_1 der Besetzungserfallszeit (engl. *lifetime*) und T_2 die Dephasierungszeit. Im Allgemeinen setzt sich die Dephasierungszeit T_2 aus der Besetzungserfallszeit T_1 und der reinen Dephasierungszeit T_2^* zusammen (siehe Gl. (2.3.1)). Für resonante Fluoreszenz Messungen ($\nu = \nu_0$) und unter Vernachlässigung der reinen Dephasierung ergibt sich bei einer Besetzungswahrscheinlichkeit des angeregten Zustandes von $n(0) = 0.25$ eine Laseranregungsintensität von $\Gamma^2/2$ und eine Rabi-Frequenz von $\Omega_0 = \Gamma/\sqrt{2}$, wobei für die Zerfallsrate Γ gilt [Fox06]:

$$\Gamma = \frac{2}{T_2} = \frac{1}{T_1} \quad \Leftrightarrow \quad T_2 = 2T_1. \quad (4.1.3)$$

Im nächsten Schritt wird die Intensitätsabhängigkeit des Exzitonübergangs gemessen. Zur Messung der Besetzungswahrscheinlichkeit $n(0)$ des angeregten Exzitons ($|\downarrow\uparrow\rangle$ bzw. $|\uparrow\downarrow\rangle$) wird die Gatespannung bei einer festen Anregungsfrequenz von $\nu_X = 320.41$ THz für verschiedene Anregungsintensitäten durchgeföhren. Anschließend werden die Exzitonintensitäten auf die maximale Intensität normiert, da diese angibt, dass der Exzitonzustand zur Hälfte der Zeit angeregt ist (siehe Abschnitt 2.3). Abbildung 4.1.2 zeigt diesen Zusammenhang für das energetisch höhere Exziton (*blaues Exziton*). Zur Anpassung an die Datenpunkte dient die Funktion der Form:

$$I(x) = I_0 \left(\frac{\alpha x}{\beta + \alpha(x - x_0)} \right), \quad (4.1.1)$$

mit $\alpha = T_1/T_2$, $\beta = 1/T_2$ und x_0 bzw. I_0 dem Anpassungsparameter für den Fehler der Laserintensität in x bzw. der Photonenergebnisse in y . Dabei ergibt sich die übersichtlichere Gleichung (4.1.1) aus der im nächsten Schritt dargestellten allgemein gültigen Gleichung (4.1.2) für die Besetzung eines Zwei-Niveau-Systems mit inkohären-

Im Abschnitt 5.6 wird die Dephasierungszeit T_2 beziehungsweise die Besetzungserfallszeit T_1 für den Trionübergang eines selbstorganisierten Quantenpunktes (QDII) durch eine zeitaufgelöste Messung bestimmt, bei der die Anregungsfrequenz über die Trionresonanz verstimmt wird. Da diese Messung für den Quantenpunkt (QDI) nicht durchgeführt wurde und die Dephasierungszeit T_2 des Exzitons keinen Einfluss auf den Auger-Effekt hat, wird hier nicht weiter darauf eingegangen.

In Abbildung 4.1.2 ist für Anregungsintensitäten größer als $6.1 \times 10^{-1} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2 \cong 3.7 \times 10^1 \Gamma^2/2$ ein zusätzlicher Elektronenemissionsprozess zu erkennen. Die Besetzungswahrscheinlichkeit fällt hier ab, anstatt dass sie, wie für eine ungestörte Anregung zu erwarten wäre, auf $1/2$ sättigt. Dies deutet darauf hin, dass ein Elektron aus dem Elektronenreservoir durch Photoemission in das Leitungsband der Probenstruktur angehoben wird und anschließend in den Quantenpunkt relaxiert (*Elektroneneinfang* [Kurzmann16b], siehe Abschnitt 2.3). Dadurch wird der Quantenpunkt mit einem Elektron besetzt und der Exzitonübergang blockiert, was zu einer Verringerung der Intensität führt. Die Wahrscheinlichkeit für einen solchen Elektroneneinfang aus dem Reservoir in den Quantenpunkt ist proportional zur eingestrahlten Laserintensität und daher besonders bei sehr hohen Anregungsintensitäten erhöht.

Die Intensitätsabhängigkeit des Trionübergangs kann auch auf die hier gezeigte Weise bestimmt werden. Da jedoch der Auger-Effekt die Trionresonanz sehr stark unterdrückt, ist diese Methode mit einem großen Fehler behaftet (siehe Vergleich in Abb. 5.4.2b)). Im Folgenden wird daher die Intensitätsabhängigkeit aus zeitaufgelösten Messungen am Trionübergang bestimmt.

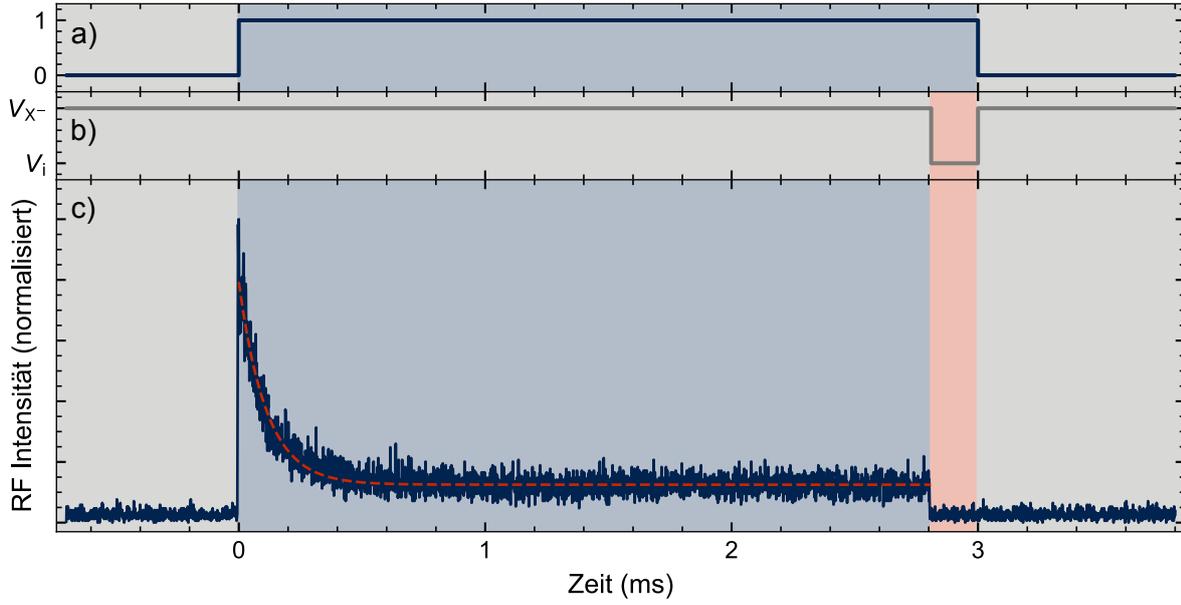


Abbildung 4.2.2: Schematische Darstellung des Pulsschemas a) für den Laser, welcher resonant den Trionübergang treibt (blau hinterlegte Fläche) und b) für die angelegte Gatespannung (rot hinterlegte Fläche). Diese wird zwischen V_i und V_{X-} für 10% der Pulslänge des Lasers geschaltet, um die Unterdrückung durch die gekreuzte Polarisation zu bestimmen. In c) ist beispielhaft die gemessene RF Intensität als Funktion der Zeit für eine Anregungsintensität von $2.0 \times 10^{-4} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ dargestellt. Die rote gestrichelte Linie stellt die Anpassung an die Daten nach Gleichung (4.2.3) dar.

gekreuzte Polarisation hinweist. Bei hohen Anregungsintensitäten ist eine stufenförmige Abhängigkeit in diesem Bereich zu erwarten.

Mit Hilfe der Ratengleichungen für ein Zwei-Niveau-System kann eine Anpassungsfunktion für die exponentiell abfallende Transiente bestimmt werden. Die Ratengleichungen für das in Abbildung 4.2.1 dargestellte Modell können wie folgt dargestellt werden:

$$\dot{P}_{|\downarrow\uparrow\downarrow\rangle}(t) = \gamma_{\text{in}}P_{|0\rangle}(t) - (1 - n(\Delta\omega))\gamma_{\text{out}}P_{|\downarrow\uparrow\downarrow\rangle}(t) - n(\Delta\omega)\gamma_A P_{|\downarrow\uparrow\downarrow\rangle}(t), \quad (4.2.1)$$

$$\dot{P}_{|0\rangle}(t) = -\dot{P}_{|\downarrow\uparrow\downarrow\rangle}(t), \quad (4.2.2)$$

wobei $P_{|0\rangle}(t)$ die zeitabhängige Besetzungswahrscheinlichkeit für den unbesetzten Quantenpunkt (nicht-strahlender Zustand) und $P_{|\downarrow\uparrow\downarrow\rangle}(t)$ die zeitabhängige Besetzungswahrscheinlichkeit für den einfach-besetzten Quantenpunkt (strahlender Zustand) ist. Die Lösung der Ratengleichungen (4.2.1) und (4.2.2) erfolgt mit der Anfangsbedingung $P_{|\downarrow\uparrow\downarrow\rangle}(0) = 1$, da der Quantenpunkt einfach-besetzt präpariert wird:

$$P_{|\downarrow\uparrow\downarrow\rangle}(t) = \frac{\gamma_{\text{in}} + ((1 - n(\Delta\omega))\gamma_{\text{out}} + n(\Delta\omega)\gamma_A)e^{-(\gamma_{\text{in}} + (1 - n(\Delta\omega))\gamma_{\text{out}} + n(\Delta\omega)\gamma_A)t}}{\gamma_{\text{in}} + (1 - n(\Delta\omega))\gamma_{\text{out}} + n(\Delta\omega)\gamma_A}. \quad (4.2.3)$$

Die Gatespannung wurde so gewählt, dass die Tunnelrate aus dem Quantenpunkt zurück in das Elektronenreservoir γ_{out} so klein ist, dass sie vernachlässigt werden kann. Für die Elektronenemissionsrate γ_{ee} , die alle Prozesse zusammenfasst, die den Quantenpunkt entleeren, ergibt sich somit zu $\gamma_{\text{ee}} = n(\Delta\omega)\gamma_A$. Die Gleichung (4.2.3) wird im Folgenden als Anpassungsfunktion für die Transienten verwendet (siehe rote gestrichelte Linie in Abb. 4.2.2c), wobei die Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{in} aus der in Abschnitt 5.3 beschriebenen Messung bestimmt wurde und hier verwendet wird.

Zur Bestimmung der Auger-Rate γ_A wird nun die Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions, das

heißt $\Delta\omega = 0 \Rightarrow n(0)$ bestimmt. Dazu wird die abgebildete zeitaufgelöste gepulste Messung für Anregungsintensitäten zwischen $8.1 \times 10^{-5} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ und $2.0 \times 10^{-1} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ durchgeführt. Anschließend wird für jede Messung die RF Intensität zum Zeitpunkt $t = 0$ bestimmt und normiert. In Abbildung 4.2.3a) ist die Besetzungswahrscheinlichkeit, das heißt die normierte maximale RF Intensität zu Beginn der Transiente, als Funktion der Anregungsintensität aufgetragen. Aus der Anpassungsfunktion nach Gleichung (4.1.1) (siehe blaue Linie in Abb. 4.2.3a)) ergibt sich die anregungsintensitätsabhängige Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions $n(0)$, die mit Hilfe der Elektronenemissionsrate γ_{ee} die Auger-Rate γ_A für eine resonante Anregung des Trionübergangs ergibt.

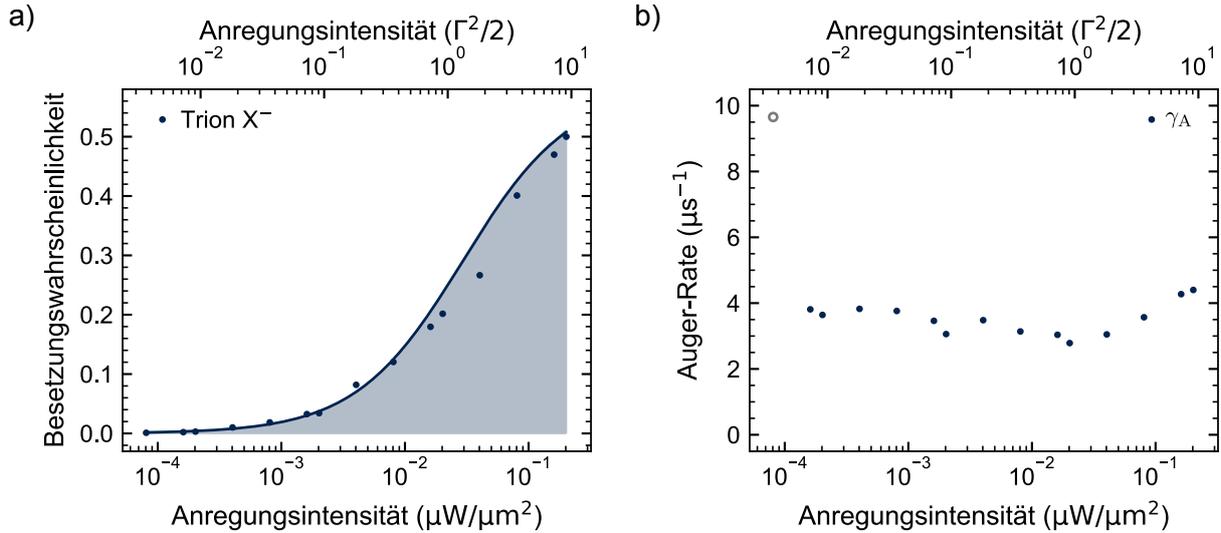


Abbildung 4.2.3: a) Besetzungswahrscheinlichkeit des angeregten Trions X^- in Abhängigkeit von der Anregungsintensität des Lasers, angegeben in den Einheiten $\mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ unten und $\Gamma^2/2$ oben. Als Anpassungsfunktion wird die vereinfachte Gleichung (4.1.1) verwendet. b) Auger-Rate γ_A , die sich aus der Anpassung der in Abbildung 4.2.2c) dargestellten Transienten und der Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions $n(0)$ als Funktion der Anregungsintensität des Lasers ergibt.

In Abbildung 4.2.3b) ist die Auger-Rate γ_A , die sich aus der Anpassung an die exponentiell abfallenden Transienten nach Gleichung (4.2.3) und der Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions $n(0)$ nach Abbildung 4.2.3a) ergibt, als Funktion der Anregungsintensität dargestellt. Erwartungsgemäß zeigt die Auger-Rate keine Abhängigkeit von der Anregungsintensität, sofern die Besetzungswahrscheinlichkeit gut bestimmt ist [Kurzmann16c, Lochner20, Mannel23]. Der Mittelwert der besetzungsunabhängigen Auger-Rate ergibt sich zu $(3.5 \pm 0.5) \mu\text{s}^{-1}$, wobei der erste Datenpunkt für die kleinste Anregungsintensität nicht berücksichtigt wird. Da für diesen die Anpassung an die Transiente einen großen Fehler aufweist, ist die Auger-Rate deutlich erhöht.

Bereits bei dieser Messung zeigt sich, dass die Bestimmung der Besetzungswahrscheinlichkeit einen großen Einfluss auf die Auger-Rate hat. Für diese Messmethode ist die Besetzungswahrscheinlichkeit jedoch unverzichtbar, da die Elektronenemissionsraten γ_{ee} eben stark von der Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions abhängen und somit nur die besetzungsunabhängigen Auger-Raten γ_A miteinander verglichen werden können. Die Bestimmung der Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions hängt wiederum stark von der Kopplung des Laserfeldes an den Quantenpunkt ab. Diese ändert sich mit der Zeit, durch Temperaturschwankungen, Luftfeuchtigkeitsschwankungen oder Staub in der Umgebung der optischen Komponenten.

Um den Auger-Effekt in einem selbstorganisierten Quantenpunkt besser zu verstehen, ist es wichtig, den Endzustand des Elektrons zu kennen. Mit diesem Wissen könnte der Effekt für zukünftige Anwendungen, zum Beispiel durch geschicktes Wachstum der umgebenden Halbleiterschichten, re-

duziert oder sogar ganz unterdrückt werden. Da der Auger-Effekt an die Resonanzfrequenz des Trions gekoppelt ist, ist es mit der hier vorgestellten Messmethode nicht möglich, verschiedene Zustände in der Bandstruktur abzutasten. Ein äußeres Magnetfeld spaltet jedoch die Zustände in einem Halbleiter auf, sodass bestimmte Magnetfelder eine erhöhte oder verringerte Auger-Rate aufweisen können. Im folgenden Kapitel wird daher der Auger-Effekt in einem äußeren Magnetfeld betrachtet.

4.3 Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz der magnetfeldabhängigen Auger-Rekombination

Um zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz Messungen am Trionübergang im Magnetfeld durchführen zu können, werden zunächst die jeweiligen Resonanzfrequenzen benötigt, die durch die Spinaufspaltung des Trions verschoben sind. Im Magnetfeld wird die Spinentartung des Trions aufgehoben [Atatüre06], sodass nun zwei Trionübergänge mit den Spinkonfigurationen $|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle$ für das energetisch niedrigere Trion (*rotes Trion*) und $|\downarrow\uparrow\downarrow\rangle$ für das energetisch höhere Trion (*blaues Trion*) angeregt werden können (siehe detaillierte Beschreibung in Abschnitt 2.2.4). Um die Resonanzfrequenzen zu bestimmen, wird zunächst für jedes Magnetfeld eine gatespannungsabhängige Messung, wie in Abbildung 4.1.1 für $B = 0$ T gezeigt, durchgeführt. Diese Trionfrequenzen sind als Funktion des angelegten Magnetfeldes in Abbildung 4.3.1a) dargestellt. In einem parallel zur Richtung des einfallenden Lichts angelegten Magnetfeld (Faraday-Geometrie) tritt für kleine Magnetfelder (bis 2.5 T) eine lineare Zeeman-Aufspaltung auf [Zeeman97]. Für höhere Magnetfelder (ab 2.5 T) dominiert die diamagnetische Verschiebung, auch quadratische Zeeman-Aufspaltung genannt [Sugisaki98, Schulhauser03], die die Zustände weiter auseinander schiebt, sodass bei einem Magnetfeld von 10 T die Aufspaltung etwa 280 GHz (1.16 meV) beträgt. Die magnetfeldabhängige Energie der Vielteilchenzustände folgt der quadratischen Gleichung (2.2.11) [Sugisaki98].

Schulhauser et al. [Schulhauser03] konnten an einem selbstorganisierten Quantenpunkt zeigen, dass nicht nur der Trionübergang auf diese Weise aufgespalten wird. Auch das Exziton X spaltet sich in einem äußeren Magnetfeld identisch zum Trion auf. Abbildung 4.3.1b) zeigt diese Photolumineszenz-Messung am Quantenpunkt aus dem Kapitel 5 (QDII). Für beide exzitonischen Übergänge (X, X⁻) kann sowohl die Zeeman-Aufspaltung als auch die diamagnetische Verschiebung beobachtet werden.

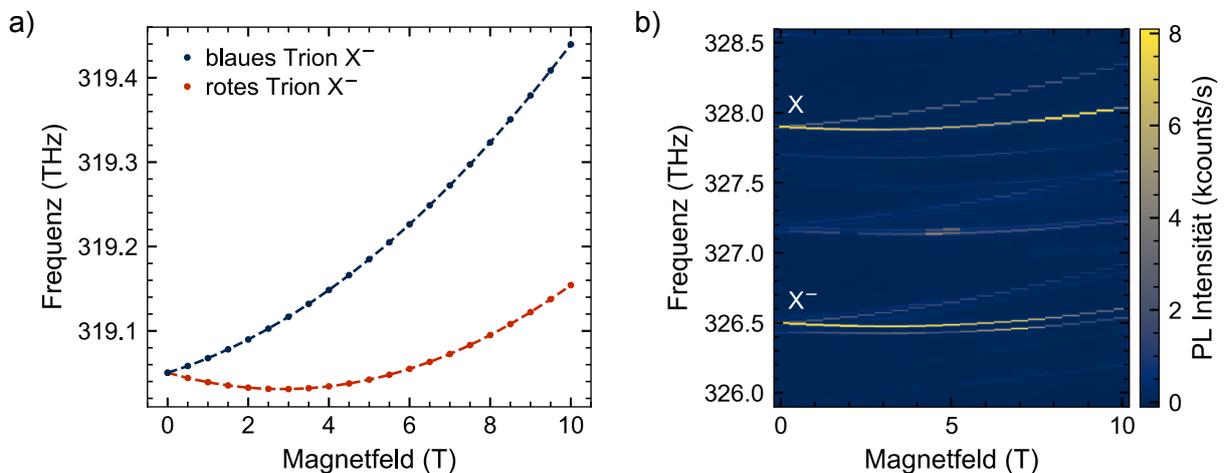


Abbildung 4.3.1: a) Resonanzfrequenz der Trionübergänge des Quantenpunktes (QDI) als Funktion der angelegten Magnetfeldstärke bei einer Gatespannung V_g von 0.333 V. Die gestrichelten Linien zeigen die Anpassungen nach Gleichung (2.2.11). b) Photolumineszenz-Messung als Funktion der Laserfrequenz und der Magnetfeldstärke am Quantenpunkt aus Kapitel 5 (QDII). Sowohl für das Exziton als auch für das Trion ist eine Zeeman-Aufspaltung und eine diamagnetische Verschiebung zu beobachten [Schulhauser03].

Mannel et al. [Mannel23] stellen in ihrer Veröffentlichung erste Messungen der Auger-Rate an einem selbstorganisierten Quantenpunkt im Magnetfeld vor. Dabei ist zu beachten, dass durch die Feinstrukturaufspaltung im Magnetfeld zwei Trionübergänge getrieben werden können. In der Veröffentlichung wurde sich für den energetisch höheren Übergang entschieden, da somit nicht über die andere Resonanz, während des Gatespannungspulses, gepulst wird. Dadurch dass nur ein

Trionübergang getrieben wird sind alle Prozesse, welche die Rabi-Oszillation unterbrechen, in der Transiente sichtbar. Nach dem theoretischen Modell von Dreiser et al. [Dreiser08] sind zwei weitere Übergänge möglich; die Spin-Flip-Raman-Streuung und der Spin-Flip.

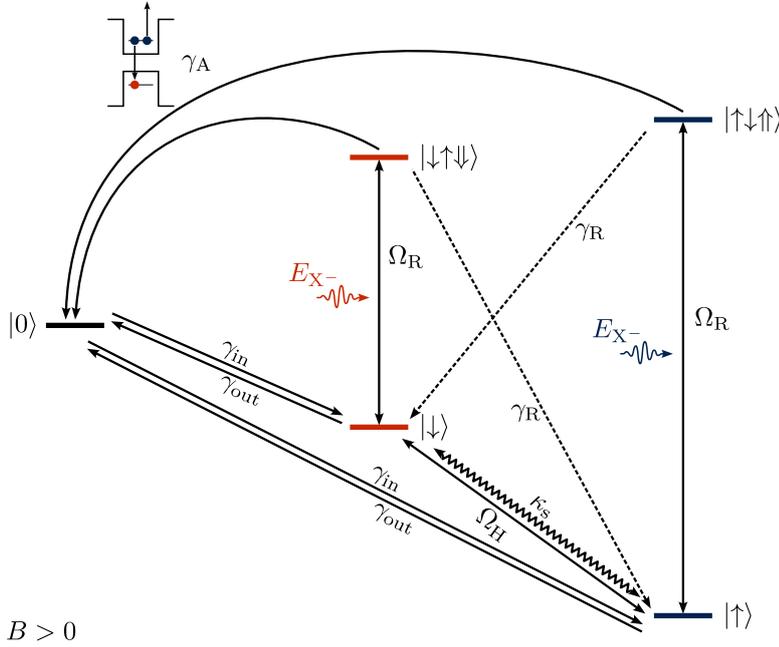


Abbildung 4.3.2: Schematische Darstellung des nicht-strahlenden Auger-Effekts im Magnetfeld. Das parallel zur Richtung des einfallenden Lichts angelegte Magnetfeld (Faraday-Geometrie) hebt die Spinentartung des s -Zustandes auf. Neben den bekannten Effekten wie der Tunnelrate des Elektrons $\gamma_{in} / \gamma_{out}$, der Auger-Rate γ_A und der Rabi-Oszillation Ω_R treten durch die Zeeman-Aufspaltung weitere mögliche Übergänge auf. Der Elektronenspin kann durch einen Spin-Flip entweder über die Spinrelaxation κ_s oder über die Wechselwirkung mit dem Hyperfeinfeld Ω_H geändert werden. Zusätzlich kann der angeregte Trionzustand über die Spin-Flip-Raman-Streuung γ_R in den Grundzustand des einfach-besetzten Quantenpunktes mit entgegengesetzten Spinkonfigurationen relaxieren.

pulses auf die z -Achse zu $\Delta J = \vec{j}_{z,|i\rangle} - \vec{j}_{z,|j\rangle}$. Die zwei Übergänge zwischen $\vec{j}_{z,|\uparrow\downarrow\rangle} = +3/2$ und $\vec{j}_{z,|\uparrow\rangle} = +1/2$ und zwischen $\vec{j}_{z,|\downarrow\uparrow\rangle} = -3/2$ und $\vec{j}_{z,|\downarrow\rangle} = -1/2$ ergeben einen Gesamtdrehimpuls von $\Delta J = \pm 1$, womit diese nach den Dipolwahlregeln optische erlaubt sind. Die zwei anderen Übergangsmöglichkeiten ergeben einen Gesamtdrehimpuls von $\Delta J = \pm 2$ und sind damit eigentlich optisch verboten. Dennoch können sie über die sogenannte Spin-Flip-Raman-Streuung beobachtet werden [Debus14, Fernandez09]. Im Gegensatz zur Raman-Streuung durch optische und akustische Phononen, bei der die Anfangs- und Endzustände gleich sind, aber die Anzahl der erzeugten oder vernichteten Phononen variiert, sind die Anfangs- und Endzustände bei der spontanen Spin-Flip-Raman-Streuung die unterschiedlichen Spinzustände der Elektronen und der Löcher. Die entsprechende Rate wird mit γ_R bezeichnet. Bei niedrigen Magnetfeldstärken sorgt die Hyperfeinwechselwirkung zwischen den Elektronenspins und den Kernspins für eine Mischung der Elektronenzustände, sodass dieser relativ schwache optische Übergang möglich wird. Für hohe Magnetfelder dominiert hingegen die magnetfeldunabhängige Mischung der leichten und schweren Lochzustände, da die Mischung der Elektronenzustände durch den Zeeman-Effekt immer schwächer wird. Die opti-

Abbildung 4.3.2 zeigt schematisch die möglichen Übergänge zwischen dem unbesetzten Quantenpunkt $|0\rangle$, den beiden einfach-besetzten Quantenpunkten ($|\uparrow\rangle$, $|\downarrow\rangle$) und den beiden angeregten Trionzuständen ($|\uparrow\downarrow\rangle$, $|\downarrow\uparrow\rangle$). Die Rabi-Frequenz Ω_R setzt sich zusammen aus der Anregungsrate und der Lebensdauer des angeregten Zustandes. Letztere ist für jeden Quantenpunkt unterschiedlich und wird in der Literatur in der Größenordnung von Nanosekunden angegeben (0.86 ns [Dalgarno06], 0.38 ns [Atatüre06]). Auch in dieser Arbeit konnte die Lebensdauer des angeregten Trionzustandes für den Quantenpunkt (QDII) im Kapitel 5 unter Vernachlässigung der reinen Dephasierungszeit T_2^* zu 0.35 ns bestimmt werden.

Um zu bestimmen, welche Übergänge des Vier-Niveau-Systems optisch erlaubt sind, wird die Änderung des Gesamtdrehimpulses ΔJ betrachtet. Der Gesamtdrehimpuls des Trions ergibt sich aus der Differenz der Projektionen des Gesamtdrehimpulses

schen Auswahlregeln sind dann für den Anteil der leichten Löcher mit $\vec{j}_z = \pm 1/2$ erfüllt [Dreiser08]. Eine weitere Möglichkeit ist der Spin-Flip zwischen den beiden einfach-besetzten Grundzuständen $|\uparrow\rangle$ und $|\downarrow\rangle$, der durch zwei Prozesse erreicht werden kann. Um die Energieerhaltung zu erfüllen, besteht für den Übergang einerseits die Möglichkeit der Erzeugung oder Vernichtung eines akustischen Phonons mit der Energie $E_{\text{ph}} = \mu_B g^* B$, wobei g^* der g -Faktor des Exzitons ist [Kroutvar04]. In diesem Fall mischt der Phonon Streuprozess die Zeeman-Niveaus über die Spin-Bahn-Wechselwirkung. Die Spinrelaxation wird durch die Rate κ_s beschrieben. Zum anderen erzeugen die Kerne der umgebenden Atome ein Magnetfeld, das sogenannte Hyperfeinfeld Ω_H (auch Overhauser-Feld genannt), das an den Spin des Elektrons koppelt [Dreiser08, Kuhlmann13, Urbaszek13]. Die schwachen Fluktuationen dieses Feldes können ebenfalls für niedrige Magnetfelder zu einem Spin-Flip führen [Warburton13].

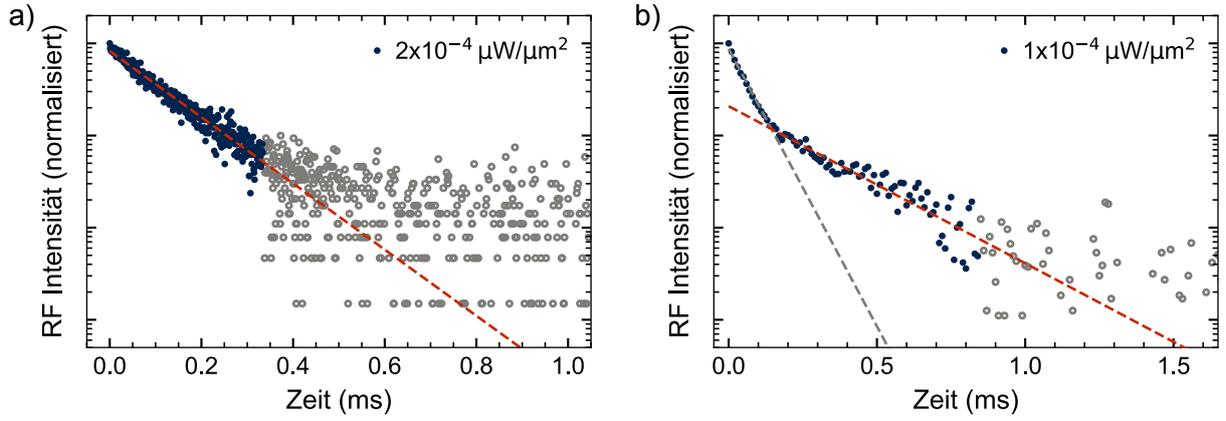


Abbildung 4.3.3: Vergleich der Transienten bei einer äußeren Magnetfeldstärke von 6 T zwischen a) der Zwei-Farben Anregung und b) der einfachen Trionanregung. Dargestellt ist jeweils die normierte RF Intensität als Funktion der Zeit für eine Anregungsintensität von $1 \times 10^{-4} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ pro verwendetem Laser. In a) wird eine einfache Exponentialfunktion, das heißt in logarithmischer Auftragung eine Funktion mit linearer Steigung (rote gestrichelte Linie) zur Anpassung verwendet. In b) wird die Summe zweier Exponentialfunktionen verwendet, das heißt in der logarithmischen Auftragung eine Funktion mit zwei linearen Steigungen (grau und rote gestrichelte Linie). Diese Daten wurden im Rahmen der Masterarbeit von Hendrik Mannel [Mannel20] an einem anderen Quantenpunkt auf derselben Probe erhoben und dienen hier dazu, die verschiedenen Messmethoden zu veranschaulichen.

Das in Abbildung 4.3.2 gezeigte System lässt sich für die resonante Anregung eines Trionübergangs in einem Drei-Niveau-System vereinfachen und damit durch die folgenden Ratengleichungen beschreiben:

$$\dot{P}_{|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle}(t) = 0.5\gamma_{\text{in}}P_{|0\rangle}(t) + \kappa_s P_{|\downarrow\rangle}(t) - (1-n)\kappa_s P_{|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle}(t) - n(\gamma_A + \gamma_R)P_{|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle}(t), \quad (4.3.1)$$

$$\dot{P}_{|\downarrow\rangle}(t) = 0.5\gamma_{\text{in}}P_{|0\rangle}(t) + (1-n)\kappa_s P_{|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle}(t) + n\gamma_R P_{|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle}(t) - \kappa_s P_{|\downarrow\rangle}(t), \quad (4.3.2)$$

$$\dot{P}_{|0\rangle}(t) = n\gamma_A P_{|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle}(t) - \gamma_{\text{in}}P_{|0\rangle}(t). \quad (4.3.3)$$

In der Veröffentlichung von Mannel et al. [Mannel23] und der Dissertation von Jens Kerski [Kerski23a] werden diese Gleichungen numerisch gelöst und an die Messdaten für die verschiedenen Magnetfelder angepasst. Die Auger-Rate γ_A ist ähnlich der in Abschnitt 4.2 gezeigten Messung ohne äußeres Magnetfeld in der Größenordnung von Mikrosekunden und nimmt mit steigender Magnetfeldstärke um einen Faktor 3 ab. Die Spin-Flip-Raman-Rate γ_R zeigt keine Abhängigkeit vom Magnetfeld und liegt ebenfalls in der Größenordnung von Mikrosekunden. Die Spinrelaxationsrate κ_s nimmt im Magnetfeld um mehr als eine Größenordnung zu und liegt im Bereich von Millisekunden [Mannel23, Kroutvar04, Lu10].

Mit Hilfe einer modifizierten Messmethode wurde in dieser Arbeit versucht, ausschließlich die magnetfeldabhängige Auger-Rate zu messen. Dazu wurden zeitaufgelöste gepulste Zwei-Farben Messungen für Magnetfeldstärken zwischen 0 T und 10 T durchgeführt. Unter der Annahme, dass die Auger-Rate für beide Trionübergänge gleich ist, ergibt sich ein stark vereinfachtes Zwei-Niveau-System, das den unbesetzten Quantenpunkt als nicht-strahlenden Zustand und die zusammengefassten Trionübergänge als strahlenden Zustand enthält. Für dieses System ist die Lösung der Ratengleichung wieder eine einfache Exponentialfunktion, identisch zu Gleichung (4.2.3). Abbildung 4.3.3 zeigt den Vergleich zwischen a) der Zwei-Farben Anregung und b) der einfachen Trionanregung, wie sie von Mannel et al. [Mannel23] verwendet wurde, für ein äußeres Magnetfeld von 6 T.

Das Pulsschema ist das gleiche wie in Abbildung 4.2.2, mit dem Unterschied, dass nun zwei Laser an den Quantenpunkt koppeln. Der erste Laser treibt weiterhin resonant das energetisch höhere Trion (*blaues Trion*). Der zweite Laser, der identisch gepulst wird, treibt resonant den energetisch niedrigeren Trionübergang (*rotes Trion*) (siehe Abb. 4.3.2). Durch die aktive Stabilisierung der Laserintensitäten werden beide Übergänge gleich stark angeregt. Zusätzlich werden, wie bereits in Abbildung 4.2.3b) gezeigt, für jedes Magnetfeld mehrere Messungen mit unterschiedlichen Anregungsintensitäten durchgeführt, um die Besetzungswahrscheinlichkeit der Trionresonanzen $n(\Delta\omega)$ aus der RF Intensität zum Zeitpunkt $t = 0$ bestimmen zu können. Anschließend wird der Mittelwert aller Auger-Raten für ein Magnetfeld bestimmt.

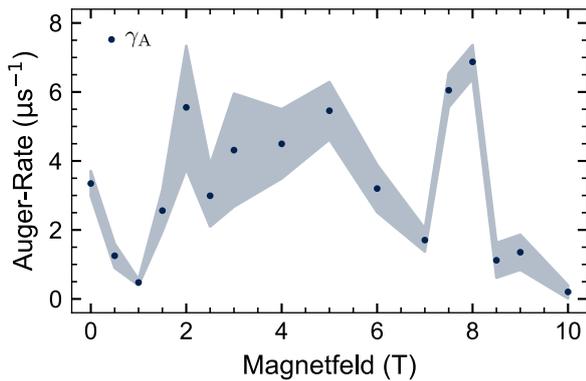


Abbildung 4.3.4: Mittlere Auger-Rate γ_A als Funktion der Magnetfeldstärke bis zu 10 T. Der blau hinterlegte Bereich zeigt die Standardabweichung der gemittelten Auger-Rate, die wie in Abb. 4.2.3b) gezeigt, über die verschiedenen Anregungsintensitäten berechnet wurde. Für jeden Datenpunkt wurde die Elektronenemissionsrate γ_{ee} und die Besetzungswahrscheinlichkeit des Trionübergangs $n(0)$ über die Zwei-Farben-Anregung bestimmt.

Funktion der Magnetfeldstärke dargestellt. Zur Bestimmung der Auger-Rate wurden zunächst für jedes Magnetfeld, mit Hilfe der Zwei-Farben Anregung, Messungen für Anregungsintensitäten zwischen $8.1 \times 10^{-5} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ und $2.0 \times 10^{-1} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ durchgeführt. Aus den exponentiell abfallenden Transienten wurde zum einen die anregungsabhängige RF Intensität zum Zeitpunkt $t = 0$ zur Bestimmung der Besetzungswahrscheinlichkeit extrahiert (siehe Abb. 4.2.3a)) und zum anderen durch Anpassung der Gleichung (4.2.3) die Elektronenemissionsrate γ_{ee} bestimmt. Mit diesen beiden Größen wurde dann die gemittelte magnetfeldabhängige Auger-Rate γ_A bestimmt.

Wie bereits aus den Lösungen der Ratengleichung hervorgeht, kann unter den oben getroffenen Annahmen die Transiente in a) mit einer einfachen Exponentialfunktion und der besetzungsabhängigen Auger-Rate als Exponent dieser Funktion beschrieben werden. Die Transiente in b) kann dagegen mit einer Biexponentialfunktion beschrieben werden, deren Exponenten sich aus der Spinrelaxationsrate κ_s , der besetzungsabhängigen Spin-Flip-Raman-Rate γ_R und der besetzungsabhängigen Auger-Rate γ_A zusammensetzen. In der Zwei-Farben Anregung werden beide Laser auf die selbe Anregungsintensität von $1 \times 10^{-4} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ stabilisiert, da unter der Annahme dass die anregungsintensitätsabhängige Besetzungswahrscheinlichkeit für beide Trionübergänge identisch ist, so die Übergänge gleich stark getrieben werden. Der Vergleich der beiden Messmethoden zeigt, dass diese Annahmen zutreffen und dass das vereinfachte Zwei-Niveau-System mit der monoexponentiellen Lösung die Transienten gut abbildet.

In Abbildung 4.3.4 ist die Auger-Rate γ_A als

Wie bereits von Mannel et al. [Mannel23] beobachtet, nimmt die Auger-Rate beim einschalten des äußeren Magnetfeldes um etwa eine Größenordnung ab ($\gamma_A(0\text{ T}) = 3.3\text{ }\mu\text{s}^{-1} \rightarrow \gamma_A(10\text{ T}) = 0.2\text{ }\mu\text{s}^{-1}$). Aufgrund der viel größeren Anzahl an Datenpunkten sind in dieser Arbeit jedoch deutlich mehr Schwankungen in der Messung zu erkennen. Diese könnten auf die Bestimmung der Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions zurückzuführen sein. Insbesondere für Anregungsintensitäten im Bereich der Sättigung ($n(0) = 0.5$) ist die Anpassung an die Daten sehr ungenau. Dies liegt daran, dass der Trionzustand nicht immer vollständig gesättigt werden konnte. Wie bereits im vorherigen Abschnitt beschrieben, ist die Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions für den Vergleich der Auger-Raten essentiell und hat daher einen großen Einfluss auf die Genauigkeit der Daten.

