

Spektroskopie an einzelnen Halbleiter-Quantenpunkten: Aufbau zweier Tieftemperatur-Experimente

Von der Universität Bayreuth
zur Erlangung des Grades eines Doktors der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)

genehmigte Abhandlung

von

Gerhard Johannes Schäfer

aus Lindenberg im Allgäu

1. Gutachter: Prof. Dr. Markus Lippitz
2. Gutachter: Prof. Dr. Jürgen Köhler

Tag der Einreichung: 16. Dezember 2020
Tag des Kolloquiums: 29. März 2021

Zusammenfassung

In dieser Arbeit werden einige optische Experimente zur Untersuchung von einzelnen Halbleiter-Quantenpunkten beschrieben. Zu Beginn wird die Herstellung der Quantenpunkte erläutert und dabei auf die Tröpfchen-Ätz-Methode eingegangen. Diese Methode dient dazu, Galliumarsenid-Quantenpunkte in einer AlGaAs-Matrix herzustellen. Danach werden die grundlegenden optischen Eigenschaften der Quantenpunkte beschrieben. Ein spezielles Augenmerk wird dabei auf die Übergangsenergie des Exzitons und dessen Feinstrukturaufspaltung gelegt, die für die weiteren Experimente relevant sind.

Zur Untersuchung der einzelnen Quantenpunkte sind Temperaturen von unter 10 K notwendig. Der, in den Experimenten verwendete Kryostat, ist ein geschlossener Kreislaufkryostat mit Pulsröhrenkühler. Aufgrund der Funktionsweise eines Pulsröhrenkühlers können Vibrationen des Kühlers auf die Probe übertragen werden. Da bei der Untersuchung einzelner Quantenpunkte Vibrationen an der Probe störend sind, wurden diese zu Beginn charakterisiert. Dabei wurde festgestellt, dass die Vibrationen an der Probe geringer als 20 nm sind.

Da Quantenpunkte als künstliche Atome betrachtet werden können, ist es möglich Resonanzfluoreszenz daran zu beobachten. Dafür wurde ein experimenteller Aufbau realisiert, bei dem ein einzelner Quantenpunkt kontinuierlich mit einem schmalbandigen Laser bestrahlt wird. Das vom Quantenpunkt abgegebene Licht wird mit einem 100-fach Mikroskopobjektiv eingesammelt und anschließend mit einer APD detektiert. Um das an der Probe reflektierte Anregungslicht abzublocken, werden gekreuzte Polarisatoren verwendet. Dabei konnte eine Unterdrückung von $4,15 \cdot 10^{-6}$ bei Raumtemperatur erreicht werden. Bei tiefen Temperaturen beträgt die Unterdrückung maximal $6,3 \cdot 10^{-5}$.

Es wurde ebenfalls ein Experiment zur kohärenten Transienten-Reflexionsspektroskopie aufgebaut. Dabei wird der Quantenpunkt durch einen gepulsten Laser mit einer Repetitionsrate von 1 GHz angeregt und nach einer definierten Zeitverzögerung später mit Hilfe eines weiteren Laserpulses, die durch die Anregung veränderte Reflexion vermessen. Zur Detektion wird eine Zeilenkamera verwendet, die mit einer Ausleserate von bis zu 126 kHz abgefragt werden kann. Durch die hohe Repetitionsrate und Ausleserate ist es notwendig, das Experiment zeitlich sehr präzise zu steuern. Dafür wird ein FPGA verwendet und es wurde das hier beschriebene Auslese- und Auswerteprogramm entwickelt. Damit ist es möglich, Messungen an Quantenpunkten durchzuführen.

Abstract

The focus of this thesis was to set up two optical experiments on single semiconductor quantum dots. These Experiments are using a closed cycle cryostat to cool the sample and a 100 times NA 0.90 microscope objective for excitation and detection. In the experiments gallium arsenide quantum dots in an aluminum gallium arsenide matrix are used and therefore, their production through the droplet etching method is presented. This is followed by the description of the optical properties of these quantum dots. Special focus is given here on the position and fine structure splitting of the excitonic transition.

To examine single quantum dots it is necessary to cool the sample to cryogenic temperatures below 10 K. We used a closed cycle pulse tube refrigerator to reach these temperatures in the experiments. In a first step, we characterized the vibrations of the sample during the experiment since these vibrations disturb the measurements and need to be known for a correct interpretation of the results. The characterization yielded vibrations below 20 nm , which was adequate for the intended experiments.

Quantum dots can be described as artificial atoms and it is possible to observe resonance fluorescence on them. To detect the resonance fluorescence we realized an experimental setup using a narrow band cw laser. The emitted light of the quantum dot was collected by a 100 times microscope objective and was detected by an APD. The reflected laser light of the sample was suppressed using a crossed polarizer setup based on Glan Thompson polarizers. The use of this polarizer achieved a suppression of the pump light up to $4.15 \cdot 10^{-6}$ at room temperature and at cryogenic temperatures the suppression was up to $6.3 \cdot 10^{-5}$.

A second experiment was built to measure coherent transient reflection spectroscopy. Here, a quantum dot is excited using a short laser pulse from a titanium sapphire laser with a repetition rate of 1 GHz. A defined time interval later, a second laser pulse hits the sample. The reflected light was detected using a monochromator and a single line ccd camera, which had a readout speed up to 126 kHz. Due to this high speed it was necessary to use a programmed FPGA to control the components, especially the choppers and the trigger of the camera. A software was created to read the measured data from the camera and analyze it. With this experimental setup it is possible to do pump probe experiments on quantum dots.

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung	1
2	Aufbau und Funktionsweise des Kryostaten	5
2.1	Aufbau und Funktionsweise von Kältemaschinen	5
2.1.1	Aufbau und Funktionsweise eines Stirling-Kühlers	6
2.1.2	Aufbau und Funktionsweise eines Pulsröhrenkühlers	8
2.1.3	Der Gifford-McMahon-Pulsröhrenkühler	10
2.2	Der Heliumkreis	11
2.3	Kühlverhalten des Kryostaten	13
2.4	Vibrationsmessungen am Kryostat	15
2.5	Zusammenfassung	19
3	Halbleiter-Quantenpunkte	21
3.1	Bandstrukturen und räumliche Ausdehnung	21
3.2	Herstellung von Halbleiter-Quantenpunkten	25
3.2.1	Herstellung von AlGaAs/GaAs-Quantenpunkten	26
3.2.2	Die verwendeten GaAs-Quantenpunkte	27
3.3	Quantenmechanische Beschreibung von Quantenpunkten als Zwei-Niveau-System	28
3.4	Optische Eigenschaften von Halbleiter-Quantenpunkten	33
3.5	Messungen an Membranen	36
3.5.1	Herstellung der Schiffchen	38
3.5.2	Messungen an den Schiffchen	39
3.6	Zusammenfassung	40
4	Resonanzfluoreszenzexperimente	43
4.1	Mathematische Beschreibung der Resonanzfluoreszenz im Fall exakt resonanter Anregung	44
4.1.1	Bestimmung des Hamiltonoperators eines Zwei-Niveau-Systems und des anregenden Feldes	45
4.1.2	Wechselwirkung zwischen elektrischem Feld und Atom	46
4.1.3	Spektrum und Korrelationsfunktion erster und zweiter Ordnung	49
4.2	Aufbau des Resonanzfluoreszenz-Experiments	51
4.3	Messung der Unterdrückung durch die gekreuzte Polarisierung	56
4.3.1	Theoretische Vorüberlegungen	56
4.3.2	Unterdrückungsmessungen	57