Möglicherweise sind diese Schwankungen der Auger-Rate für einen Quantenpunkt in einem äußeren Magnetfeld aber auch auf einen physikalischen Effekt zurückzuführen. In bisher unveröffentlichten spektral aufgelösten Messungen im Rahmen der Masterarbeit von Nico Schwarz konnten diese Schwankungen auch für noch mehr Datenpunkte beobachtet werden. Außerdem steht die Beobachtung, dass die Auger-Rate mit steigender Magnetfeldstärke abnimmt, im Widerspruch zu der Erwartung, dass die Auger-Rate durch den größeren Ladungsträgerüberlapp aufgrund der höheren Magnetfeldstärke ansteigt [Rabouw15]. Jedoch ist, laut Fermi's Goldener Regel, die Übergangsrate proportional zur Kopplung zwischen dem Anfangs- beziehungsweise dem Endzustand und der Zustandsdichte ist, sodass vermutlich der Endzustand im Leitungsband des gestreuten Elektrons eine entscheidende Rolle spielt. Da dieser bisher weder experimentell noch theoretisch untersucht wurde und auch mit dem in diesem Kapitel gezeigten Effekt nur schwer zugänglich ist, wird im Kapitel 6 versucht, dem Endzustand des Elektrons über die interne Photoemission auf die Spur zu kommen.

4.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde mittels zeitaufgelöster resonanter Fluoreszenz der nicht-strahlende Auger-Effekt als Funktion der Magnetfeldstärke eines extern angelegten Magnetfeldes in Faraday-Geometrie untersucht. Die Spinentartung des Trionzustandes wird im Magnetfeld aufgehoben, sodass weitere Übergänge zwischen den beiden Spinkonfigurationen wie die Spin-Flip-Raman Streuung oder der Spin-Flip des Elektrons möglich sind. Mit Hilfe der resonanten Zwei-Farben Anregung beider Trionübergänge konnten diese unerwünschten Übergänge herausgefiltert werden, sodass nur die Elektronenemissionsrate γ_{ee} in Abhängigkeit von der Magnetfeldstärke gemessen wurde. Diese ist direkt an die Besetzungswahrscheinlichkeit des angeregten Trionzustandes $n(\Delta\omega)$ gekoppelt, die aus der Anfangsintensität zum Zeitpunkt $t = 0$ der exponentiell abfallenden Transienten bestimmt werden kann. Aufgrund der schwachen Kopplung zwischen dem Elektronenreservoir und den Quantenpunkten, die durch die Dicke der Tunnelbarriere gegeben ist, liegt die Tunnelrate im Bereich von Millisekunden. Dies ist deutlich höher als die Auger-Rate, die im Bereich von Mikrosekunden liegt. Erst dieser Unterschied macht den Auger-Effekt, der die Quantenausbeute der Trionresonanz deutlich reduziert, sichtbar [Kurzmann16a].

Für den Auger-Effekt in Abhängigkeit von der Magnetfeldstärke ergeben sich stark schwankende Raten mit einem allgemein abfallenden Trend bei steigender Magnetfeldstärke (siehe auch Mannel et al. [Mannel23]). Diese Schwankungen könnten zum Beispiel auf die schwierige Bestimmung der Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions zurückzuführen sein. Neuere, noch unveröffentlichte Messungen im Rahmen der Masterarbeit von Nico Schwarz zeigen diese Schwankungen der Rate jedoch auch in einer spektral aufgelösten Messung. Eine weitere Fehlerquelle ist die Annahme, dass die Auger-Rate für beide Trionübergänge identisch ist und diese daher in den Ratengleichungen zu einer Rate zusammengefasst werden können. Ein experimenteller oder theoretischer Nachweis dafür steht noch aus. Eine theoretische Beschreibung der Magnetfeldabhängigkeit steht ebenfalls noch aus, da sich die Berechnung des Übergangs des Elektrons in den Endzustand als sehr schwierig erweist.

Nicht-Gleichgewichts-Tunneldynamik von einzelnen Elektronen

In diesem Kapitel wird die Tunneldynamik eines Elektrons aus dem Elektronenreservoir in einen einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkt beschrieben, wobei die Besetzung des Quantenpunktes mit Hilfe von zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenz Messungen optisch detektiert wird. Die Tunnelwahrscheinlichkeit des Elektrons zwischen dem Elektronenreservoir und den Zuständen im Leitungsband des Quantenpunktes kann über eine angelegte Spannung V_g zwischen dem Elektronenreservoir und dem oberen Gate sehr genau eingestellt werden (siehe Abb. 2.2.5). Aufgrund der dicken Tunnelbarriere von 45 nm wird diese Spannung durch eine Rechteckfunktion mit einer Pulslänge im Bereich von Millisekunden modelliert. Es ergeben sich die Raten für das Tunneln in den Quantenpunkt γ_{in} und zurück in das Elektronenreservoir γ_{out} . In früheren Arbeiten von Kurzmann et al. [Kurzmann19] und Marquardt et al. [Marquardt11] wurden bereits Tunneldynamiken an einzelnen Quantenpunkten im Bereich des s_1 -Elektronenzustandes (Übergang zwischen Exziton und Trion) und an einem Ensemble aus Quantenpunkten beobachtet. Die gezielte Einstellung der Resonanzfrequenz des Anregungslasers, entlang der Verschiebung der Exzitonresonanz, aufgrund des Stark-Effekts, ermöglicht nun eine hohe energetische Auflösung der Tunneldynamik. Zunächst werden einige Messungen zur Charakterisierung des Quantenpunktes (QDII) durchgeführt, da sich dieser vom bisherigen Quantenpunkt (QDI) aus Kapitel 4 unterscheidet.

Die in diesem Kapitel gezeigten Daten, Abbildungen und Formulierungen wurden teilweise bereits im Rahmen einer Publikation [Zöllner24] veröffentlicht.

5.1 Photolumineszenz-Spektroskopie des selbstorganisierten Quantenpunktes

In den folgenden Abschnitten werden verschiedene Messungen an einem selbstorganisierten InAs-Quantenpunkt (QDII) durchgeführt, welcher sich auf der Probe *BO14318* befindet (siehe Details zur Probenstruktur in Abb. 3.1.1).

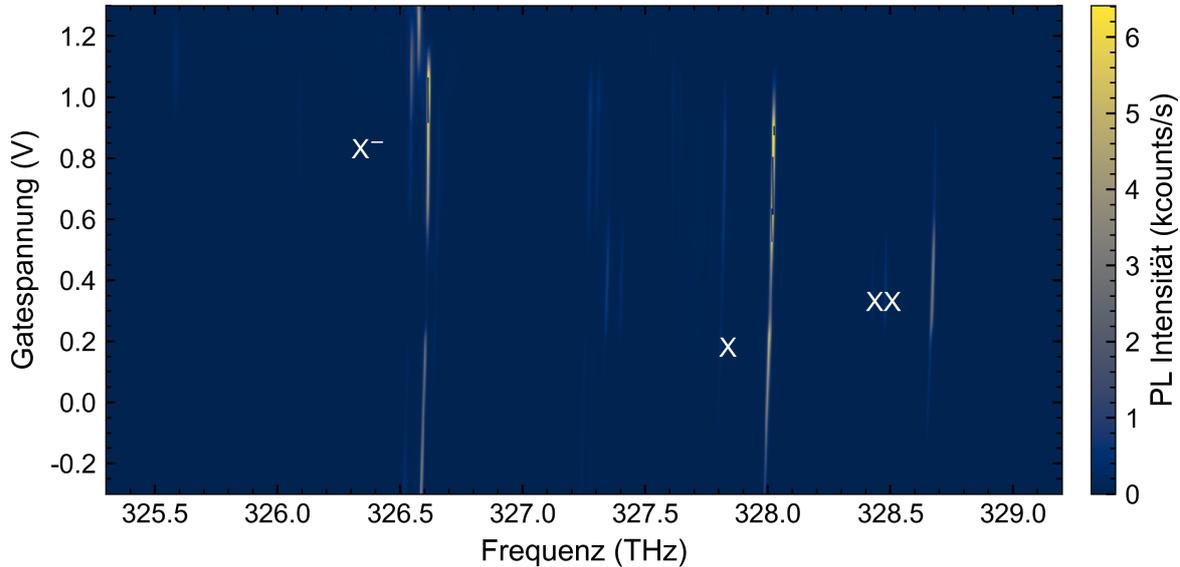


Abbildung 5.1.1: Photolumineszenz-Spektrum des Quantenpunktes auf der Probe *BO14318* in Abhängigkeit von der angelegten Spannung V_g zwischen dem Elektronenreservoir und dem oberen Gate. Der Quantenemitter wurde mit einem Dauerstrichlaser mit einer Wellenlänge von 785 nm und einer Anregungsintensität von $10,0 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ angeregt. Die Farbskala stellt die Photonenergebnisse pro Sekunde auf dem ladungsgekoppeltem Silizium-Sensor (CCD) des Spektrometers dar. Es lassen sich hier drei optische Übergänge zuordnen: das Trion X^- , das neutrale Exziton X und das Biexziton XX .

Mit Hilfe der Photolumineszenz-Spektroskopie (siehe Details in Abschnitt 3.3.1) werden die verschiedenen Quantenpunkte auf der Probe identifiziert. Da jeder Quantenpunkt durch seine Form und Größe definierte quantisierte Energieniveaus besitzt, werden diese auch als *Fingerabdruck* des Quantenpunktes bezeichnet. Dieser Fingerabdruck wird mit Hilfe einer gatespannungsabhängigen Photolumineszenz Messung, wie sie in Abbildung 5.1.1 dargestellt ist, identifiziert [Warburton00]. Die Anregung des Quantenemitters erfolgt mit einem Dauerstrichlaser (engl. *continuous wave laser*, *CW*) mit einer Wellenlänge von 785 nm und einer Anregungsintensität von $10,0 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$. So können hier bis zu drei optisch-aktive Übergänge zugeordnet werden. Das negativ-geladene Trion X^- befindet sich im Bereich von 0,5 V bis 1,1 V und bei einer Übergangsfrequenz von 325,97 THz. Das neutrale Exziton X befindet sich im Bereich von -0,2 V bis 0,5 V und bei einer Übergangsfrequenz von 327,60 THz und das neutrale Biexziton XX im Bereich von 0,2 V bis 0,6 V und bei einer Übergangsfrequenz von 328,15 THz. Die beiden ersten optischen Übergänge werden im Verlauf dieses Kapitels näher untersucht und als optische Detektion für die zeitaufgelösten Messungen verwendet. Mit Hilfe dieser Photolumineszenz Messung können bereits die Frequenzen und die zugehörigen Gatespannungsbereiche für die optischen Übergänge abgeschätzt werden. Dies erleichtert die Suche nach den genauen Resonanzfrequenzen des Trions X^- und des Exzitons X für die folgenden Messungen erheblich. Außerdem kann hier bereits der Stark-Effekt für die verschiedenen Elektron-Loch-Paare beobachtet werden.

5.2 Exzitonübergang im Gleichgewicht

Als Vorbereitung für die zeitaufgelösten Messungen werden im Folgenden die Gleichgewichtsmessungen (Integrationszeit von 1 s) an den zwei optisch-aktiven Exzitonübergängen erläutert. Die spektrale Auflösung des Gittermonochromators reicht nicht aus um die beiden Exzitonen voneinander getrennt zu beobachten. Zunächst wird daher eine 2D-Farbgrafik, siehe Abbildung 5.2.1, erstellt, bei der die Anregungsfrequenz als Funktion der Gatespannung V_g und der RF Intensität aufgetragen ist. Der resonante Anregungslaser wird automatisiert in seiner Frequenz im Bereich von 327.358 THz bis 327.388 THz in Frequenzschritten von 1 GHz mit einer stabilisierten Anregungsintensität von $2 \times 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ durchgeföhren. Dabei lassen sich im Bereich I von -0.1 V bis 0.5 V zwei Exzitonübergänge (*blaues Exziton* energetisch größer; *rotes Exziton* energetisch kleiner) mit einer maximalen RF Intensität von $61.7 \times 10^3 \text{ counts/s}$ beobachten. In diesem Bereich ist der Quantenpunkt unbesetzt, das heißt die angelegte Spannung reicht nicht aus um die Leitungsbandstruktur soweit zu verkippen, dass eine Elektron aus dem Reservoir in den Quantenpunkt tunneln kann (siehe Abb. 2.2.5). Die höchste gemessene RF Intensität für dieses Exziton lag bei etwa $1.0 \times 10^6 \text{ counts/s}$ mit einer Anregungsintensität von $2 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$.

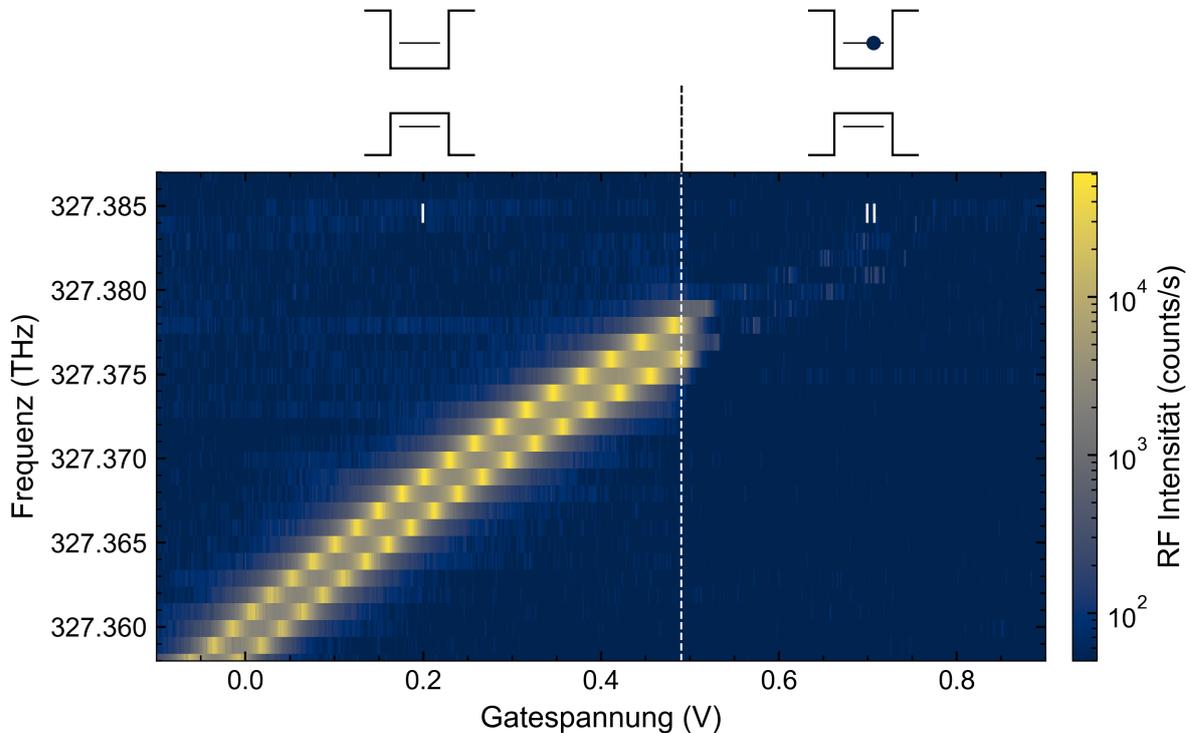


Abbildung 5.2.1: Resonante Fluoreszenz am Exzitonübergang abhängig von der angelegten Gatespannung und der Anregungsfrequenz des Lasers. Dieser treibt die beiden optisch-aktiven Exzitonen mit einer Anregungsintensität von $2 \times 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$. Die Farbskala stellt logarithmisch die Photonenergebnisse pro Sekunde auf der Photodiode (APD) dar. Im Bereich I ist der Quantenpunkt unbesetzt, das heißt es befinden sich keine Elektronen in den Zuständen des Quantenpunktes. Somit kann in dem gezeigten Frequenzbereich das neutrale Exziton angeregt werden. Im Bereich II ist die angelegte Gatespannung bereits so groß, dass ein Elektron vom Elektronenreservoir in den s_1 -Zustand des Quantenpunktes tunneln kann, sodass dieser einfach besetzt ist. In dem gezeigten Frequenzbereich ist durch das zusätzliche Elektron eine Anregung des neutralen Exzitons eigentlich nicht möglich. Der interne Photoeffekt [Lochner21b] sorgt jedoch dafür, dass das Elektron den Quantenpunkt verlassen kann und das Exziton angeregt werden kann (siehe Abschnitt 2.3.3).

Im Bereich II, oberhalb von 0.5 V, ist die Bandstruktur durch die angelegte Spannung bereits so weit nach unten gedrückt, dass ein Elektron aus dem Reservoir in den s_1 -Zustand tunneln kann. Durch die Anwesenheit eines Elektrons im Quantenpunkt ist es nicht mehr möglich in diesem Energiebereich ein Elektron-Loch-Paar zu erzeugen. Der interne Photoeffekt [Lochner21b] sorgt jedoch dafür, dass das Elektron durch die Absorption eines Photons den Quantenpunkt verlassen kann, wodurch kurzzeitig, bis das nächste Elektron in den Quantenpunkt tunnelt, der Exzitonübergang getrieben werden kann (siehe Abschnitt 2.3.3. Als Ergebnis lässt sich die Exzitonresonanz im *verbotenen* Bereich beobachten (siehe Abb. 5.2.1). Dieser Effekt und damit auch die RF Intensität des Exzitons ist abhängig von der Anregungsleistung des Lasers. Im Kapitel 6 werden ausführliche Messungen bezüglich des internen Photoeffektes an demselben Quantenpunkt gezeigt. Für die im Folgenden gezeigten zeitaufgelösten Messungen am Exzitonübergang wird üblicherweise der energetisch größere Übergang (*blaues Exziton*) verwendet, sodass sich im Bereich des Gatespannungspulses keine weiteren optisch-aktiven Übergänge befinden. Dadurch wird nicht über sie hinweg gepulst und die Transienten wird nicht durch eine weitere strahlende Rekombination beeinflusst. Aus diesen Gleichgewichtsmessungen kann nun die Stark-Verschiebung (siehe Details im Abschnitt 2.2.3) berechnet werden. Dazu wird an alle Messungen eine Lorentz-Verteilung angepasst und die Position des Maximums gegen die Anregungsfrequenz aufgetragen, siehe Abbildung 5.2.2a) [Houel12].

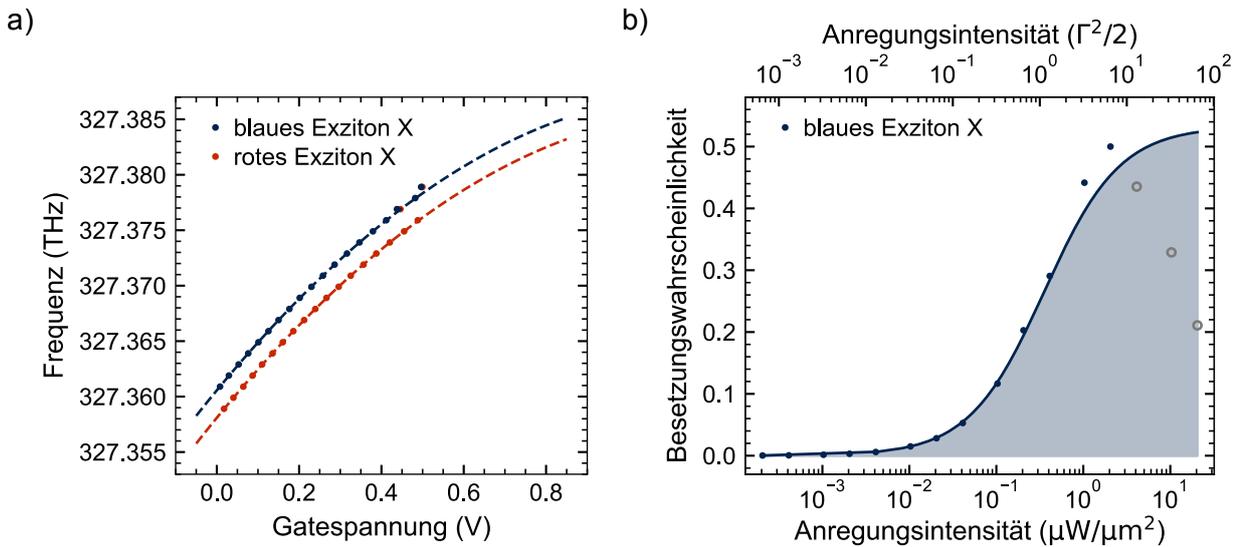


Abbildung 5.2.2: a) Stark-Verschiebung der Exzitonübergänge (*blaues Exziton*, *rotes Exziton*) in Abhängigkeit der angelegten Gatespannung V_g und der Anregungsfrequenz. Die gestrichelte Linie gibt die Anpassung nach Gleichung (5.2.1) an. Als Anpassungsparameter für das im Folgenden verwendete blaue Exziton ergeben sich $a = -0.019$, $b = 0.045$ und $c = 327.361$. b) Besetzungswahrscheinlichkeit $n(0)$ des angeregten blauen Exzitons in Abhängigkeit der Anregungsintensität, angegeben in Einheiten von $\mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ unten und $\Gamma^2/2$ oben.

Anschließend kann an diese Datenpunkte eine quadratische Anpassungsfunktion der Form:

$$f(V_g) = aV_g^2 + bV_g + c, \quad (5.2.1)$$

mit $a = -0.019$, $b = 0.045$ und $c = 327.361$ für das blaue Exziton, angepasst werden. Diese Parameter sind für die spätere automatisierte Anpassung der Resonanzfrequenz sehr wichtig, weshalb hier auch eine hohe Gatespannungsaufösung und Frequenzauflösung für die 2D-Farbgrafik gewählt wurde. Außerdem können so auch die Exzitonfrequenzen oberhalb von 0.5 V akkurat extrapoliert werden.

Da viele der hier gezeigten Effekte von der Besetzung des angeregten Zustandes abhängig sind, wird im Folgenden die anregungsintensitätsabhängige Besetzungswahrscheinlichkeit des Exzitons aufgenommen. Dafür wird die Laserfrequenz resonant auf den energetisch höheren, blauen Exzitonübergang eingestellt und schrittweise die Anregungsintensität erhöht. Mit Hilfe des in den Strahlengang eingebauten akusto-optischen-Modulators (AOM), einer Photodiode und eines PID-Reglers (siehe Abschnitt 3.2) lässt sich die Anregungsintensität einstellen und stabilisieren. Dazu wird der akusto-optische-Modulator in die 0te-Ordnung eingekoppelt und die Laserleistung über die Photodiode ausgelesen. Anschließend werden die Photonenergebnisse gegen die Anregungsintensität für den energetisch größeren Exzitonübergang in Abbildung 5.2.2b) aufgetragen. Dabei ist die Anregungsintensität (x-Achse) in Einheiten von $\mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ (unten) und in Einheiten der spontanen Emissionsrate, die sich aus der Rabi-Frequenz ergibt [Fox06], von $\Gamma^2/2$ (oben) angegeben (siehe Abschnitt 4.1 und Gl. (4.1.3)). Als Anpassung an die Datenpunkte wird wieder die vereinfachte Gleichung (4.1.1) für die Besetzungswahrscheinlichkeit verwendet.

Für Anregungsintensitäten größer als $2.1 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2 \hat{=} 6.4 \Gamma^2/2$ lässt sich in Abbildung 5.2.2b) erneut der Elektroneneinfang durch die Photoemission eines Elektrons aus dem Reservoir in den Quantenpunkt beobachten (siehe Abschnitt 2.3 und Kurzmann et al. [Kurzmann16b]). Die Besetzungswahrscheinlichkeit fällt hier ab, anstatt dass sie wie für eine ungestörte Anregung zu erwarten wäre auf $1/2$ sättigt.

5.3 Zeitaufgelöste Messungen am Exzitonübergang

Für die zeitaufgelösten Messungen der Tunnelraten des Elektrons wird ein Pulsschema verwendet, welches die Gatespannung zwischen V_i und V_X pulst. Dabei ist V_i die Präparationsspannung, die so gewählt werden muss, dass die Tunnelwahrscheinlichkeit des Elektrons in den Quantenpunkt möglichst gering ist und der Quantenpunkt im Anfangszustand unbesetzt ist. Die Spannung V_X wird im Verlauf der Messreihe linear verschoben, um die gatespannungsabhängigen Tunnelraten zu messen. Die Detektion der Besetzung des s_1 -Zustandes durch ein Elektron im Quantenpunkt, und damit ob ein Elektron in den Quantenpunkt getunnelt ist, erfolgt durch das optische Auslesen des Exzitonübergangs. Diese optische Anregung ist nur möglich, wenn der Quantenpunkt s_1 -Zustand unbesetzt ist. Die eingestellte Frequenz des Anregungslasers muss dabei immer so gewählt werden, dass diese mit der gatespannungsabhängigen Frequenz des Exzitons übereinstimmt. Die passende Frequenz wird mit Hilfe der Stark-Verschiebung für jedes V_X bestimmt (siehe Gl. (5.2.1)) und eingestellt.

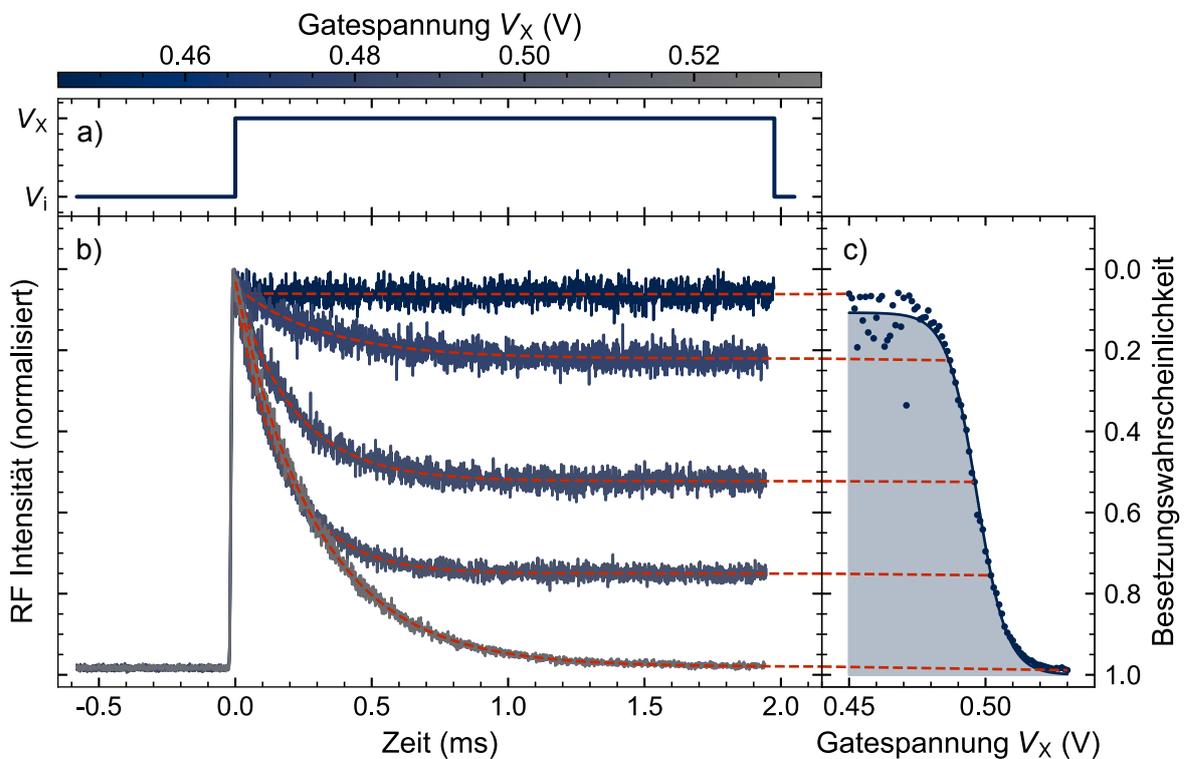


Abbildung 5.3.1: a) Rechteckiges Pulsschema zwischen der Präparationsspannung V_i und der resonanten Spannung des Exzitons V_X , mit einer Pulslänge von 2 ms. b) Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz für verschiedene Spannungen V_X und deren passenden resonanten Exzitonfrequenzen in Abhängigkeit des in Abbildung 5.3.1a) gezeigten Pulsschemas. Die RF Intensität wird auf die Anfangsintensität zum Zeitpunkt $t = 0$ normiert. Anschließend wird eine Anpassung nach Gleichung (5.3.3) (rote gestrichelte Linien) vorgenommen. c) Besetzungswahrscheinlichkeit des s_1 -Zustandes durch ein Elektron in Abhängigkeit von der angelegten Gatespannung V_X . Die Datenpunkte entsprechen der Sättigung (Grenzfall $t \rightarrow \infty$, Gl. (5.3.4)) der Transienten aus Abbildung 5.3.1b). Die blaue Linie beschreibt die Anpassung an die Daten durch eine Fermi-Verteilung nach Gleichung (5.3.5).

Die Unterdrückung des reflektierten Laserlichts über die gekreuzten Polarisatoren wird nicht automatisch nachgeführt, jedoch wird der Laser nur in einem sehr kleinen Frequenzbereich bewegt, was die Unterdrückung nur geringfügig verändert. Des Weiteren werden die durch das reflektier-

te Laserlicht detektierten Ereignisse bei der Auswertung herausgerechnet. Die Laserleistung zur Anregung des Exzitons wird aktiv, mit Hilfe eines akusto-optischen-Modulators in 0ter-Ordnung, auf eine Anregungsintensität von $2 \times 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2 \hat{=} 6 \times 10^{-2} \Gamma^2/2$ stabilisiert. Dies entspricht einer Besetzung des angeregten Exzitonzustands von $n(0) = 0.03$ (siehe Abb. 5.2.2b)). In Abbildung 5.3.1a) ist das mit einem Funktionsgenerator [Keysight] erzeugte Pulsschema dargestellt. Die Präparationsspannung V_i wird immer konstant auf 0.0 V eingestellt, die Spannung V_X hingegen wird in einem Bereich zwischen 0.45 V und 0.70 V, mit der passenden resonanten Exzitonfrequenz zwischen 327.376 THz und 327.382 THz, verfahren. Um die Statistik der Tunnelereignisse zeitlich auflösen zu können wird das Pulsschema pro Messung N -mal wiederholt und die Ereignisse aufsummiert. In Abbildung 5.3.1b) ist diese Statistik ($N = 50000$) für verschiedene Spannungen V_X , mit der entsprechenden Exzitonfrequenz, dargestellt. Dabei ist zu beachten, dass durch die Präparation eines unbesetzten Quantenpunktes, die Intensität zum Zeitpunkt $t = 0$ der reinen Rekombinationsintensität des Exzitons entspricht, wodurch sich diese auch für die Normierung eignet. Da ein in den Quantenpunkt getunneltes Elektron die Anregung des Exzitons blockiert, nimmt die Intensität danach mit der Zeit exponentiell ab.

Die Anpassungsfunktion (dargestellt durch die rote gestrichelten Linien in Abb. 5.3.1b)) kann aus einem einfachen Ratenmodell für ein Zwei-Niveau-System der Form:

$$\dot{P}_{|\uparrow\downarrow\rangle}(t) = \gamma_{\text{out}}P_{|\uparrow\rangle}(t) - \gamma_{\text{in}}P_{|\uparrow\downarrow\rangle}(t), \quad (5.3.1)$$

$$\dot{P}_{|\uparrow\rangle}(t) = -\dot{P}_{|\uparrow\downarrow\rangle}(t), \quad (5.3.2)$$

mit der Anfangsbedingung $P_{|\uparrow\downarrow\rangle}(0) = 1$ abgeleitet werden:

$$P_{|\uparrow\downarrow\rangle}(t) = \frac{\gamma_{\text{out}} + \gamma_{\text{in}} \cdot e^{-(\gamma_{\text{out}} + \gamma_{\text{in}})t}}{\gamma_{\text{out}} + \gamma_{\text{in}}}, \quad (5.3.3)$$

wobei γ_{in} die Tunnelrate für ein Elektron aus dem Elektronenreservoir in den Quantenpunkt und γ_{out} die Tunnelrate für ein Elektron zurück aus dem Quantenpunkt ins Elektronenreservoir ist. Die Tunnelraten γ_{in} und γ_{out} bleiben freie Anpassungsparameter. Für den Grenzfall $t \rightarrow \infty$ ergibt sich das Verhältnis:

$$P_{|\uparrow\downarrow\rangle}(t \rightarrow \infty) = \frac{\gamma_{\text{out}}}{\gamma_{\text{out}} + \gamma_{\text{in}}}, \quad (5.3.4)$$

welches die Besetzungswahrscheinlichkeit des s_1 -Zustandes durch ein Elektron angibt [Kurzmann16c]. Diese Besetzungswahrscheinlichkeit folgt, wie in Abbildung 5.3.1c) dargestellt ist, der Fermi-Dirac-Statistik des Elektronenreservoirs [Luyken99] und kann mit Hilfe der Fermi-Verteilung angepasst werden [Medeiros-Ribeiro95]:

$$f(V_X) = \frac{f_0}{e^{\frac{1}{h} \frac{(V_X - \mu)e}{k_B T}} + 1} \quad (5.3.5)$$

Hier entspricht μ dem chemischen Potential des Elektronenreservoirs, k_B der Boltzmann-Konstante, T der Temperatur des Elektronenreservoirs, e der Elementarladung und h dem probenspezifischen Hebelarm der Leitungsbandstruktur (siehe Abschnitt 2.2.3). Als Anpassungsparameter werden die Temperatur, das chemische Potential, sowie der zusätzlich eingeführte Parameter f_0 variabel gehalten.

Die Messmethode, bei der ein unbesetzter Quantenpunkt präpariert wird, ist sehr empfindlich für Tunnelraten bei Spannungen oberhalb des chemischen Potentials μ , da der Verlauf in diesem Bereich einer wohldefinierten exponentiellen Abnahme der Intensität entspricht. Für Spannungen unterhalb des chemischen Potentials μ fällt die Intensität aufgrund der geringen Tunnelwahrscheinlichkeit eines Elektrons in den Quantenpunkt, nicht ausreichend stark ab, sodass die Bestimmung der Tunnelraten mit einem größeren Fehler behaftet ist. Dieser Fehler wird durch den zusätzlich eingeführten Parameter f_0 kompensiert. Experimentell kann dieser Fehler für kleine Spannungen

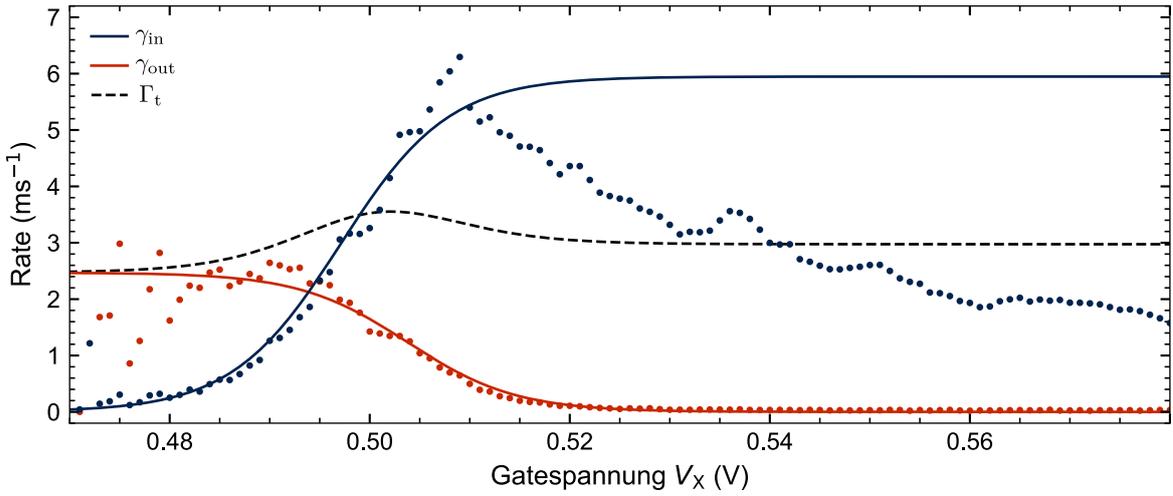


Abbildung 5.3.2: Tunnelrate für ein Elektron in den Quantenpunkt γ_{in} und Tunnelrate für ein Elektron aus dem Quantenpunkt heraus γ_{out} in Abhängigkeit der Gatespannung V_X . Mit Hilfe der aus Abbildung 5.3.1c) berechneten Temperatur von 4.15 K, der Gatespannung von 0.5 V und der Gleichung (5.3.7) bzw. (5.3.6) können die zwei Anpassungen (blaue Linie bzw. rote Linie) erstellt werden. Die gestrichelte schwarze Linie gibt dabei die Summe der beiden Anpassungen an (siehe Gl. (5.3.8)), was hier der intrinsischen Tunnelrate Γ_t entspricht.

durch ein Pulsschema kompensiert werden, bei dem der s_1 -Zustand des Quantenpunktes einfachbesetzt präpariert wird (umgekehrtes Pulsschema bzw. Exzitonfrequenz im Bereich I), und so das Tunneln zurück in das Elektronenreservoir detektiert wird.

Die Anpassung an die Daten nach Gleichung (5.3.5), dargestellt in Abbildung 5.3.1c) durch die blaue Linie, und mit Hilfe des in Abschnitt 2.2.3 berechneten Hebelarms der Leitungsbandstruktur von 15.2 ergibt sich für das GaAs:Si Elektronenreservoir eine Temperatur von (4.15 ± 0.12) K. Diese stimmt sehr gut mit der Temperatur von flüssigem Helium bei Normaldruck (4.15 K) überein, welches sich als Kühlmittel im verwendeten Badkryostaten befindet. Weiterhin ergibt sich aus der Anpassung, dass der s_1 -Zustand bei einer Gatespannung von 0.497 V in Resonanz mit dem chemischen Potential des Elektronenreservoirs ist. Außerdem befinden sich bei dieser Gatespannung die Wahrscheinlichkeiten für einen Tunnelprozess in den Quantenpunkt γ_{in} und aus dem Quantenpunkt heraus γ_{out} im Gleichgewicht, sodass der s_1 -Zustand 50% der Zeit besetzt ist.

In Abbildung 5.3.2 sind die Tunnelraten γ_{in} und γ_{out} in Abhängigkeit der Gatespannung V_X gezeigt. Jeder Datenpunkt repräsentiert dabei eine exponentiell abflachende Transiente mit $N = 50000$ Pulsen und einer Anpassungsfunktion nach Gleichung (5.3.3), wie es in Abbildung 5.3.1b) beispielhaft dargestellt ist. Für kleine Spannungen V_X bis 0.51 V, lässt sich beobachten dass mit steigender angelegter Spannung die Tunnelrate vom Elektronenreservoir in den Quantenpunkt γ_{in} steigt. Aufgrund der Spin-Entartung des unbesetzten Quantenpunktes, gibt es für das Elektronentunneln in den Quantenpunkt zwei Kanäle (Elektronenspin: $+1/2$, $-1/2$), wohingegen es für das Tunneln aus dem Quantenpunkt heraus nur einen Kanal gibt. Diese Entartung lässt sich auch in den experimentellen Daten beobachten. Die maximale Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{in} von 6.3 ms^{-1} ist um etwa einen Faktor zwei größer, als die Tunnelrate in das Elektronenreservoir γ_{out} von 2.6 ms^{-1} . Dieses Ergebnis stimmt sehr gut mit den vorherigen Beobachtungen von Beckel et al. [Beckel14] und Kurzmann et al. [Kurzmann16a] überein. Allgemein gilt für die Tunnelraten:

$$\gamma_{\text{out}}(E) = d_{\text{out}} \cdot \Gamma_t \cdot (1 - f(E)), \quad (5.3.6)$$

$$\gamma_{\text{in}}(E) = d_{\text{in}} \cdot \Gamma_t \cdot f(E), \quad (5.3.7)$$

$$\Gamma_t = \frac{1}{2}\gamma_{\text{in}} + \gamma_{\text{out}}, \quad (5.3.8)$$

wobei $d_{\text{out}} = 1$ und $d_{\text{in}} = 2$ die Zahl der möglichen Tunnelkanäle für das Tunneln in das Elektronenreservoir beziehungsweise in den Quantenpunkt ist und $f(E)$ die energieabhängige Fermi-Funktion des Elektronenreservoirs ist. Die Tunnelwahrscheinlichkeit durch die (AlGa)As Tunnelbarriere wird über die intrinsische Tunnelrate Γ_t eingebunden. Diese Rate lässt sich über Fermi's Goldene Regel wie folgt beschreiben [Fermi74, Dirac27]:

$$\Gamma_t(i \rightarrow f) = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f | H | i \rangle|^2 \rho_f, \quad (5.3.9)$$

hierbei ist $\langle f | H | i \rangle$ das Matrixelement des Störungsoperators H zwischen dem Endzustand $\langle f |$ und dem Anfangszustand $| i \rangle$ und ρ_f die Zustandsdichte des Endzustandes.

Auch die Anpassungen an die Daten nach Gleichung (5.3.6)-(5.3.8) (rote Linie, blaue Linie und gestrichelte schwarze Linie in Abb. 5.3.2) zeigen die Entartung der Tunnelkanäle in den Quantenpunkt. Die gestrichelte schwarze Linie gibt die Summe der beiden Anpassungen an die Daten an und ergibt eine nahezu gatespannungsunabhängige intrinsische Tunnelrate Γ_t . Die leichte Abhängigkeit ist auf den Unterschied der Fermi-Verteilungen für einen unbesetzten und einen einfach-besetzten Quantenpunkt zurückzuführen.

Für Spannungen größer 0.51 V kann in Abbildung 5.3.2 indessen beobachtet werden, dass mit steigender angelegter Spannung die Tunnelrate γ_{in} um etwa eine Größenordnung abnimmt ($6.3 \text{ ms}^{-1} \rightarrow 0.7 \text{ ms}^{-1}$), wohingegen die Tunnelrate γ_{out} konstant bei Null verbleibt. Des Weiteren sind kleinere Resonanzen auf der insgesamt abfallenden Tunnelrate γ_{in} , zum Beispiel bei 0.537 V, 0.551 V und 0.606 V, zu beobachten. Diese Resonanzen können durch lokale Defekte in der Umgebung des Quantenpunktes, oder in der Tunnelbarriere entstehen [Efros16, Nguyen13, Kerski21]. Infolgedessen würde der Störungsoperator H in Gleichung (5.3.9) eine Energieabhängigkeit aufweisen. Für bestimmte Energien würde es zu resonantem Elektronentunneln durch die Barriere kommen, welches die Tunnelrate γ_{in} erhöhen würde. Dieser Effekt konnte bereits von Könemann et al. [Könemann02] an einer hochgradig asymmetrischen Doppelbarrieren-Heterostruktur beobachtet werden.

Da die Messmethode durch die hohe Auflösung von $1.0 \text{ mV} \approx 0.2 \text{ } \mu\text{eV}$ sehr genau die Zustandsdichte des Elektronenreservoirs abtastet, könnten die beobachteten Resonanzen in der Tunnelrate γ_{in} auch durch Fluktuationen in der Zustandsdichte entstehen. In der bisherigen Betrachtung wurde diese, für Energien größer des chemischen Potentials μ , als energieunabhängig angenommen. Durch diese Energieabhängigkeit würde die Gleichung (5.3.7) wie folgt erweitert werden:

$$\gamma_{\text{in}}(E) = d_{\text{in}} \cdot \Gamma_t(E) \cdot f(E). \quad (5.3.10)$$

Diese verschiedenen Möglichkeiten werden im Abschnitt 5.7 an einem zweiten Quantenpunkt noch einmal aufgegriffen. Zunächst beschäftigt sich der folgende Abschnitt mit dem Zusammenhang zwischen der Tunnelrate γ_{in} und der Trionresonanz, also dem optischen Übergang für einen einfach-besetzten Quantenpunkt. Da der Auger-Effekt das zusätzliche Elektron für den Trionübergang aus dem Quantenpunkt löst, ist die Besetzungswahrscheinlichkeit des angeregten Trionzustandes an die Tunneldynamik des Elektrons gekoppelt. Daher lohnt es sich auch einen genaueren Blick auf die gatespannungsabhängige Trionrekombination zu werfen.

5.4 Trionübergang im Gleichgewicht

Sobald eine Elektron den s_1 -Zustand besetzt hat, ist es möglich den negativ-geladenen Trionübergang resonant zu treiben. Dies ermöglicht die Beobachtung der Abhängigkeit zwischen der Tunnelwahrscheinlichkeit eines Elektrons und der Trionrekombination. In Abbildung 5.4.1 ist dazu zunächst eine gatespannungsabhängige und frequenzabhängige Gleichgewichtsmessung (Integrationszeit von 1 s) in einer 2D-Farbgrafik dargestellt. Diese wurde bei einer stabilisierten Anregungsintensität von $1.3 \times 10^{-4} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2 \hat{=} 2.4 \times 10^{-2} \Gamma^2/2$ aufgenommen, was einer Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions von $n(0) = 0.011$ entspricht (siehe Abb. 5.4.2b)). In dieser Messung lassen sich drei Gatespannungsbereiche identifizieren. Im Bereich I (von 0.3 V bis 0.5 V) ist der Quantenpunkt unbesetzt, das heißt das chemische Potential des Elektronenreservoir liegt energetisch niedriger, als der s_1 -Zustand des Quantenpunktes, sodass kein Elektron vom Reservoir in den Quantenpunkt tunneln kann. Im Bereich II (von 0.5 V bis 0.7 V) ist der Quantenpunkt mit einem Elektron im s_1 -Zustand besetzt. Dadurch lässt sich in diesem Bereich der einfach negativ-geladene Trionübergang treiben. Im Bereich III (von 0.7 V bis mindestens 0.9 V) ist die Gatespannung bereits so groß, dass ein zweites Elektron vom Reservoir in den Quantenpunkt tunneln kann. Die s -Zustände des Quantenpunktes sind damit vollständig besetzt.

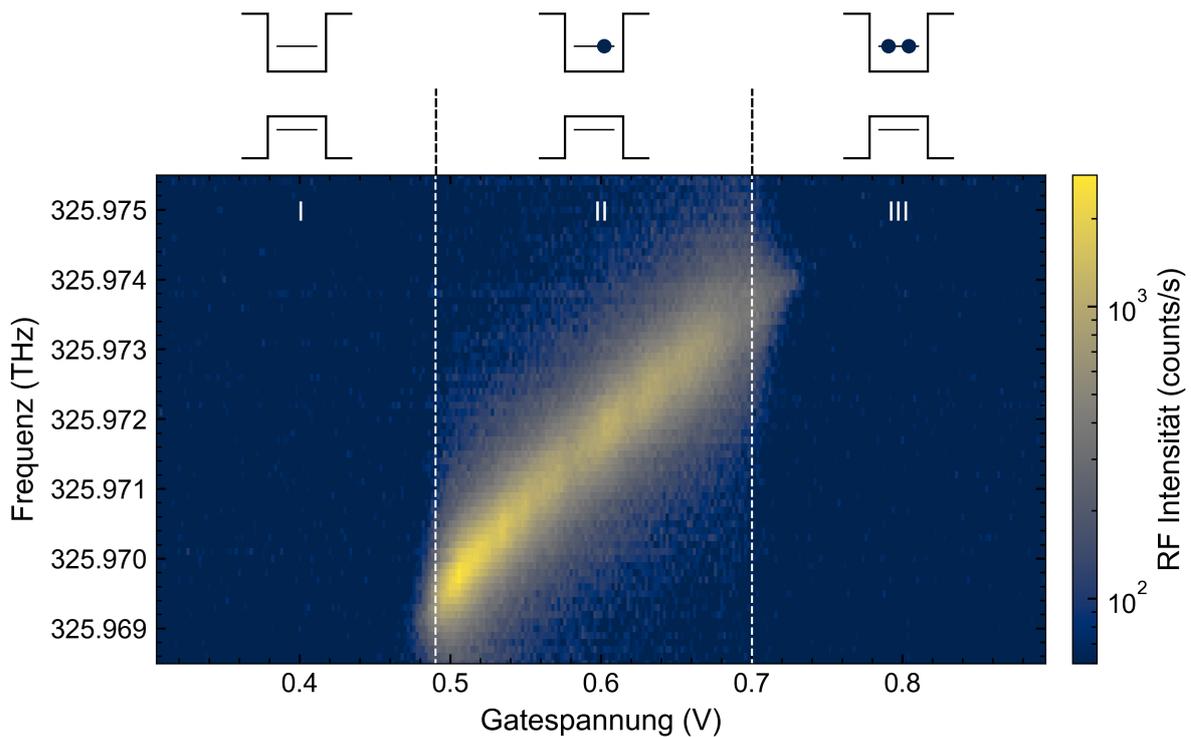


Abbildung 5.4.1: Resonante Fluoreszenz am Trionübergang abhängig von der angelegten Gatespannung und der Anregungsfrequenz des Lasers. Dieser treibt das optisch-aktive Trion mit einer Anregungsintensität von $1.3 \times 10^{-4} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$. Die Farbskala stellt logarithmisch die Photonenergebnisse pro Sekunde dar. Im Bereich I ist der Quantenpunkt unbesetzt, wodurch das einfach negativ-geladene Trion nicht angeregt werden kann. Im Bereich II ist die angelegte Gatespannung bereits so groß, dass ein Elektron vom Elektronenreservoir in den s_1 -Zustand des Quantenpunktes tunneln kann, sodass dieser einfach besetzt ist. In dem gezeigten Frequenzbereich ist es dadurch jetzt möglich den Trionübergang zu treiben. Im Bereich III ist die Leitungsbandstruktur so weit verkippt, dass bereits ein zweites Elektron in den s_2 -Zustand tunneln kann. Damit sind alle s -Zustände besetzt und das einfach negativ-geladene Trion kann nicht weiter angeregt werden.

Wie für die Gleichgewichtsmessungen des Exzitons (siehe Abschnitt 5.2) lässt sich auch hier die Stark-Verschiebung berechnen [Li00]. Aus Abbildung 5.4.2a) ergibt sich diese für das Trion X^- zu 47.9 mV/GHz . Die Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions in Abhängigkeit von der eingestrahlten Anregungsintensität wird in Abbildung 5.4.2b) für zwei verschiedenen Messmethoden gezeigt. Zum einen kann die maximale RF Intensität (rote Datenpunkte) aus Gleichgewichtsmessungen (wie in Abb. 5.4.1 gezeigt) entnommen werden. Zum anderen (blaue Datenpunkte) kann diese auch aus Nichtgleichgewichtsmessungen (wie in Abb. 4.2.3a) gezeigt) entnommen werden. Die entsprechende Messung dazu, wird in Abschnitt 4.2 näher erläutert. Da die Nichtgleichgewichtsmessung für $t = 0$ nicht durch Effekte, wie den Auger-Effekt, gestört wird, lässt sich nur hier die Anpassung nach Gleichung (4.1.1) (blaue Linie) sinnvoll anpassen und wird daher im Folgenden ausschließlich zur Bestimmung der Besetzung des Trions verwendet.

Für Anregungsintensitäten größer als $2.1 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2 \hat{=} 6.4 \Gamma^2/2$ lässt sich erneut erkennen, dass die Besetzungswahrscheinlichkeit nicht sättigt. Im Falle des einfach-besetzten Quantenpunktes kann dies bedeuten, dass ein weiteres Elektron aus dem Elektronenreservoir via Photoemission in das Leitungsband der Probenstruktur angehoben wird und anschließend in den Quantenpunkt relaxiert (*Elektroneneinfang* [Kurzmann16b]). Dadurch wäre der Quantenpunkt mit zwei Elektronen beladen was zur Folge hätte, dass der Trionübergang blockiert wäre (analog zu Abb. 5.2.2 für große Anregungsintensitäten). Da der Quantenpunkt hier aber bereits mit einem Elektron beladen ist, könnte auch ein Photoemissionsprozess (*interner Photoeffekt* [Lochner21b]) stattfinden, welcher das Elektron aus dem Quantenpunkt hebt. Solange kein weiteres Elektron aus dem Reservoir in den Quantenpunkt tunnelt, ist der Trionübergang blockiert, was ebenfalls zu einer Verringerung der RF Intensität führt. Die Wahrscheinlichkeit für beide Prozesse ist proportional zur eingestrahlten Laserleistung.

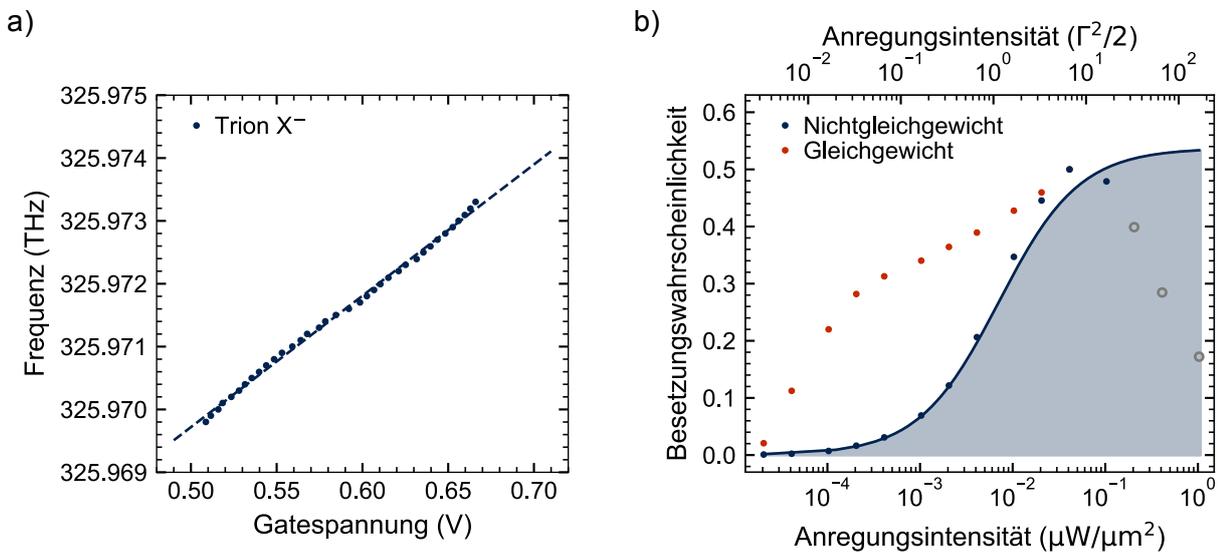


Abbildung 5.4.2: a) Stark-Verschiebung des Trionübergangs in Abhängigkeit der angelegten Gatespannung. Zur Bestimmung des Zusammenhangs zwischen der Frequenz und der Gatespannung wurde hier zunächst eine lineare Funktion angenommen (siehe rote gestrichelte Linie), mit dem daraus folgenden Umrechnungsfaktor von 47.9 meV/GHz . b) Besetzungswahrscheinlichkeit des angeregten Trions in Abhängigkeit von der eingestrahlten Anregungsintensität in $\mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ (unten) und in $\Gamma^2/2$ (oben). Die Daten wurden aus der maximalen RF Intensität zum einen (rote Datenpunkte) aus Gleichgewichtsmessungen (wie in Abb. 5.4.1) und zum anderen (blaue Datenpunkte) aus Nichtgleichgewichtsmessungen (wie in Abb. 5.5.2a)) entnommen. Die Anpassungsfunktion nach Gleichung (4.1.1) (blaue Linie) wurde entsprechend nur an die Nichtgleichgewichtsdaten angepasst.

Des Weiteren lassen sich aus den einzelnen Messungen (siehe Abb. 5.4.1) die maximale RF Intensität, sowie die Linienbreite der Trionresonanz in Abhängigkeit der Anregungsfrequenz bestimmen. In Abbildung 5.4.4a) sind beispielhaft die Trionresonanzen für eine feste Anregungsfrequenz von 325.973 THz und 325.9714 THz, das heißt zwei horizontale Schnitte durch die 2D-Farbgrafik, dargestellt. Zur Bestimmung der maximalen Rekombinationsintensität und der Linienbreite wird eine Lorentz-Anpassungsfunktion verwendet [Houel12]:

$$I(x) = I_0 \left(\frac{\Delta\nu}{2\pi} \cdot \frac{1}{(x - x_{\max})^2 + (\frac{\Delta\nu}{2})^2} \right), \quad (5.4.1)$$

wobei $\Delta\nu$ der Halbwertsbreite (engl. *full width at half maximum, FWHM*) und x_0 der Gatespannung des Maximums entspricht. Die maximale RF Intensität I_{\max} bei $x = x_{\max}$ ergibt sich bei einer Lorentz-förmigen Linienbreite zu:

$$I_{\max} = I_0 \cdot \frac{2}{\pi\Delta\nu}. \quad (5.4.2)$$

In Abbildung 5.4.3 ist die maximale RF Intensität (rote Datenpunkte) und die Halbwertsbreite (blaue Datenpunkte) als Funktion der Gatespannung des Maximums aufgetragen. Hier zeigt sich für Spannungen größer als 0.51 V ein abnehmendes Verhalten der RF Intensität I_{\max} und eine Zunahme der Halbwertsbreite $\Delta\nu$, nahezu identisch zu dem, in Abbildung 5.3.2 gezeigten, Verhalten der Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{in} .

Einige der Resonanzen in der Tunnelrate, welche zuvor diskutiert wurden (siehe Abschnitt 5.3), zeigen sich auch in der maximalen RF Intensität und der Halbwertsbreite der Trionresonanz. Über den gesamten gemessenen Gatespannungsbereich kann ein Abnahme um mehr als einen Faktor sechs ($2.82 \text{ kcounts/s} \rightarrow 0.46 \text{ kcounts/s}$) in der maximalen RF Intensität des Trions und eine Zunahme der Halbwertsbreite um einen Faktor vier ($420 \text{ MHz} \rightarrow 1690 \text{ MHz}$) beobachtet werden. Dies ist in guter Übereinstimmung mit den zuvor präsentierten Ergebnissen der Tunnelraten.

Im Gleichgewicht ($t \rightarrow \infty$) ist die Trionintensität für eine resonante Anregung jedoch nicht nur durch die Tunnelraten definiert, sondern setzt sich aus den Ratengleichungen (siehe Gl. (4.2.1)-(4.2.3)) wie folgt zusammen:

$$P_{|\downarrow\uparrow\downarrow\rangle}(t \rightarrow \infty) = \frac{\gamma_{\text{in}}}{\gamma_{\text{in}} + (1 - n(\Delta\omega))\gamma_{\text{out}} + n(\Delta\omega)\gamma_{\text{A}}}, \quad (5.4.3)$$

wobei $n(\Delta\omega)$ der Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions und γ_{A} der intrinsischen Auger-Rate entspricht. Zur Bestimmung der gatespannungsabhängigen intrinsischen Auger-Rate wird auf die zeitaufgelöste Messmethode aus Abschnitt 4.2 zurückgegriffen.

Durch die unterschiedliche Anregungsintensität des Trionzustandes und die daraus folgende Besetzungswahrscheinlichkeit $n(\Delta\omega)$ verändert sich die besetzungsabhängige Elektronenemissionsrate

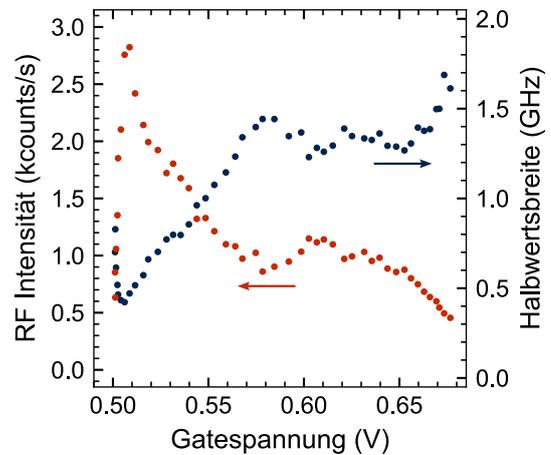


Abbildung 5.4.3: Maximale RF Intensität I_{\max} (blaue Datenpunkte) und Halbwertsbreite $\Delta\nu$ (graue Datenpunkte) der gatespannungsabhängigen Trionresonanzen. Mit Hilfe der Anpassung nach Gleichung (5.4.1) lassen sich für jede gemessene Trionresonanz aus Abbildung 5.4.1 die maximale RF Intensität, sowie die Halbwertsbreite bestimmen. Die Trionresonanz ist dabei durch den Auger-Effekt abgeschwächt und verbreitert (siehe Gl. (5.4.3)).

$\gamma_{ee} = n(\Delta\omega)\gamma_A$ in Gleichung (5.4.3), was zu einer Verbreiterung der Linie führt. Außerdem ändert sich gatespannungsabhängig das Verhältnis zwischen der Tunnelrate γ_{in} und der intrinsischen Auger-Rate γ_A , was zu einer asymmetrischen Linienform führen kann. Diese Asymmetrie lässt sich auch in Abbildung 5.4.4a) beobachten.

Um diese Verbreiterungsmechanismen mit einer mathematischen Simulation (siehe Abschnitt 5.6.1) beschreiben zu können, werden im nächsten Schritt die vertikalen Schnitte durch die 2D-Farbgrafik, das heißt die Trionresonanzen für eine feste Gatespannung (engl. *laser frequency detuning*), verwendet. Diese weisen ausschließlich eine zusätzliche Verbreiterung durch die frequenzabhängige Besetzung $n(\Delta\omega)$ auf. In Abbildung 5.4.4b) sind beispielhaft zwei Trionresonanzen für eine feste Gatespannung von 0.578 V und 0.656 V (vertikale Schnitte durch die 2D-Farbgrafik) dargestellt. Der eingefärbte Bereich unter den Kurven beschreibt die Anpassung einer Lorentz-Funktion mit einer Halbwertsbreite von 1470 MHz bzw. 1430 MHz.

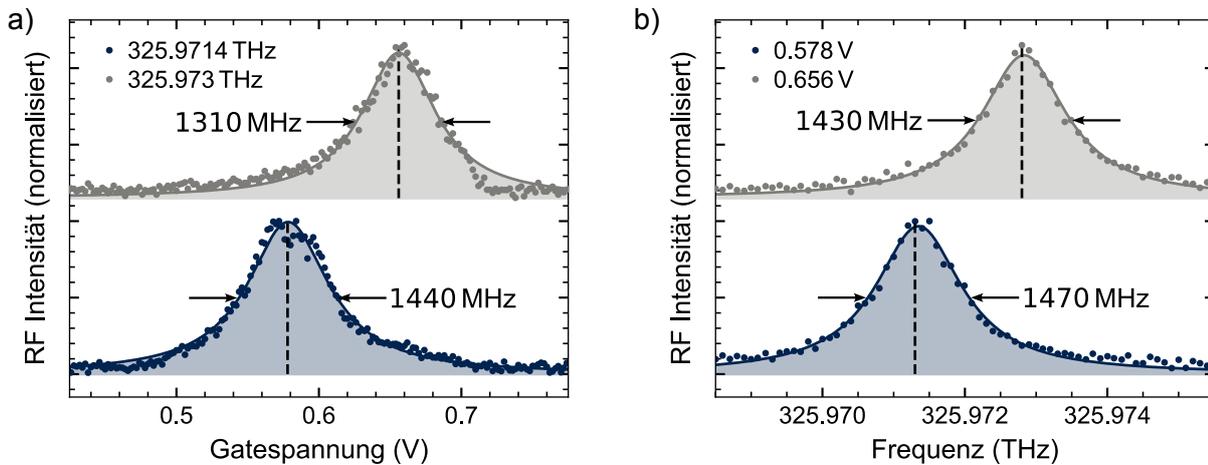


Abbildung 5.4.4: a) Zwei Trionresonanzen für eine feste Anregungsfrequenz von 325.9714 THz (blaue Datenpunkte) und 325.973 THz (graue Datenpunkte), das heißt horizontale Schnitte durch die 2D-Farbgrafik in Abb. 5.4.1. b) Zwei entsprechende Trionresonanzen für eine feste Gatespannung von 0.578 V (blaue Datenpunkte) und 0.656 V (graue Datenpunkte), das heißt vertikale Schnitte durch die 2D-Farbgrafik in Abb. 5.4.1. Alle vier Trionresonanzen wurden jeweils mit einer Lorentz-Verteilung nach Gleichung (5.4.1) angepasst, so dass sich die abgebildeten Halbwertsbreiten ergeben.

Beim Vergleich der Trionresonanzen bei fester Gatespannung (Abb. 5.4.4b)) mit den Trionresonanzen bei fester Frequenz (Abb. 5.4.4a)) fallen zunächst keine deutlichen Unterschiede in der Halbwertsbreite auf. Beim Vergleich der Linienform zeigen die Resonanzen mit fester Frequenz (Abb. 5.4.4a)) jedoch eine leichte Asymmetrie, welche durch das oben genannte gatespannungsabhängige Verhältnis zwischen der Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{in} und der intrinsischen Auger-Rate γ_A zustande kommt. Diese Asymmetrien können bei den Resonanzen bei fester Gatespannung (Abb. 5.4.4b)) nicht beobachtet werden. Da die Gatespannungsabhängigkeit der Raten die Simulation deutlich kompliziert macht und die Asymmetrie hier nicht von Interesse ist, wird im späteren Verlauf der Auswertung immer auf die Trionresonanzen bei fester Gatespannung referenziert.

Um die diskutierten Beobachtungen zu vervollständigen, sind wie bereits angedeutet zeitaufgelöste gepulste N-shot Messungen am Trionübergang notwendig. Diese dienen zum einen zur Bestimmung der gatespannungsabhängigen intrinsischen Auger-Rate γ_A und zum anderen um die natürliche Linienbreite, das heißt ohne Verbreiterung durch den Auger-Effekt, der Trionrekombination aufzunehmen. Die Grundlagen für zeitaufgelöste Messungen am Trionübergang können dem Abschnitt 4.2 entnommen werden.

5.5 Zeitaufgelöste Messungen am Trionübergang

Die intrinsische Auger-Rate γ_A kann, wie bereits in Abschnitt 4.2 beschrieben, über eine zeitaufgelöste gepulste Messung bestimmt werden. Hinzu kommt nun, dass die Rate nicht nur für eine feste Gatespannung gemessen wird. Mit Hilfe der Stark-Verschiebung beziehungsweise dem Zusammenhang zwischen der resonanten Trionfrequenz ν_{X^-} und der Gatespannung V_{X^-} , lassen sich die zeitaufwendigen Messungen (5 min pro Messung) automatisieren. Die Bestimmung der Stark-Verschiebung über die 2D-Farbkarte war nach einem ersten Versuch jedoch nicht ausreichend genau, wodurch die Frequenz zur eingestellten Gatespannung nicht passend war. Dies liegt zum einen an der Bestimmung der Verschiebung über die Gleichgewichtsmessungen, welche für die schwache Trionresonanz ungenau sind und zum anderen an einer Verschiebung der Resonanz um etwa 3.5 GHz zwischen den Messtagen. Diese kann zum Beispiel durch freie Ladungen in der Umgebung des Quantenpunktes zustande kommen [Lochner21b]. Um die hochauflösende Messung trotzdem durchführen zu können, wurde zunächst der Stark-Effekt über zeitaufgelöste gepulste Messungen bestimmt. Dazu werden für eine feste Trionfrequenz mehrere kurze gepulste Messungen ($N = 25000$) mit unterschiedlichen Spannungen durchgeführt.

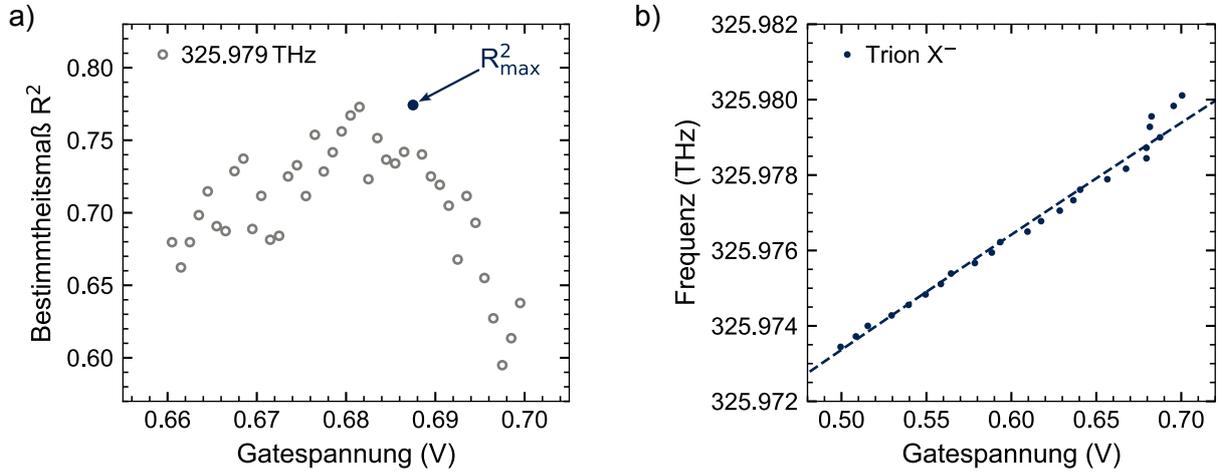


Abbildung 5.5.1: a) Bestimmtheitsmaß zwischen der gemessenen zeitaufgelösten Transiente und der exponentiellen Anpassung als Funktion der angelegten Spannung, beispielhaft gezeigt bei einer Anregungsfrequenz von 325.979 THz. Der blau markierte Datenpunkt entspricht dem maximalen Bestimmtheitsmaß und wird somit als Spannungswert zur Bestimmung der Stark-Verschiebung ausgewählt. b) Anregungsfrequenz der Trionresonanz als Funktion der zuvor in Abbildung 5.5.1a) bestimmten optimalen Spannungen. Die Anpassung (blaue gestrichelte Linie) erfolgt nach Gleichung (5.2.1) zur Bestimmung der Stark-Verschiebung mit den Parametern: $a = -0.004$, $b = 0.035$ und $c = 325.957$.

Anschließend wird die Gatespannung mit dem größten Bestimmtheitsmaß, beispielhaft in Abbildung 5.5.1a) für eine Frequenz von 325.979 THz gezeigt, zwischen den Daten und der angepassten Exponentialfunktion (siehe Gl. (4.2.3)) ausgewählt. Das Bestimmtheitsmaß R^2 ist gegeben durch:

$$R^2 = \frac{\sum_i (f_i - \bar{f})^2}{\sum_i (d_i - \bar{d})^2}, \quad (5.5.1)$$

wobei f_i die y-Werte der Exponentialfunktion, \bar{f} der Mittelwert der y-Werte der Exponentialfunktion, d_i die y-Werte der Daten und \bar{d} der Mittelwert der y-Werte der Daten sind. Für mehrere Trionfrequenzen ergibt sich dann der in Abbildung 5.5.1b) dargestellte Zusammenhang zwischen der resonanten Trionfrequenz und der Gatespannung. Aus der Anpassung nach Gleichung (5.2.1) ergeben sich demnach die Parameter $a = -0.004$, $b = 0.035$ und $c = 325.957$. Im Nachfolgenden

wird diese quadratische Umrechnung zwischen Frequenz und Gatespannung angenommen, da der Stark-Effekt physikalisch einer quadratischen Funktion folgt, hier jedoch nur der lineare Bereich abgebildet ist. Da der Parameter a jedoch sehr klein ist, ist auch diese Funktion eher linear.

Nun kann über das in Abbildung 4.2.2 gezeigte Pulsschema zeitaufgelöst das Ausgehen der Trionresonanz, aufgrund des Auger-Effektes, gemessen werden. Über diese Methode lässt sich auch die Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions in Abhängigkeit der Anregungsintensität am besten messen (siehe Vergleich zwischen Gleichgewichtsmessung und Nichtgleichgewichtsmessung in Abb. 5.4.2b)). Dazu wird eine beliebige resonante Trionfrequenz (hier 325.9729 THz), sowie die passende Gate-spannung (hier 0.578 V) eingestellt und für eine Serie von Anregungsintensitäten eine zeitaufgelöste gepulste Messung durchgeführt. Anschließend werden die Anfangsintensitäten zum Zeitpunkt $t = 0$ über die Anregungsintensität aufgetragen (siehe Abb. 5.4.2b)). Dabei kann, wie bereits in Abschnitt 4.1 gezeigt, die Anregungsintensität in Einheiten von $\mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ oder in Einheiten von $\Gamma^2/2$ angegeben werden. Dieser Zusammenhang wird im Folgenden für die Umrechnung zwischen der angelegten Anregungsintensität und der Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions verwendet. Des Weiteren können dieselben Transienten in Abhängigkeit der Gatespannung durch das automatisierte Mitführen der Resonanzfrequenz im Bereich von 325.971 84 THz bis 325.979 38 THz, aufgenommen werden. Die Anregungsintensität wird dazu auf $3.7 \times 10^{-5} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2 \hat{=} 6.8 \times 10^{-3} \Gamma^2/2$ stabilisiert, was einer Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions von $n(0) = 0.0032$ entspricht (siehe Abb. 5.4.2b)).

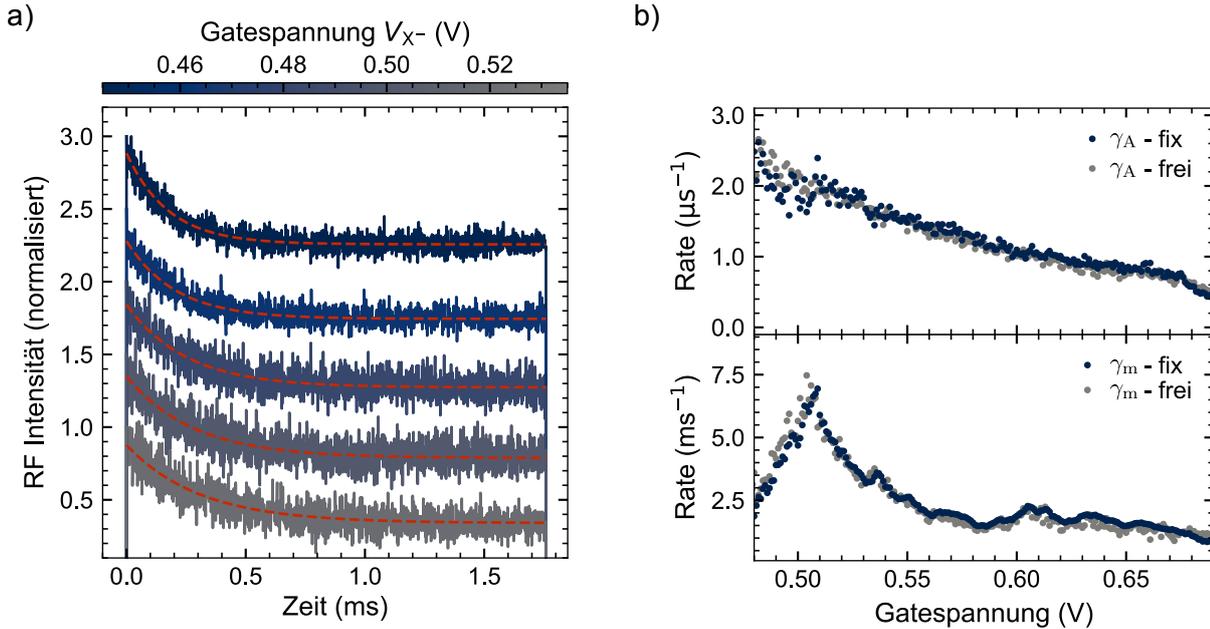


Abbildung 5.5.2: a) Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz für verschiedene Spannungen V_{X^-} und deren passenden resonanten Trionfrequenzen in Abhängigkeit des in Abbildung 4.2.2 gezeigten Pulsschemas. Die RF Intensität wird auf die Anfangsintensität bei $t = 0$ normiert. Anschließend wird eine Anpassung nach Gleichung (4.2.3) (rote gestrichelte Linien) vorgenommen. b) Intrinsische Auger-Rate γ_A (oben) für ein Elektron aus dem angeregten Trionzustand und die Relaxationsrate $\gamma_m = \gamma_{in} + \gamma_{out}$ (unten) in Abhängigkeit der Gatespannung V_{X^-} . Die blauen Datenpunkte zeigen dabei die Ergebnisse aus der Anpassung nach Gleichung (4.2.3), mit den fixierten Tunnelraten γ_{in} und γ_{out} aus den vorherigen zeitaufgelösten Messungen am Exziton, siehe Abbildung 5.3.2. Die grauen Datenpunkte zeigen hingegen die Raten, mit den Tunnelraten als variable Anpassungsparameter.

Abbildung 5.5.2a) zeigt einen Ausschnitt der insgesamt 250 durchgeführten Messungen, mit je $N = 100000$ Pulsen, wobei die gestrichelten roten Linien die exponentiellen Anpassung nach Gleichung (4.2.3) angeben, welche die Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{in} , die Tunnelrate in das Elektronenreservoir γ_{out} und die besetzungsabhängige Elektronenemissionsrate γ_{ee} enthält. Wird nun die intrinsische Auger-Rate γ_{A} mit der oben genannten Besetzungswahrscheinlichkeit $n(\Delta\omega)$ ($\gamma_{\text{A}} = \gamma_{\text{ee}}/n(\Delta\omega)$) des Trionzustandes als Funktion der Gatespannung aufgetragen, so ergibt sich ein linear abfallender Verlauf um etwa einen Faktor sechs ($2.62 \mu\text{s}^{-1} \rightarrow 0.44 \mu\text{s}^{-1}$, siehe Abb. 5.5.2b)). Im Vergleich zu der Tunnelrate in den Quantenpunkt können jedoch keine zusätzlichen Resonanzen entlang des abfallenden Verlaufs der intrinsischen Auger-Rate beobachtet werden, was die obige Diskussion zu den Resonanzen stärkt. Es scheint also, dass es sich bei diesen Resonanzen tatsächlich um Effekte handelt, die mit dem Elektronentransport und nicht mit der optischen Anregung von Vielteilchenzuständen zu tun haben.

Zusätzlich zum nicht-strahlenden Auger-Effekt wird die Messung jedoch, wie aus Gleichung (4.2.3) hervorgeht, weiterhin von den Tunnelraten γ_{in} und γ_{out} beeinflusst. So lassen sich diese beiden Variablen in der Anpassungsfunktion mit den Werten aus Abschnitt 5.3 fixieren, oder ebenfalls als freie Variablen anpassen. In Abbildung 5.5.2b) ist der Vergleich zwischen den fixierten (blaue Datenpunkte) und den freien Variablen (graue Datenpunkte), für die intrinsische Auger-Rate γ_{A} und für die Relaxationsrate $\gamma_{\text{m}} = \gamma_{\text{in}} + \gamma_{\text{out}}$ gezeigt. Da die Ergebnisse für die Relaxationsrate in Abbildung 5.5.2b), trotz der unterschiedlichen Messmethoden ($\gamma_{\text{m}}^{\text{X}}$ gemessen über das Exziton X, siehe Abb. 5.3.1b), $\gamma_{\text{m}}^{\text{X}^-}$ gemessen über das Trion X^- , siehe Abb. 5.5.2a)), kaum zu unterscheiden sind, bestätigen sich die Beobachtungen für die Tunnelraten aus Abschnitt 5.3. Im Folgenden werden die intrinsischen Auger-Raten für die fixierten Tunnelraten verwendet, wobei die Raten mit den freien Variablen äquivalent verwendet werden könnten.