4.3.3	Zeitliche Stabilität	59
4.3.4	Räumliche Lage des Minimums	60
4.4	Zusammenfassung	62
5	Anrege-Abfrage-Experimente	65
5.1	Aufbau zur Anrege-Abfrage-Spektroskopie	66
5.2	CCD-Kamera und Framegrabber	70
5.2.1	Ansteuerung und Synchronisation der Zeilenkamera	73
5.2.2	Bestimmung des Rauschens der Kamera	74
5.3	Steuerung und Kontrolle des Experiments	77
5.3.1	Schematische Beschreibung der Ansteuerung	77
5.3.2	Beschreibung des FPGA-Programms	78
5.3.3	Auslesen des Framegrabbers	81
5.4	Diskussion der gemessenen Spektren	82
5.5	Reihenfolge Signal-Referenz	82
5.6	Messergebnisse der Anrege-Abfrage-Experimente	86
5.7	Zusammenfassung	88
6	Zusammenfassung und Ausblick	91
6.1	Zusammenfassung der Ergebnisse	91
6.2	Ausblick für weiterführende Arbeiten	93
A	Anhang	95
A.1	Abkürzungsverzeichnis	95
A.2	Bilder zur Resonanzfluoreszenz	97
A.3	FPGA Labview-Programm	98
	Literatur	99
	Eigene Publikationen	105

1 Einführung

In den frühen 1980er Jahren schrieb Richard P. Feynman in [1], dass Quantensimulationen effektiv nur mit Quantencomputern möglich sind. In den folgenden Jahren wurden weitere Probleme gefunden, die sich in klassischen Rechnern nur mit sehr hohem Rechenaufwand, jedoch in Quantenrechnern schnell lösen lassen. Dazu gehören die Primfaktorzerlegung sowie das Durchsuchen einer großen, unsortierten Datenmenge. Für die Primfaktorzerlegung ist es der Shor-Algorithmus, der von Peter Shor an den AT&T Labs entwickelt und 1994 veröffentlicht wurde [2]. Dieser Algorithmus löst das Problem mit Hilfe von Operationen, die nur in Quantenrechnern möglich sind. Für das Durchsuchen einer großen Datenmenge gelang dies Grover 1996 [3].

In klassischen Computern wird mit Zahlen zur Basis 2 gerechnet. Einzelne Ziffern einer Binärzahl werden als Bits bezeichnet. Dagegen wird in Quantenrechnern nicht mit Bits, sondern mit Qubits gearbeitet. Qubits bestehen im Gegensatz zu Bits im klassischen Computer aus Zwei-Zustands-Systemen, die mehr als nur zwei Zustände annehmen können [4]. In diesen Systemen kann ein Qubit nicht nur die Zustände $|0\rangle$ und $|1\rangle$ annehmen, sondern es ist auch eine Superposition der beiden Zustände möglich. Eine solche Superposition ist z.B. $|\psi\rangle = 1/\sqrt{2}|0\rangle + 1/\sqrt{2}|1\rangle$. Ebenso ist die Verschränkung zwischen zwei Qubits realisierbar [4]. Verschränkung ist für die Quantenteleportation und in der Quantenkryptografie zum Schlüsselaustausch notwendig [5].

Für den Einsatz als Quantenrechner werden verschiedene Quantensysteme untersucht. Mögliche Kandidaten dafür sind Quantenpunkte [6, 7, 8] oder Photonen [9]. Die Definition der beiden Zustände lässt sich bei Photonen z.B. über die Polarisation definieren. Somit kann ein horizontal polarisiertes Photon als $|0\rangle$ -Zustand und ein vertikal polarisiertes Photon als $|1\rangle$ -Zustand definiert werden. Zur Erzeugung einzelner Photonen können Quantenpunkte verwendet werden [4]. Ein einzelner Quantenpunkt kann beim Übergang aus dem angeregten Zustand in den Grundzustand nur ein Photon emittieren [10].

Halbleiterquantenpunkte können auf verschiedene Arten hergestellt werden. Sehr verbreitet ist die Herstellung mit Hilfe der Molekularstrahlepitaxie (MBE) oder der metallorganischen Dampfphasenepitaxie (MOVPE) [11]. Die dabei entstehenden Quantenpunkte bestehen aus einer Halbleiter-Heterostruktur in der das Elektronengas räumlich eingeschränkt wird [12]. Mit Hilfe solcher Quantenpunkte wurden bereits Möglichkeiten zur Erzeugung von Pulszügen einzelner Photonen [13, 14], zur

1 Einführung

Nutzung von Quantenpunkten zur Detektion von Messsignalen [15] oder als Speicher [11] eingesetzt.

Die optischen Eigenschaften einzelner Quantenpunkte lassen sich auf verschiedene Arten charakterisieren. Häufig wird dafür die Photolumineszenz verwendet [16]. Dabei wird der Quantenpunkt mit einem kurzwelligen Laserstrahl angeregt und das emittierte Licht des Quantenpunkts detektiert. Bei Resonanzfluoreszenz-Experimenten wird das Quantensystem mit einem Laserstrahl angeregt, dessen Emissionswellenlänge in etwa dem zu untersuchenden Übergang des Quantenpunkts gewählt wird [17]. Das vom Quantenpunkt emittierte Licht kann dann als Ausgangspunkt für weitergehende Experimente genutzt werden.

Im Rahmen dieses Projektes werden zwei Versuchsaufbauten zur Untersuchung einzelner Quantenpunkte realisiert.

Diese Arbeit besteht aus vier großen Abschnitten. Zu Beginn wird in Kapitel 2 der verwendete Kryostat beschrieben. Dabei handelt es sich um einen sehr vibrationsarmen, geschlossenen Kreislaufkryostaten. Der Vorteil eines geschlossenen Systems liegt darin, dass im laufenden Betrieb kein flüssiges Helium zugeführt werden muss. Somit kann der Kryostat für eine längere Zeit bei tiefen Temperaturen betrieben werden. Dieser Kryostat verwendet einen Pulsröhrenkühler, um die Wärme vom kalten Ende des Pulsrohrs zum warmen Ende zu transportieren. Um die Probe zu kühlen, wird am Pulsrohr Helium einkondensiert, das zum Probenhalter transportiert wird. Am Probenhalter verdampft das Helium und kühlt dabei die Probe. Danach wird das Helium wieder verdichtet und erneut am Pulsrohr kondensiert. Da an einem Pulsrohr Vibrationen entstehen werden diese am Ende des Kapitels analysiert. Dafür wird das Messverfahren erläutert, quantitative Ergebnisse aufgezeigt und einige weitere Vibrationsquellen näher beschrieben.