5.6 Zeitaufgelöste Trionresonanz zur Bestimmung der Dephasierungszeit

Um die Gleichgewichtsmessungen (siehe Abb. 5.4.4b)) simulieren zu können, wird die Dephasierungszeit T_2 des angeregten Trionzustandes benötigt. Diese kann über eine zeitaufgelöste gepulste Messung der Trionrekombination bestimmt werden. Dazu wird das Pulsschema aus Abbildung 4.2.2 verwendet, jedoch wird die Gatespannung für jede Messung in einem Bereich von 0.3 V bis 0.9 THz in 2 mV Schritten verstimmt, wobei die Frequenz konstant auf 325.9714 THz stabilisiert wird. Äquivalent kann auch die Frequenz verstimmt und die Gatespannung festgehalten werden (siehe Kurzmann et al. [Kurzmann16a]). Die Anregungsintensität wird auf $1.3 \times 10^{-4} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2 \cong 2.4 \times 10^{-2} \Gamma^2/2$ stabilisiert, was einer Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions von $n(0) = 0.011$ entspricht.

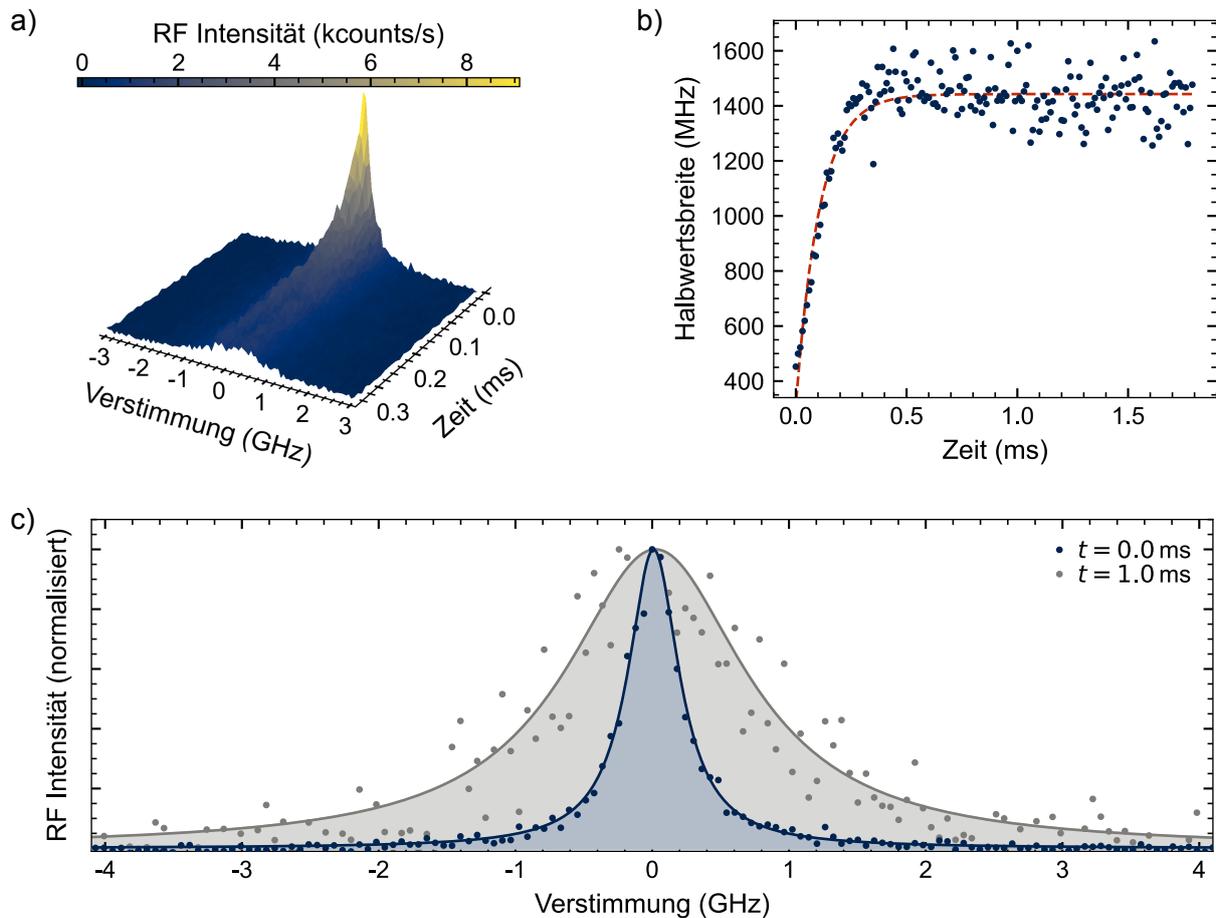


Abbildung 5.6.1: a) Zeitverlauf der Trionresonanzen in Abhängigkeit der Frequenzverstimmung, wobei diese aus den exponentiell abfallenden Transienten pro Zeitintervall extrahiert werden können. Im Experiment wurde die Gatespannung für eine feste Frequenz von 325.9714 THz (vergleiche mit Abb. 5.4.4 blaue Linien) durchgeföhrt und anschließend über die Stark-Verschiebung und die Resonanzfrequenz in eine Frequenzverstimmung umgerechnet. b) Die Trionresonanzen können mit Hilfe einer Lorentz-Funktion angepasst werden, wodurch sich die gezeigte Halbwertsbreite als Funktion der Zeit ergibt. Die rote gestrichelte Linie gibt dabei eine exponentielle Funktion mit einer Steigung von 9.3 ms^{-1} und einer Sättigung ($t \rightarrow \infty$) von 1443 MHz an. c) Zwei Trionresonanzen als Funktion der Frequenzverstimmung im Nichtgleichgewicht ($t = 0.0 \text{ ms}$, blaue Datenpunkte) und im Gleichgewicht ($t = 1.0 \text{ ms}$, graue Datenpunkte). Die Datenpunkte wurden jeweils mit einer Lorentz-Funktion angepasst, wodurch sich eine Halbwertsbreite von 450 MHz bzw. 1600 MHz ergibt.

Durch die anfängliche Präparation des einfach-besetzten Zustandes für jeden Puls bildet die Anzahl der Ereignisse zum Zeitpunkt des Anschaltens des Lasers $t = 0$ in Abhängigkeit der Frequenzverstimmung die unverbreiterte Trionresonanz ab. Das Zeitintervall (engl. *bin width*) ist dabei um drei Größenordnungen (μs) kleiner gewählt als die besetzungsabhängige Elektronenemissionsrate γ_{ee} (ms^{-1}). Der Auger-Effekt, der die Anzahl der detektierten Photonen reduzieren würde, ist daher zum Zeitpunkt t_0 vernachlässigbar. Über die Zeitabhängigkeit der gemessenen Transienten lässt sich so ein Zeitverlauf der Trionresonanz bestimmen, siehe Abbildung 5.6.1a). Sofern die Transienten die Sättigung erreicht haben, repräsentiert die Anzahl der Ereignisse zu diesem Zeitpunkt (hier $t > 0.5 \text{ ms}$, siehe Abb. 5.6.1b)) die Intensität der Trionresonanz im Gleichgewicht. Abbildung 5.6.1c) zeigt den Vergleich zwischen der Trionresonanz im Nichtgleichgewicht ($t = 0 \text{ ms}$) und der Trionresonanz im Gleichgewicht ($t = 1 \text{ ms}$), wobei der eingefärbte Bereich unter der Kurve die Anpassung einer Lorentz-Funktion nach Gleichung (5.4.1) beschreibt. Es ergibt sich eine Halbwertsbreite von $\Delta\nu_{t=0} = 450 \text{ MHz}$ bzw. $\Delta\nu_{t=1} = 1600 \text{ MHz}$. Die Linienbreite der Trionresonanz zum Zeitpunkt $t = 1 \text{ ms}$ entspricht wie erwartet die der Gleichgewichtsmessung aus Abschnitt 5.4. Der zeitliche Verlauf der Halbwertsbreite, wie er in Abbildung 5.6.1b) gezeigt ist, kann über die Anpassung aller Trionresonanzen bestimmt werden. Als Anpassung dient hier eine einfache Exponentialfunktion. In der zeitabhängigen Simulation (siehe Abschnitt 5.6.1) wird gezeigt, dass diese einfache Annahme sehr gut mit der theoretischen Beschreibung übereinstimmt. Sofern die reine Dephasierungszeit T_2^* vernachlässigt wird, lässt sich aus der Halbwertsbreite über [Saleh01]:

$$T_2 = 2T_1 = \frac{1}{2\pi\Delta\nu_{t=0}}, \quad (5.6.1)$$

die Dephasierungszeit T_2 zu 703 ps berechnen. Trotz der Annahme, dass die reine Dephasierungszeit T_2^* zunächst vernachlässigt werden kann, stimmt dieses Ergebnis sehr gut mit den zuvor bestimmten Dephasierungszeiten des Trionzustandes in einem selbstorganisierten Quantenpunkt überein [Kurzmann16c, Muller07]. Für die genau Bestimmung der Lebensdauer muss der Anregungslaser im Bereich von wenigen Pikosekunden gepulst werden, sodass wirklich der Zerfall des angeregten Trionzustandes beobachtet werden kann. Außerdem muss die zeitliche Auflösung des Detektors unterhalb dieser Zerfallszeit liegen. Im Rahmen dieser Arbeit konnten diese Messungen nicht durchgeführt werden.

Durch die Bestimmung der gatespannungsabhängigen Tunnelraten γ_{in} und γ_{out} , der gatespannungsabhängigen intrinsischen Auger-Rate γ_A , der Dephasierungszeit T_2 , sowie der Besetzungswahrscheinlichkeit $n(\Delta\omega)$ lässt sich im Folgenden die Verbreiterung der Trionresonanz modellieren.

5.6.1 Simulation der Linienbreite des Trions in Abhängigkeit des Auger-Effektes

Für ein Zwei-Niveau-System setzt sich die Rekombinationsrate γ_{ph} aus der Dephasierungszeit T_2 und der frequenzabhängigen Besetzungswahrscheinlichkeit des angeregten Zustandes $|1\rangle$, zusammen [Muller07, Loudon00]:

$$\gamma_{\text{ph}} = \frac{1}{T_2} n(\Delta\omega) = \frac{1}{2T_2} \frac{\Omega_0^2 T_1 / T_2}{\Delta\omega^2 + 1/T_2^2 + \Omega_0^2 T_1 / T_2}, \quad (5.6.2)$$

wobei die Halbwertsbreite $\Delta\nu$ dieser Funktion gegeben ist durch:

$$\Delta\nu = \frac{2}{T_2} \sqrt{1 + \Omega_0^2 T_1 T_2}. \quad (5.6.3)$$

Die Trionrekombination, wie sie in den vorherigen Abschnitten gezeigt wurde, ist jedoch kein einfaches Zwei-Niveau-System, da der Auger-Effekt den Quantenpunkt entleert. Hier muss also der Grundzustand des unbesetzten Quantenpunktes ergänzt werden, wodurch sich wie in Abschnitt 4.2

gezeigt, für $B = 0$ ein Drei-Niveau-System ergibt. Dadurch folgt für die Trionrekombinationsrate $\gamma_{\text{ph}}^{\text{X}^-}$:

$$\gamma_{\text{ph}}^{\text{X}^-} = \frac{1}{T_2} n(\Delta\omega) \cdot P_{|\downarrow\uparrow\psi\rangle}(t), \quad (5.6.4)$$

mit der Lösung der Ratengleichungen für das Drei-Niveau-System $P_{|\downarrow\uparrow\psi\rangle}(t)$ nach Gleichung (4.2.3).

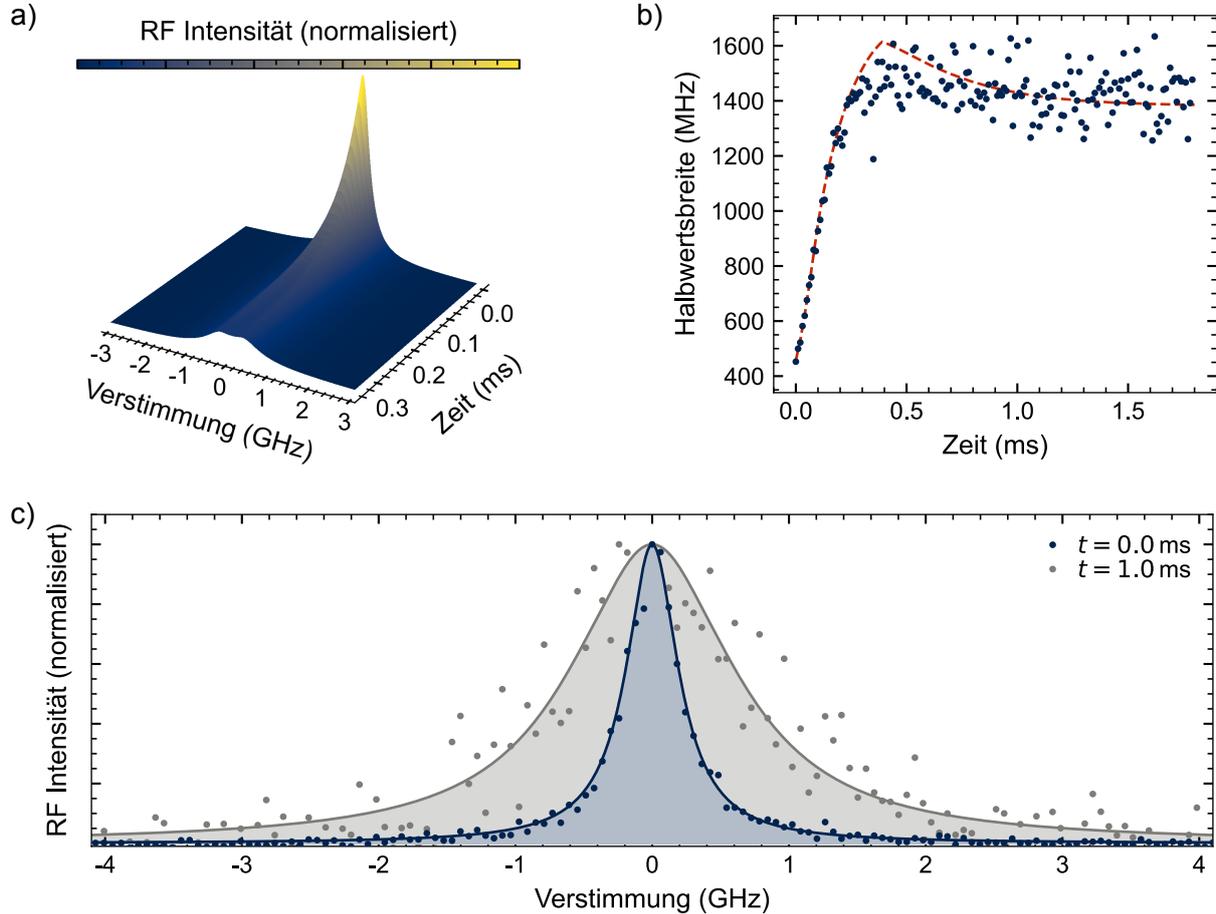


Abbildung 5.6.2: a) Zeitverlauf der Trionresonanzen in Abhängigkeit der Frequenzverstimmung, wobei diese aus der Simulation nach Gleichung (5.6.4) extrahiert werden können. b) Aus den simulierten Trionresonanzen können mit Hilfe einer numerischen Lösung die Halbwertsbreiten bestimmt werden und als Funktion der Zeit aufgetragen werden (siehe rote gestrichelte Linie). Als Vergleich zum Experiment sind die Datenpunkte aus Abbildung 5.6.1b) in blau eingezeichnet. Die Simulation weicht im Bereich von 0.2 ms bis 0.8 ms aufgrund der ungenauen Lorentz-Anpassung (siehe Abb. 5.6.3) leicht von den experimentell bestimmten Halbwertsbreiten ab. c) Zwei Trionresonanzen als Funktion der Frequenzverstimmung für eine Nichtgleichgewichtssimulation ($t = 0.0$ ms, blaue Datenpunkte) und eine Gleichgewichtssimulation ($t = 1.0$ ms, graue Datenpunkte). Die Simulation der Trionresonanzen ergibt eine Halbwertsbreite von 460 MHz bzw. 1430 MHz.

Folgende Werte können nun in die Simulation eingesetzt:

$$\gamma_{\text{in}} = 1.72 \text{ ms}, \quad \gamma_{\text{out}} = 0.029 \text{ ms}, \quad \gamma_{\text{A}} = 1.32 \text{ } \mu\text{s}, \quad T_2 = 703 \text{ ps}, \quad n(0) = 0.011$$

Zunächst ergeben sich die in Abbildung 5.6.2a) dargestellten zeitaufgelösten Trionresonanzen, welche genau wie die Messdaten einen exponentiellen Abfall der RF Intensität aufweisen. Dieser wird ausschließlich über den exponentiellen Dämpfungsterm $P_{|\downarrow\uparrow\psi\rangle}(t)$ in Gleichung (5.6.4) definiert. Die Steigung der Funktion setzt sich aus dem Verhältnis der Tunnelraten γ_{out} und γ_{in} zur intrinsischen Auger-Rate γ_{A} zusammen. Die Halbwertsbreite dieser Funktion wurde aufgrund der Komplexität

numerisch bestimmt und wird in Abbildung 5.6.2b) in Form der gestrichelten roten Linie als Funktion der Zeit dargestellt. Die Simulation beschreibt die Messdaten außerordentlich gut, wobei der Unterschied im Bereich von 0.2 ms bis 0.8 ms durch die Bestimmung der Halbwertsbreite der Trionresonanz mit Hilfe der Lorentz-Anpassungsfunktion (siehe Abbildung 5.6.3a)) zustande kommt.

In Abbildung 5.6.2c) sind noch einmal die Messdaten der Trionresonanz im Nichtgleichgewicht ($t = 0$ ms, blaue Datenpunkte) und im Gleichgewicht ($t = 1$ ms, graue Datenpunkte) dargestellt. Dabei stellen die farblich-passenden Linien die Simulation für dieselben Zeiten dar. Auch hier zeigt sich, dass die Simulation das Experiment außerordentlich gut beschreibt.

Für Zeiten kleiner als 0.8 ms lässt sich eine Änderung der Form der Trionresonanz und das Auftreten zweier Maxima beobachten. Dies kann nicht nur in der Simulation gezeigt werden, sondern ist auch in den Messdaten zu erkennen (siehe Abbildung 5.6.3a)). Die Erklärung für dieses Verhalten liefert Abbildung 5.6.3b), welche beispielhaft die Besetzungswahrscheinlichkeit $n(\Delta\omega)$ (rote Linie) und den Dämpfungsterm (blaue Linie) für eine Zeit von 0.24 ms als Funktion der Frequenzverstimmung abbildet. Die Multiplikation dieser beiden Terme, wie in Gleichung (5.6.4) beschrieben, ergibt also aufgrund der breiten Dämpfung nach unten und der schmalen Besetzungswahrscheinlichkeit nach oben eine Trionresonanz mit zwei Maxima. Für Zeiten größer als 0.8 ms laufen diese aufgrund der immer breiter werdenden Dämpfung und der zeitunabhängigen Besetzungswahrscheinlichkeit wieder in einem Maximum zusammen.

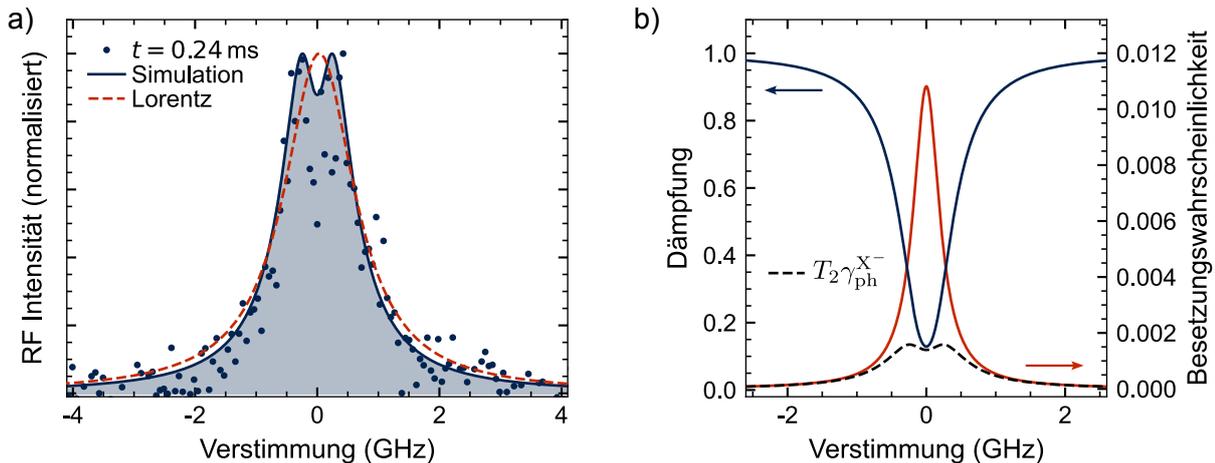


Abbildung 5.6.3: a) Vergleich zwischen der Lorentz-Funktion (rote gestrichelte Linie) und der Simulation (blaue Linie) für eine Trionresonanz bei $t = 0.24$ ms. Die Simulation weist zwei Maxima auf, welche auch in den Daten zu vermuten ist, wodurch diese die Daten deutlich besser beschreibt als die Lorentz-Funktion. b) Simulation der exponentiellen Dämpfung $P_{|\downarrow\uparrow\rangle}(t)$ durch den Auger-Effekt (blaue Linie) und der Besetzungswahrscheinlichkeit des angeregten Trionzustandes (rote Linie) für $t = 0.24$ ms. Durch die Multiplikation der breiten Dämpfung nach unten und der schmalen Besetzungswahrscheinlichkeit nach oben, wie in Gleichung (5.6.4) beschrieben, ergibt sich die gestrichelte schwarze Linie mit den zwei Maxima. Für größere Zeiten laufen diese aufgrund der immer breiter werdenden Dämpfung und der zeitunabhängigen Besetzungswahrscheinlichkeit wieder in einem Maximum zusammen.

Insgesamt bestätigt die Simulation die gemessenen Parameter für die Tunnelraten, die intrinsische Auger-Rate und die Breite der Trionresonanz, die sowohl aus den Gleichgewichts- als auch aus den zeitaufgelösten Nichtgleichgewichtsmessungen hervorgehen. Es zeigt sich, dass die zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenz Messungen eine sehr hohe Auflösung haben, sodass die Ratengleichungen, die der Simulation zugrunde liegen, sehr gut reproduziert werden können. Feine Strukturen in der RF Intensität, wie zum Beispiel die zwei Maxima für kleinen Zeiten, werden auch in der Messung sichtbar.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass die Linienbreiten der Trionresonanz für die Gleichgewichtsmessungen zur Bestimmung der Dephasierungszeit T_2 nicht geeignet sind, da sie durch den Auger-Effekt verbreitert werden. Auch bei der Frequenzverstimmung (siehe Abb. 5.4.4b)) ist eine Verbreiterung durch den Auger-Effekt zu beobachten. Nur wenn die intrinsische Auger-Rate γ_A um einige Größenordnungen größer ist als die Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{in} , zum Beispiel realisierbar durch eine deutlich dünnere Tunnelbarriere, kann der Auger-Effekt für die Bestimmung der Dephasierungszeit vernachlässigt werden. Die Kohärenzzeit wird jedoch weiterhin durch die nicht-strahlende Rekombination negativ beeinflusst.

5.7 Tunneldynamik bei hohen positiven Spannungen

In diesem Abschnitt werden die oben gezeigten Ergebnisse in den Vergleich mit Messungen an einem weiteren Quantenpunkt (QDIII) auf derselben Probe *BO14318* gestellt. Dieser Quantenpunkt hat dabei die besondere Eigenschaft, dass seine Emissionsfrequenz der Elektron-Loch-Zustände (z.B. die Frequenz des Exzitons von $\nu_X = 332.073$ THz) deutlich größer ist, als die der meisten Quantenpunkte auf der Probe. Der Erwartungswert der Emissionsfrequenz des Exzitons von verschiedenen Quantenpunkten ist durch den Wachstumsprozess gegeben und beträgt für diese Probe etwa 950 nm (siehe Abb. 3.1.1).

5.7.1 Optische Übergänge im Gleichgewicht

Zunächst werden die Gleichgewichtsmessungen für den Exzitonenzustand und den Trionzustand durchgeführt. In Abbildung 5.7.1 sind die resonanten Fluoreszenz Messungen für die beiden Zustände in Abhängigkeit der Gatespannung und der Anregungsfrequenz des Lasers gezeigt. Die Anregungsintensität wird mit Hilfe des akusto-optischen-Modulators auf $1 \times 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ stabilisiert. Erneut lassen sich die drei Gatespannungsbereiche beobachten, welche für diesen Quantenpunkt insgesamt zu größeren Spannungen verschoben sind. Im Bereich I ist der Quantenpunkt unbesetzt,

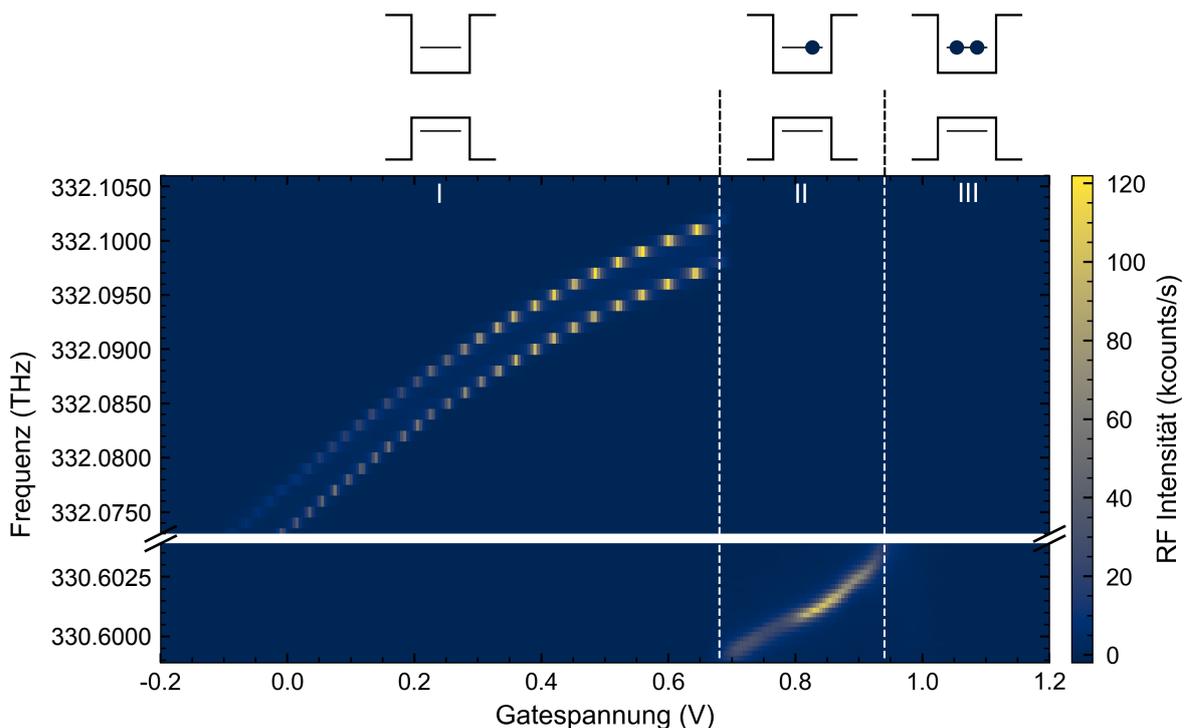


Abbildung 5.7.1: Resonante Fluoreszenz am Exziton- und Trionübergang abhängig von der angelegten Gatespannung und der Anregungsfrequenz des Lasers. Dieser treibt die zwei optisch-aktiven Exzitonen und das optisch-aktive Trion mit einer Anregungsintensität von $1 \times 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$. Die Farbskala stellt die Photonenergebnisse pro Sekunde auf der Photodiode (APD) dar. Im Bereich I ist der Quantenpunkt unbesetzt, wodurch im oberen Frequenzbereich die zwei Exzitonen angeregt werden können. Im Bereich II ist die angelegte Gatespannung bereits so groß, dass ein Elektron vom Elektronenreservoir in den s_1 -Zustand des Quantenpunktes tunneln kann, sodass dieser einfach besetzt ist. In dem unteren gezeigten Frequenzbereich ist es dadurch jetzt möglich den Trionübergang zu treiben. Im Bereich III ist die Leitungsbandstruktur so weit verkippt, dass bereits ein zweites Elektron in den s_2 -Zustand tunneln kann. Damit sind alle s -Zustände besetzt und auch das einfach negativ-geladene Trion kann nicht weiter angeregt werden.

sodass die zwei optisch-aktiven Exzitonübergänge mit einer Frequenz zwischen 332.073 THz und 332.103 THz angeregt werden können. Im Bereich II kann ein Elektron aus dem Reservoir, aufgrund der größeren Verkippung der Leitungsbandstruktur, in den Quantenpunkt tunneln. Somit ist der Quantenpunkt einfach negativ-geladen und der Trionübergang kann mit einer Anregungsfrequenz zwischen 330.5985 THz und 330.6040 THz getrieben werden. Im Bereich III ist die Gatespannung so groß, dass bereits ein zweites Elektron in den Quantenpunkt tunneln kann. Damit sind alle s -Zustände besetzt und auch das Trion kann nicht weiter angeregt werden.

Die Stark-Verschiebung lässt sich, wie in Abbildung 5.2.2a) und 5.4.2a), für das energetisch größere Exziton (blaues Exziton, quadratische Funktion nach Gl. (5.2.1)) und das Trion (lineare Funktion) bestimmen zu:

$$\text{Energetisch größeres Exziton: } a = -0.025, b = 0.052, \text{ und } c = 332.077$$

$$\text{Trion: } 63.0 \text{ mV/GHz.}$$

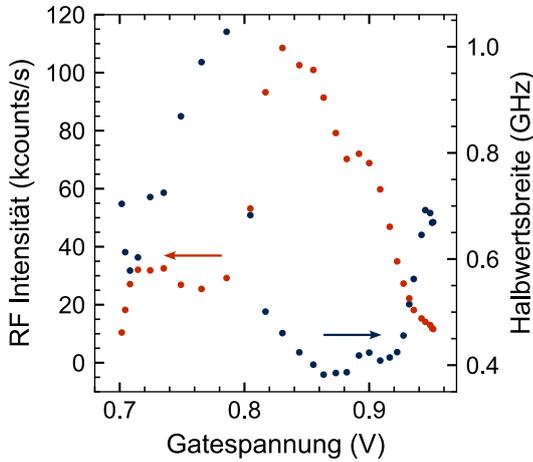


Abbildung 5.7.2: Maximale RF Intensität (blaue Datenpunkte) und Halbwertsbreite (rote Datenpunkte) der gatespannungsabhängigen Trionresonanzen. Mit Hilfe der Anpassung nach Gleichung (5.4.1) lassen sich für jede gemessene Trionresonanz aus Abbildung 5.7.1 die maximale RF Intensität, sowie die Halbwertsbreite bestimmen. Die Trionresonanz ist dabei durch den Auger-Effekt abgeschwächt und verbreitert (siehe Gl. (5.4.3)).

Die Bestimmung der Stark-Verschiebung für das Trion weist dabei einen großen Fehler auf, da zum einen die Resonanzfrequenz eine unbekannt Abhängigkeit von der Gatespannung aufweist und zum anderen die Amplitude der RF Intensität entlang der Resonanz stark spannungsabhängig ist. Beide Effekte sind deutlich im unteren Bereich II der Abbildung 5.7.1 zu erkennen. Die stark fluktuierende Amplitude, sowie die Halbwertsbreite ist zusätzlich in Abbildung 5.7.2 als Funktion der Gatespannung dargestellt. Ab einer Spannung von etwa 0.8 V steigt die Amplitude der Trionresonanz um mehr als einen Faktor drei an (30 kcounts/s \rightarrow 110 kcounts/s). Die Halbwertsbreite der Trionresonanz verhält sich dabei invers zur Amplitude und sinkt auf 380 MHz ab. Hier lässt sich also bereits vermuten, dass sich das Verhältnis zwischen der intrinsischen Auger-Rate γ_A und den Tunnelraten γ_{in} und γ_{out} nach Gleichung (5.4.3) über die Gatespannung deutlich verändert. Im Folgenden werden dazu die gatespannungsabhängigen Tunnelraten über die gepulste zeitaufgelöste Messmethode dargestellt.

5.7.2 Zeitaufgelöste Messungen an den optischen Übergängen

Unter Verwendung des in Abbildung 5.3.1a) dargestellten Pulsschemas mit einer Pulslänge von 1 ms und einer Anregungsintensität von $1 \times 10^{-1} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ werden die in Abbildung 5.7.3a) dargestellten exponentiell abfallenden Transienten erhalten. An diese können erneut Anpassungen der Form (5.3.3) vorgenommen werden und es ergeben sich die Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{in} und die Tunnelrate zurück in das Elektronenreservoir γ_{out} in Abhängigkeit von der angelegten Gatespannung V_X . Des Weiteren kann über die Sättigung dieser Funktion (Grenzfall $t \rightarrow \infty$) und

durch zur Hilfenahme einer Fermi-Verteilung die Temperatur des Reservoirs, sowie die Gatespannung bei der das Elektronenreservoir in Resonanz mit dem s_1 -Zustand des Quantenpunktes ist, bestimmt werden (siehe Abb. 5.7.3b)). Es ergeben sich eine Temperatur von (4.93 ± 0.11) K und eine Spannung von 0.675 V. Wie bereits in Abschnitt 5.3 beschrieben entsprechen diese Werte den physikalischen Gegebenheiten des Experiments.

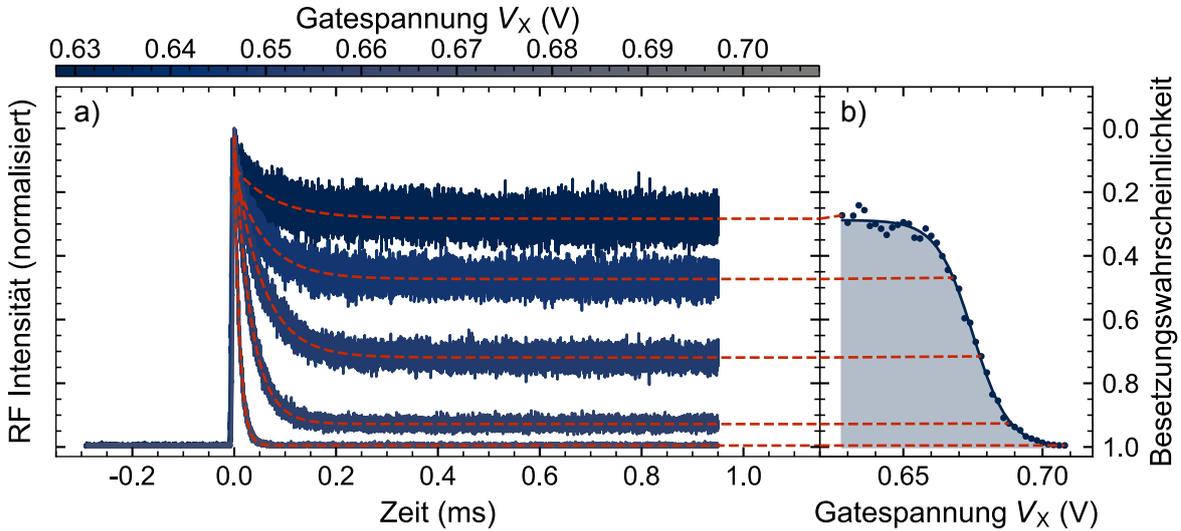


Abbildung 5.7.3: a) Zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz für verschiedene Spannungen V_X und deren passenden resonanten Exzitonfrequenzen in Abhängigkeit des in Abbildung 5.3.1a) gezeigten Pulsschemas. Die RF Intensität wird auf die Anfangsintensität zum Zeitpunkt $t = 0$ normiert. Anschließend wird eine Anpassung nach Gleichung (5.3.3) (rote gestrichelte Linien) vorgenommen. b) Besetzungswahrscheinlichkeit des s_1 -Zustandes durch ein Elektron in Abhängigkeit von der angelegten Gatespannung V_X . Die Datenpunkte entsprechen der Sättigung (Grenzfall $t \rightarrow \infty$) der Transienten aus Abbildung 5.7.3a). Die blaue Linie beschreibt die Anpassung an die Daten durch eine Fermi-Verteilung nach Gleichung (5.3.5).

In Abbildung 5.7.4 sind die gatespannungsabhängigen Tunnelraten dargestellt. Dabei ist zu beachten, dass die Skala auf der linken Seite für die Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{in} um eine Größenordnung größer ist, als die rechte Skala für die Tunnelrate in das Elektronenreservoir γ_{out} . Der Zusammenhang aus Gleichung (5.3.8) gilt also hier nicht, was auch durch die nicht konstante gestrichelte schwarze Linie ersichtlich wird, welche die intrinsische Tunnelrate Γ_t also die Summe der Tunnelraten angibt.

Eine mögliche Erklärung für dieses Verhalten sind die generell erhöhten Tunnelraten, welche durch die starke Verkipfung der Leitungsbandstruktur zustande kommen könnten. Da die Energiedifferenz zwischen dem Elektronenzustand und dem Lochzustand größer ist (größere Übergangsenergie), was bedeutet, dass der s_1 -Zustand energetisch höher liegt, muss die Leitungsbandstruktur stärker verkippt werden um das Reservoir in Resonanz mit dem Quantenpunktzustand zu bringen. Ab einer Spannung V_X von 0.8 V kann für die Tunnelrate in den Quantenpunkt, wie auch zuvor für die Amplitude der RF Intensität der Trionresonanz, ein steiler Anstieg beobachtet werden ($100 \text{ ms}^{-1} \rightarrow 780 \text{ ms}^{-1}$). Da diese Spannungen sich weiterhin im Bereich II befinden, das heißt maximal ein Elektron im Quantenpunkt ist, lässt sich dieser steile Anstieg durch die starke Verkipfung der Leitungsbandstruktur erklären. Wie Abbildung 3.1.1b) zeigt, ist die Bandstruktur durch die p-i-n-Dotierung vorgespannt. Bei hohen Spannungen kann diese Vorspannung aufgehoben werden, sodass die Flachbandspannung erreicht wird. Dies führt zu einer stark ansteigenden Tunnelwahrscheinlichkeit, weil die Elektronen aus dem Reservoir nur noch die 10 nm dicke $\text{Al}_{0.33}\text{Ga}_{0.67}\text{As}$ -Tunnelbarriere überwinden müssen [Yu13]. Diese erhöhte Tunnelwahrscheinlichkeit

in den s_1 -Zustand des Quantenpunktes ist hier zu beobachten.

Im Bereich zwischen 0.71 V und 0.8 V lassen sich erneut kleine Resonanzen auf der insgesamt abfallenden Tunnelrate in den Quantenpunkt beobachten. Diese haben eine ähnliche Gatespannungsdifferenz V_X zueinander, wie die für den im Abschnitt 5.3 beschriebenen Quantenpunkt. Die Vermutung, dass diese Resonanzen durch lokale Defekte in der Umgebung der Quantenpunkte zustande kommen, wird durch diese Messungen verstärkt. Weiterhin zeigt diese Messung auch die hochaufgelöste Zustandsdichte des Elektronenreservoirs, welche für den Wachstumsprozess zukünftiger selbstorganisierter Quantenpunkte von großem Interesse sein dürfte.