Bevor die eigentlichen Experimente erläutert werden, werden im Kapitel 3 die untersuchten Halbleiter-Quantenpunkte beschrieben. Diese bestehen aus einer Schichtstruktur verschiedener Halbleitermaterialien. Dabei wird zuerst auf die Herstellung von selbstorganisierten Quantenpunkten eingegangen und danach die Besonderheiten des Schichtwachstums zwischen Galliumarsenid (GaAs) und Aluminium-Galliumarsenid (AlGaAs) beschrieben und auf das Tröpfchen-Ätz-Verfahren zur Herstellung von Quantenpunkten eingegangen. Ebenfalls werden die grundlegenden optischen Eigenschaften von GaAs-Quantenpunkten dargestellt. Dabei geht es vor allem um Photolumineszenzmessungen und die Erkenntnisse, die aus der Untersuchung der dabei gemessenen Spektren gewonnen werden können sowie die Eigenschaften des Exzitons.

Die beiden anschließenden Kapitel behandeln die Messungen an einzelnen Quantenpunkten. Das Kapitel 4 handelt von Resonanzfluoreszenzmessungen. Dabei handelt es sich um Messungen an Quantenpunkten, wobei die Wellenlänge des anregenden

Lichts so gewählt wurde, dass sie der Wellenlänge des Exzitonübergangs des Quantenpunkts entspricht. Die Resonanzfluoreszenz wurde erstmalig 1969 von B. R. Mollow beschrieben [18]. R. E. Grove, F. Y. Wu und S. Ezekiel konnten 1977 Resonanzfluoreszenz an Natrium-Atomen experimentell nachweisen [19]. Später wurde die Resonanzfluoreszenz an Quantenpunkten beobachtet, z.B. durch C. Matthiesen, A. N. Vamivakas und M. Atatüre [20]. Da ein einzelner Quantenpunkt beim Übergang vom angeregten Zustand zu einem bestimmten Zeitpunkt nur ein Photon abgeben kann, ist es möglich, die Resonanzfluoreszenz als Einzelphotonenquelle zu nutzen. Da die Untersuchung einzelner Photonen in der Quantenoptik aktuell ein großes Forschungsgebiet ist, sind solche Experimente dabei von Interesse [10]. In diesem Abschnitt geht es um den Aufbau eines Resonanzfluoreszenzexperimentes für einzelne Quantenpunkte und den damit verbundenen Herausforderungen. Da die Unterdrückung des Anregelichts nicht über Farbfilter möglich ist, wird dies mittels gekreuzter Polarisatoren erreicht. Um eine große Einsammeleffizienz des von der Probe emittierten Lichts zu erreichen, wird ein entsprechendes Experiment mit einem Objektiv mit einer großen numerischen Apertur aufgebaut. Die Messungen der Unterdrückung und die Bestimmung der zeitlichen Stabilität der Unterdrückung sind Teil dieses Kapitels.

In Kapitel 5 werden Anrege-Abfrage-Experimente zur Transienten-Reflexionsspektroskopie beschrieben. Dafür wurde zuerst ein, an die Arbeit von C. Wolpert [21, 22] angelehntes Experiment aufgebaut. Der dort beschriebene Aufbau beruht auf einem 76 MHz Ti:Saphir-Laser und für die Detektion wurde eine spektroskopische CCD-Kamera verwendet. Da die Messzeiten bei diesem Experiment sehr lange waren, besteht die Aufgabe darin, diesen Aufbau zu beschleunigen. Bei dem verwendeten Lasersystem beträgt die Zeit zwischen zwei Laserpulsen 13,4 ns. Jedoch dauert es weniger als 1 ns bis das hier verwendete angeregte Quantensystem wieder zurück im Grundzustand ist [22]. Deshalb ist es ein Ziel, das Experiment schneller durchführbar zu machen. Dafür wird ein hochrepetitiver Titan-Saphir-Laser mit einer Repetitionsrate von 1 GHz verwendet und zur Messung der Spektren eine Zeilenkamera mit einer Ausleserate von bis zu 126 kHz eingesetzt, wie sie auch in [23] verwendet wird. Hier wird der Aufbau des Experiments beschrieben und dabei auch auf die Besonderheiten der sehr schnellen, technischen Geräte eingegangen. Unter anderem wird das Rauschverhalten der Kamera und das zeitliche Verhalten der einzelnen technischen Geräte genauer untersucht. Dies ist notwendig, damit während einer Messung alle Geräte synchron arbeiten. Am Ende werden die experimentell ermittelten Ergebnisse gezeigt.

Zum Schluss wird im Kapitel 6 die in den vorhergehenden Abschnitten aufgeführten Ergebnisse noch einmal zusammengefasst und ein Ausblick für weitergehende Experimente aufgezeigt.

2 Aufbau und Funktionsweise des Kryostaten

Bei der Untersuchung von Halbleiterquantenpunkten sind tiefe Temperaturen von unter 10 K notwendig, da die Exziton-Linie mit ansteigender Temperatur immer breiter wird und ab einer Grenztemperatur komplett verschwindet [24]. Um den Verbrauch an flüssigem Helium zu reduzieren und damit die Möglichkeit besteht, eine Probe auch für eine längere Zeit, teilweise auch über mehrere Wochen, bei tiefen Temperaturen zu halten, soll ein geschlossener Kryostat verwendet werden.

In einem normalen Badkryostat wird von außen flüssiges Helium eingeleitet, das im Kryostat verdampft und anschließend entweder an die Umgebung abgegeben oder zur Rückgewinnung zurück geführt wird. Der geschlossene Kreislaufkryostat hingegen benötigt keine Heliumzufuhr von außen [25, 26].

Der Kryostat besteht aus einem System mit zwei Hauptkomponenten. Der eine Teil ist ein Pulsröhrenkühler und der andere ist ein geschlossener Heliumkreis, dessen Helium am Pulsrohr kondensiert, dann an einer Joule-Thomson-Stufe expandiert wird und dabei die Probe abkühlt [27].

2.1 Aufbau und Funktionsweise von Kältemaschinen

In Kältemaschinen für tiefe Temperaturen wird die Wärme von einem kalten Wärmetauscher zu einem warmen Wärmetauscher gepumpt. Dadurch wird der kalte Wärmetauscher gekühlt und die Wärme am warmen Wärmetauscher an die Umgebung abgegeben.

Bei den hier beschriebenen Systemen wird als Prozessgas in der Regel Helium verwendet. Dieses Gas bewegt sich periodisch zwischen den beiden Wärmetauschern hin und her. Bei einem idealen Wärmetauscher hat das ausströmende Gas stets die Temperatur des Wärmetauschers [28]. Im folgenden werden nur Kältemaschinen mit Regenerator betrachtet. Dieser hat den Zweck, das durchströmende Gas zu erwärmen oder abzukühlen. Dafür braucht ein idealer Regenerator einen optimalen thermischen Kontakt mit dem durchströmenden Gas und stellt keinen Durchflusswiderstand dar. Außerdem existiert keine thermische Leitfähigkeit im Regenerator in Richtung des strömenden Gases. Somit wird das Gas, wenn es von der heißen zur kalten Seite

strömt, abgekühlt und wenn es von der kalten zur heißen Seite strömt, erwärmt. Deshalb ist eine hohe Wärmekapazität des Regenerators notwendig. Reale Regeneratoren bestehen üblicherweise aus einem porösen Metall, z.B. Edelstahl [28].

2.1.1 Aufbau und Funktionsweise eines Stirling-Kühlers

Eine einfache Form einer Wärmepumpe ist der Stirling-Kühler. Eine detaillierte Beschreibung findet sich in [25, 28, 29]. Der Aufbau ist in Abb. 2.1 schematisch dargestellt. Dieser besteht aus einem Rohr, in dessen Mitte sich ein Regenerator befindet. Auf beiden Seiten des Regenerators befindet sich ein Wärmetauscher. Der Wärme-

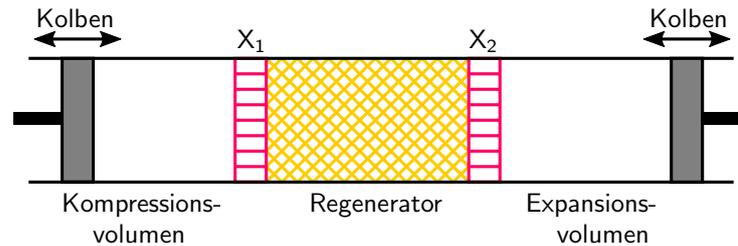


Abbildung 2.1: Schematischer Aufbau eines Stirling-Kühlers.

tauscher auf der Kompressionsseite gibt die Wärme ab und der Wärmetauscher auf der Expansionsseite nimmt die Wärme vom umgebenden Material auf. An beiden Enden des Rohres befindet sich ein Kolben. Der eine Kolben dient dazu, das Gas zu komprimieren, der andere das Gas zu expandieren. Durch diese räumliche Trennung von Expansion und Kompression ist es möglich die Wärme vom Wärmetauscher X_2 zum Wärmetauscher X_1 zu transportieren. In Abb. 2.2 ist ein Stirling-Kreisprozess dargestellt. Dieser Kreisprozess besteht aus vier Schritten. Aus der Thermodynamik ist bekannt, dass bei der Kompression eines Gases bei gleichbleibender Temperatur Wärme an die Umgebung abgegeben wird. Bei der Expansion hingegen wird Wärme aufgenommen. In Schritt (1), der isothermen Kompression, komprimiert der Kolben auf der Kompressionsseite das Gas bei gleichbleibender Temperatur. Die dabei entstehende Wärmemenge wird über den auf der Kompressionsseite befindenden Wärmetauscher X_1 abgegeben. Im nächsten Schritt (2), der isochoren Abkühlung, wird dann das Gas durch den Regenerator gedrückt. Da der Regenerator auf der rechten Seite auf der gleichen Temperatur wie das Gas und auf der linken Seite kühler ist, wird das Gas hierbei abgekühlt. Da keine Volumenänderung auftritt, sinkt der Druck. In Schritt (3), der isothermen Expansion, wird das Gas bei gleichbleibender Temperatur expandiert. Dabei sinkt der Druck und die notwendige Wärme wird der Umgebung durch den auf der Expansionsseite befindlichen Wärmetauscher entzogen. Im letzten Schritt (4), die isochore Erwärmung, wird das Gas mit konstantem Volumen von der Expansionsseite auf die Kompressionsseite bewegt. Dabei wird das Gas im Regenerator wieder erwärmt und der Druck steigt an. Danach ist das System wieder in der Anfangsposition und der Kreisprozess setzt sich fort [28, 25].

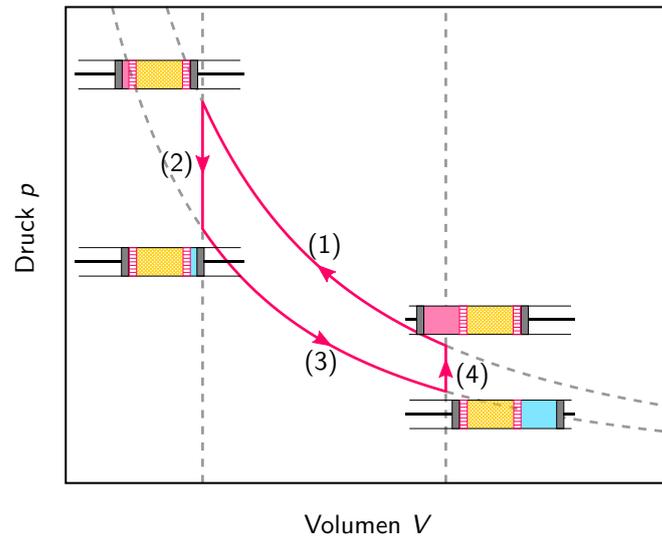


Abbildung 2.2: Verlauf des Stirling-Kreisprozesses im Druck-Volumen-Diagramm. In Schritt (1) bewegt sich der Kolben auf der Kompressionsseite nach rechts (isotherme Kompression). Das Volumen verkleinert sich und der Druck steigt an. Damit dabei keine Erwärmung auftritt, wird Wärme über den kompressionsseitigen Wärmetauscher abgegeben. Im nächsten Schritt (2) bewegen sich beide Kolben gleichzeitig nach rechts. Dabei wird das Gas im Regenerator abgekühlt (isochore Abkühlung). In Schritt (3) bewegt sich der Kolben auf der Expansionsseite nach rechts. Dabei sinkt der Druck und das Volumen vergrößert sich. Das Gas entzieht dabei dem expansionsseitigen Wärmetauscher Wärme (isotherme Expansion). In Schritt (4) bewegen sich beide Kolben nach links und das Gas wird im Regenerator erwärmt. Dabei steigt der Gasdruck an (isochore Erwärmung). Angelehnt an [28, 29].

Ein solches System hat den Nachteil, dass sich zwei Kolben im Rohr bewegen. Vor allem die Schmierung der Kolben bei tiefen Temperaturen, insbesondere auf der Expansionsseite ist technisch kompliziert. Um diesem Problem zu begegnen, wurden Pulsröhrenkühler entwickelt [25].

2.1.2 Aufbau und Funktionsweise eines Pulsröhrenkühlers

Der Aufbau eines Pulsröhrenkühlers ist sehr ähnlich zu dem im vorherigen Abschnitt beschriebenen Stirling-Kühler. Der Hauptunterschied besteht darin, dass beim Pulsröhrenkühler der Kolben auf der Expansionsseite fehlt. Stattdessen befindet sich dort ein Rohr, an dessen Ende sich ein Wärmetauscher und ein über eine Drossel verbundenes Puffervolumen befindet [28].

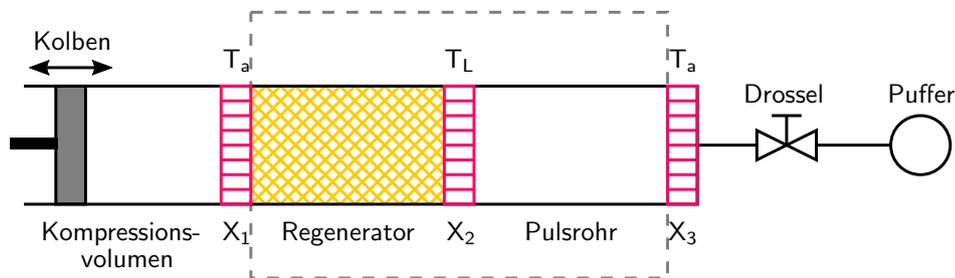


Abbildung 2.3: Schematischer Aufbau eines Pulsröhrenkühlers. Auf der einen Seite versetzt ein Kolben die eingeschlossene Gassäule in eine periodische Druckschwankung. Im Rohr sind drei Wärmetauscher X_1 , X_2 und X_3 (rot) eingebaut. Die beiden äußeren sind mit der Umgebung gekoppelt um die Wärme abzuführen. Dabei wird der mittlere Wärmetauscher stark abgekühlt. Der grau gestrichelte Bereich ist vakuumisoliert, da dieser Teil des Kühlers kälter als die Umgebung ist. Zwischen dem Wärmetauscher X_1 und X_2 ist ein Regenerator eingesetzt. Am Ende des Rohres ist eine Durchflussdrossel mit einem Pufferspeicher angebracht.