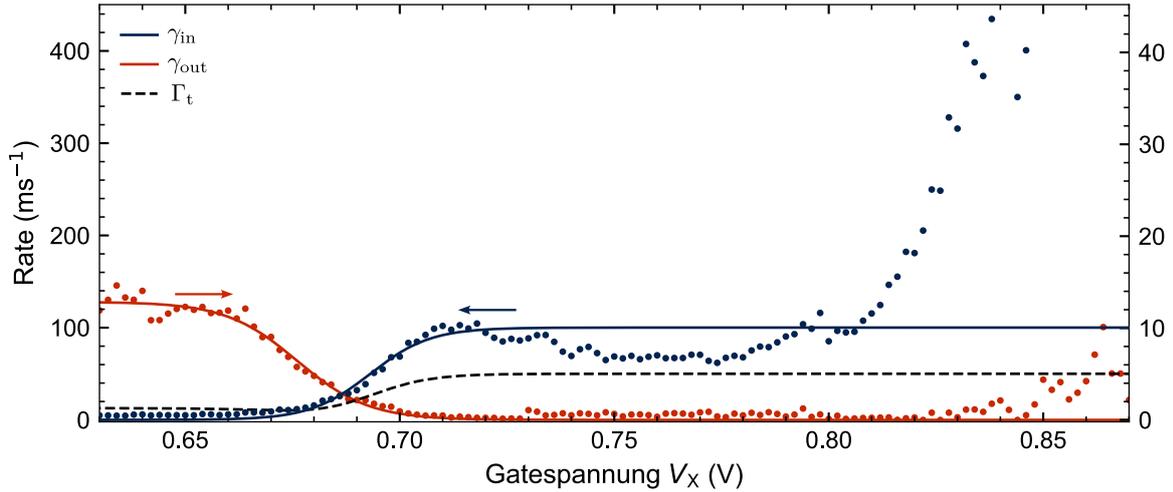


Abbildung 5.7.4: Tunnelrate für ein Elektron in den Quantenpunkt γ_{in} und Tunnelrate für ein Elektron aus dem Quantenpunkt heraus γ_{out} in Abhängigkeit der Gatespannung V_X . Zu beachten sind die unterschiedlichen Größenordnungen der y-Skala (für $\gamma_{in} = 0 \text{ ms} \rightarrow 450 \text{ ms}$, für $\gamma_{out} = 0 \text{ ms} \rightarrow 45 \text{ ms}$). Für die zwei Anpassungen (blaue Linie bzw. rote Linie) nach Gl. (5.3.7) bzw. (5.3.6) wurden die Temperatur und die Spannung als freie Anpassungsparameter mit den Startwerten aus der Anpassung in Abbildung 5.7.3b) gewählt. Hierbei ergeben sich leicht abweichende Ergebnisse, welche jedoch die Datenpunkte deutlich besser beschreiben. Die gestrichelte schwarze Linie gibt die Summe der beiden Anpassungen und damit die intrinsische Tunnelrate Γ_t nach Gleichung (5.3.8) an.

Im letzten Schritt wird noch die intrinsische Auger-Rate für diesen Quantenpunkt bestimmt, jedoch reicht die zeitliche Auflösung, sowie die Frequenzverstimmung des Lasers nicht aus um diese gatespannungsabhängig zu bestimmen. Aus diesem Grund wurde hier nur eine einzelne Messung für eine Gatespannung von 0.73 V durchgeführt. Dabei wurde das in Abschnitt 4.2 ausführlich beschriebene Pulsschema mit einer Anregungsintensität von $1.6 \times 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2 \hat{=} 1 \times 10^{-1} \Gamma^2/2$ verwendet. Diese Anregungsintensität entspricht einer Besetzung von $n(0) = 0.045$, welche zur Bestimmung der intrinsischen Auger-Rate und zum Vergleich mit den Ergebnissen aus Abschnitt 5.5 nötig ist. Mit Hilfe von Gleichung (4.2.3) lässt sich an die exponentiell abfallende Transiente eine Anpassung vornehmen. Hier wurden wie auch in Abschnitt 5.5 die Tunnelraten aus den gepulsten Messungen des Exzitons (siehe Abb. 5.7.4) als fixierte Werte für die Anpassung verwendet.

Die Elektronenemissionsrate aus dieser Anpassung ergibt sich zu $\gamma_{ee} = 49.9 \text{ ms}^{-1}$ und mit der Zunahme der Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions ergibt sich die intrinsische Auger-Rate zu $\gamma_A = 0.29 \mu\text{s}^{-1}$. Im Vergleich zu den Raten des vorherigen Quantenpunktes (QDII) ist diese etwa eine Größenordnung kleiner, wobei die Tunnelrate in den Quantenpunkt um bis zu zwei Größenordnungen größer ist. Dadurch dominiert hier nicht mehr der Auger-Effekt, sondern die Tunnelrate, wodurch der Trionübergang schneller wieder getrieben werden kann. Dies resultiert in der größeren Amplitude der Trionresonanz. Die Kohärenzlänge des Zustandes bleibt jedoch weiterhin durch den

Auger-Effekt verkürzt, da ein erneuter Tunnelprozess für die Rekombination nötig ist und somit die darauffolgenden Photonen nicht mehr kohärent zu den vorherigen Photonen sind. Diese erhöhten Tunnelraten können zum Beispiel auch durch kleinere Tunnelbarrieren erzeugt werden, sodass mehr inkohärente Photonen pro Sekunde emittiert werden. Dies erschwert jedoch die Messung des Auger-Effektes, weshalb dieser auch in selbstorganisierten Quantenpunkten lange unentdeckt geblieben ist [Kurzmann16a].

5.8 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde die Tunneldynamik von einzelnen Elektronen zwischen dem Quantenpunkt und dem Elektronenreservoir in einer energetisch hochaufgelösten und zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenz Messung untersucht. Über die angelegte Spannung V_g zwischen dem Gate und dem Rückkontakt, wurde die Beladung des Quantenpunktes eingestellt. Der Besetzungszustand des Quantenpunktes wurde dann über die optische Anregung des Exzitonzustands zeitaufgelöst detektiert. Durch die präzise Bestimmung der Stark-Verschiebung konnte hier eine sehr hohe energetische Auflösung für die gepulsten Messungen erzielt werden.

Die Spinartung des s -Zustandes ist aufgrund der Feinstrukturaufspaltung aufgehoben, sodass die Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{in} ($d_{in} = 2$) doppelt so viele mögliche Tunnelpfade besitzt wie die Tunnelrate aus dem Quantenpunkt heraus γ_{out} ($d_{out} = 1$). Daraus folgt auch, wie bereits von Kurzmann et al. [Kurzmann19] beobachtet, eine doppelt so hohe Tunnelrate in den Quantenpunkt im Bereich des Übergangs zwischen unbesetztem und einfach-besetztem s -Zustand. Für größere Spannungen, das heißt im Bereich zwischen dem einfach-besetzten und dem zweifach-besetzten s_1 -Zustand, wurden kleine Resonanzen auf der insgesamt abfallende Rate beobachtet. Diese können zum Beispiel durch Defekte in der Umgebung oder in der Tunnelbarriere verursacht werden. Eine weitere Erklärung wären Variationen in der Zustandsdichte des Rückkontakts. Insgesamt konnten bei einer Dicke der Tunnelbarriere von 45 nm Tunnelraten im Bereich von Millisekunden gemessen werden.

Mit Nichtgleichgewichtsmessungen am Trionübergang wurde die Auger-Rate in Abhängigkeit der angelegten Spannung V_g bestimmt. Diese befindet sich auch für diese Quantenpunkte (QDII und QDIII) im Bereich von Mikrosekunden und zeigt einen leicht linear abfallenden Trend mit steigender Spannung. Die in der Tunneldynamik beobachteten Resonanzen konnten in der Auger-Rate nicht beobachtet werden, daher wurden diese der Elektronendynamik zugeordnet.

Eine Simulation der frequenzverstimmt zeitaufgelösten Messungen der Trionresonanz hat gezeigt, dass nur zum Zeitpunkt $t = 0$ die unverbreiterte Linienbreite der Resonanz gemessen wird. Bereits nach etwa 0.2 ms ist eine deutliche Verbreiterung durch das Verhältnis aus der Auger-Rate und der Tunnelrate in den Quantenpunkt (siehe Gl. (5.3.4)) zu erkennen.

An einem dritten Quantenpunkt (QDIII) mit einer außergewöhnlich großen Emissionsfrequenz wurden die Messungen wiederholt. Dabei wurde eine bis zu zwei Größenordnungen höhere Tunnelrate in den Quantenpunkt und eine bis zu einer Größenordnung niedrigere Auger-Rate beobachtet. Diese Effekte lassen sich wahrscheinlich auf die hohe Spannung, welche benötigt wird um den Quantenpunkt in Resonanz mit dem Elektronenreservoir zu bringen, zurückführen.

Zwei-Photonen Photoeffekt an einzelnen Elektronen im Quantenpunkt

In diesem Kapitel wird der interne Photoeffekt in Abhängigkeit von der Photonenfrequenz beschrieben. Bereits Lochner et al. [Lochner21b] konnten die Emission eines einzelnen Elektrons aus dem Quantenpunkt durch die Absorption eines Photons zeigen. Da jedoch der Endzustand des Elektrons bisher unbekannt ist und dieser sowohl für die theoretische Beschreibung als auch für die Unterdrückung dieses unerwünschten Effekts von großem Interesse ist, beschäftigt sich diese Arbeit mit der energieabhängigen Photoemission des Elektrons. Diese Information kann Aufschluss über die energetische Struktur des Endzustandes des Elektrons geben. Abbildung 6.0.1 zeigt schematisch die beschriebene Fragestellung und das Ziel der folgenden Experimente.

Als Methode wurde erstmals das Telegraphenrauschen (siehe Abschnitt 3.3.4) in Kombination mit der internen Photoemissions-Spektroskopie (iPES, siehe Abschnitt 3.3.5) eingesetzt. Damit kann die Photoemissionsrate energetisch hochaufgelöst bestimmt werden. Die Messungen wurden am Quantenpunkt (QDII) aus Kapitel 5 durchgeführt. Der Exzitonübergang, der resonant mit einem leistungs- und frequenzstabilisierten Laser angeregt wird, dient zur Detektion der Elektronenemission aus dem Quantenpunkt. Die Gatespannung V_g wird so gewählt, dass im Gleichgewicht der Quantenpunkt mit einem Elektron aus dem Elektronenreservoir geladen und der Exzitonübergang blockiert ist. Um sicherzustellen, dass die Elektronenemission nicht bereits durch den resonanten Laser erfolgt, wird zunächst der Einfluss des resonanten Lasers auf die Rate gemessen. Anschließend wird mit zwei Lasern die frequenzabhängige Elektronenemissionsrate bestimmt.

Die in diesem Kapitel gezeigten Daten wurden im Rahmen der Masterarbeit von Britta Maib [Maib23] erhoben, sodass die Abbildungen und Formulierungen an die sehr ausführliche Abschlussarbeit angelehnt sind.

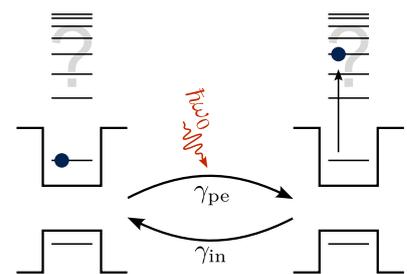


Abbildung 6.0.1: Schematische Darstellung des internen Photoeffekts eines Elektrons aus dem einfach-besetzten Quantenpunkt in einen unbekannt höheren Zustand mit der Photoemissionsrate γ_{pe} .

6.1 Einfluss des resonanten Lasers auf die interne Photoemission in einem Quantenpunkt

Bei der internen Photoemissions-Spektroskopie werden zwei Laser zur Anregung der Quantenpunktzustände eingekoppelt. Der erste Laser (im Folgenden mit dem Index: *res* gekennzeichnet) regt den Exzitonzustand resonant an, wenn der Quantenpunkt unbesetzt ist. Die Gatespannung V_g wird so gewählt, dass der Quantenpunkt eigentlich immer mit einem Elektron besetzt ist und der Exzitonzustand nicht angeregt werden kann. Der zweite Laser (im Folgenden mit dem Index: *n-res* gekennzeichnet) wird in der Frequenz durchgestimmt und soll dabei einen Elektronenemissionsprozess induzieren, welcher dann über den Exzitonübergang detektiert wird. Da prinzipiell jedes Photon seine Energie zunächst an das Elektron im Quantenpunkt abgeben kann, kann auch der resonante Laser einen Elektronenemissionsprozess induzieren. Dieser Einfluss wird mit einem Telegraphenrauschen bestimmt, bei dem der resonante Laser mit einer stabilisierten Anregungsintensität von $1.0 \times 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ und einer stabilisierten Frequenz von 327.379 73 THz in den Quantenpunkt eingekoppelt wird. Der zweite Laser wird für diese Messung nicht eingeschaltet. Die Gatespannung V_g wird wie bei allen folgenden iPES-Messungen auf 0.624 V eingestellt, sodass sich im Gleichgewicht ein Elektron im Quantenpunkt befindet (siehe Abb. 5.2.1). Für eine Messung werden acht Minuten lang alle Zeitstempel über den Zeit-Digital-Wandler aufgenommen. Zur Veranschaulichung werden im Folgenden die Schritte der Datenverarbeitung (siehe Abschnitt 3.3.4) einmal vollständig dargestellt und erläutert. Im weiteren Verlauf der Arbeit wird aus Gründen der Übersichtlichkeit darauf verzichtet.

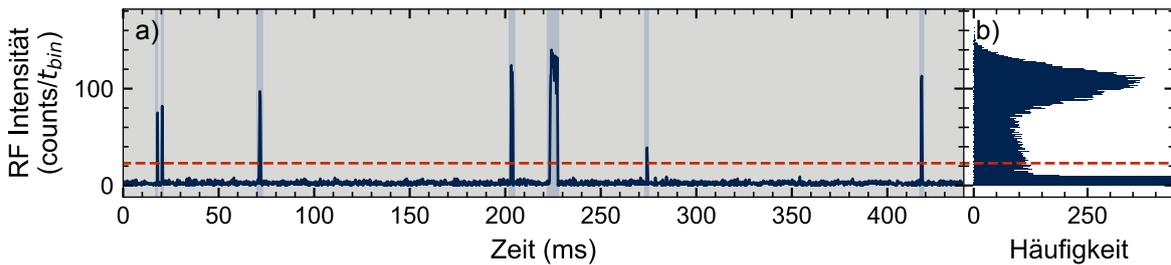


Abbildung 6.1.1: a) RF Intensität als Funktion der Zeit nachdem die Anzahl der Zeitstempel in Zeitintervallen von $t_{bin} = 0.2$ ms addiert wurden. Die blau unterlegten Bereiche geben die τ_{on} -Intervalle und die grau unterlegten Bereiche die τ_{off} -Intervalle an. Die rote gestrichelte Linie zeigt den Grenzwert von $20 \text{ counts}/t_{bin}$. b) Horizontales Histogramm als Funktion der RF Intensität. Der durch die rote gestrichelte Linie markierte Grenzwert liegt zwischen $1/4$ der beiden Poisson-Verteilungen.

Zunächst wird für das Telegraphenrauschen eine Zeitauflösung t_{bin} von 0.2 ms festgelegt. Diese Wahl wird aufgrund der im Abschnitt 3.3.4 erläuterten Abhängigkeit der Raten von der Zeitauflösung getroffen. So ist in Abbildung 6.1.1a) die RF Intensität als Funktion der Zeit dargestellt. Mit Hilfe des Grenzwertes von $20 \text{ counts}/t_{bin}$, der in Abbildung 6.1.1 als rote gestrichelte Linie eingezeichnet ist, lassen sich Bereiche geringer Intensität als τ_{off} und Bereiche hoher Intensität als τ_{on} identifizieren.

Da die Photoemissionsrate für den resonanten Laser nach oben abgeschätzt werden soll, wird der Grenzwert so gewählt, dass die Rate der τ_{off} -Intervalle überschätzt und die Rate der τ_{on} -Intervalle unterschätzt wird, das heißt zwischen $1/4$ der beiden Poisson-Verteilungen. Bei der weiteren Datenverarbeitung wird der Grenzwert immer in die Mitte zwischen den beiden Poisson-Verteilungen gelegt.

Wie in Abschnitt 3.3.5 beschrieben, repräsentieren die τ_{off} -Intervalle den nicht-strahlenden Zustand des X_{off} und damit die statistische Zeit bis zum Auftreten einer Elektronenemission und die τ_{on} -

Intervalle den strahlenden Zustand des X_{on} und damit die statistische Zeit bis zum Auftreten eines Tunnelereignisses. Die interne Photoemissionsrate des resonanten Lasers wird somit aus der Wartezeitverteilung der τ_{off} -Intervalle bestimmt. In Abbildung 6.1.1b) ist die Häufigkeit als Funktion der RF Intensität in einem horizontalen Histogramm mit dem gewählten Grenzwert von 20 counts/ t_{bin} dargestellt. Bereits hier ist an der geringen Häufigkeit der oberen Poisson-Verteilung zu erkennen, dass der Einfluss des resonanten Lasers bei der eingestellten Anregungsleistung sehr gering ist.

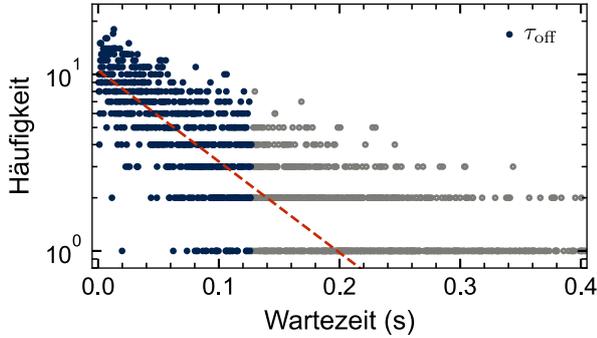


Abbildung 6.1.2: Halblogarithmische Auftragung der Wartezeitverteilung der τ_{off} -Intervalle, welche aus dem Telegraphenrauschen (siehe Abb. 6.1.1a)) mit einem gewählten Grenzwert von 20 counts/ t_{bin} erstellt wird. Die grauen Kreise sind statistisch so selten, dass sie nicht zuverlässig sind und daher nicht in die Anpassung mit einbezogen werden. Die lineare Anpassung der blauen Datenpunkte, dargestellt durch die rote gestrichelte Linie, ergibt eine Photoemissionsrate γ_{pe} für den resonanten Laser von $(11.9 \pm 0.5) \text{ s}^{-1}$.

den können. Für alle Messreihen werden die Schritte der Datenverarbeitung durchgeführt und eine Photoemissionsrate über die Wartezeitverteilung der τ_{off} -Intervalle ermittelt. Anschließend wird der Mittelwert der Photoemissionsrate des resonanten Lasers zu $\gamma_{\text{pe}} = (11.3 \pm 1.5) \text{ s}^{-1}$ bestimmt. Dies ist durch die Wahl des Grenzwertes von 20 counts/ t_{bin} eine Abschätzung nach oben und kann somit als konstanter Offset für die frequenzabhängige Bestimmung der Elektronenemissionsrate γ_{ee} berücksichtigt werden.

6.1.1 Intensitätsabhängigkeit der internen Photoemission des resonanten Lasers

Im vorherigen Abschnitt wurde angenommen, dass bei der Anregung durch den resonanten Laser bereits der interne Photoeffekt im Quantenpunkt beobachtet wird und dieser ausschließlich für die Elektronenemission aus dem einfach-besetzten Quantenpunkt verantwortlich ist. Eine Möglichkeit, diese Annahme zu bestätigen, ist die Beobachtung der Photoemissionsintensität in Abhängigkeit von der Anregungsintensität des resonanten Lasers. Dabei gibt die Steigung der linearen Anpassung an diese Beziehung an, welcher Ordnung der Prozess entspricht, das heißt ein Prozess erster Ordnung hat die Steigung $m = 1$, was zum Beispiel bei der intensitätsabhängigen Anregung eines Exzitons beobachtet werden kann [Klenovský17, Kako04]. Da hier jedoch die Photoemissionsintensität nicht direkt beobachtet werden kann, wird im Folgenden die Elektronenemissionsrate als Funktion der Anregungsintensität gemessen. Der Zusammenhang zwischen Rate und Intensität wird im Abschnitt 6.2.2 ausführlich erläutert.

Für die anregungsintensitätsabhängige Elektronenemissionsrate wird wie bereits zuvor die Gate-Spannung V_g bei der iPES auf 0.624 V eingestellt, sodass sich im Gleichgewicht ein Elektron im

In Abbildung 6.1.2 ist die Wartezeitverteilung für die τ_{off} -Intervalle dargestellt. Auch hier ist zu erkennen, dass die Statistik stark ver-rauscht ist, weshalb ein zusätzlicher Grenzwert eingeführt wird. Die Intervalle unterhalb des Grenzwertes (blaue Punkte) werden für die lineare Anpassung verwendet (logarithmische x-Achse). Die Kreise oberhalb des Grenzwertes (graue Kreise) sind statistisch so selten, dass sie nicht zuverlässig sind und daher nicht in die Anpassung einbezogen werden. Der Grenzwert wird so gewählt, dass Wartezeiten mit nur einem Ereignis selten oder gar nicht auftreten. Die Photoemissionsrate γ_{pe} ergibt sich schließlich aus der Steigung der linearen Anpassung an die blauen Datenpunkte.

Da die einzelne Messreihe aufgrund der wenigen Emissionsereignisse des resonanten Lasers sehr fehlerbehaftet ist, werden insgesamt zehn Messungen nach dem gleichen Schema durchgeführt. Alternativ hätte auch eine wesentlich längere kontinuierliche Messung durchgeführt werden können.

Quantenpunkt befindet (siehe Abb. 5.2.1). Anschließend werden für fünf verschiedene Laserintensitäten zwischen $1.0 \times 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ und $2.0 \times 10^{-1} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ und einer festen Anregungsfrequenz von $327.379\,73 \text{ THz}$, die der des Exzitons entspricht, alle Zeitstempel über den Zeit-Digital-Wandler acht Minuten lang aufgezeichnet. Das Telegraphenrauschen wird nach dem im Abschnitt 3.3.4 beschriebenen Verfahren mit einer Zeitauflösung t_{bin} von 0.2 ms verarbeitet. Aus den Wartezeitverteilungen der τ_{off} -Intervalle ergeben sich die Elektronenemissionsraten γ_{ee} , welche sich aus den Photoemissionsraten γ_{pe} und den besetzungsabhängigen Auger-Raten γ_{A} zusammensetzen. Diese sind in Abbildung 6.1.3 in einer doppellogarithmischen Grafik dargestellt, wodurch der lineare Zusammenhang direkt ersichtlich wird. Die Steigung der linearen Anpassung ergibt $m = (1.04 \pm 0.02) \mu\text{m}^2 \text{ s}/\mu\text{W}$ und zeigt damit eine direkte Proportionalität zur Anregungsintensität des resonanten Lasers. Weiterhin kann aus diesem Ergebnis geschlossen werden, dass bei der Anregung mit dem resonanten Laser die interne Photoemission der einzige Effekt ist, der den einfach-besetzten Quantenpunkt entleert und damit die Anregung des Exzitonzustands ermöglicht. Da die Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions $n(\Delta\omega)$ für diese Messung gleich Null ist, ist hier die Elektronenemissionsrate γ_{ee} also gleich der Photoemissionsrate γ_{pe} , was die zuvor getroffene Abschätzung für den Einfluss des resonanten Lasers auf die Photoemission bestätigt. Somit kann im Folgenden bei einer Anregungsintensität des resonanten Lasers von $1.0 \times 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ der Anteil der Photoemission des resonanten Lasers von 11.3 s^{-1} von der gemessenen Elektronenemissionsrate γ_{ee} abgezogen werden.

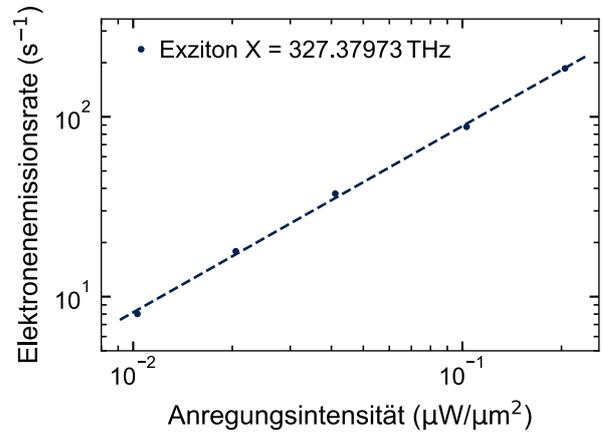


Abbildung 6.1.3: Doppellogarithmische Auftragung der Elektronenemissionsrate γ_{ee} als Funktion der Anregungsintensität des resonanten Lasers. Die Datenpunkte stammen aus dem jeweiligen Telegraphenrauschen mit einer Zeitauflösung t_{bin} von 0.2 ms , einer Gatespannung V_{g} von 0.624 V und einer stabilisierten Anregungsfrequenz von $327.379\,73 \text{ THz}$. Die lineare Anpassung hat eine Steigung von $m = (1.04 \pm 0.02) \mu\text{m}^2 \text{ s}/\mu\text{W}$.

6.2 Resonante Fluoreszenz über die Phononenerzeugung in einem Quantenpunkt

In diesem Kapitel wird die frequenzabhängige interne Photoemissions-Spektroskopie für den Frequenzbereich zwischen 325.85 THz und 327.15 THz diskutiert. Dabei ist zu beachten, dass in diesem Bereich der Trionübergang X^- ($\nu_{X^-} = 325.958\,275$ THz) liegt und somit die Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions $n(\Delta\omega)$ teilweise ungleich Null ist. Daher wird im Folgenden die Elektronenemissionsrate $\gamma_{ee} = \gamma_{pe} + n(\Delta\omega)\gamma_A$ gemessen und dargestellt. Aufgrund der hohen spektralen Auflösung der internen Photoemissions-Spektroskopie wird hier erstmals die Kopplung zwischen Phononenerzeugung und Auger-Effekt in einem selbstorganisierten Quantenpunkt gezeigt. Zum Vergleich dient eine spektrale resonante Fluoreszenzmessung der Phononseitenbande des Exzitons mit einem Gitterspektrometer (siehe Abschnitt 6.3).

6.2.1 Phononenassistierte Trionresonanz

Die Messungen basieren auf der im Abschnitt 3.3.5 beschriebenen internen Photoemissions-Spektroskopie, die mit Hilfe des Telegraphenrauschens und entsprechender Datenverarbeitung (siehe Abschnitt 3.3.4) zur Bestimmung der Elektronenemissionsrate γ_{ee} führt. Die Gatespannung V_g wird wie zuvor auf 0.624 V eingestellt, sodass der Quantenpunkt im Gleichgewicht mit einem Elektron besetzt ist.

Für die Datenverarbeitung wird eine zeitliche Auflösung t_{bin} von 0.2 ms gewählt. Die Grenzen zwischen den τ_{off} - und τ_{on} -Intervallen werden aus den jeweiligen Histogrammen bestimmt und liegen immer in der Mitte zwischen den beiden Poisson-Verteilungen. Die Intensität und Frequenz des resonanten Lasers werden während einer Messung aktiv stabilisiert und über die gesamte Messreihe konstant auf $1.0 \times 10^{-2} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ bzw. 327.379 73 THz gehalten. Der zweite Laser wird mit einer festen Intensität von $0.2 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ bzw. $0.04 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ in der Frequenz verstimmt. Die Frequenzschritte betragen 10 GHz, was einer energetischen Auflösung von 40 μeV entspricht.

Abbildung 6.2.1 zeigt die Elektronenemissionsrate γ_{ee} als Funktion der Frequenzverstimmung des zweiten Lasers für zwei verschiedene Anregungsintensitäten. Diese Raten werden aus der Wartezeitverteilung der τ_{off} -Intervalle gewonnen. Zur Orientierung ist die Resonanzfrequenz des Trions X^- durch die rote gestrichelte Linie dargestellt.

Zunächst ist zu erkennen, dass die Elektronenemissionsrate erwartungsgemäß mit steigender Anregungsintensität zunimmt (vergleiche blaue und graue Datenpunkte), wobei beide Messungen die gleiche Charakteristik aufweisen. Lochner et al. [Lochner21b] konnten für eine feste nicht-resonante Frequenz einen linearen Zusammenhang zwischen der Anregungsintensität des zweiten Lasers und der Photoemissionsrate zeigen.

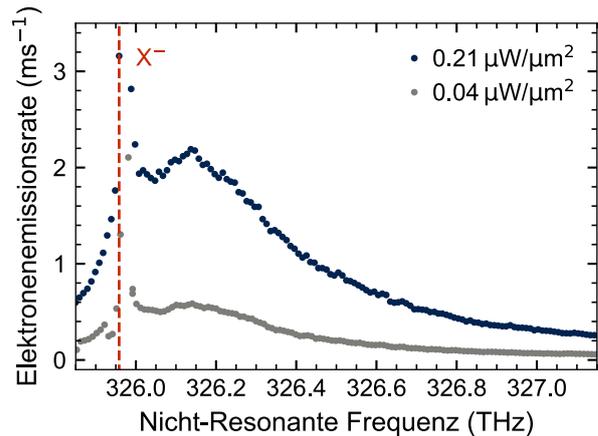


Abbildung 6.2.1: Elektronenemissionsrate als Funktion der nicht-resonanten Laserfrequenz im Bereich des Trionübergangs ($\nu_{X^-} = 325.958\,275$ THz, rote gestrichelte Linie) für zwei verschiedene Anregungsintensitäten. Auf der rechten Flanke der Trionresonanz ist die Phononseitenbande (Stokes-Verschiebung) zu beobachten, die durch die Phononenerzeugung während der Anregung des Trionübergangs entsteht. Die Elektronenemissionsrate ergibt sich aus der Datenverarbeitung des Telegraphenrauschens und gibt damit die Rate aller Prozesse an, die den einfach-besetzten Quantenpunkt entleeren (interne Photoemission und Auger-Effekt).

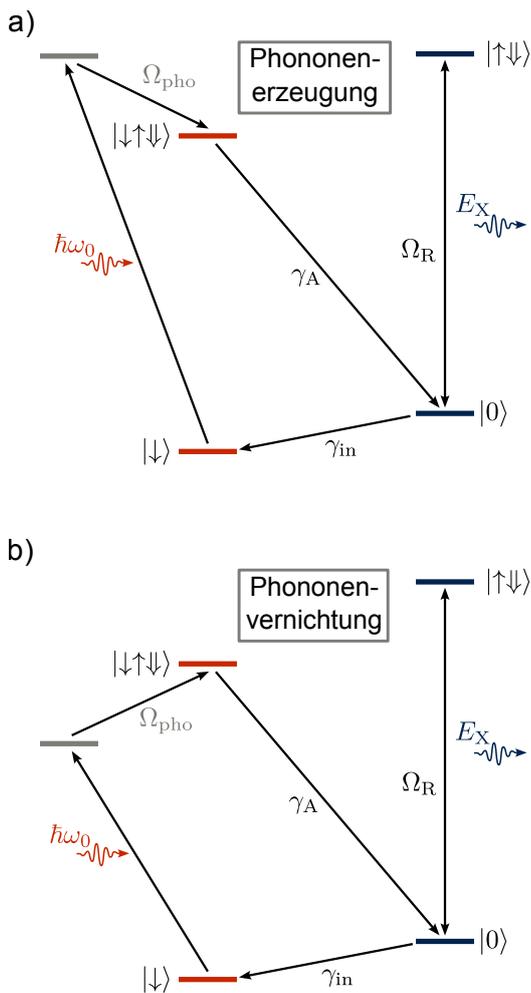


Abbildung 6.2.2: a) Phononenassisterter Auger-Effekt am nicht-resonanten Trionübergang durch die Phononenerzeugung. Ausgehend von einem einfach-besetzten Quantenpunkt kann durch nicht-resonante Anregung ein Elektron-Loch-Paar erzeugt werden, wobei das Elektron in einen virtuellen Zustand angehoben wird, der energetisch oberhalb der s-Schale liegt. Durch Phononenerzeugung Ω_{pho} wird der Trionzustand angeregt. Der Auger-Effekt entleert den Quantenpunkt, sodass der Exzitonübergang getrieben werden kann. b) Phononenassisterter Auger-Effekt am nicht-resonanten Trionübergang durch die Phononenvernichtung. Gleiches Prinzip wie bei a) mit dem Unterschied, dass die Phononenvernichtung das Elektron in einen virtuellen Zustand anhebt, der energetisch unterhalb der s-Schale liegt.

Die Trionrekombinationsrate hat erst einmal keinen direkten Einfluss auf die Elektronenemissionsrate, da die Rekombination den Quantenpunkt nicht entleert und somit kein Wechsel zwischen

Dieser Zusammenhang wird beispielhaft im Abschnitt 6.2.2 für zwei nicht-resonante Frequenzen beschrieben.

Die maximale Elektronenemissionsrate wird genau bei der Frequenz des Trionübergangs erreicht. Hier trägt nicht nur der interne Photoeffekt zur Elektronenemissionsrate bei, sondern auch der viel schnellere Auger-Effekt, der den Quantenpunkt strahlungsfrei entleert und dafür sorgt, dass der Exzitonübergang getrieben werden kann. Im Telegraphenrauschen kann nicht zwischen diesen beiden Effekten unterschieden werden, sodass die Bestimmung der absoluten internen Photoemissionsrate an dieser Stelle nicht möglich ist. Außerdem kann der angeregte Trionzustand auch strahlend rekombinieren, was ebenfalls zur Statistik beiträgt, da die detektierten Photonen nicht spektral sortiert werden.

Immer wenn das Trion durch den zweiten Lasers angeregt werden kann, tragen also insgesamt drei Prozesse zum Telegraphenrauschen bei: die interne Photoemission, die Trionrekombination und der Auger-Effekt. Diese Prozesse tragen unterschiedlich stark zu der in Abbildung 6.2.1 gezeigten Elektronenemissionsrate bei. Der Beitrag der internen Photoemission wird im Abschnitt 6.5 näher beschrieben, jedoch kann aus den bisherigen Messungen zum Einfluss des resonanten Lasers auf die Photoemission und aus der von Lochner et al. [Lochner21b] veröffentlichten Publikation die Photoemissionsrate im Bereich von Millisekunden abgeschätzt werden. Die Auger-Rate des Quantenpunktes (QDII) wurde im Kapitel 5 bestimmt und liegt in der Größenordnung von Mikrosekunden. Für die verwendete Anregungsintensität des zweiten Lasers von $0.21 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ sättigt die Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions $n(0)$ (siehe Abb. 5.4.2b)), wodurch der um mehr als drei Größenordnungen schnellere Auger-Effekt die Elektronenemissionsrate dominiert. Dabei ist zu beachten, dass die Trionrekombination und die Auger-Rate von der Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions abhängen, während die Photoemissionsrate nur von der Anregungsintensität des Lasers abhängt. Das bedeutet, dass nur in der Nähe der Resonanzfrequenz des Trions, wo die Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions $n(\Delta\omega) \neq 0$ ist, die Auger-Rate dominiert. Für Frequenzen viel kleiner als die Resonanzfrequenz kann der interne Photoeffekt unbeeinflusst beobachtet werden.

dem X_{off} -Zustand und dem X_{on} -Zustand im Telegraphenrauschen stattfindet. Im Histogramm wäre demnach eine zusätzliche Poisson-Verteilung zu erwarten. Die Trionrekombination ist jedoch so stark von dem Auger-Effekt unterdrückt, dass diese Ereignisse im Rauschen des Detektors verloren gehen und so nicht im Histogramm zu identifizieren sind. Eine Möglichkeit, die Trionrekombination vollständig herauszufiltern, besteht darin, eine spektrale Auflösung der emittierten Photonen vorzunehmen und so nur Photonen mit der Exzitonfrequenz dem X_{on} -Zustand zuzuordnen.

Weiterhin zeigt die Abbildung 6.2.1 ein asymmetrisches Verhalten an den Seiten der Trionresonanz, welches sogar ein weiteres Maximum ($\nu_{\text{n-res}} = 326.136\,98\text{ THz}$) an der Flanke zu höheren Energien aufweist. Hier findet durch eine Absorption von zwei Photonen eine Kopplung zwischen einem Phonon und dem Auger-Effekt statt. Diese sogenannten Phononseitenbanden können auf zwei verschiedene Arten entstehen. Abbildung 6.2.2 zeigt schematisch die Phononenerzeugung und die Phononenvernichtung, durch die der Trionzustand nicht-resonant angeregt werden kann. Zu beachten ist, dass der Phononenprozess während der Anregung des Trionübergangs stattfindet und in dieser Messung nur aufgrund des Auger-Effektes sichtbar ist. In beiden Fällen wird durch die nicht-resonante Anregung des zweiten Lasers ein virtueller Zustand mit einem Elektron besetzt. Bei der Phononenerzeugung (Stokes-Verschiebung) liegt dieser Zustand energetisch oberhalb der s-Schale des Leitungsbandes im Quantenpunkt, sodass die Energiedifferenz Ω_{pho} zwischen virtuellem Zustand und Trionzustand in die Erzeugung eines Phonons umgesetzt wird. Das Elektron relaxiert in die s-Schale des Leitungsbandes, sodass ein angeregter Trionzustand im Quantenpunkt verbleibt. Von hier an gelten die oben beschriebenen Relaxationsprozesse zurück in den einfach-besetzten beziehungsweise unbesetzten Quantenpunkt, wobei zu beachten ist, dass die Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions nicht der resonanten Anregung entspricht. Bei der Phononenvernichtung (Anti-Stokes-Verschiebung) hingegen liegt der Zustand energetisch unterhalb der s-Schale des Leitungsbandes im Quantenpunkt, sodass bei der Vernichtung eines Phonons die Energie des Phonons auf das Elektron übertragen wird. Das Elektron wird dadurch in die s-Schale des Leitungsbandes angehoben, sodass ebenfalls ein angeregter Trionzustand zurückbleibt. Für diesen Prozess sind freie Phononen notwendig. Phononen (Gitterschwingungen, Wärme) sind jedoch stark temperaturabhängig, sodass sie bei der Temperatur des Quantenpunktes (flüssiges Helium, 4.2 K) kaum oder gar nicht vorhanden sind. Die Erzeugung von Phononen ist dagegen auch bei sehr niedrigen Temperaturen möglich [Weiler12]. Aus der Temperaturabhängigkeit der Phononen resultiert die Asymmetrie der Phononseitenbande. Die detaillierte Temperaturabhängigkeit inklusive einer Anpassung an die Daten ist im Abschnitt 6.4.1 dargestellt.

Die Exziton-Phonon-Wechselwirkung tritt jedoch nicht nur beim Trionübergang auf, sondern kann auch, wie im Abschnitt 6.3 gezeigt, bei der Exzitonrekombination mit Hilfe eines Gitterspektrometers beobachtet werden.

6.2.2 Intensitätsabhängigkeit der Elektronenemissionsrate

Die Abhängigkeit der Elektronenemissionsrate von der Anregungsintensität kann, wie bereits für die Photoemission beim resonanten Laser gezeigt, Aufschluss über die Anzahl der beteiligten Prozesse geben. Für den resonanten Laser (siehe Abschnitt 6.1.1) konnte gezeigt werden, dass die Rate direkt proportional zur Anregungsintensität ist, sodass nur der interne Photoeffekt den einfach-besetzten Quantenpunkt entleeren und den Exzitonübergang treiben kann. Für die oben gezeigten iPES-Messungen mit einem zusätzlichen nicht-resonanten Laser ist dieser Zusammenhang jedoch komplizierter, da der Auger-Effekt von der Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions $n(\Delta\omega)$ abhängt und dazu führt, dass das Elektron den Quantenpunkt nicht-strahlend verlässt. Zur Bestimmung dieser Abhängigkeit wird die Anregungsintensität des Lasers für zwei verschiedene nicht-resonante Laserfrequenzen (326.15 THz und 326.40 THz) schrittweise abgefahren. Für jeden Schritt wird ein Telegraphenrauschen aufgezeichnet und anschließend mit einer Zeitauflösung t_{bin} von 0.2 ms ausge-

wertet. Der Grenzwert, der zwischen den τ_{off} - und den τ_{on} -Intervallen unterscheidet, muss für jede Messung eingestellt werden und liegt zwischen $36 \text{ counts}/t_{\text{bin}}$ und $150 \text{ counts}/t_{\text{bin}}$.