Dieser Aufbau ist in Abb. 2.3 skizziert. Auf der linken Seite ist ein Kolben, der das Gas in eine Druckschwankung versetzt. In der Mitte befindet sich ein Regenerator, an den sich auf beiden Seiten je ein Wärmetauscher anschließt. Der Regenerator dient dazu, die warme Kompressionsseite von der kühlen Expansionsseite zu trennen. Der Wärmetauscher X_1 auf der linken Seite gibt die Wärme ab und der mittlere Wärmetauscher X_2 nimmt die Wärme der Probe auf. Am Ende des Rohres befindet sich ein dritter Wärmetauscher X_3 , der ebenfalls auf Raumtemperatur ist und die am Wärmetauscher X_2 aufgenommene Wärme wieder abgibt. Da eine Phasenverschiebung zwischen der Kompressions- und Expansionsseite erforderlich ist, schließt sich

dahinter eine Drossel an, die mit einem Pufferspeichervolumen verbunden ist [28, 29]. Dies ersetzt den zweiten Kolben des Stirlingkühlers. Um eine effektive Abkühlung des Wärmetauschers X_2 zu erreichen ist es notwendig, dass der Bereich zwischen den beiden äußeren Wärmetauschern vakuumisoliert ist.

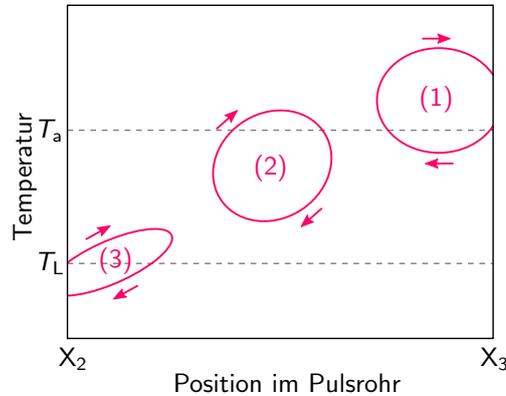


Abbildung 2.4: Temperaturverlauf für drei verschiedene Gaspakete im Pulsrohr. Paket (1) kommt mit Temperatur T_a in das Pulsrohr und verlässt es mit einer höheren Temperatur. Paket (2) verlässt nie das Pulsrohr und seine Temperatur sinkt bei einer Bewegung in Richtung des kalten Endes (Expansion) und erwärmt sich bei einer Bewegung zum warmen Ende (Kompression). Das Gaspaket (3) strömt mit Temperatur T_L in das Pulsrohr ein und verlässt es mit einer niedrigeren Temperatur und kühlt so die Probe.

Die Beschreibung des Funktionsprinzips des Pulsröhrenkühlers wurde aus [28] entnommen. Die Gassäule im Pulsrohr wird durch den Kolben in eine gleichmäßige Druckschwankung versetzt. Die Eigenschaften des Regenerators und der Wärmetauscher sind die selben wie beim Stirling-Kühler. Das bedeutet, dass in den Wärmetauschern und im Regenerator das Gas einen guten thermischen Kontakt mit dem umgebenden Material hat. Ebenfalls existiert keine thermische Leitfähigkeit entlang des Regenerators. Die folgende Beschreibung basiert darauf, dass sich bereits ein Temperaturunterschied zwischen T_a an den Wärmetauschern X_1 und X_3 und T_L an Wärmetauscher X_2 aufgebaut hat.

Der eigentliche Abkühlungsprozess bei einem Pulsröhrenkühler passiert zwischen den Wärmetauschern X_2 und X_3 . Dafür werden verschiedene Gaspakete im Pulsrohr betrachtet. Der Positions- und Temperaturverlauf drei solcher Gaspakete ist in Abb. 2.4 dargestellt. Dabei gibt es solche, die sich nur im Pulsrohr bewegen und solche, die durch einen der Wärmetauscher strömen.

Zu Beginn wird das hintere Rohrende betrachtet. Hier befindet sich der Wärmetauscher X_3 (Gaspaket (1) in Abb. 2.4). Bewegt sich der Kolben nach rechts, steigt der Druck im Rohr an. Dadurch steigt die Temperatur am Wärmetauscher X_3 an und wird über diesen an die Umgebung abgegeben. Da der Druck jetzt im Rohr höher ist,

als im Puffervolumen strömt ein Teil des Gases durch die Drossel in den Pufferspeicher und kühlt sich ab. Bewegt sich der Kolben danach wieder nach links sinkt der Druck an diesem Wärmetauscher und das Gas aus dem Pufferspeicher kann wieder in das Pulsrohr einströmen. Das einströmende Gas hat die selbe Temperatur wie der Wärmetauscher.

Wird das Gaspaket am Wärmetauscher X_2 betrachtet (Gaspaket (3) in Abb. 2.4), so tritt bei der Kompression kaltes Gas aus dem Regenerator durch den Wärmetauscher mit der Temperatur T_L in das Pulsrohr ein und während der Expansionsphase dehnt sich das Gas aus und entzieht dem Wärmetauscher Wärme.

2.1.3 Der Gifford-McMahon-Pulsröhrenkühler

Der im vorherigen Abschnitt beschriebene Pulsröhrenkühler benötigt immer noch bewegliche Teile im Pulsrohr. Die für den Betrieb notwendige Druckschwankung lässt sich hingegen auch erreichen, wenn das Pulsrohr abwechselnd mit einem Hochdruck- und einem Niederdruckbehälter verbunden wird. Dadurch sind im Pulsrohr keine beweglichen Teile mehr notwendig [28]. Ein solcher Aufbau ist in Abb. 2.5 zu sehen. Dabei wird das Prozessgas Helium aus dem Niederdruckbehälter mit einem Kompressor in den Hochdruckbehälter gepumpt. Nach dem Kompressor wird das Helium durch einen Kühler wieder auf Umgebungstemperatur heruntergekühlt. Der Hochdruck- und der Niederdruckbehälter wird über Leitungen mit einem Ventil verbunden. Dieses Ventil ist häufig ein Rotationsventil, das den Pulsröhrenkühler abwechselnd mit den beiden Druckbehältern verbindet. Wird der Pulsröhrenkühler mit dem Hochdruckbehälter verbunden, strömt Gas in das Pulsrohr ein. Danach wird der Pulsröhrenkühler mit dem Niederdruckbehälter verbunden und das Gas strömt wieder aus [28].