In Abbildung 6.2.3a) ist zunächst noch einmal die nicht-resonante Frequenzabhängigkeit der Elektronenemissionsrate für eine Anregungsintensität von $0.21 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ dargestellt. Zur Übersicht sind die beiden Frequenzen markiert, für die die Abhängigkeit von der Anregungsintensität gemessen wurde. Diese Elektronenemissionsraten als Funktion der Anregungsintensität sind in Abbildung 6.2.3b) in doppellogarithmischer Darstellung aufgetragen. Die lineare Anpassung an die Datenpunkte ergibt eine Steigung von $m = (0.92 \pm 0.02) \mu\text{m}^2 \text{ s}/\mu\text{W}$ für die Anregungsfrequenz von 326.15 THz und $m = (0.84 \pm 0.03) \mu\text{m}^2 \text{ s}/\mu\text{W}$ für die Anregungsfrequenz von 326.40 THz .

Es ist also zu beobachten, dass mit abnehmendem Einfluss des Auger-Effekts, das heißt in dieser Darstellung mit zunehmender Frequenz, die Steigung der linearen Anpassung flacher wird. Die interne Photoemission ist jedoch ein Prozess erster Ordnung, sodass die Steigung der Photoemissionsintensität als Funktion der Anregungsintensität linear mit $m = 1$ ist, da nur ein Photon an diesem Prozess beteiligt ist. Diese Photoemissionsintensität ist jedoch sehr schwer zugänglich, weshalb im Folgenden der Zusammenhang zwischen den verschiedenen beteiligten Raten und der Intensität untersucht wird.

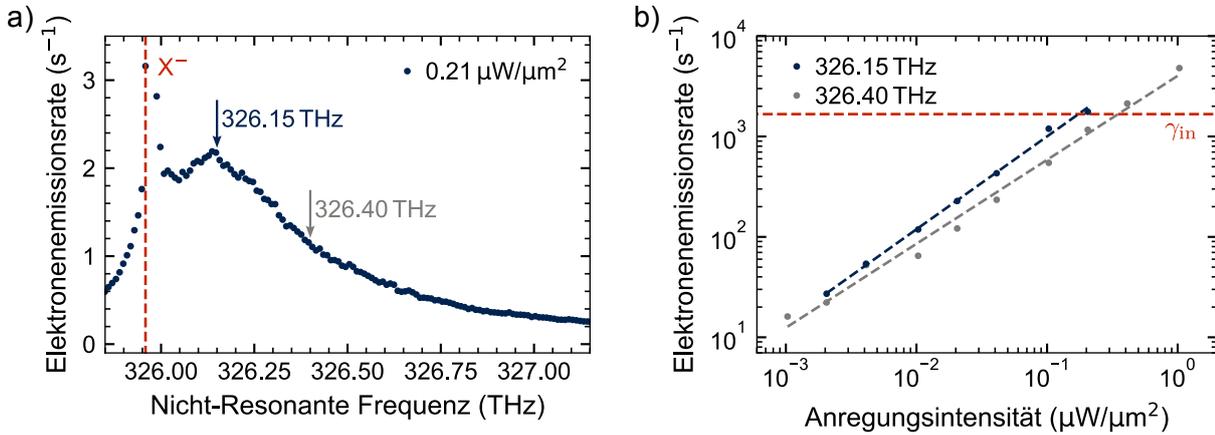


Abbildung 6.2.3: a) Elektronenemissionsrate als Funktion der nicht-resonanten Laserfrequenz im Bereich des Trionübergangs ($\nu_{X^-} = 325.958275 \text{ THz}$, rote gestrichelte Linie). b) Elektronenemissionsrate als Funktion der Anregungsintensität des nicht-resonanten Lasers für die beiden in a) markierten Frequenzen. Die Steigungen für die linearen Anpassungen betragen $m = (0.92 \pm 0.02) \mu\text{m}^2 \text{ s}/\mu\text{W}$ für die Anregungsfrequenz von 326.15 THz (blaue gestrichelte Linie) und $m = (0.84 \pm 0.03) \mu\text{m}^2 \text{ s}/\mu\text{W}$ für die Anregungsfrequenz von 326.40 THz (graue gestrichelte Linie). Die rote gestrichelte Linie zeigt die Tunnelrate γ_{in} , die unabhängig von der Anregungsintensität ist (siehe Abschnitt 6.5.3).

Für diese Betrachtung werden zunächst die Photonen vernachlässigt, die durch die strahlende Trionrekombination detektiert werden, da diese aufgrund der starken Unterdrückung durch den Auger-Effekt nur in geringer Anzahl vorkommen. In einer gepulsten Messung, wie sie in Kapitel 4 und Kapitel 5 durchgeführt wurde, kann der Zusammenhang zwischen den Raten und der Intensität über das Drei-Zustands-Ratenmodell bestimmt werden. Der detektierte Zustand ist dabei der Gleichgewichtszustand, das heißt für den Auger-Effekt das Trion mit einem einfach-besetzten Quantenpunkt im Gleichgewicht und für die Tunneldynamik das Exziton mit einem unbesetzten Quantenpunkt im Gleichgewicht. Für die interne Photoemissions-Spektroskopie ist der Gleichgewichtszustand der einfach-besetzte Quantenpunkt. Die Photonen aus der Exzitonrekombination werden wie bei Lochner et al. [Lochner21b] in einer gepulsten Messung oder wie in dieser Arbeit über das Telegraphenrauschen detektiert. Dadurch ändern sich die Ratengleichungen mit den konkurrierenden Prozessen wie folgt:

$$\dot{P}_{|\uparrow\downarrow\rangle}(t) = \gamma_{\text{pe}}P_{|\uparrow\rangle}(t) + n(\Delta\omega)\gamma_A P_{|\uparrow\rangle}(t) + (1 - n(\Delta\omega))\gamma_{\text{out}}P_{|\uparrow\rangle}(t) - \gamma_{\text{in}}P_{|\uparrow\downarrow\rangle}(t), \quad (6.2.1)$$

$$\dot{P}_{|\uparrow\rangle}(t) = -\dot{P}_{|\uparrow\downarrow\rangle}(t), \quad (6.2.2)$$

wobei $P_{|\uparrow\downarrow\rangle}(t)$ die zeitabhängige Besetzungswahrscheinlichkeit für den unbesetzten Quantenpunkt (strahlender Zustand) und $P_{|\uparrow\rangle}(t)$ die zeitabhängige Besetzungswahrscheinlichkeit für den einfachbesetzten Quantenpunkt (nicht-strahlender Zustand) ist. Die Lösung der Ratengleichungen (6.2.1) und (6.2.2) erfolgt mit der Anfangsbedingung $P_{|\uparrow\downarrow\rangle}(0) = 0$:

$$P_{|\uparrow\downarrow\rangle}(t) = \frac{(\gamma_{\text{pe}} + n(\Delta\omega)\gamma_A + (1 - n(\Delta\omega))\gamma_{\text{out}})(1 - e^{-(\gamma_{\text{pe}} + n(\Delta\omega)\gamma_A + (1 - n(\Delta\omega))\gamma_{\text{out}} + \gamma_{\text{in}})t})}{\gamma_{\text{pe}} + n(\Delta\omega)\gamma_A + (1 - n(\Delta\omega))\gamma_{\text{out}} + \gamma_{\text{in}}}, \quad (6.2.3)$$

dabei fasst in diesem Fall die gemessene Elektronenemissionsrate γ_{ee} die drei Raten, die den Quantenpunkt entleeren, zu $\gamma_{\text{ee}} = \gamma_{\text{pe}} + n(\Delta\omega)\gamma_A + (1 - n(\Delta\omega))\gamma_{\text{out}}$ zusammen. Die verwendete Gatespannung ist so gewählt, dass die Tunnelrate aus dem Quantenpunkt zurück in das Elektronenreservoir γ_{out} vernachlässigbar klein ist (siehe Abb. 5.3.2). Bei dem hier gezeigten Telegraphenrauschen werden keine Gatespannungspulse an den Quantenpunkt angelegt, um diesen aktiv aus dem Gleichgewichtszustand zu bringen, sodass der Zusammenhang für die Intensität des Exzitons im Langzeitlimit ($t \rightarrow \infty$) betrachtet werden kann:

$$I_{|\uparrow\downarrow\rangle}(t \rightarrow \infty) = I_{|\uparrow\downarrow\rangle}(0) \frac{\gamma_{\text{ee}}}{\gamma_{\text{ee}} + \gamma_{\text{in}}}. \quad (6.2.4)$$

Das Verhältnis der Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{in} zur Elektronenemissionsrate γ_{ee} ist entscheidend für den Zusammenhang zwischen Rate und Intensität. Für die Grenzfälle gilt daher:

$$\begin{aligned} \gamma_{\text{ee}} \ll \gamma_{\text{in}} : & \quad I_{|\uparrow\downarrow\rangle}(0) \rightarrow 0 \\ \gamma_{\text{ee}} \gg \gamma_{\text{in}} : & \quad I_{|\uparrow\downarrow\rangle}(0) \rightarrow 1. \end{aligned} \quad (6.2.5)$$

Die Tunnelrate in Abhängigkeit von der Gatespannung wurde im Kapitel 5 detailliert bestimmt und beträgt $\gamma_{\text{in}} = 1.67 \text{ ms}^{-1}$ für die verwendete Gatespannung V_g von 0.624 V (siehe Abb. 5.3.2b)). Die Elektronenemissionsrate γ_{ee} ist jedoch für die meisten Anregungsintensitäten kleiner als die Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{in} (siehe Abb. 6.2.3), was nach der Grenzfallbetrachtung aus Gleichung (6.2.5) dazu führt, dass die Rate nicht direkt proportional zur Intensität ist ($\gamma_{\text{ee}} \ll \gamma_{\text{in}} : I_{|\uparrow\downarrow\rangle}(0) \rightarrow 0$). Daraus folgt, dass die Steigung der linearen Anpassung $m < 1$ sein muss. Zum Vergleich konnten Lochner et al. [Lochner21b] für einen anderen Quantenpunkt mit einer kleineren Tunnelrate γ_{in} von 0.82 ms^{-1} beobachten, dass die Steigung der linearen Anpassung $m = 1$ ist, da die Elektronenemissionsrate γ_{ee} für die meisten Anregungsintensitäten größer als die Tunnelrate ist.

Zusammenfassend kann für diesen Quantenpunkt eine abflachende Steigung mit steigender Frequenz beziehungsweise mit abnehmendem Einfluss des Auger-Effekts beobachtet werden. Der Zusammenhang zwischen der Elektronenemissionsrate und der Intensität der Exzitonrekombination wird durch die Lösung der Ratengleichungen bestimmt. Das Verhältnis zwischen der Tunnelrate in den Quantenpunkt und der Elektronenemissionsrate bestimmt schließlich die Proportionalität zwischen Rate und Intensität. Für diesen Quantenpunkt ist die Tunnelrate γ_{in} überwiegend größer als die Elektronenemissionsrate γ_{ee} , was zu einer Steigung der linearen Anpassung kleiner als Eins führt.

6.3 Phononseitenbande der Exzitonresonanz

Um die Phononseitenbande der iPES-Messung besser verstehen zu können, wird im Folgenden die Phononseitenbande des Exzitons und deren Intensitätsabhängigkeit über die spektral aufgelöste resonante Fluoreszenz betrachtet. Da die Trionrekombination aufgrund des schnellen Auger-Effekts für diesen Quantenpunkt (QDII) (siehe Kapitel 5) zu selten auftritt, ist die Quantenausbeute stark reduziert. Entsprechend kann die Phononseitenbande des Trions mit dieser Methode nicht gemessen werden, weshalb im Folgenden der Exzitonübergang resonant getrieben wird. Dazu wird an die Probe eine Gatespannung V_g von 0.261 V angelegt, sodass sich im Gleichgewicht kein Elektron im Quantenpunkt befindet. Ein Laser mit der Resonanzfrequenz des Exzitons ν_X von 327.3689 THz treibt den Exzitonübergang. Die emittierten Photonen werden von einem Gitterspektrometer mit einer Auflösung von 11.83 GHz (49 μeV) nach ihrer Frequenz sortiert und mit einem ladungsgekoppeltem Silizium-Sensor (CCD) detektiert.

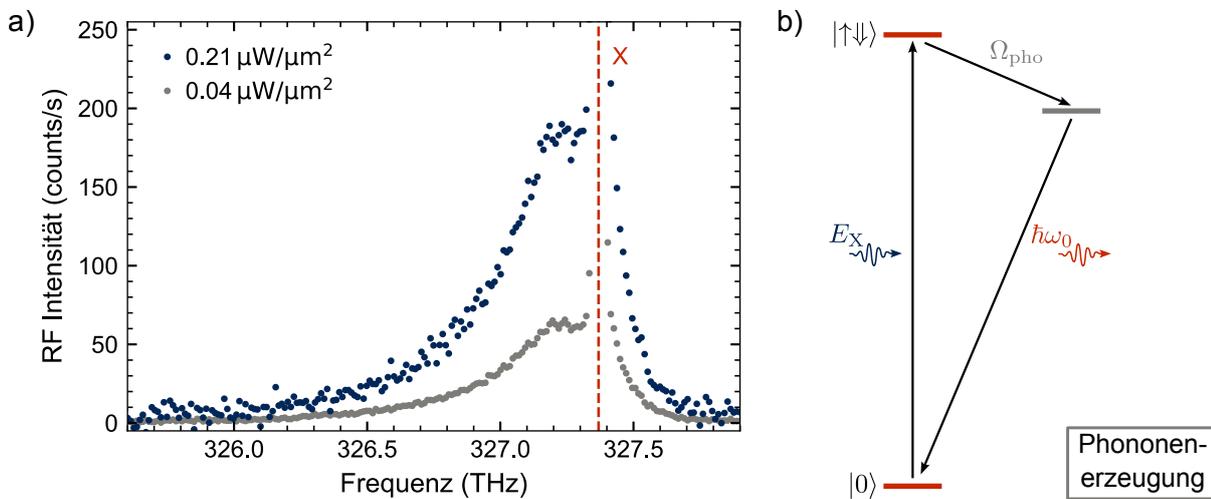


Abbildung 6.3.1: a) RF Intensität als Funktion der Photonenfrequenz für zwei verschiedene Anregungsintensitäten. Der Exzitonübergang wird resonant angeregt und die emittierten Photonen werden mit einem Gitterspektrometer spektral detektiert. Die rote gestrichelte Linie gibt die Resonanzfrequenz des Exzitons ν_X von 327.3689 THz an. Die Datenpunkte stellen 150 gemittelte Spektren mit einer Integrationszeit von je 100 ms dar. b) Schematische Darstellung der Phononenerzeugung (Stokes-Verschiebung) bei der resonanten Exzitonrekombination. Ausgehend von einem unbesetzten Quantenpunkt kann durch resonante Anregung ein Elektron-Loch-Paar erzeugt werden. Anstelle einer strahlenden Rekombination des Exzitons kann Energie für die Erzeugung eines Phonons Ω_{pho} aufgewendet werden, wobei das Elektron in einen virtuellen Zustand gelangt, der energetisch unterhalb der s-Schale liegt. Bei der anschließenden strahlenden Rekombination des Elektron-Loch-Paares wird ein Photon mit niedrigerer Energie emittiert, sodass sich die Phononseitenbande auf der niederenergetischen Flanke der Exzitonresonanz ausprägt.

Für die in Abbildung 6.3.1a) gezeigten Daten werden für jede Anregungsintensität jeweils 150 Spektren mit einer Integrationszeit von 100 ms gemittelt. Das Gleiche wird für den Hintergrund des ladungsgekoppelten Silizium-Sensors (CCD) durchgeführt, das heißt bei ausgeschaltetem Laser. Dieser wird dann vom gemittelten Spektrum subtrahiert, um das gerätespezifische Rauschen herauszufiltern. Schließlich erhält man den dargestellten Zusammenhang zwischen der RF Intensität und der Frequenz der detektierten Photonen.

Es ist zu beobachten, dass die Phononseitenbande auf der niederenergetischen Flanke der Exzitonresonanz liegt. Aufgrund der tiefen Temperatur des Quantenpunktes, muss es sich auch hier um die Stokes-Verschiebung, also um die Phononenerzeugung, handeln. Im Gegensatz zur iPES-Messung wird bei der resonanten Fluoreszenz das Phonon nach der Anregung des Exzitons, also während

der Rekombination des Elektron-Loch-Paares erzeugt. Dadurch ist die Frequenz des detektierten Photons ν'_X kleiner als die Frequenz des Exzitons ν_X . Die Frequenz des Phonons $\nu_{\Omega_{\text{pho}}}$ ergibt sich zu:

$$\nu_{\Omega_{\text{pho}}} = \nu_X - \nu'_X. \quad (6.3.1)$$

Abbildung 6.3.1b) zeigt schematisch die Phononenerzeugung für diese Messmethode. Der Quantenpunkt ist aufgrund der gewählten Gatespannung im Gleichgewicht unbesetzt. Mit Hilfe des resonanten Lasers wird das Exziton angeregt und kann nun strahlend rekombinieren. Alternativ kann ein Teil der Bindungsenergie des Exzitons für die Erzeugung eines Phonons genutzt werden, wobei das Elektron in einen virtuellen Zustand unterhalb der s-Schale des Leitungsbandes übergeht. Bei der anschließenden Rekombination wird ein Photon mit geringerer Energie emittiert. Die niedrige Temperatur der Probe führt zu einem leeren Phononenbad, sodass kein Phonon vernichtet werden kann, weshalb auch in dieser Messung die Anti-Stokes-Verschiebung sehr gering ausfällt. Die Temperaturabhängigkeit der Phononenerzeugung beziehungsweise Phononenvernichtung ist im Abschnitt 6.4.1 beschrieben.

Im nächsten Abschnitt wird die Abhängigkeit der RF Intensität von der Anregungsintensität beschrieben, die durch die direkte Messung der Intensität der Exzitonrekombination eine Aussage über die Ordnung des Prozesses erlaubt.

6.3.1 Intensitätsabhängigkeit der Phononseitenbande

Die resonante Fluoreszenz mit spektraler Detektion der Photonen stellt direkt die Intensität der jeweiligen strahlenden Übergänge dar. Durch Variation der Anregungsintensität des resonanten Lasers kann somit die Abhängigkeit der Photonenintensität von der Anregungsintensität bestimmt werden. Dies hilft, das System besser zu verstehen und gegebenenfalls eine Aussage über die Ordnung des Prozesses zu machen. Die zuvor gezeigten Spektren werden für weitere Anregungsintensitäten zwischen $4.1 \times 10^{-5} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ und $2.1 \times 10^{-1} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ aufgenommen. Die Anregungsfrequenz von 327.37 THz und die Gatespannung von 0.261 V werden weiterhin für alle Messungen verwendet.

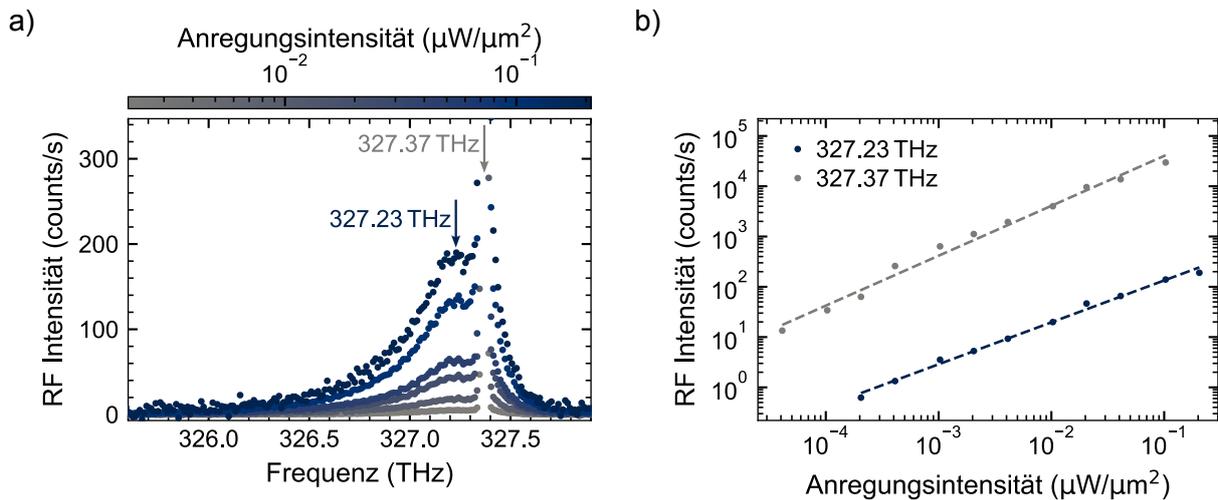


Abbildung 6.3.2: a) RF Intensität als Funktion der Frequenz der detektierten Photonen für Anregungsintensitäten zwischen $4.1 \times 10^{-5} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ und $2.1 \times 10^{-1} \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ bei resonanter Anregung des Exzitons. b) RF Intensität als Funktion der Anregungsintensität des resonanten Lasers für die beiden in a) markierten Frequenzen. Die Steigungen für die linearen Anpassungen sind $m = (0.83 \pm 0.02) \mu\text{m}^2 \text{ s}/\mu\text{W}$ für die Frequenz der detektierten Photonen von 327.23 THz (blaue gestrichelte Linie) und $m = (0.99 \pm 0.04) \mu\text{m}^2 \text{ s}/\mu\text{W}$ für die Frequenz von 327.37 THz (graue gestrichelte Linie).

Die Integrationszeit wird je nach RF Intensität des Exzitons zwischen 100 ms und 5 s eingestellt.

In Abbildung 6.3.2a) sind die Spektren dargestellt, wobei die Farbe der Datenpunkte die Anregungsintensität angibt. Für die markierten Frequenzen ist in Abbildung 6.3.2b) die RF Intensität als Funktion der Anregungsintensität in einer doppellogarithmischen Auftragung dargestellt. Die Steigung der linearen Anpassung beträgt $m = (0.83 \pm 0.02) \mu\text{m}^2\text{s}/\mu\text{W}$ für die Frequenz der detektierten Photonen von 327.23 THz (blaue gestrichelte Linie) und $m = (0.99 \pm 0.04) \mu\text{m}^2\text{s}/\mu\text{W}$ für die Frequenz von 327.37 THz (graue gestrichelte Linie). Da für die resonante Anregung eines Exzitons nur ein Photon benötigt wird, ist in einer doppellogarithmischen Auftragung zwischen der RF Intensität und der Anregungsintensität für die lineare Anpassung eine Steigung von $m = 1$ zu erwarten [Klenovský17, Kako04]. Hier stimmen die gemessenen Daten also perfekt mit den Erwartungen überein. Für die Erzeugung akustischer Phononen in einem einzelnen InAs/GaAs Quantenpunkt berichten Favero et al. [Favero03] von einer direkten Proportionalität, wobei das Verhältnis zwischen der Höhe des Phononseitenbandes und der Exzitonresonanz für verschiedene Quantenpunkte linear ist. Im Gegensatz zu diesen Messungen kann für diesen Quantenpunkt eine Steigung von $m = (0.83 \pm 0.02) \mu\text{m}^2\text{s}/\mu\text{W}$ für die lineare Anpassung an die anregungsintensitätsabhängige RF Intensität beobachtet werden. Dies deutet eher auf ein sublineares Verhalten für die Exziton-Phonon-Wechselwirkung hin. Während für die Anregung des Exzitons weiterhin nur ein Photon benötigt wird, sind für die Rekombination über die Phononseitenbande jeweils ein Phonon und ein Photon erforderlich. In anderen Halbleitermaterialsystemen konnte die Phononseitenbande mit ähnlicher Sublinearität beobachtet werden und auch hier wird auf die Rekombination über die Phononenerzeugung als Grund für die Sublinearität verwiesen [Iñarrea10, Matrippolito20].

6.4 Phononseitenbanden des Trions und des Exzitons im Vergleich

In diesem Abschnitt sollen noch einmal die beiden unterschiedlichen Prozesse, die zu der Beobachtung der Phononseitenbande (Stokes-Verschiebung) geführt haben, verglichen werden. Außerdem wird die Bindungsenergie des Elektron-Loch-Paares nach der Phononenerzeugung und die Halbwertsbreite der Phononseitenbande hinzugezogen, um schlussendlich bestätigen zu können, dass es sich in beiden Messmethoden um die phononenassistierte Resonanz handelt.

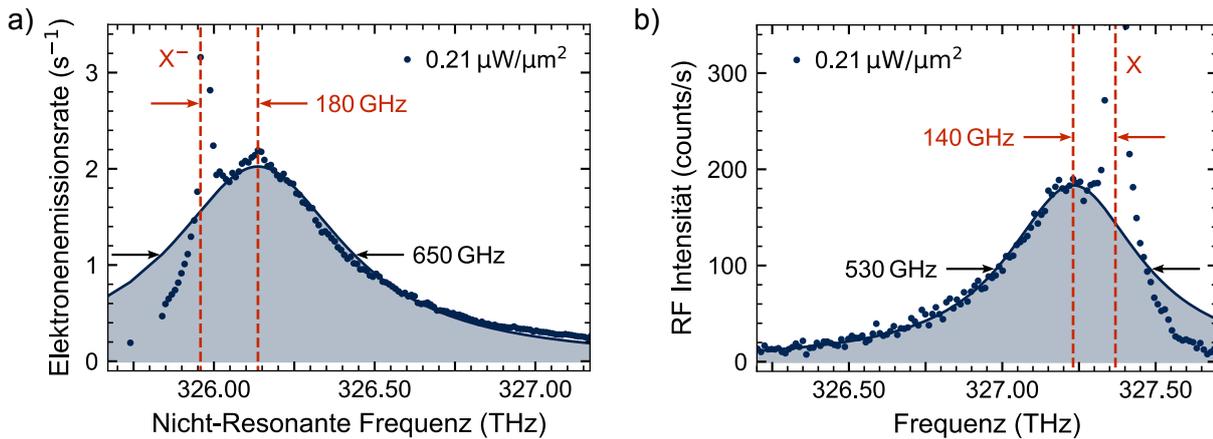


Abbildung 6.4.1: Vergleich der Phononseitenbanden mit a) iPES-Messung bei nicht-resonanter Trionanregung und b) RF-Messung bei resonanter Exzitonrekombination. Der Laser ist auf eine Anregungsintensität von $0.21 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ stabilisiert. Die Frequenz des erzeugten Phonons $\nu_{\Omega_{\text{pho}}}$, die aus der Differenz zwischen der Trionresonanz bzw. Exzitonresonanz und der Phononseitenbande berechnet wird, und die Halbwertsbreite der Phononseitenbande dienen zum direkten Vergleich.

In Abbildung 6.4.1 sind die beiden Messmethoden, a) iPES mit der Trionresonanz und b) RF mit der Exzitonresonanz, für die gleiche nicht-resonante beziehungsweise resonante Anregungsintensität von $0.21 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ gegenübergestellt. Zur besseren Vergleichbarkeit sind die Trionresonanz beziehungsweise die Exzitonresonanz und das Maximum der Phononseitenbande durch rote gestrichelte Linien markiert. Aus der Differenz lässt sich nach Gleichung (6.3.1) die Frequenz des erzeugten Phonons bestimmen. Diese beträgt bei der iPES-Messung $\nu_{\Omega_{\text{pho}}} = 180 \text{ GHz}$ (0.74 meV) und für die RF-Messung $\nu_{\Omega_{\text{pho}}} = 140 \text{ GHz}$ (0.57 meV). Diese sehr niedrige Energie der erzeugten Phononen deutet darauf hin, dass ausschließlich akustische Phononen für die Phononseitenbanden verantwortlich sind [Borri99, Sanguinetti06]. Auch die Halbwertsbreite der Phononseitenbande weist für die iPES-Messung mit 650 GHz (2.7 meV) und für die RF-Messung mit 530 GHz (2.2 meV), auf akustische Phononen hin [Favero03].

6.4.1 Exziton-Phonon-Wechselwirkung

Wie in den zuvor gezeigten Messungen beschrieben, handelt es sich bei der zusätzlichen Resonanz um die Phononseitenbande der Trionrekombination beziehungsweise Exzitonrekombination. Diese kann durch die Erzeugung eines akustischen Phonons (Stokes-Verschiebung) beobachtet werden. Dabei kommt es zu einer Exziton-Phonon-Wechselwirkung, die im Folgenden einer theoretischen Betrachtung unterzogen werden soll, wobei der Schwerpunkt auf der Temperaturabhängigkeit der Phononenerzeugung bzw. Phononenvernichtung liegt. Nach Takagahara et al. [Takagahara99] handelt es sich bei der beobachteten Phononseitenbande aufgrund der geringen energetischen Breite um die Erzeugung eines einzelnen akustischen Phonons. Die gängigste theoretische Beschreibung der Exziton-Phonon-Wechselwirkung ist die Huang-Rhys-Theorie [Huang50, Duke65]. Anstatt das Phonon als Störungsterm einzuführen, bilden das lokalisierte Exziton und das lokalisierte akustische Phonon ein neues Quantensystem mit neuen Eigenzuständen, die sich aus der Mischung der Exzitonzustände mit dem Kontinuum der Phononenzustände ergeben [Besombes01, Antonius22]. Der Hamilton dieses Quantensystems setzt sich aus dem Hamilton des Exzitons \mathcal{H}_X , des Phonons \mathcal{H}_{pho} und der Wechselwirkung \mathcal{H}_{ww} zwischen diesen beiden wie folgt zusammen [Besombes01]:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_X + \mathcal{H}_{\text{pho}} + \mathcal{H}_{\text{ww}}, \quad (6.4.1)$$

$$\mathcal{H} = E_X c^\dagger c + \sum_{\vec{p}} \hbar\omega_{\vec{p}} \left(b_{\vec{p}}^\dagger b_{\vec{p}} + \frac{1}{2} \right) + c^\dagger c \sum_{\vec{p}} M_{\vec{p}} (b_{\vec{p}}^\dagger + b_{\vec{p}}). \quad (6.4.2)$$

Der Hamilton des Exzitons beschreibt den Energiebeitrag des Exzitons, wobei E_X die Energie des Exzitons, c^\dagger der Erzeugungsoperator des Exzitons und c der Vernichtungsoperator des Exzitons ist. Der Hamilton des Phonons beschreibt den Energiebeitrag des Phonons, wobei \vec{p} der Impuls, $\hbar\omega_{\vec{p}}$ die Energie, $b_{\vec{p}}^\dagger$ der Erzeugungsoperator und $b_{\vec{p}}$ der Vernichtungsoperator des Phonons ist. Der Hamilton der Wechselwirkung zwischen Exziton und Phonon wird über die Matrixelemente $M_{\vec{p}}$ beschrieben.

Der Grundzustand des Systems bleibt der unbesetzte Quantenpunkt. Der angeregte Zustand ist jedoch aufgrund der Exziton-Phonon-Wechselwirkung kein reiner Exzitonzustand mehr, sondern enthält eine Mischung von Phononeigenzuständen. Die analytische Lösung des Hamilton (Gl. (6.4.2)) [Duke65], bei der die Nebendiagonalelemente ignoriert werden, kann die gemessenen Spektren beschreiben. Da diese Lösung sehr viele unbekannte Parameter enthält, eignet sie sich hier nicht zur Anpassung an die Daten. Eine alternative Anpassungsfunktion, die sich auf die Temperaturabhängigkeit der Phononenerzeugung bzw. Phononenvernichtung konzentriert, wird von Abbarchi et al. [Abbarchi08] in ihrer Publikation zur Photolumineszenz-Spektroskopie an einem einzelnen Quantenpunkt beschrieben. Die Funktion setzt sich aus dem ersten Term für die Exzitonresonanz und dem zweiten Term für die Phononseitenbanden zusammen. Die Exzitonresonanz wird

durch eine Voigt-Funktion mit der homogenen Linienbreite ΔE_h und der inhomogenen Linienbreite ΔE_{ih} beschrieben. Die Phononseitenbanden gehen durch eine gewichtete Gauß-Funktion mit der Linienbreite ΔE_{pho} und der empirischen Konstante A_1 für die Intensität in die Anpassung ein. Die Gewichtung beschreibt das temperaturabhängige Verhältnis zwischen Stokes-Verschiebung und Anti-Stokes-Verschiebung. Zusammen ergeben sie:

$$I(E) = \frac{2\ln(2)}{\pi^{3/2}} \frac{\Delta E_h}{\Delta E_{ih}^2} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-t^2}}{\left(\sqrt{\ln(2)} \frac{\Delta E_h}{\Delta E_{ih}}\right)^2 + \left(\sqrt{4\ln(2)} \frac{E-E_X}{\Delta E_{ih}} - t\right)^2} dt$$

$$+ A_1 e^{-\left(\frac{E-E_X}{\Delta E_{pho}}\right)^2} \left(\Theta(E_X - E) + \frac{1}{e^{\frac{|E-E_X|}{k_B T}} - 1} \right) |E - E_X|. \quad (6.4.3)$$

Diese Gleichung muss für die oben gezeigten Daten der iPES-Messung noch angepasst werden. Da die inhomogene Linienverbreiterung bei tiefen Temperaturen vernachlässigt werden kann, kann die Voigt-Funktion durch eine Lorentz-Funktion ersetzt werden, die die Verteilung hinreichend gut abbildet. Außerdem wird die Annahme getroffen, dass die Funktion auch auf die Trionresonanz zutrifft, welche in dieser Messung beobachtet wurde. Die in der Publikation von Abbarchi et al. [Abbarchi08] verwendete Anpassungsfunktion wird für eine Photolumineszenz-Messung verwendet, bei der das Phonon in der Rekombination erzeugt oder vernichtet wird. Im Gegensatz zu den in dieser Arbeit gezeigten Messungen liegt die Stokes-Verschiebung daher bei niedrigeren Energien als die Exzitonresonanz. Daher muss die Heaviside-Funktion für die iPES-Messung wie folgt invertiert werden:

$$\Theta(E - E_{X-}) \rightarrow \begin{cases} 0 & E < E_{X-} \\ 1 & E \geq E_{X-} \end{cases}. \quad (6.4.4)$$

Die vollständige Anpassungsfunktion ergibt sich schlussendlich zu:

$$\gamma_{ee}(E) = A_0 \left(\frac{\left(\frac{\Delta E_{X-}}{2}\right)^2}{(E - E_{X-})^2 + \left(\frac{\Delta E_{X-}}{2}\right)^2} \right)$$

$$+ A_1 e^{-\left(\frac{E-E_{X-}}{\Delta E_{pho}}\right)^2} \left(\Theta(E - E_{X-}) + \frac{1}{e^{\frac{|E-E_{X-}|}{k_B T}} - 1} \right) |E - E_{X-}|. \quad (6.4.5)$$

Die Datenpunkte in Abbildung 6.4.2a) zeigen die gemessenen Elektronenemissionsraten als Funktion der nicht-resonanten Laserenergie im Bereich des Trionübergangs für eine Anregungsintensität des nicht-resonanten Lasers von $0.21 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$. Die rote gestrichelte Linie zeigt die Anpassung an die Daten nach Gleichung (6.4.5) bei einer festen Temperatur T von 4.2 K und einer festen Amplitude A_0 von 3160 s^{-1} . Die Parameter ΔE_{X-} , A_1 und ΔE_{pho} werden entsprechend angepasst und ergeben sich zu; $\Delta E_{X-} = 0.033 \text{ meV}$, $A_1 = 3095 \text{ s}^{-1} \text{ meV}^{-1}$ und $\Delta E_{pho} = 1.5 \text{ meV}$.

Vergleicht man die Halbwertsbreite der Trionresonanz mit der im Abschnitt 5.4 im Gleichgewicht gemessenen Halbwertsbreite der Trionresonanz, so ist diese um etwa einen Faktor 6 kleiner. Dies liegt vermutlich an der Auflösung der iPES-Messung, die zwei Größenordnungen kleiner gewählt wurde (iPES: 10 GHz, RF: 100 MHz). Zur besseren Bestimmung der Halbwertsbreite der Trionresonanz könnte die Auflösung deutlich erhöht werden, da die Auflösungsgrenze der internen Photoemissions-Spektroskopie wie bei der RF-Messung nur durch die Stabilisierung des nicht-resonanten Lasers gegeben ist. Es ist jedoch zu berücksichtigen, dass hier ein sehr großer Frequenzbereich abgefahren wurde, sodass die reine Messzeit bereits mehr als 55 Stunden betrug.

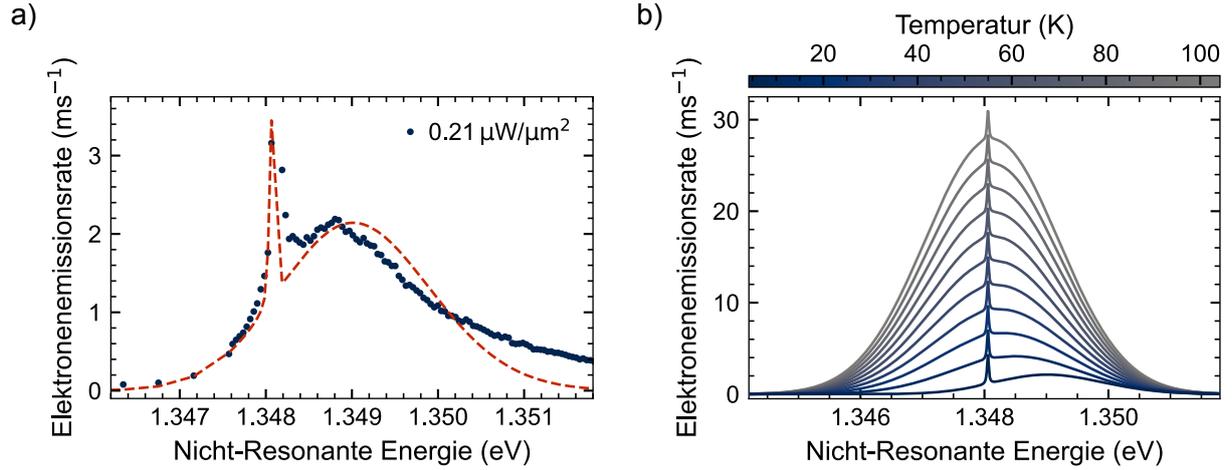


Abbildung 6.4.2: a) Elektronenemissionsrate als Funktion der nicht-resonanten Laserfrequenz im Bereich des Trionübergangs für eine Anregungsintensität des nicht-resonanten Lasers von $0.21 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$. Die rote gestrichelte Linie stellt die Anpassung nach Gleichung (6.4.5), mit den festen Parametern $T = 4.2 \text{ K}$ und $A_0 = 3160 \text{ s}^{-1}$, dar. Die freien Parameter der Anpassung ergeben sich zu; $\Delta E_{X^-} = 0.033 \text{ meV}$, $A_1 = 3095 \text{ s}^{-1} \text{ meV}^{-1}$ und $\Delta E_{\text{pho}} = 1.5 \text{ meV}$. b) Temperaturabhängige Simulation der Phononseitenbande nach Gleichung (6.4.5) mit den in a) ermittelten Parametern für Temperaturen zwischen 4.2 K und 104.2 K .

Nach Abbarchi et al. [Abbarchi08] wird die Asymmetrie der Phononseitenbande bei tiefen Temperaturen systematisch unterschätzt, was sich auch in der Anpassung an die Daten zeigt. Die Linienbreite ist um fast einen Faktor 2 kleiner als in Abbildung 6.4.1a). Außerdem ist zu erkennen, dass die Position des Maximums leicht nach rechts verschoben ist, sodass die Anpassung zunächst oberhalb und dann unterhalb der Datenpunkte erfolgt. Auch hier ist zu berücksichtigen, dass die Anpassungsfunktion für eine Photolumineszenz-Messung optimiert wurde und die iPES-Daten keine Intensitätsabhängigkeit zeigen, sondern eine Abhängigkeit von der Elektronenemissionsrate, die auch die Auger-Rate enthält. Für eine vollständige Beschreibung der Phononseitenbande müsste die wesentlich kompliziertere Funktion aus der Huang-Rhys Theorie verwendet werden. Trotz der vielen Fehlerquellen bei der Anpassung ist es erstaunlich, wie gut die iPES-Messungen die Phononseitenbande der Trionresonanz abbilden können, die in einer RF-Messung nicht zugänglich ist. Für die in Abbildung 6.4.2b) gezeigte Temperaturabhängigkeit werden die angepassten Parameter in die Gleichung (6.4.5) eingesetzt und die Temperatur zwischen 4.2 K und 104.2 K variiert. Es ist sehr gut zu beobachten, dass sich mit steigender Temperatur einerseits die Phononseitenbande der Phononenerzeugung zu kleineren Energien verschiebt und andererseits die Phononseitenbande der Phononenvernichtung immer präzenter wird [Weiler12]. Das Ergebnis ist eine symmetrische Verteilung bei höheren Temperaturen, da nun Phononen erzeugt und vernichtet werden können. Es ist zu beachten, dass bei höheren Temperaturen die Lorentz-Funktion die Trionrekombination nicht mehr korrekt wiedergibt. Diese Simulation dient daher eher zur Veranschaulichung der temperaturabhängigen Phononseitenbanden.

6.5 Frequenzabhängige interne Photoemission an einem selbstorganisierten Quantenpunkt

In diesem Kapitel wird die frequenzabhängige interne Photoemissions-Spektroskopie für den Frequenzbereich zwischen 282.21 THz und 325.85 THz diskutiert. Dieser Bereich liegt deutlich unterhalb des Trionübergangs X^- ($\nu_{X^-} = 325.958\,275$ THz), sodass die reine interne Photoemissionsrate gemessen werden kann. Die eingangs beschriebene Frage nach dem Endzustand des emittierten Elektrons soll im Folgenden untersucht werden.

6.5.1 Frequenzabhängiger Zwei-Photon Photoeffekt

Im folgenden Teil dieser Arbeit wird mit der internen Photoemissions-Spektroskopie die Photoemissionsrate γ_{pe} als Funktion der nicht-resonanten Frequenz bestimmt. Für den hier gezeigten Frequenzbereich werden zwei verschiedene durchstimmbare Diodenlaser verwendet. Im Bereich von 305 THz bis 325.85 THz wird weiterhin der Laser aus dem vorherigen Kapitel verwendet, der den Vorteil hat, dass er eine elektrische Motorsteuerung für die Emissionsfrequenz besitzt, sodass diese automatisiert durchstimmbare ist. Aus diesem Grund kann die Messung vollautomatisch ablaufen und eine hohe Auflösung von 10 GHz (40 μ eV) realisiert werden. Für den Frequenzbereich von 282.21 THz bis 305 THz wird ein zweiter Diodenlaser eingesetzt, der nur über eine mechanische Motorsteuerung verfügt. Die Auflösung in diesem Bereich beträgt daher nur 500 GHz (2.1 meV). Zu beachten ist, dass sich die Laser im Übergangsbereich an der Grenze der möglichen Emissionsfrequenz befinden und daher die Frequenzstabilisierung durch Sprünge zwischen den Moden erschwert ist. Weiterhin wird die Anregungsintensität des resonanten Lasers auf $0.01\ \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ bei einer Gate-Spannung V_g von 0.624 V eingestellt. Das aufgezeichnete Telegraphenrauschen wird dann mit einer zeitlichen Auflösung t_{bin} von 0.2 ms und einem aus dem Histogramm bestimmten Grenzwert, der zwischen den τ_{off} - und den τ_{on} -Intervallen unterscheidet, ausgewertet.

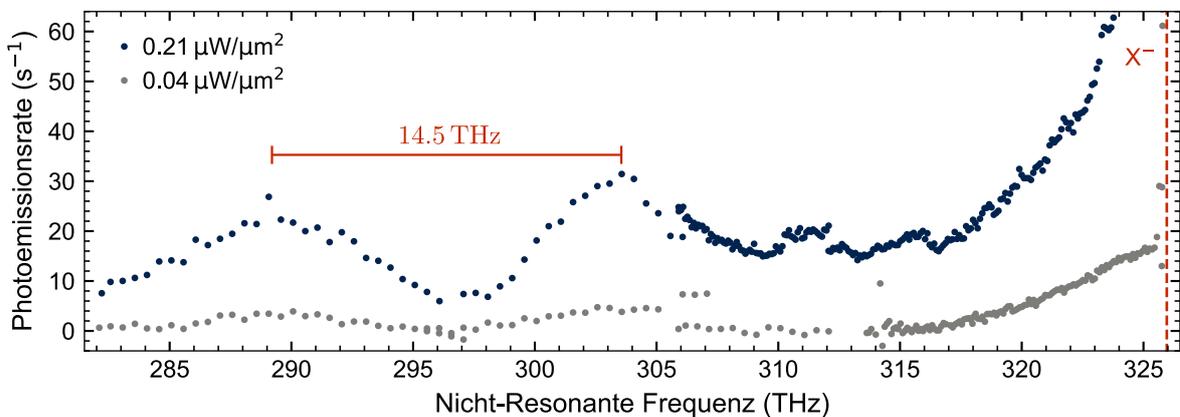


Abbildung 6.5.1: Photoemissionsrate als Funktion der nicht-resonanten Laserfrequenz bei Frequenzen unterhalb der Resonanzfrequenz des Trions ($\nu_{X^-} = 325.958\,275$ THz, rote gestrichelte Linie) für zwei verschiedene Anregungsintensitäten. Die Phononseitenbande der Phononenvernichtung (Anti-Stokes-Verschiebung) kann links vom Trionübergang beobachtet werden, ist aber deutlich schwächer ausgeprägt als die der Phononenerzeugung (siehe Abb. 6.2.1). Außerdem sind zwei Maxima im Abstand von 14.5 THz (60 meV) zu beobachten.

Abbildung 6.5.1 zeigt die Photoemissionsrate γ_{pe} für zwei verschiedene nicht-resonante Anregungsintensitäten von $0.21\ \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ (blaue Punkte) und $0.04\ \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ (graue Punkte) als Funktion der nicht-resonanten Anregungsfrequenz. Bei der niedrigeren Anregungsintensität liegen die meisten

Datenpunkte in der Größenordnung der durch den resonanten Laser erzeugten Photoemission, sodass mit diesen keine Aussage über den frequenzabhängigen Verlauf getroffen werden kann. Für die höhere Anregungsintensität kann zunächst auf der niederenergetischen Seite des Trionübergangs die Phononseitenbande der Phononenvernichtung (Anti-Stokes-Verschiebung) beobachtet werden. Diese ist aufgrund der tiefen Temperatur des Quantenpunktes deutlich schwächer ausgeprägt als die Phononseitenbande der Phononenerzeugung (Stokes-Verschiebung, siehe Abb. 6.2.1). Im Frequenzbereich unterhalb von 305 THz lassen sich zwei Modulationen der Photoemissionsrate (289.07 THz, 303.57 THz) mit einem Abstand von 14.5 THz (60 meV) beobachten. Die Höhe der Maxima nimmt mit abnehmender Frequenz ab. Im Folgenden werden verschiedene Fehlerquellen dieser Messung beschrieben, um die physikalische Bedeutung der Maxima zu diskutieren.

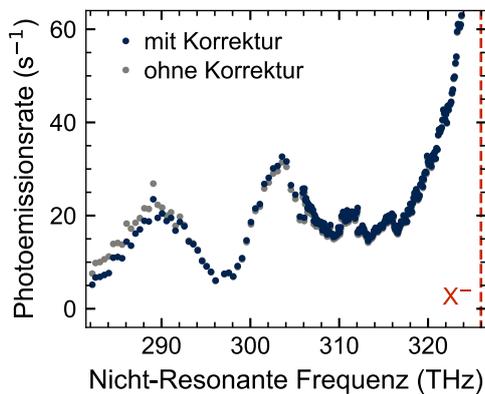


Abbildung 6.5.2: Photoemissionsrate als Funktion der nicht-resonanten Laserfrequenz für korrigierte (blaue Punkte) und unkorrigierte (graue Punkte) Anregungsintensität. Der Fehler in der Anregungsintensität, der durch die Responsivität der Silizium-Photodiode verursacht wird, wurde durch die Bestimmung der sublinearen Beziehung zwischen Anregungsintensität und Photoemission mit einer Steigung von $m = 0.75 \mu\text{m}^2 \text{s}/\mu\text{W}$ (siehe Abschnitt 6.5.2) korrigiert.

Abschätzung des Einflusses der frequenzabhängigen Responsivität auf die Photoemissionsrate verwendet werden und ist in Abbildung 6.5.2 dargestellt. Es ist zu erkennen, dass bei niedrigen Anregungsfrequenzen eine bis zu 32% geringere Photoemissionsrate auftritt. Der beobachtete Effekt, dass die Höhe der Maxima mit abnehmender Frequenz kleiner wird, wird erwartungsgemäß durch die Korrektur deutlich verstärkt und erklärt somit diese Beobachtung nicht.

Bei senkrechter optischer Anregung können an der Grenzfläche zwischen zwei verschiedenen Medien sogenannte Fabry-Pérot Interferenzen auftreten. In einem Spektrometer werden diese durch ein periodisches Signal sichtbar, wobei der Abstand der Maxima charakteristisch für die Zusammensetzung der Probenstruktur ist. Für die Photoemissionsrate können zwei Maxima mit einem Abstand von 14.5 THz beobachtet werden. Im Folgenden wird der Transfermatrix-Algorithmus verwendet, um die Reflektivität der Probenstruktur (siehe Abb. 3.1.1) als Funktion der Frequenz zu berechnen [Ram-Mohan88, Lochner21a]. Im Allgemeinen gelten die Fresnelschen Formeln für die Lichtausbreitung in zwei Dielektrika bei senkrechtem Lichteinfall. Der Reflexionsfaktor und der

Wie aus Abschnitt 6.2.2 bekannt ist, hängt die Photoemission von der Anregungsintensität des nicht-resonanten Lasers ab, die durch eine Silizium-Photodiode aktiv stabilisiert wird. Abbildung 3.2.1 zeigt die frequenzabhängige Responsivität dieser Diode. Bisher waren die gezeigten Frequenzbereiche so klein, dass die Abhängigkeit keinen Einfluss auf die tatsächlich am Quantenpunkt anliegende Intensität hatte. Da für Abbildung 6.5.1 ein sehr großer Frequenzbereich aufgenommen wurde, muss nun die Abhängigkeit berücksichtigt werden. Die tatsächliche Intensität schwankt dabei zwischen $0.34 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ bei einer Frequenz von 282.21 THz und $0.21 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ bei einer Frequenz von 327.35 THz. Das bedeutet, dass bei einer aktiven Stabilisierung der Anregungsintensität auf $0.21 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ mit der Photodiode die tatsächliche Intensität am Quantenpunkt bei den niedrigeren Frequenzen höher ist. Dieser Effekt zeigt keine Modulation in der hier beobachteten Größenordnung und ist aufgrund der mit abnehmender Frequenz ansteigenden Intensität genau entgegengesetzt zu den beobachteten Maxima. Um diesen Fehler bestimmen zu können, wird im Abschnitt 6.5.2 die Anregungsintensitätsabhängigkeit der Photoemissionsrate genauer bestimmt. Es ergibt sich ein sublinearer Zusammenhang mit einer Steigung von etwa $m = 0.75 \mu\text{m}^2 \text{s}/\mu\text{W}$. Dieser kann zur

Transmissionsfaktor sind demnach durch die Brechungsindizes n_1 und n_2 gegeben:

$$r = \frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2} \quad \text{und} \quad t = \frac{2n_1}{n_1 + n_2}, \quad (6.5.1)$$

mit der Reflektivität $R = |r|^2$ und der Transmissivität $T = |t|^2$. Sofern keine Absorption im Medium stattfindet, gilt $T + R = 1$. Zur Berechnung der Ausbreitung einer elektromagnetischen Welle in einem beliebig kompliziertem Schichtsystem wird der Transfermatrix-Algorithmus verwendet. Dieser berücksichtigt die Ausbreitung im Medium sowie die Reflexion und Transmission der elektromagnetischen Welle an jeder Grenzschicht. Für eine beliebige Schicht i ist die allgemeine Transfermatrix [Born93]:

$$M_i = \begin{pmatrix} \cos(kn_i d_i) & \frac{1}{in_i} \sin(kn_i d_i) \\ -in_i \sin(kn_i d_i) & \cos(kn_i d_i) \end{pmatrix}, \quad (6.5.2)$$

mit dem Brechungsindex n_i , der Dicke d_i und dem Wellenvektor k . Die Matrix für die gesamte Probe ist das Produkt der einzelnen Transfermatrizen, das heißt $M = \prod_i M_i$. Der Reflexionsfaktor ist dann gegeben durch:

$$r = \frac{(m_{11} + m_{12}n_2)n_1 - (m_{21} + m_{22}n_2)}{(m_{11} + m_{12}n_2)n_1 + (m_{21} + m_{22}n_2)}, \quad (6.5.3)$$

mit den Matrixelementen m_{kl} der Matrix M und den Brechungsindizes für das erste- bzw. zweite Medium n_1 bzw. n_2 .

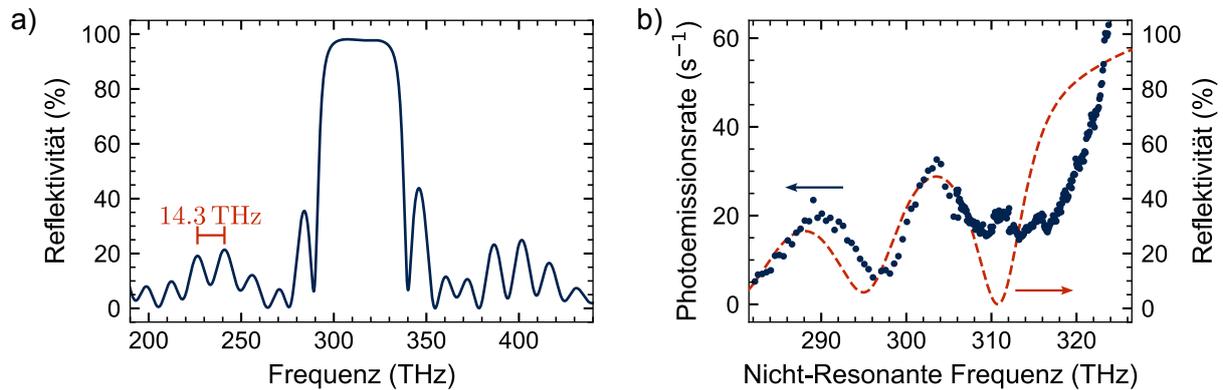


Abbildung 6.5.3: a) Simulation der Reflektivität der Probenstruktur *BO14813* als Funktion der Frequenz berechnet mit dem Transfermatrix-Algorithmus nach Gleichung (6.5.3). Der mittlere Abstand der Interferenzen beträgt 14.3 THz. Die maximale Reflektivität von 98 % wird im Bereich der typischen Wellenlänge von InAs-Quantenpunkten von 950 nm erreicht [Lochner19]. b) Photoemissionsrate als Funktion der nicht-resonanten Laserfrequenz für eine Anregungsintensitäten von $0.21 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$. Die rote gestrichelte Linie gibt die Reflektivität der Probenstruktur mit einer Korrektur der Schichtdicken des Bragg-Spiegels von +7.5 % an.

Vernachlässigt man die Quantenpunktschicht und setzt die Schichtdicken und Brechungsindizes entsprechend der in Abschnitt 3.1 gezeigten Probenstruktur ein, so ergibt sich für die Reflektivität als Funktion der Frequenz der in Abbildung 6.5.3a) dargestellte Zusammenhang. Bedingt durch den Bragg-Spiegel am unteren Ende der Probe liegt die Reflektivität im typischen Wellenlängenbereich von 950 nm für InAs-Quantenpunkte bei 98 % [Lochner19]. An den Rändern dieses Maximums treten erwartungsgemäß Fabry-Pérot Interferenzen auf. Der Abstand der Interferenzen, gemittelt über die sieben Maxima links vom Hauptmaximum, beträgt 14.3 THz. Dieser Abstand stimmt sehr gut mit dem in der Photoemissionsrate beobachteten Abstand von 14.5 THz überein. Außerdem

ist zu beobachten, dass die Reflektivität zwischen dem Maxima 1. Ordnung und dem Maxima 2. Ordnung deutlich abnimmt. Dieser Effekt wurde auch bei der Photoemissionsrate beobachtet. Die Frequenzen der Maxima sind jedoch im Vergleich zu denen in der Photoemissionsrate zu niedrigeren Energien verschoben. Abbildung 6.5.3b) zeigt daher die Photoemissionsrate (blaue Datenpunkte) und die korrigierte Reflektivität (rote gestrichelte Linie) als Funktion der Frequenz. Für die Korrektur wurde angenommen, dass die Schichtdicken des Bragg-Spiegels um +7.5% von den erwarteten Dicken abweichen. Unter dieser Annahme stimmen auch die Frequenzen der Maxima überein. Da die Schichtdicken nach dem Wachstum nicht gemessen werden, sondern sich aus der Bestrahlungsdauer und der Temperatur in der Probenkammer ergeben, können hier tatsächlich Abweichungen auftreten.

Es lässt sich also zusammenfassen, dass die Modulation der Photoemissionsrate auf die starke Frequenzabhängigkeit der Reflektivität der Probenstruktur zurückgeführt werden kann. Da die elektromagnetischen Wellen, die zur Photoemission beitragen, aufgrund der modulierten Reflektivität der Probenstruktur für verschiedene Frequenzen unterschiedlich stark an den Quantenpunkt koppeln, werden mehr oder weniger Elektronen aus dem Quantenpunkt emittiert und somit mehr oder weniger τ_{on} -Intervalle im Telegraphenrauschen detektiert.

Obwohl die Modulation der Photoemission wahrscheinlich vollständig durch die Reflektivität der Probe erklärt werden kann, sollen nun mögliche Endzustände für das emittierte Elektron beschrieben werden. Als gute Näherung für das Kontinuum oberhalb des Quantenpunktes kann angenommen werden, dass die Zustände denen von GaAs entsprechen. Wie Abbildung 3.1.1 zeigt, besteht die Probe energetisch oberhalb der Quantenpunkte hauptsächlich aus GaAs, weshalb im Folgenden die Energie des emittierten Elektrons mit der Zustandsdichte $D(E)$ von GaAs verglichen wird. Als Vergleich dient die mit Hilfe der Dichtefunktionaltheorie von Anua et al. [Anua12] bestimmte Zustandsdichte als Funktion der Energie sowie die Zustandsdichte am Γ -Punkt. Der Energiebereich, der mit dem nicht-resonanten Laser abgefahren werden konnte, beträgt etwa 190 meV (45 THz). Für den Vergleich mit der Theorie entspricht die Valenzbandkante dem Energienullpunkt, sodass sich die Gesamtenergie des emittierten Elektrons wie folgt zusammensetzt:

$$E_{\text{ee}} = E_{\text{res}} + E_{\text{n-res}} + E_{\text{loc}}^{\text{h}}, \quad (6.5.4)$$

wobei E_{res} die Energie der resonanten Anregung (1.354 eV), $E_{\text{n-res}}$ die Energie der nicht-resonanten Anregung (1.167 eV-1.354 eV) und $E_{\text{loc}}^{\text{h}}$ die Grundzustandslokalisationsenergie des Lochzustandes ist. Die Coulomb-Wechselwirkungsenergie setzt sich zu zwei Dritteln aus der energetischen Anhebung des Elektronenzustands und zu einem Drittel aus der energetischen Absenkung des Lochzustands zusammen. Für einen Quantenpunkt mit einem Durchmesser von 15 nm beträgt die Lochenergie etwa 150 meV [Stier99], woraus sich für die Lokalisierungsenergie des Lochzustandes eine Energie von 50 meV ergibt. Der gemessene Bereich der Energie des emittierten Elektrons liegt also zwischen 2.576 eV und 2.763 eV. In diesem Bereich ist die berechnete Zustandsdichte am Γ -Punkt von GaAs zwar erhöht, zeigt aber keine Modulation [Anua12]. Die Maxima in der Photoemissionsrate können also nicht durch die Zustandsdichte, also den Endzustand des Elektrons, erklärt werden. Vielmehr können die Modulationen, wie bereits beschrieben, auf die Reflektivität der Probenstruktur zurückgeführt werden.

6.5.2 Intensitätsabhängigkeit der internen Photoemissionsrate

Im Abschnitt 6.2.2 wurde der sublineare Zusammenhang zwischen der Elektronenemissionsrate und der Anregungsintensität mit Hilfe der Lösung der Ratengleichung ausführlich erläutert. In dem zuvor gezeigten Bereich hat der Auger-Effekt einen großen Einfluss auf die Intensitätsabhängigkeit. Es wurde beobachtet, dass mit abnehmendem Einfluss des Auger-Effekts die Steigung der linearen

Anpassung abnimmt (siehe Abb. 6.2.3b)). Für den hier gemessenen Frequenzbereich wurde die anregungsintensitätsabhängige Photoemissionsrate für drei Frequenzen (291.57 THz, 301.57 THz und 318.00 THz) bestimmt. In Abbildung 6.5.4a) ist die Photoemissionsrate als Funktion der nicht-resonanten Frequenz für die Anregungsintensität von $0.21 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ noch einmal zur Übersicht dargestellt. Die drei Frequenzen wurden so gewählt, dass die absolute Photoemissionsrate immer ähnlich ist und somit andere Effekte wie die Auger-Rekombination ausgeschlossen werden können.

Abbildung 6.5.4b) zeigt in einer doppellogarithmischen Darstellung die Photoemissionsrate als Funktion der Anregungsintensität für die drei verschiedenen nicht-resonanten Laserfrequenzen. Die rote gestrichelte Linie stellt zum Vergleich die Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{in} von 1.67 ms^{-1} dar. Zunächst fällt auf, dass bei allen drei Frequenzen alle Datenpunkte deutlich unterhalb der Tunnelrate liegen. Da sich in diesem Frequenzbereich die Elektronenemissionsrate γ_{ee} nur aus der Photoemissionsrate γ_{pe} zusammensetzt, gilt für die Betrachtung der Grenzfälle (siehe Gl. (6.2.5)) $\gamma_{\text{pe}} \ll \gamma_{\text{in}} : I_{|\uparrow\downarrow\rangle}(0) \rightarrow 0$. Für die lineare Anpassung an die Datenpunkte ergeben sich Steigungen von $m = (0.74 \pm 0.05) \mu\text{m}^2 \text{ s}/\mu\text{W}$ für eine Frequenz von 291.57 THz, $m = (0.78 \pm 0.05) \mu\text{m}^2 \text{ s}/\mu\text{W}$ für eine Frequenz von 301.57 THz und $m = (0.73 \pm 0.04) \mu\text{m}^2 \text{ s}/\mu\text{W}$ für eine Frequenz von 318.00 THz. Im Mittel zeigt sich ein sublineares Verhalten zwischen Photoemissionsrate und Anregungsintensität mit einer Steigung von $m = 0.75 \mu\text{m}^2 \text{ s}/\mu\text{W}$ aufgrund der deutlich höheren Tunnelrate in den Quantenpunkt. Bereits bei einer Anregungsfrequenz von 318.00 THz scheint der Auger-Effekt keinen Einfluss mehr auf die Intensitätsabhängigkeit zu haben. Im Vergleich zur Abhängigkeit bei höheren Frequenzen (siehe Abb. 6.2.3) liegen die hier gezeigten Datenpunkte bei deutlich höheren Anregungsintensitäten. Dies ist auf die insgesamt sehr niedrige Photoemissionsrate zurückzuführen.

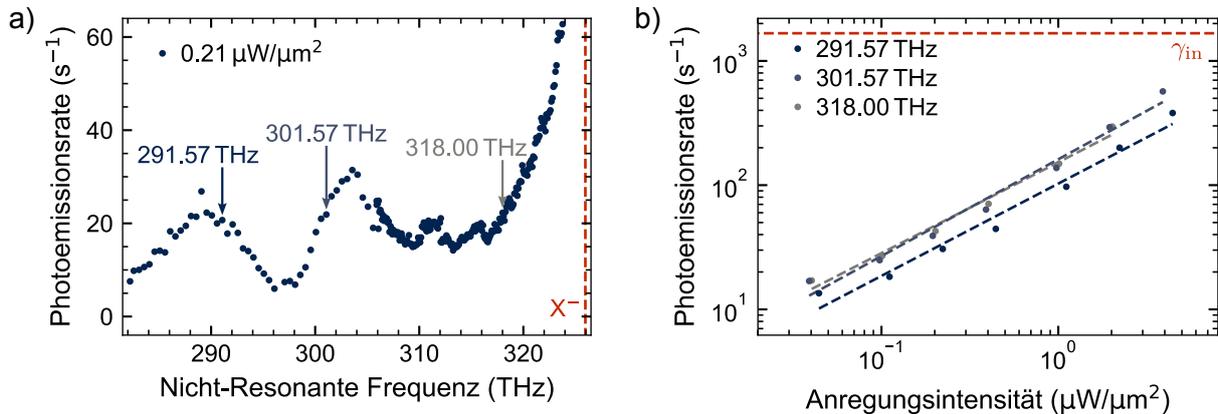


Abbildung 6.5.4: a) Photoemissionsrate als Funktion der Frequenz des nicht-resonanten Lasers für eine Anregungsintensität von $0.21 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$. b) Photoemissionsrate als Funktion der Anregungsintensität des nicht-resonanten Lasers für die drei in a) markierten Frequenzen. Die Steigungen für die linearen Anpassungen betragen $m = (0.74 \pm 0.05) \mu\text{m}^2 \text{ s}/\mu\text{W}$ für eine Frequenz von 291.57 THz (blaue gestrichelte Linie), $m = (0.78 \pm 0.05) \mu\text{m}^2 \text{ s}/\mu\text{W}$ für eine Frequenz von 301.57 THz (hellblaue gestrichelte Linie) und $m = (0.73 \pm 0.04) \mu\text{m}^2 \text{ s}/\mu\text{W}$ für eine Frequenz von 318.00 THz (graue gestrichelte Linie). Die rote gestrichelte Linie zeigt die Tunnelrate γ_{in} , die unabhängig von der Anregungsintensität ist (siehe Abschnitt 6.5.3).

Zusammenfassend konnte in diesem Abschnitt erneut ein sublineares Verhalten der intensitätsabhängigen Photoemissionsrate mit einer mittleren Steigung der linearen Anpassung von $m = 0.75 \mu\text{m}^2 \text{ s}/\mu\text{W}$ beobachtet werden. Dieses Verhalten kann trotz der direkten Proportionalität zwischen der Intensität der Exzitonresonanz und der Anregungsintensität des Lasers mit Hilfe der Lösung der Rategleichung in Gleichung (6.2.4) erklärt werden. Im Verhältnis ist die Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{in} deutlich größer als die Photoemissionsrate γ_{pe} , unabhängig von der Anregungsintensität. Somit ist die Photoemissionsrate nicht direkt proportional zur Intensität der

Exzitonrekombination und es ergibt sich eine Steigung kleiner Eins. Die Phononseitenbande der Phononenvernichtung ist so schwach, dass eine Besetzung des Trionzustandes sehr unwahrscheinlich ist und somit der Auger-Effekt für die Elektronenemission vernachlässigt werden kann. Dies spiegelt sich auch in der geringen Steigung der linearen Anpassung wider.

6.5.3 Intensitätsabhängigkeit der Tunnelrate in den Quantenpunkt

Bisher wurden in der Datenverarbeitung nur die τ_{off} -Intervalle betrachtet, sowohl in Abhängigkeit von der nicht-resonanten Laserfrequenz als auch in Abhängigkeit von der Anregungsintensität. Die lineare Anpassung an die Wartezeitverteilung der τ_{on} -Intervalle ergibt die Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{in} . Das Tunneln von Elektronen in den Quantenpunkt versetzt diesen in seinen Grundzustand und unterbricht damit die Möglichkeit einer resonanten Anregung des Exzitonübergangs. Die Tunneldynamik wurde für diesen Quantenpunkt bereits ausführlich in Kapitel 5 behandelt, woraufhin für die bisherigen Messungen die Annahme getroffen wurde, dass die Tunnelrate weder von der nicht-resonanten Frequenz noch von der Anregungsintensität des Lasers abhängt. Im Folgenden soll diese Annahme durch die iPES-Messungen nochmals bestätigt werden. Dazu wurden keine zusätzlichen Messungen durchgeführt, sondern das gleiche Telegraphenrauschen nach den τ_{on} -Intervallen ausgewertet.

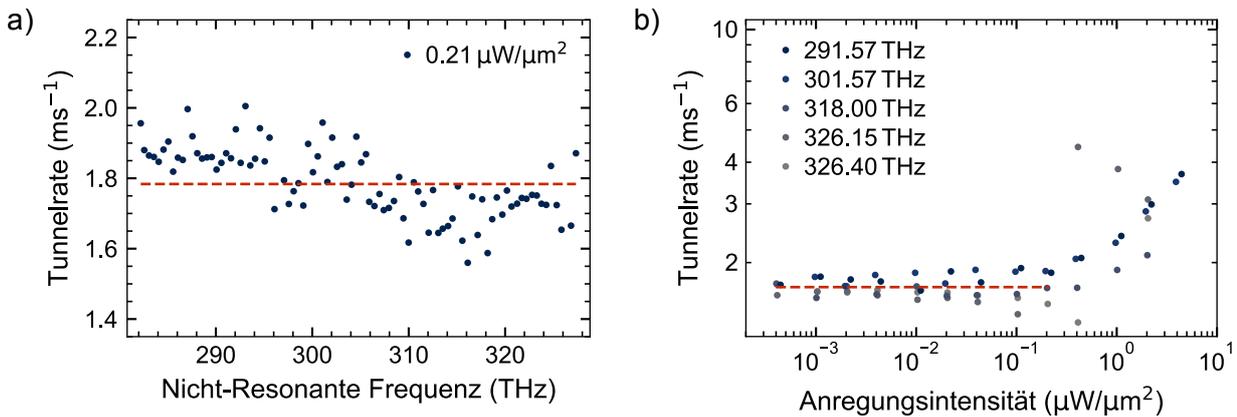


Abbildung 6.5.5: a) Tunnelrate als Funktion der nicht-resonanten Laserfrequenz. Die Datenpunkte streuen nur geringfügig um den Mittelwert der Tunnelrate von 1.78 ms^{-1} (rote gestrichelte Linie). b) Tunnelrate als Funktion der Anregungsintensität des nicht-resonanten Lasers für fünf verschiedene Frequenzen. Bis zu einer Anregungsintensität von $0.21 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ ist die Tunnelrate konstant mit einem Mittelwert von 1.68 ms^{-1} (rote gestrichelte Linie). Danach steigt die Tunnelrate aufgrund des Elektroneneinfangs von außen an [Kurzmann16b].

In Abbildung 6.5.5a) ist die Tunnelrate γ_{in} als Funktion der nicht-resonanten Frequenz aufgetragen. Die rote gestrichelte Linie zeigt den Mittelwert der Tunnelraten mit einem Wert von 1.78 ms^{-1} . Dieser ist nahezu identisch mit dem aus den gepulsten Messungen bei einer Gatespannung V_g von 0.624 V . Die Datenpunkte streuen nur geringfügig um den Mittelwert und es ist keine Modulation der Rate zu beobachten. Die erste Annahme, dass die Tunnelrate unabhängig von der nicht-resonanten Laserfrequenz ist, trifft also zu.

Für die Abhängigkeit der Tunnelrate von der Anregungsintensität wurden die iPES-Messungen für die fünf zuvor beobachteten Frequenzen nach den τ_{on} -Intervallen ausgewertet und in Abbildung 6.5.5b) in doppellogarithmischer Darstellung aufgetragen. Zunächst zeigt sich, dass für kleine Anregungsintensitäten bis $0.21 \mu\text{W}/\mu\text{m}^2$ die Tunnelrate γ_{in} konstant ist. Der Mittelwert dieser Datenpunkte beträgt 1.68 ms^{-1} (rote gestrichelte Linie), was wiederum identisch mit der Rate aus den gepulsten Messungen ist. Weiterhin ist zu beobachten, dass die Tunnelrate für größere Anre-

gungsintensitäten zunimmt. Dieser Anstieg ist auf den Elektroneneinfang von außen zurückzuführen [Kurzmann16b]. Ab einer bestimmten Anregungsintensität ist es möglich, Elektronen aus dem Elektronenreservoir im Quantenpunkt einzufangen. Dieser Prozess erhöht zwar nicht direkt die Tunnelrate in den Quantenpunkt, ist aber in dieser Messmethode nicht von der üblichen Tunneldynamik zu unterscheiden. Die zweite Annahme, dass die Tunnelrate unabhängig von der Anregungsintensität ist, ist dennoch gerechtfertigt, da die meisten Messungen mit Anregungsintensitäten unterhalb des Anstiegs der Tunnelrate durchgeführt wurden.

6.6 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde die interne Photoemissions-Spektroskopie (iPES) und das zufällige Telegraphenrauschen verwendet, um mit einer sehr hohen spektralen und zeitlichen Auflösung die interne Photoemission eines Elektrons im Quantenpunkt als Funktion der Photonenenergie zu untersuchen. Die Photoemission spielt sich dabei im Bereich von Sekunden ab und ist damit der langsamste Prozess, welcher in dieser Arbeit untersucht wurde. Für verschiedene Anregungsfrequenzen wurde außerdem die Leistungsabhängigkeit des internen Photoeffektes beziehungsweise der Elektronenemissionsrate γ_{ee} beobachtet. Durch die hohe spektrale Auflösung von $40 \mu\text{eV}$ konnte unter anderem die Phononseitenbande der Trionresonanz über die nicht-strahlende Auger-Rekombination gemessen werden.

Für den hier verwendeten Quantenpunkt (QDII) ist die Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{in} generell größer als die Photoemissionsrate γ_{pe} . Aus der Lösung der Ratengleichungen (siehe Gl. (6.2.4)) ergibt sich ein sublinearer Zusammenhang ($m < 1$) zwischen der Photoemissionsintensität und der Anregungsintensität. Dieser wurde experimentell für mehrere verschiedene Anregungsfrequenzen bestätigt.

Als Detektion eines Elektronenemissionsprozesses dient der Exzitonübergang, da dieser angeregt werden kann wenn der Quantenpunkt unbesetzt ist. Das bedeutet das auch der nicht-strahlende Auger-Effekt ebenso wie der interne Photoeffekt zu der Elektronenemissionsrate beiträgt. Daher wird im Bereich der Trionresonanz eine erhöhte Rate beobachtet. In diesem Energiebereich ist die Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions $n(\Delta\omega)$ größer Null, sodass sich die Elektronenemissionsrate aus der Photoemissionsrate und der besetzungsabhängigen Auger-Rate zusammensetzt. Durch die Wechselwirkung zwischen der Phononenerzeugung und dem Auger-Effekt konnte die Phononseitenbande der Trionresonanz beobachtet werden. Ein Modell zur Beschreibung der Temperaturabhängigkeit dieser Phononseitenbanden zeigt, dass es sich hierbei hauptsächlich um die Erzeugung von akustischen Phononen handeln muss. In einer spektral aufgelösten resonanten Fluoreszenz-Messung wurde zum Vergleich außerdem die Phononseitenbande der Exzitonresonanz gemessen. Da die Abstände zur Hauptresonanz sowie die Linienbreite nahezu identisch sind kann davon ausgegangen werden, dass es hier zu einer Kopplung zwischen der Phononenerzeugung und dem nicht-strahlenden Auger-Effekt kommt.

Um die Frage nach dem Endzustand des Elektrons auf den Grund zu gehen wurde ein großer Frequenzbereich mit dem zweiten Laser untersucht. Unterhalb der Trionresonanz konnten dabei zwar zwei Resonanzen mit einer erhöhten Photoemissionsrate gemessen werden. Diese lassen sich jedoch hauptsächlich durch die Reflektivität der Probenstruktur, welche für diese Probe über den Transfermatrix-Algorithmus berechnet wurde (siehe auch Lochner et al. [Lochner19]), erklären. Der Abstand der berechneten Fabry-Pérot Interferenzen ist nahezu identisch zu dem Abstand der zwei Resonanzen. Daher scheinen diese keine Aussage über die Zustandsdichte energetisch oberhalb des Quantenpunktes zu machen, in die das Elektron gestreut wird. Dennoch sei erneut erwähnt, dass die verwendete Methode so empfindlich ist, dass sogar die Reflektivität der Probenstruktur einen sichtbaren Einfluss auf die Photoemissionsrate hat.

Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurde die zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz verwendet, um die Elektron-Nichtgleichgewichtsdynamik in einzelnen selbstorganisierten Quantenpunkten zu untersuchen. Der Schwerpunkt dieser Arbeit lag auf der Untersuchung von Elektron-Elektron (Auger-Effekt) und Elektron-Photon Streuprozessen (interner Photoeffekt), die für die Zerstörung der Kohärenz der emittierten Photonen verantwortlich sind. Zunächst wurden die Grundlagen und Eigenschaften von selbstorganisierten Quantenpunkte sowie die drei in dieser Arbeit untersuchten Effekte, namentlich die Tunneldynamik, der Auger-Effekt und der interne Photoeffekt, ausführlich beschrieben. Im zweiten Kapitel wurde ein Überblick über das Probedesign, den Messaufbau und die Messmethoden gegeben. Anschließend wurden die Ergebnisse zum Auger-Effekt in einem äußeren Magnetfeld, zur Tunneldynamik einzelner Elektronen und zum energieabhängigen internen Photoeffekt diskutiert.

Nicht-strahlender Auger-Effekt im Magnetfeld

In einer zeitaufgelösten Zwei-Farben resonanten Fluoreszenz Messung wurde der nicht-strahlende Auger-Effekt als Funktion der Magnetfeldstärke bis zu 10 T eines externen Magnetfeldes in Faraday-Geometrie beobachtet. Die zusätzlich im Magnetfeld auftretende Spin-Flip-Raman-Streuung sowie der Spin-Flip des Elektrons konnten durch resonante Anregung der beiden Trionübergänge herausgefiltert werden, sodass nur die Elektronenemissionsrate γ_{ee} gemessen wurde. Diese ist direkt an die Besetzungswahrscheinlichkeit des angeregten Trionzustandes $n(\Delta\omega)$ gekoppelt, die aus der Anfangsintensität zum Zeitpunkt $t = 0$ der exponentiell abfallenden Transienten bestimmt wurde. Für den Auger-Effekt in Abhängigkeit von der Magnetfeldstärke ergeben sich stark schwankende Raten mit einem allgemein abfallenden Trend bei steigender Magnetfeldstärke (siehe auch Mannel et al. [Mannel23]). Diese Schwankungen könnten zum Beispiel auf die schwierige Bestimmung der Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions zurückzuführen sein. Einige unveröffentlichte Messungen im Rahmen der Masterarbeit von Nico Schwarz zeigen ebenfalls diese Schwankungen in der Rate in Abhängigkeit vom äußeren Magnetfeld. Die Berechnung des Endzustandes für das emittierte Elektron erweist sich als sehr schwierig, weshalb eine theoretische Beschreibung dieser Magnetfeldabhängigkeit an dieser Stelle noch aussteht.