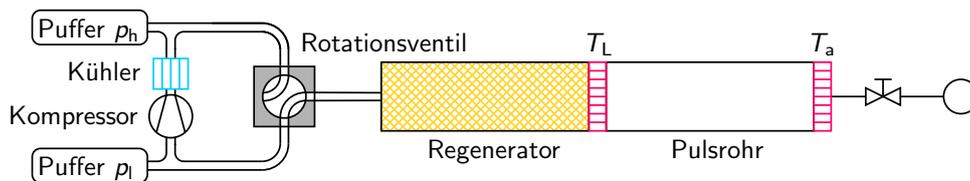


Abbildung 2.5: Schematischer Aufbau eines Gifford-McMahon-Pulsröhrenkühlers. Dabei ist p_h der Hochdruckbehälter und p_l der Niederdruckbehälter.

Wie in der Abb. 2.5 zu sehen ist, bildet sich die tiefe Temperatur am Wärmetauscher in der Mitte des Pulsrohrs aus. Deshalb werden Pulsrohrkühler häufig in einer U-Form gebaut. Dafür wird das Pulsrohr neben dem Regenerator positioniert und der kalte Wärmetauscher verbindet die beiden Enden. Ein solcher Aufbau ist in Abb. 2.6 zu sehen. Der hier verwendete Pulsröhrenkühler hat zwei Stufen. Dafür wird am Regenerator der ersten Stufe ein weiterer für die zweite Stufe angebaut. Die

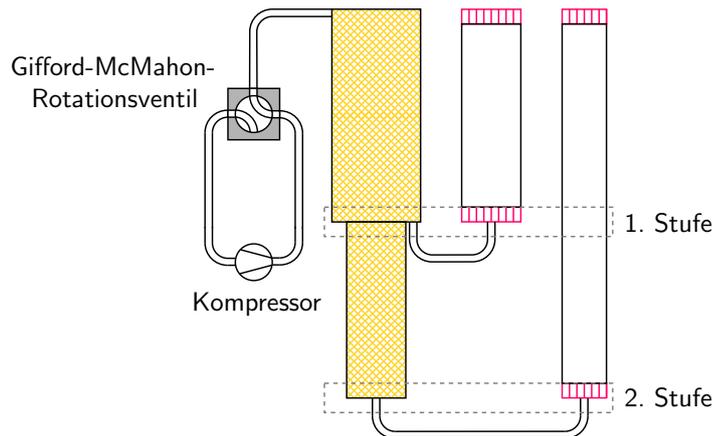


Abbildung 2.6: Schematischer Aufbau eines zweistufigen GM-Typ-Pulsröhrenkühlers. Die Gassäule wird durch einen entfernt stehenden Kompressor und ein Gifford-McMahon-Drehventil in Schwingung versetzt, das abwechselnd die Hochdruck und die Niederdruckseite des Kompressors mit den Pulsrohren verbindet. Das Pulsrohr wurde zwischen dem Regenerator (gelb) und dem mittleren Wärmetauscher (rot) gefaltet, sodass die warmen Wärmetauscher (rot) oben und die kalten Enden unten sind. Nicht dargestellt sind die Pufferspeicher und Drosselleitungen, auch wenn diese weiterhin notwendig sind.

warme Seite der beiden Pulsrohre sind jeweils auf Raumtemperaturseite miteinander verbunden. Die erste Stufe des Pulsrohrs dient dabei zur Vorkühlung der zweiten Stufe. Dies ist notwendig, um die gewünschte Basistemperatur zu erreichen. Dabei kühlt der Regenerator der ersten Stufe nicht nur das Heliumgas, das in das Pulsrohr der ersten Stufe einströmt, sondern auch das Gas der zweiten Stufe [28].

Bei dem in den Experimenten verwendeten Pulsrohr wird auf der Hochdruckseite ein Betriebsdruck von 25 bar und auf der Niederdruckseite 10 bar verwendet, die Rotationsfrequenz des Drehventils liegt bei 1,348 Hz [30].

2.2 Der Heliumkreis

Der Heliumkreis ist ein geschlossenes System, in dem Helium am zweistufigen Pulsröhrenkühler kondensiert und dann zur Probe geführt wird, dort wieder verdampft und zurück gepumpt wird [27]. Der Kreislauf ist schematisch in Abb. 2.7 zu sehen.

Das System besteht aus einem Kompressor der das Helium auf 6 bar bis 8 bar verdichtet. Danach strömt das Gas durch eine mit flüssigem Stickstoff gekühlte Kühlfalle, um eventuell im Helium vorhandene Verunreinigungen zu kondensieren. Da das Helium

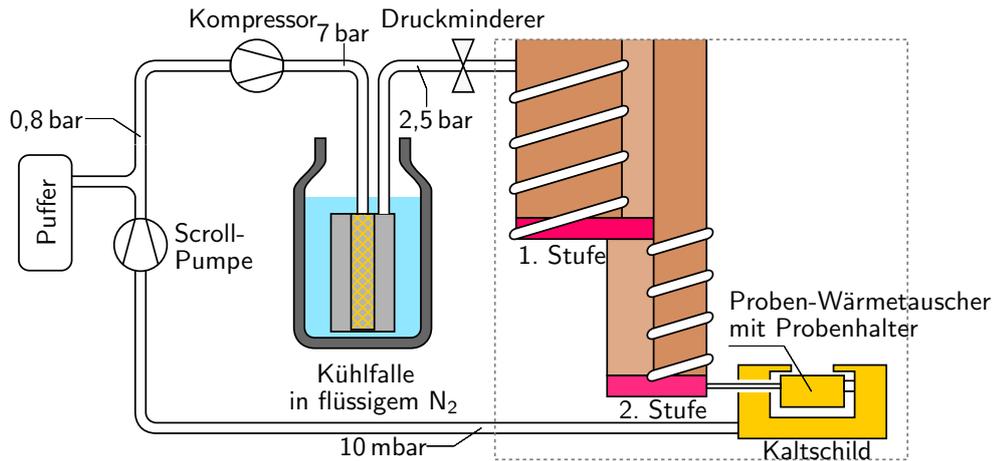


Abbildung 2.7: Schematischer Aufbau des Heliumkreises. Ein Kompressor verdichtet das Helium und das so erzeugte Hochdruckhelium wird durch eine mit flüssigem Stickstoff gekühlte Kühlfalle gereinigt. Danach wird der Druck an einem Druckminderer auf Betriebsdruck des Systems gesenkt. Die Heliumleitung ist außen um die beiden Pulsrohre (braun) gewickelt und an jeder Stufe ist ein Wärmetauscher (rot) montiert. Das kalte Helium fließt durch eine Kapillare zum Proben-Wärmetauscher und kühlt dabei die Probe. Anschließend strömt das Helium weiter durch das Kaltschild und wird schließlich mit einer Scroll-Pumpe zurück zum Pufferspeicher gepumpt. Der große gestrichelte Kasten ist die Vakuumkammer. Die Versorgungsleitungen des Pulsrohr sind hier nicht dargestellt.

am Pulsrohr einkondensiert wird, würden dort dann die Verunreinigungen festfrieren und die Leitungen verstopfen. Danach wird der Druck des Gases mit einem Druckminderer auf den benötigten Betriebsdruck von 3 bar eingestellt. Anschließend wird das Helium an der ersten Stufe des Pulsrohrs auf ca. 65 K vorgekühlt und an einem zweiten Wärmetauscher an der zweiten Stufe auf unter 5 K abgekühlt. Das kalte Helium wird an einer als Joule-Thomson-Stufe dienenden Kapillare expandiert und zum Rezipienten geführt. Das kalte Helium strömt durch den Proben-Wärmetauscher und kühlt diesen auf bis zu 5,5 K. Die Anordnung ist in Abb. 2.8 zu sehen. Danach wird das noch kalte Helium durch das Kaltschild geführt und dieses abgekühlt um Wärmeeinstrahlung von außen zu minimieren. Anschließend verlässt das Helium den vakuumisolierten Rezipienten und erwärmt sich auf Raumtemperatur. Eine Scroll-Pumpe pumpt das Helium zurück in den Pufferspeicher des Kompressors. Dieser ist notwendig, damit im Betrieb der Druck des Heliums auf der Eingangsseite des Kompressors nicht zu stark absinkt, das dazu führen würde, dass der Druck auf der Hochdruckseite unter den Betriebsdruck 0,75 bar sinkt.

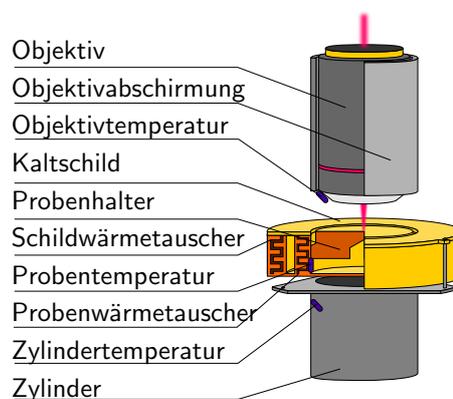


Abbildung 2.8: Anordnung der Komponenten und Messsensoren im Rezipienten.

2.3 Kühlverhalten des Kryostaten

Zu Beginn wird das Kühlverhalten des Kryostaten untersucht. Dafür wird während der Abkühlung und der Messung die Temperaturdaten am Kontrollgerät mitgeschrieben. Diese Daten sind in Abb. 2.9 dargestellt. Die beiden Stufen des Pulsrohres kühlen die Wärmetauscher und nach ca. 1,5 Stunden beginnt dann auch die Abkühlung der Probe. Nach circa 4 Stunden ist die Probe bei unter 10 K angelangt (Abb. 2.9a). Die Kühlrate dT/dt in Abb. 2.9c zeigt das Kühlverhalten an der Probe. Dabei ist zu sehen, dass auch nach Erreichen der Basistemperatur zu Beginn noch stärkere Schwankungen auftreten. Wird das Objektiv fokussiert, kommt es zu einem stärkeren Wärmeübertrag zwischen Objektiv und Probe, was zu einer Spitze in der Temperaturrate führt (Abb. 2.9d). Die Temperaturstabilität ist in Abb. 2.9b zu

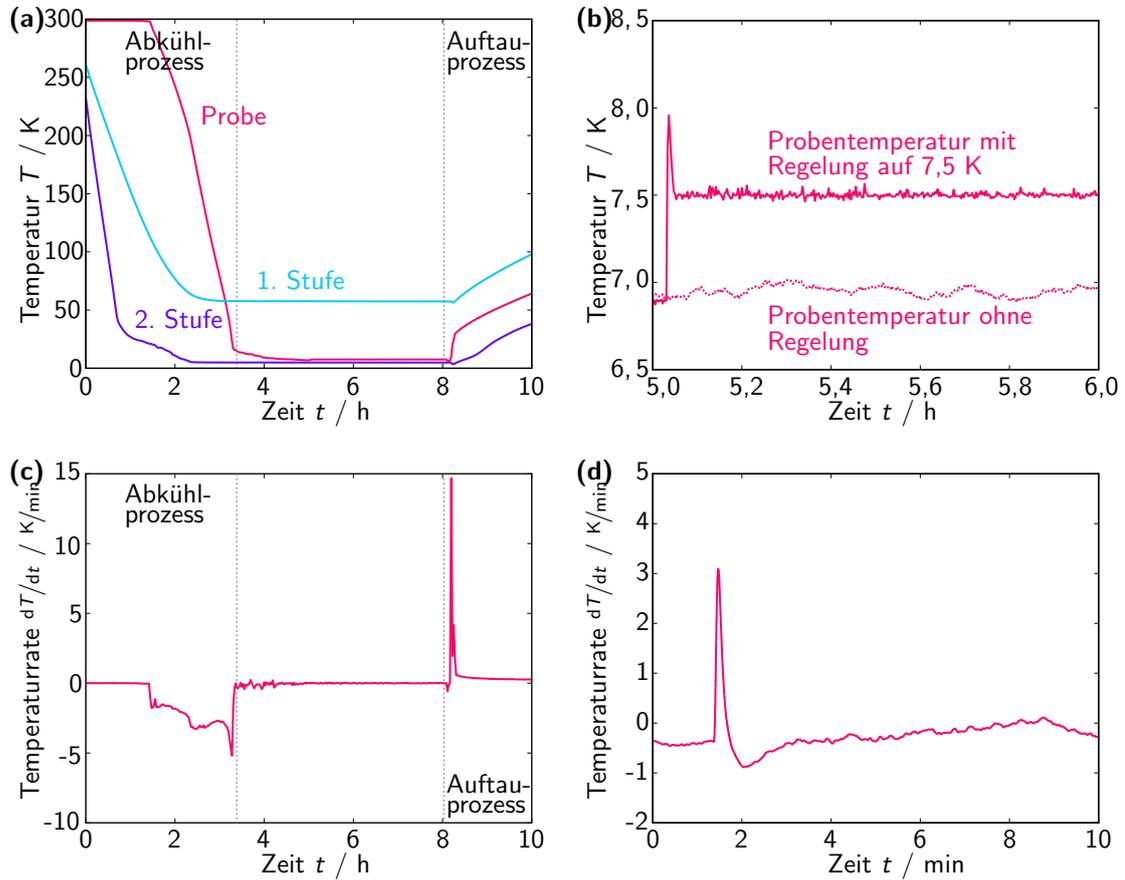


Abbildung 2.9: Temperaturmessungen am Kryostaten. **(a)** Temperaturverlauf an den beiden Stufen des Pulsrohrs (lila zweite Stufe, blau erste Stufe) und an der Probe (rot). **(b)** Ausschnitt des Temperaturverlaufs bei niedrigen Temperaturen an der Probe bei ausgeschaltetem (gepunktete Linie) und eingeschaltetem (geschlossene Linie) Regelkreis. **(c)** Verlauf der Temperaturänderung. **(d)** Verlauf der Temperaturänderung während des Fokussierens des Objektivs.