Um die Auflösung des magnetfeldabhängigen nicht-strahlenden Auger-Effektes verbessern zu kön-

nen, muss die Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions besser bestimmt werden. Da die Sättigung des Zustands entscheidend für die Anpassung an die Daten ist, sollten gerade in diesem Bereich mehr Datenpunkte aufgenommen werden. Oft sind die Messungen aber genau für diese Anregungsintensitäten schwierig oder nicht möglich aufgrund der Unterdrückung der reflektierten Laserphotonen. Eine weitere Verbesserung der Messmethode wäre eine spektrale Auflösung der Photonen zu implementieren (aktuelle Forschung im Rahmen der Masterarbeit von Nico Schwarz). Da die energetische Aufspaltung der beiden Trionübergänge insbesondere bei kleinen Magnetfeldstärken sehr klein ist, können diese Photonen nicht spektral getrennt werden. Stattdessen wäre es möglich, wie im Kapitel 6, sowohl einen Trionübergang als auch einen Exzitonübergang resonant zu treiben und diese emittierten Photonen spektral voneinander zu trennen. Dies hätte den Vorteil, dass die Auger-Rate von der Spin-Flip-Raman-Rate und der Spin-Flip-Rate getrennt wäre, da nur der Auger-Effekt für einen unbesetzten Quantenpunkt, das heißt in diesem Fall für die Emission der Exzitonphotonen, sorgt. Aus der Kombination der ansteigenden Transiente für die Exzitonrekombination und der abfallenden Transiente für die Trionrekombination kann dann mit der entsprechenden Lösung der Rategleichungen direkt die Elektronenemissionsrate sowie die Spin-Flip-Raman-Rate und die Spin-Flip-Rate bestimmt werden. Die Besetzungswahrscheinlichkeit bleibt jedoch weiterhin eine mögliche Fehlerquelle bei der Bestimmung der magnetfeldabhängigen Auger-Rate.

Schließlich wurde in dieser Arbeit für die Anpassung an die Transienten nach Gleichung (4.2.3) eine konstante Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{in} im Magnetfeld angenommen. Erste Messungen, zum Beispiel in der Masterarbeit von Hendrik Mannel [Mannel20] oder in der Bachelorarbeit von Nico Schwarz [Schwarz22], zeigen jedoch, dass die Tunnelrate in den Quantenpunkt nicht unabhängig vom äußeren Magnetfeld ist. Eine Bestimmung der Tunnelraten, wie sie im Kapitel 5 durchgeführt wurde, wäre auch in einem äußeren Magnetfeld denkbar und könnte auch die Bestimmung der Auger-Rate verbessern.

Tunneldynamik von einzelnen Elektronen

Die Tunneldynamik von einzelnen Elektronen zwischen dem Quantenpunkt und dem Elektronenreservoir wurde in dieser Arbeit in einer energetisch hochaufgelösten und zeitaufgelösten resonanten Fluoreszenz Messung untersucht. Die Besetzungswahrscheinlichkeit des Quantenpunktes wurde über eine angelegte Spannung V_g zwischen dem Gate und dem Rückkontakt eingestellt und über die optische Anregung des Exzitonzustandes ausgelesen. Durch die präzise Bestimmung der Stark-Verschiebung konnte hier eine sehr hohe Auflösung für die gepulsten Messungen erzielt werden.

Für die Tunnelraten im Bereich des Übergangs zwischen unbesetztem und einfach-besetztem Quantenpunkt zeigt diese Messung die von Kurzmann et al. [Kurzmann19] beschriebenen unterschiedlichen Tunnelpfade. Die Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{in} ist daher etwa doppelt so groß wie die Tunnelrate aus dem Quantenpunkt γ_{out} , wobei die Raten sich im Bereich von Millisekunden befinden. Für größere Spannungen konnten kleine Resonanz auf der insgesamt abfallenden Rate beobachtet werden, welche vermutlich durch Defekte in der Umgebung des Quantenpunktes und in der Tunnelbarriere oder aber durch Schwankungen in der Zustandsdichte des Rückkontaktes zustande kommen.

Die Auger-Rate im Bereich von Mikrosekunden, welche aus den zeitaufgelösten Messungen am Trionübergang bestimmt worden ist, zeigt einen leicht abfallenden Trend mit steigender Spannung, jedoch ohne die in der Tunnelrate beobachteten Resonanzen. Daher werden diese weiterhin der Tunneldynamik des Elektrons zugeordnet.

Die entsprechende Simulation der Linienbreite der Trionresonanz hat gezeigt, dass die zeitaufgelöste resonante Fluoreszenz nur zum Zeitpunkt $t = 0$ die unverbreiterte Linienbreite abbildet. Für alle späteren Zeitpunkte wird die Linienbreite um das Verhältnis aus der Auger-Rate und der Tun-

nelrate in den Quantenpunkt (siehe Gl. (5.3.4)) verbreitert.

Wie bereits zuvor erwähnt könnten diese hochaufgelösten Messungen der Tunneldynamik von einzelnen Elektronen nun auch in einem äußeren Magnetfeld durchgeführt werden. Da diese Messung die Fermi-Verteilung des Rückkontaktes abbildet könnte die Aufspaltung der Landau-Niveaus der Elektronen im Rückkontakt beobachtet werden.

Des Weiteren könnte die Tunneldynamik für das zweite Elektron, das heißt die Tunnelrate in den s_2 -Zustand des Quantenpunktes, durch anlegen noch größerer Spannungen gemessen werden.

Interne Photoemissions-Spektroskopie

Im letzten Kapitel dieser Arbeit wurde der interne Photoeffekt als Funktion der Photonenenergie untersucht. Mittels interner Photoemissions-Spektroskopie (iPES) und Telegraphenrauschen wurde eine sehr hohe spektrale Auflösung von $40 \mu\text{eV}$ der Elektronenemissionsrate γ_{ee} , welche sich im Bereich von Sekunden befindet, erreicht. Dies ermöglichte unter anderem die Beobachtung der Phononseitenbande der Trionresonanz über die nicht-strahlende Auger-Rekombination.

Zunächst haben Lochner et al. [Lochner21b] beobachtet, dass die Photoemissionsrate γ_{pe} proportional zur Anregungsintensität des Lasers ist. In dieser Arbeit wurde jedoch gezeigt, dass die Proportionalität nur dann gilt, wenn die Photoemissionsrate auch proportional zur Photoemissionsintensität ist. Dieser Zusammenhang ist durch die Beziehung zwischen der Photoemissionsrate γ_{pe} und der Tunnelrate in den Quantenpunkt γ_{in} gegeben (siehe Gl. (6.2.4)). Für den hier verwendeten Quantenpunkt (QDII) ist die Tunnelrate generell größer als die Photoemissionsrate, sodass für fast alle Anregungsfrequenzen ein sublinearer Zusammenhang ($m < 1$) beobachtet wurde.

Da der nicht-strahlende Auger-Effekt ebenso wie der interne Photoeffekt den Quantenpunkt entleert, wird im Bereich der Trionresonanz eine erhöhte Rate beobachtet. In diesem Frequenzbereich ist die Besetzungswahrscheinlichkeit des Trions $n(\Delta\omega)$ größer Null, sodass sich die Elektronenemissionsrate aus der Photoemissionsrate und der Auger-Rate zusammensetzt. Durch die Wechselwirkung zwischen der Phononenerzeugung und dem Auger-Effekt konnte die Phononseitenbande auf der energetisch höheren Flanke der Trionresonanz beobachtet werden. In einer spektral aufgelösten resonanten Fluoreszenz-Messung wurde zum Vergleich die Phononseitenbande der Exzitonresonanz gemessen. Da die Abstände zur Hauptresonanz sowie die Breite der Linien nahezu identisch sind kann davon ausgegangen werden, dass es hier zu einer Kopplung zwischen der Phononenerzeugung und dem nicht-strahlenden Auger-Effekt kommt.

Für Energien unterhalb der Trionresonanz konnten zwar zwei Resonanzen in der Photoemissionsrate beobachtet werden. Diese lassen sich jedoch hauptsächlich durch die Reflektivität der Probenstruktur, welche für diese Probe über den Transfermatrix-Algorithmus berechnet wurde (siehe auch Lochner et al. [Lochner19]), erklären. Daher scheinen diese keine Aussage über die Zustandsdichte energetisch oberhalb des Quantenpunktes zu machen, in die das Elektron gestreut wird. Dennoch sei auch hier erwähnt, dass die verwendete Methode so empfindlich ist, dass sogar die Reflektivität der Probenstruktur einen sichtbaren Einfluss auf die Photoemissionsrate hat.

Zukünftige Messungen könnten an einem anderen Quantenpunkt durchgeführt werden, zum Beispiel mit einer höheren Emissionsfrequenz der Trionresonanz, sodass die Photoemissionsrate energetisch unterhalb der Trionresonanz im Bereich hoher Reflektivität (ohne Fabry-Perot-Interferenzen) beobachtet werden kann. Zusätzlich könnte eine Hong-Ou-Mandel-Messung verwendet werden, um die Zerstörung der Ununterscheidbarkeit zweier Photonen durch den internen Photoeffekt zu messen. Dies könnte durch den Vergleich von zwei Messungen mit und ohne einen zusätzlichen Laser, der durch eine hohe Anregungsintensität für die Photoemission verantwortlich ist, realisiert werden.

Publikationsliste

Publikationen, die im Zusammenhang mit dieser Dissertation entstanden sind:

- M. Zöllner, H. Mannel, F. Rimek, B. Maib, N. Schwarz, A. D. Wieck, A. Ludwig, A. Lorke, und M. Geller, The interplay between electron tunneling and Auger emission in a single quantum emitter weakly coupled to an electron reservoir, *Applied Physics Letters* **124** (2024)

Weitere Publikationen:

- 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, *Journal of Applied Physics* **134** (2023)
- F. Schaumburg, S. Sleziona, M. Zöllner, V. Dergianlis, M. Schleberger, M. Geller, A. Lorke, und G. Prinz, Enhanced intensity of Raman signals from hexagonal boron nitride films, *Applied Physics Letters* **123** (2023)
- J. Wu, M. Zöllner, S. Esser, V. Begum, G. Prinz, A. Lorke, P. Gegenwart, und R. Pentcheva, Electronic reconstruction and charge transfer in strained $\text{Sr}_2\text{CoIrO}_6$ double perovskite, *Physical Review B* **104** (2021)
- D. Oing, M. Ney, G. Bendt, S. Schulz, M. Geller, N. Wöhr, und A. Lorke, A monolithic, back-gated diamond field-effect transistor for tunable color centers, *Diamond and Related Materials* **119** (2021)
- A. Asaithambi, R. Kozubek, G. Prinz, F. Reale, E. Pollmann, M. Ney, C. Mattevi, M. Schleberger, und A. Lorke, Laser- and Ion-Induced Defect Engineering in WS_2 Monolayers, *Physica Status Solidi RRL* **15** (2021)
- R. Kaupmees, M. Grossberg, M. Ney, A. Asaithambi, A. Lorke, und J. Krustok, Tailoring of Bound Exciton Photoluminescence Emission in WS_2 Monolayers, *Physica Status Solidi RRL* **14** (2020)
- S. Tigges, N. Wöhr, U. Hagemann, M. Ney, und A. Lorke, The effect of metal-oxide incorporation on the morphology of carbon nanostructures, *Journal of Physics D: Applied Physics* **53** (2020)

Literaturverzeichnis

- [Abbarchi08] M. Abbarchi, M. Gurioli, A. Vinattieri, S. Sanguinetti, M. Bonfanti, T. Manno, K. Watanabe, T. Kuroda und N. Koguchi, *Phonon sideband recombination kinetics in single quantum dots*, Journal of Applied Physics **104** (2008).
- [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).
- [Aharonovich11] I. Aharonovich, S. Castelletto, D. A. Simpson, C.-H. Su, A. D. Greentree und S. Praver, *Diamond-based single-photon emitters*, Reports on Progress in Physics **74**, 076501 (2011).
- [Aharonovich16] I. Aharonovich, D. Englund und M. Toth, *Solid-state single-photon emitters*, Nature Photonics **10**, 631 (2016).
- [Antonius22] G. Antonius und S. G. Louie, *Theory of exciton-phonon coupling*, Physical Review B **105**, 085111 (2022).
- [Anua12] N. N. Anua, R. Ahmed, M. A. Saeed, A. Shaari und B. U. Haq, *DFT investigations of structural and electronic properties of gallium arsenide (GaAs)*, in *AIP Conference Proceedings*, AIP (2012).
- [Atatüre06] M. Atatüre, J. Dreiser, A. Badolato, A. Högele, K. Karrai und A. Imamoglu, *Quantum-Dot Spin-State Preparation with Near-Unity Fidelity*, Science **312**, 551 (2006).
- [Atatüre18] M. Atatüre, D. Englund, N. Vamivakas, S.-Y. Lee und J. Wrachtrup, *Material platforms for spin-based photonic quantum technologies*, Nature Reviews Materials **3**, 38 (2018).
- [Azuma15] K. Azuma, K. Tamaki und H.-K. Lo, *All-photonic quantum repeaters*, Nature Communications **6** (2015).
- [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).
- [Beckel14] 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*, EPL (Europhysics Letters) **106**, 47002 (2014).
- [Berezovsky06] J. Berezovsky, M. H. Mikkelsen, O. Gywat, N. G. Stoltz, L. A. Coldren und D. D. Awschalom, *Nondestructive Optical Measurements of a Single Electron Spin in a Quantum Dot*, Science **314**, 1916 (2006).
- [Berezovsky08] J. Berezovsky, M. H. Mikkelsen, N. G. Stoltz, L. A. Coldren und D. D. Awschalom, *Picosecond Coherent Optical Manipulation of a Single Electron Spin in a Quantum Dot*, Science **320**, 349 (2008).
- [Besombes01] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal und H. Mariette, *Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission*, Physical Review B **63**, 155307 (2001).
- [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**, 161306 (2003).
- [Bimberg01] D. Bimberg, M. Grundmann und N. N. Ledencov, *Quantum dot heterostructures*, Wiley, Chichester [u.a.], reprinted Aufl., literaturverz. S. [303] - 324 (2001).
- [Bimberg08] D. Bimberg, *Semiconductor Nanostructures*, Springer Berlin Heidelberg (2008).
- [Born93] M. Born und E. Wolf, *Principles of optics*, Pergamon Press, Oxford [u.a.], 6. Aufl. (1993).
- [Borovitskaya03] E. Borovitskaya und M. S. Shur (Hg.), *Quantum dots*, Nr. 25 in Selected topics in electronics and systems, World Scientific, New Jersey [u.a.], reprinted Aufl., includes bibliographical references and index (2003).
- [Borri99] P. Borri, W. Langbein, J. M. Hvam und F. Martelli, *Binding energy and dephasing of biexcitons in In_{0.18}Ga_{0.82}As/GaAs single quantum wells*, Physical Review B **60**, 4505 (1999).
- [Calarco03] T. Calarco, A. Datta, P. Fedichev, E. Pazy und P. Zoller, *Spin-based all-optical quantum computation with quantum dots: Understanding and suppressing decoherence*, Physical Review A **68**, 012310 (2003).
- [Da Lio22] B. Da Lio, C. Faurby, X. Zhou, M. L. Chan, R. Uppu, H. Thyrrerstrup, S. Scholz, A. D. Wieck, A. Ludwig, P. Lodahl und L. Midolo, *A Pure and Indistinguishable Single-Photon Source at Telecommunication Wavelength*, Advanced Quantum Technologies **5** (2022).

- [Dalgarno06] P. A. Dalgarno, J. McFarlane, B. D. Gerardot, R. J. Warburton, K. Karrai, A. Badolato und P. M. Petroff, *Decay dynamics of the positively charged exciton in a single charge tunable self-assembled quantum dot*, Applied Physics Letters **89** (2006).
- [Dalgarno08] P. A. Dalgarno, J. M. Smith, J. McFarlane, B. D. Gerardot, K. Karrai, A. Badolato, P. M. Petroff und R. J. Warburton, *Coulomb interactions in single charged self-assembled quantum dots: Radiative lifetime and recombination energy*, Physical Review B **77**, 245311 (2008).
- [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).
- [Dirac26] P. Dirac, *On the theory of quantum mechanics*, Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character **112**, 661 (1926).
- [Dirac27] P. A. M. Dirac, *The quantum theory of dispersion*, Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character **114**, 710 (1927).
- [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**, 075317 (2008).
- [Drexler94] H. Drexler, D. Leonard, W. Hansen, J. P. Kotthaus und P. M. Petroff, *Spectroscopy of Quantum Levels in Charge-Tunable InGaAs Quantum Dots*, Physical Review Letters **73**, 2252 (1994).
- [Duke65] C. B. Duke und G. D. Mahan, *Phonon-Broadened Impurity Spectra. I. Density of States*, Physical Review **139**, A1965 (1965).
- [Edvinsson18] T. Edvinsson, *Optical quantum confinement and photocatalytic properties in two-, one- and zero-dimensional nanostructures*, Royal Society Open Science **5**, 180387 (2018).
- [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).
- [Efros16] A. L. Efros und D. J. Nesbitt, *Origin and control of blinking in quantum dots*, Nature Nanotechnology **11**, 661 (2016).
- [Einstein05] A. Einstein, *Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt*, Annalen der Physik **322**, 132 (1905).
- [Excelitas] Excelitas, *Single Photon-Counting Module*, Excelitas Technologies Corp., Waltham, Massachusetts.
- [Favero03] I. Favero, G. Cassabois, R. Ferreira, D. Darson, C. Voisin, J. Tignon, C. Delalande, G. Bastard, P. Roussignol und J. M. Gérard, *Acoustic phonon sidebands in the emission line of single InAs/GaAs quantum dots*, Physical Review B **68**, 233301 (2003).

- [Fermi74] E. Fermi (Hg.), *Nuclear physics*, Univ. of Chicago Press, Chicago [u.a.], rev. ed., reprint Aufl. (1974).
- [Fernandez09] G. Fernandez, T. Volz, R. Desbuquois, A. Badolato und A. Imamoglu, *Optically Tunable Spontaneous Raman Fluorescence from a Single Self-Assembled InGaAs Quantum Dot*, Physical Review Letters **103**, 087406 (2009).
- [Fock28] V. Fock, *Bemerkung zur Quantelung des harmonischen Oszillators im Magnetfeld*, Zeitschrift für Physik **47**, 446 (1928).
- [Fox06] M. Fox (Hg.), *Quantum optics*, Nr. 15 in Oxford master series in physics, Oxford Univ. Press, Oxford [u.a.], repr. Aufl. (2006).
- [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).
- [Gao12] W. B. Gao, P. Fallahi, E. Togan, J. Miguel-Sanchez und A. Imamoglu, *Observation of entanglement between a quantum dot spin and a single photon*, Nature **491**, 426 (2012).
- [Geller19] M. Geller, *Nonequilibrium carrier dynamics in self-assembled quantum dots*, Applied Physics Reviews **6** (2019).
- [Gerardot07] B. D. Gerardot, S. Seidl, P. A. Dalgarno, R. J. Warburton, M. Kroner, K. Karrai, A. Badolato und P. M. Petroff, *Contrast in transmission spectroscopy of a single quantum dot*, Applied Physics Letters **90** (2007).
- [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).
- [Hawrylak96] P. Hawrylak und A. Wojs, *Electronic structure and optical properties of self-assembled quantum dots*, Semiconductor Science and Technology **11**, 1516 (1996).
- [Houel12] J. Houel, A. V. Kuhlmann, L. Greuter, F. Xue, M. Poggio, B. D. Gerardot, P. A. Dalgarno, A. Badolato, P. M. Petroff, A. Ludwig, D. Reuter, A. D. Wieck und R. J. Warburton, *Probing Single-Charge Fluctuations at a GaAs/AlAs Interface Using Laser Spectroscopy on a Nearby InGaAs Quantum Dot*, Physical Review Letters **108**, 107401 (2012).
- [Huang50] K. Huang und A. Rhys, *Theory of light absorption and non-radiative transitions in F-centres*, Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences **204**, 406 (1950).
- [Hume11] D. B. Hume, C. W. Chou, D. R. Leibbrandt, M. J. Thorpe, D. J. Wineland und T. Rosenband, *Trapped-Ion State Detection through Coherent Motion*, Physical Review Letters **107**, 243902 (2011).

- [Högele04] A. Högele, S. Seidl, M. Kroner, K. Karrai, R. J. Warburton, B. D. Gerardot und P. M. Petroff, *Voltage-Controlled Optics of a Quantum Dot*, Physical Review Letters **93**, 217401 (2004).
- [Ioffe] Ioffe, *Semiconductors on NSM Archive*, Ioffe Institute, NSM, Sankt-Peterburg, Russland.
- [Iñarrea10] J. Iñarrea, R. G. Mani und W. Wegscheider, *Sublinear radiation power dependence of photoexcited resistance oscillations in two-dimensional electron systems*, Physical Review B **82**, 205321 (2010).
- [Javadi18] A. Javadi, D. Ding, M. H. Appel, S. Mahmoodian, M. C. Löbl, I. Söllner, R. Schott, C. Papon, T. Pregnolato, S. Stobbe, L. Midolo, T. Schröder, A. D. Wieck, A. Ludwig, R. J. Warburton und P. Lodahl, *Spin-photon interface and spin-controlled photon switching in a nanobeam waveguide*, Nature Nanotechnology **13**, 398 (2018).
- [Jenkins39] F. A. Jenkins und E. Segrè, *The Quadratic Zeeman Effect*, Physical Review **55**, 52 (1939).
- [Joyce85] B. A. Joyce, *Molecular beam epitaxy*, Reports on Progress in Physics **48**, 1637 (1985).
- [Jöns12] K. D. Jöns, P. Atkinson, M. Müller, M. Heldmaier, S. M. Ulrich, O. G. Schmidt und P. Michler, *Triggered Indistinguishable Single Photons with Narrow Line Widths from Site-Controlled Quantum Dots*, Nano Letters **13**, 126 (2012).
- [Kako04] S. Kako, K. Hoshino, S. Iwamoto, S. Ishida und Y. Arakawa, *Exciton and biexciton luminescence from single hexagonal GaN/AlN self-assembled quantum dots*, Applied Physics Letters **85**, 64 (2004).
- [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).
- [Kerski23a] J. Kerski, *Nichtgleichgewichtsdynamik in selbstorganisierten Quantenpunkten*, Dissertation, Universität Duisburg-Essen (2023).
- [Kerski23b] 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).
- [Keysight] Keysight, *Waveform/Function Generators*, Keysight Technologies, Washington DC.
- [Kim10] D. Kim, S. G. Carter, A. Greulich, A. S. Bracker und D. Gammon, *Ultrafast optical control of entanglement between two quantum-dot spins*, Nature Physics **7**, 223 (2010).
- [Kimble08] H. J. Kimble, *The quantum internet*, Nature **453**, 1023 (2008).
- [Kittel13] C. Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik*, Oldenbourg Verlag, München [u.a.], 15. Aufl. (2013).

- [Klenovský17] P. Klenovský, P. Steindl und D. Geffroy, *Excitonic structure and pumping power dependent emission blue-shift of type-II quantum dots*, Scientific Reports **7** (2017).
- [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).
- [Kuhlmann13] 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).
- [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** (2016).
- [Kurzmann16c] A. Kurzmann, B. Merkel, P. A. Labud, A. Ludwig, A. D. 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, *Zeitaufgeloste 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 In_{0.60}Ga_{0.40}As/GaAs self-assembled quantum dots*, Physical Review B **58**, R7508 (1998).
- [Könemann02] J. Könemann, P. König, E. McCann, V. Fal'ko und R. Haug, *Correlations in the local density of states probed by single electron tunneling*, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures **12**, 853 (2002).
- [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).
- [Li00] S.-S. Li und J.-B. Xia, *Quantum-confined Stark effects of InAs/GaAs self-assembled quantum dot*, Journal of Applied Physics **88**, 7171 (2000).
- [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).
- [Loudon00] R. Loudon (Hg.), *The quantum theory of light*, Oxford Univ. Press, Oxford [u.a.], 3. Aufl. (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).
- [Ludwig17] A. Ludwig, J. H. Prechtel, A. V. Kuhlmann, J. Houel, S. R. Valentin, R. J. Warburton und A. D. Wieck, *Ultra-low charge and spin noise in self-assembled quantum dots*, Journal of Crystal Growth **477**, 193 (2017).
- [Luyken99] R. J. Luyken, A. Lorke, A. O. Govorov, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro und P. M. Petroff, *The dynamics of tunneling into self-assembled InAs dots*, Applied Physics Letters **74**, 2486 (1999).
- [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).
- [Maib20] B. Maib, *Zeitaufgelöste Auger-Spektroskopie an selbstorganisierten Quantenpunkten*, Universität Duisburg-Essen (2020).
- [Maib23] B. Maib, *Elektronendynamik eines Einzelphotonenemitters*, Universität Duisburg-Essen (2023).
- [Malik97] S. Malik, C. Roberts, R. Murray und M. Pate, *Tuning self-assembled InAs quantum dots by rapid thermal annealing*, Applied Physics Letters **71**, 1987 (1997).
- [Mannel20] H. Mannel, *Optische Detektion der Nichtgleichgewichtsdynamik in Halbleiter-Quantenstrukturen*, Universität Duisburg-Essen (2020).
- [Mannel23] 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*, Journal of Applied Physics **134** (2023).

- [Marquardt11] B. Marquardt, M. Geller, B. Baxevanis, D. Pfannkuche, A. D. Wieck, D. Reuter und A. Lorke, *Transport spectroscopy of non-equilibrium many-particle spin states in self-assembled quantum dots*, Nature Communications **2** (2011).
- [Mastrippolito20] D. Mastrippolito, S. Palleschi, G. D'Olimpio, A. Politano, M. Nardone, P. Benassi und L. Ottaviano, *Exciton-phonon coupling and power dependent room temperature photoluminescence of sulphur vacancy doped MoS2 via controlled thermal annealing*, Nanoscale **12**, 18899 (2020).
- [Matthiesen13] C. Matthiesen, M. Geller, C. H. H. Schulte, C. Le Gall, J. Hansom, Z. Li, M. Hugues, E. Clarke und M. Atatüre, *Phase-locked indistinguishable photons with synthesized waveforms from a solid-state source*, Nature Communications **4** (2013).
- [Matthiesen14] C. Matthiesen, M. J. Stanley, M. Hugues, E. Clarke und M. Atatüre, *Full counting statistics of quantum dot resonance fluorescence*, Scientific Reports **4** (2014).
- [Medeiros-Ribeiro95] G. Medeiros-Ribeiro, D. Leonard und P. M. Petroff, *Electron and hole energy levels in InAs self-assembled quantum dots*, Applied Physics Letters **66**, 1767 (1995).
- [Meitner22] L. Meitner, *Über die β -Strahl-Spektren und ihren Zusammenhang mit der γ -Strahlung*, Zeitschrift für Physik **11**, 35 (1922).
- [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).
- [Moison94] J. M. Moison, F. Houzay, F. Barthe, L. Leprince, E. André und O. Vatel, *Self-organized growth of regular nanometer-scale InAs dots on GaAs*, Applied Physics Letters **64**, 196 (1994).
- [Muller07] A. Muller, E. B. Flagg, P. Bianucci, X. Y. Wang, D. G. Deppe, W. Ma, J. Zhang, G. J. Salamo, M. Xiao und C. K. Shih, *Resonance Fluorescence from a Coherently Driven Semiconductor Quantum Dot in a Cavity*, Physical Review Letters **99**, 187402 (2007).
- [Márquez01] J. Márquez, L. Geelhaar und K. Jacobi, *Atomically resolved structure of InAs quantum dots*, Applied Physics Letters **78**, 2309 (2001).
- [Müller14] M. Müller, S. Bounouar, K. D. Jöns, M. Glässl und P. Michler, *On-demand generation of indistinguishable polarization-entangled photon pairs*, Nature Photonics **8**, 224 (2014).
- [National Instruments] National Instruments, *PCIe Multifunktions I/O Gerät*, National Instruments Corp., Austin, Texas.
- [Nguyen13] H. S. Nguyen, G. Sallen, M. Abbarchi, R. Ferreira, C. Voisin, P. Roussignol, G. Cassabois und C. Diederichs, *Photoneutralization and slow capture of carriers in quantum dots probed by resonant excitation spectroscopy*, Physical Review B **87**, 115305 (2013).

- [Park14] Y.-S. Park, W. K. Bae, J. M. Pietryga und V. I. Klimov, *Auger Recombination of Biexcitons and Negative and Positive Trions in Individual Quantum Dots*, ACS Nano **8**, 7288 (2014).
- [Petroff84] P. M. Petroff, R. C. Miller, A. C. Gossard und W. Wiegmann, *Impurity trapping, interface structure, and luminescence of GaAs quantum wells grown by molecular beam epitaxy*, Applied Physics Letters **44**, 217 (1984).
- [Petroff01] P. M. Petroff, A. Lorke und A. Imamoglu, *Epitaxially Self-Assembled Quantum Dots*, Physics Today **54**, 46 (2001).
- [quTools] quTools, *quTAG Time-to-Digital Converter*, quTools GmbH, München, Germany.
- [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).
- [Rakić96] A. D. Rakić und M. L. Majewski, *Modeling the optical dielectric function of GaAs and AlAs: Extension of Adachi's model*, Journal of Applied Physics **80**, 5909 (1996).
- [Ram-Mohan88] L. R. Ram-Mohan, K. H. Yoo und R. L. Aggarwal, *Transfer-matrix algorithm for the calculation of the band structure of semiconductor superlattices*, Physical Review B **38**, 6151 (1988).
- [Riel08] B. J. Riel, *An introduction to self-assembled quantum dots*, American Journal of Physics **76**, 750 (2008).
- [Rimek21] F. Rimek, *Magnetfeldabhängige Auger-Rekombination in selbstorganisierten Quantenpunkten*, Universität Duisburg-Essen (2021).
- [Rochette19] S. Rochette, M. Rudolph, A.-M. Roy, M. J. Curry, G. A. T. Eyck, R. P. Manginell, J. R. Wendt, T. Pluym, S. M. Carr, D. R. Ward, M. P. Lilly, M. S. Carroll und M. Pioro-Ladrière, *Quantum dots with split enhancement gate tunnel barrier control*, Applied Physics Letters **114** (2019).
- [Saleh01] B. E. A. Saleh und M. C. Teich (Hg.), *Fundamentals of photonics*, @Wiley series in pure and applied optics, Wiley-Interscience, Hoboken, NJ, electronic reproduction, Somerset, New Jersey : Wiley InterScience, 2001 (2001).
- [Sanguinetti06] S. Sanguinetti, E. Poliani, M. Bonfanti, M. Guzzi, E. Grilli, M. Gurio-li und N. Koguchi, *Electron-phonon interaction in individual strain-free GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As quantum dots*, Physical Review B **73**, 125342 (2006).
- [Schott16] R. Schott, A. Ludwig und A. D. Wieck, *Growth sheet: BO14813*, Lehrstuhl für Angewandte Festkörperphysik, Ruhr-Universität Bochum, Lehrstuhl für Angewandte Festkörperphysik, Ruhr-Universität Bochum (2016).
- [Schottky39] W. Schottky, *Zur Halbleiterttheorie der Sperrschicht- und Spitzengleichrichter*, Zeitschrift für Physik **113**, 367 (1939).
- [Schubert06] E. F. Schubert, *Physical Foundations of Solid-State Devices*, Renesselaer Polytechnic Institute, Troy NY, USA (2006).

- [Schulhauser03] C. Schulhauser, A. Högele, R. J. Warburton, A. O. Govorov, W. Schoenfeld, J. M. Garcia, P. M. Petroff und K. Karrai, *Magnetic properties of charged excitons in self-assembled quantum dots*, *physica status solidi (b)* **238**, 293 (2003).
- [Schwarz22] N. Schwarz, *Magnetfeldabhängige Tunneldynamik an einzelnen Quantenpunkten*, Universität Duisburg-Essen (2022).
- [Schäfter+Kirchhoff] Schäfter+Kirchhoff, *Single-mode Fiber Cables*, SchäfterKirchhoff GmbH, Hamburg, Germany.
- [Segrè34] E. Segrè, *Effetto Zeeman quadratico nella serie principale del sodio*, *Il Nuovo Cimento* **11**, 304 (1934).
- [Snider] G. L. Snider, *1D-Poisson Solver Vers. 8j1*, University of Notre Dame, Department of Electrical Engineering, University of Notre Dame, Notre Dame, IN 46556.
- [Stevenson06] R. M. Stevenson, R. J. Young, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie und A. J. Shields, *A semiconductor source of triggered entangled photon pairs*, *Nature* **439**, 179 (2006).
- [Stier99] O. Stier, M. Grundmann und D. Bimberg, *Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band k -theory*, *Physical Review B* **59**, 5688 (1999).
- [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).
- [Stranski37] I. N. Stranski und L. Krastanow, *Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von Ionenkristallen aufeinander*, *Monatshefte für Chemie* **71**, 351 (1937).
- [Sugisaki98] M. Sugisaki, H.-W. Ren, K. Nishi, S. Sugou, T. Okuno und Y. Masumoto, *Magnetic field effects in InP self-assembled quantum dots*, *Physica B: Condensed Matter* **256–258**, 169 (1998).
- [Sze07] S. M. Sze und K. K. Ng, *Physics of semiconductor devices*, Wiley-Interscience, Wiley-Interscience, Hoboken, NJ, 3. Aufl. (2007).
- [Takagahara99] T. Takagahara, *Theory of exciton dephasing in semiconductor quantum dots*, *Physical Review B* **60**, 2638 (1999).
- [Thorlabs] Thorlabs, *SM1PD1A Mounted Silicon Photodiode*, Thorlabs, Inc., Newton, New Jersey.
- [Tischler02] J. G. Tischler, A. S. Bracker, D. Gammon und D. Park, *Fine structure of trions and excitons in single GaAs quantum dots*, *Physical Review B* **66**, 081310 (2002).
- [Urbaszek13] B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, O. Krebs, P. Voisin, P. Maletinsky, A. Högele und A. Imamoglu, *Nuclear spin physics in quantum dots: An optical investigation*, *Reviews of Modern Physics* **85**, 79 (2013).

- [Wagner19] T. Wagner, P. Talkner, J. C. Bayer, E. P. Rugeramigabo, P. Hänggi und R. J. Haug, *Quantum stochastic resonance in an a.c.-driven single-electron quantum dot*, Nature Physics **15**, 330 (2019).
- [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).
- [Warburton00] R. J. Warburton, C. Schäfflein, D. Haft, F. Bickel, A. Lorke, K. Karrai, J. M. Garcia, W. Schoenfeld und P. M. Petroff, *Optical emission from a charge-tunable quantum ring*, Nature **405**, 926 (2000).
- [Warburton02] R. J. Warburton, C. Schulhauser, D. Haft, C. Schäfflein, K. Karrai, J. M. Garcia, W. Schoenfeld und P. M. Petroff, *Giant permanent dipole moments of excitons in semiconductor nanostructures*, Physical Review B **65**, 113303 (2002).
- [Warburton13] R. J. Warburton, *Single spins in self-assembled quantum dots*, Nature Materials **12**, 483 (2013).
- [Wasilewski99] Z. R. Wasilewski, S. Fafard und J. P. McCaffrey, *Size and shape engineering of vertically stacked self-assembled quantum dots*, Journal of Crystal Growth **201–202**, 1131 (1999).
- [Weiler12] S. Weiler, A. Ulhaq, S. M. Ulrich, D. Richter, M. Jetter, P. Michler, C. Roy und S. Hughes, *Phonon-assisted incoherent excitation of a quantum dot and its emission properties*, Physical Review B **86**, 241304 (2012).
- [Wüst16] G. Wüst, M. Munsch, F. Maier, A. V. Kuhlmann, A. Ludwig, A. D. Wieck, D. Loss, M. Poggio und R. J. Warburton, *Role of the electron spin in determining the coherence of the nuclear spins in a quantum dot*, Nature Nanotechnology **11**, 885 (2016).
- [Yu13] Y. Yu, X.-J. Shang, M.-F. Li, G.-W. Zha, J.-X. Xu, L.-J. Wang, G.-W. Wang, H.-Q. Ni, X. Dou, B. Sun und Z.-C. Niu, *Single InAs quantum dot coupled to different “environments” in one wafer for quantum photonics*, Applied Physics Letters **102** (2013).
- [Zeeman97] P. Zeeman, *The Effect of Magnetisation on the Nature of Light Emitted by a Substance*, Nature **55**, 347 (1897).
- [Zrenner02] A. Zrenner, E. Beham, S. Stuffer, F. Findeis, M. Bichler und G. Abstreiter, *Coherent properties of a two-level system based on a quantum-dot photodiode*, Nature **418**, 612 (2002).
- [Zöllner24] M. Zöllner, H. Mannel, F. Rimek, B. Maib, N. Schwarz, A. D. Wieck, A. Ludwig, A. Lorke und M. Geller, *The interplay between electron tunneling and Auger emission in a single quantum emitter weakly coupled to an electron reservoir*, Applied Physics Letters **124** (2024).

Danksagung

Diese Dissertation wäre ohne die Unterstützung vieler wunderbarer Menschen nicht möglich gewesen. Daher möchte ich mich an dieser Stelle bei allen Beteiligten bedanken.

Zunächst möchte ich mich bei meinem Betreuer **Prof. Dr. Axel Lorke** bedanken, der mich vor über 7 Jahren als Student in seine Arbeitsgruppe aufgenommen hat und seitdem immer offen für spannende Diskussionen und Fragen rund um die Physik und Forschung war. Diese haben meine Motivation und Faszination für die Forschung immer wieder neu entfacht. Danke, dass ich Teil dieser außergewöhnlich tollen Arbeitsgruppe sein durfte und hier meine Dissertation schreiben konnte.

Nicht minder bedanken möchte ich mich bei **PD Dr. Martin Paul Geller** und **Dr. Günther Prinz**, die mich während meiner gesamten Promotionszeit begleitet haben. Mit viel Rat und Tat im Labor habt ihr mich unterstützt und gefordert. Vielen Dank für euer Vertrauen.

Nach meinem Wechsel in die Quantenpunktphysik haben mich **Dr. Pia Lochner** und **Dr. Jens Kerski** bei der Einarbeitung in das neue Labor unterstützt. Vielen Dank für die Zeit, die ihr euch genommen habt und für die ausführliche Einweisung und Hilfe im Labor. Ich hoffe, dass ich eure Tipps und Tricks genauso gut an die nächste Generation von Doktorandinnen und Doktoranden weitergeben konnte und diese weiterhin von eurer hervorragenden Arbeit profitieren können.

Viele der in dieser Dissertation präsentierten Daten sind im Rahmen von herausragenden Abschlussarbeiten entstanden, die ich betreuen durfte. Mein besonderer Dank gilt daher **Britta Maib**, **Fabio Rimek**, **Felix Schaumburg** und **Nico Schwarz**. Ihr habt nicht nur einen großen Teil zu dieser Arbeit beigetragen, sondern mir durch eure Neugier und die spannenden Ergebnisse immer wieder neue Motivation gegeben.

Mein besonderer Dank gilt **Hendrik Mannel**, mit dem ich immer spannende und manchmal absurd tiefgründige Diskussionen führen konnte. Danke für die tollen gemeinsamen Dienstreisen und die mentale Unterstützung auch in schwierigen Zeiten.

Auch allen anderen Mitgliedern der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Axel Lorke gilt ein besonderer Dank. Ihr macht diese Arbeitsgruppe so besonders liebenswert und zu einem Ort, der für mich mehr als nur ein Arbeitsplatz ist.

Ohne die hervorragende Quantenpunktprobe vom Lehrstuhl für Angewandte Festkörperphysik an der Ruhr-Universität Bochum von **Prof. Dr. Andreas D. Wieck** wären die hier vorgestellten Ergebnisse nicht zustande gekommen. Bedanken möchte ich mich daher insbesondere bei **Dr. Arne Ludwig** für das Wachstum der Proben, die gute Zusammenarbeit und den ständigen Austausch.

Schließlich möchte ich mich ganz besonders bei meinen **Freunden** und meiner **Familie** bedanken. Ihr habt in dieser langen Zeit an mich geglaubt und mich mit unglaublicher Kraft und Ausdauer unterstützt. Danke für eure Unterstützung, eure Liebe und eure Geduld.

„When life leaves us blind, love keeps us kind.“
Chester Bennington (2010)

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/82488

URN: urn:nbn:de:hbz:465-20241030-154050-7

Alle Rechte vorbehalten.