sehen. Wird die Temperaturregelung benutzt, wird ein schwacher Heizstrom durch einen Heizwendel im Probenwärmetauscher geführt. Dieser führt dazu, dass die Temperatur im Kryostat stabil bleibt. Um die Temperaturstabilität zu bewerten, wird die Standardabweichung der Messpunkte betrachtet. Dafür werden die Messpunkte ausgewählt, nachdem der Kryostat die Zieltemperatur erreicht hat. Wird nun die Standardabweichung des unregulierten Systems bei 7 K Proben­temperatur berechnet, so ergibt sich bei einer Zeitspanne von 100 min 40 mK. Jetzt wird die gleiche Untersuchung bei eingeschalteter Regelung auf 7,5 K wiederholt. Hierbei ergibt sich für die Standardabweichung 10 mK. Jedoch fällt auf, dass bei einer Berechnung der Standardabweichung für die ersten 50 min die Standardabweichung noch bei 13 mK liegt und in den nächsten 50 min auf 9 mK sinkt. Das bedeutet, dass das System wahrscheinlich noch nicht vollständig im thermischen Gleichgewicht war und trotz eingeschalteter Temperaturregelung es noch zu größeren Temperaturschwankungen kam. Die Spitze am Anfang ist der Einschwingprozess des Regelkreises. Zur Kontrolle der Temperaturverteilung im Kryostaten sind am Metallzylinder, der den Probenhalter mit Kaltschild nach unten hin abstützt ein Messsensor (Platin-Messwiderstand PT100) angebracht (siehe Abb. 2.8). Ebenso befindet sich ein Messsensor (Platin-Messwiderstand PT100) am Objektiv unterhalb der Abschirmung. Die Messung erfolgte mit einer Vierdrahtmessung bis zum Rezipienten und dann mit einer Zweidrahtmessung innerhalb des Rezipienten. Nach dem Einbau der Sensoren wurden diese auf 0 °C kalibriert und der Wert bei Raumtemperatur zusätzlich überprüft. Die Messkurven sind in Abb. 2.10 zu sehen. Die kleine Einbuchtung in der Objektivtemperatur nach etwa 8 Stunden ist das Fokussieren des Objektivs.

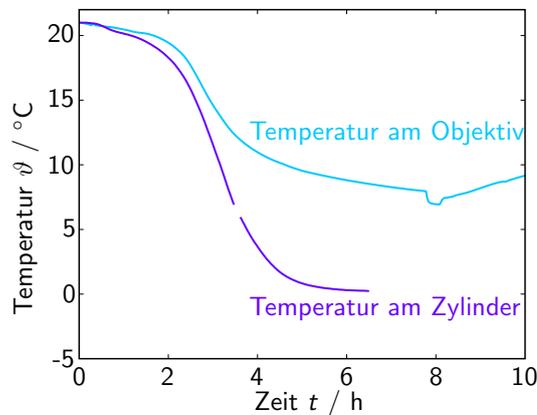


Abbildung 2.10: Verlauf der Temperatur am Zylinder (lila) und Objektiv (blau).

2.4 Vibrationsmessungen am Kryostat

Da im Pulsrohr hohe Druckschwankungen auftreten und zu Schwingungen am Pulsrohr führen, muss der Übertrag von Vibrationen vom Pulsrohr auf die Probe überprüft

werden. Deshalb wird das Schwingungsverhalten des Probenhalters vermessen. Dafür wird ein Chromgitter auf einem Glassubstrat verwendet. Trifft der Laserstrahl auf einen Chromstreifen, so wird der Laserstrahl nahezu vollständig reflektiert, trifft er auf das Glassubstrat zwischen zwei Chromstreifen wird nur ein geringer Anteil des einfallenden Lichts an der Oberfläche reflektiert. Ein Gitterstreifen wird nun durch den Laserstrahl geschoben. Das gemessene Signal entspricht dem, wie bei einem Knife-Edge-Test, bei dem eine scharfe Kante durch einen Laserstrahl geschoben wird. In dem Bereich, in dem die Hälfte des Strahls auf dem Gitter liegt und die andere daneben, führt eine geringe Verschiebung zwischen Strahl und Position auf dem Gitter zu einer großen Änderung des Messsignals.

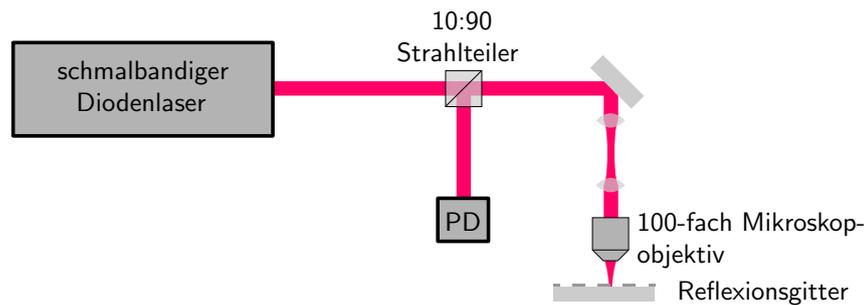


Abbildung 2.11: Aufbau bei den Vibrationsmessungen. PD steht für Photodiode.

Der hier verwendete Aufbau ist in Abb. 2.11 dargestellt. Es handelt sich um den Aufbau eines konfokalen Mikroskops. Dafür wird ein Laserstrahl durch einen 10:90 Strahlteilerwürfel geführt und dabei werden 10 % des Laserlichts abgespalten. Das Licht wird durch ein 100-fach Mikroskopobjektiv (Olympus MPlanFL N 100x/0.90 BD P) auf das Reflexionsgitter mit einer Gitterkonstanten von $10\ \mu\text{m}$ fokussiert. Das an dem Gitter reflektierte Licht wird wieder am Objektiv eingesammelt und zurück zum Strahlteilerwürfel geführt. Dort wird das reflektierte Licht vom Anregungsstrahl abgetrennt, in dem der transmittierte 90 % Anteil des Strahlteilerwürfels benutzt wird. Das dort transmittierte Licht wird mit einer Silizium-Fotodiode gemessen und anschließend verstärkt (Femto OE-200-Si).

Zuerst wird durch Verfahren der Probe mit den darunter befindlichen Fahrtischen ein Intensitätsprofil über mehrere Gitterlinien aufgenommen (siehe Abb. 2.12). Danach wird das Gitter so im Fokus positioniert, dass die Intensität auf dem Detektor genau zwischen dem Maximalwert und dem Minimalwert der zuvor gemessenen Messkurve über den Gitterlinien ist. Dann befindet sich der halbe Laserstrahl auf einer Gitterlinie und die andere Hälfte daneben. An dieser Stelle wird für 30 Sekunden die reflektierte Intensität gemessen.

Anschließend muss noch überprüft werden, ob die gemessenen Intensitätsschwankungen wirklich von den Vibrationen des Systems her stammen oder ob es sich um Rauschen des verwendeten Lasers oder Detektors handelt. Dafür wird eine weitere

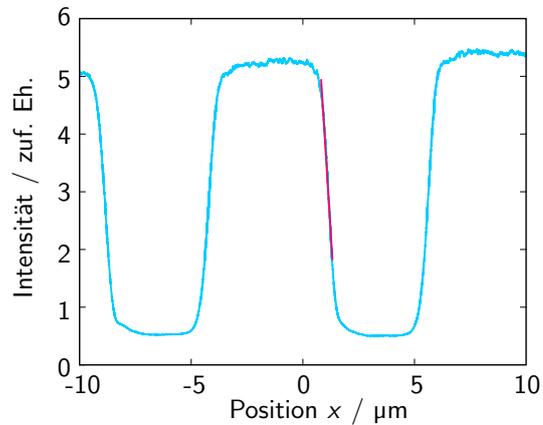


Abbildung 2.12: Bestimmung der Steigung an den Flanken der Gittermessung in zufälligen Einheiten (zuf. Eh.).

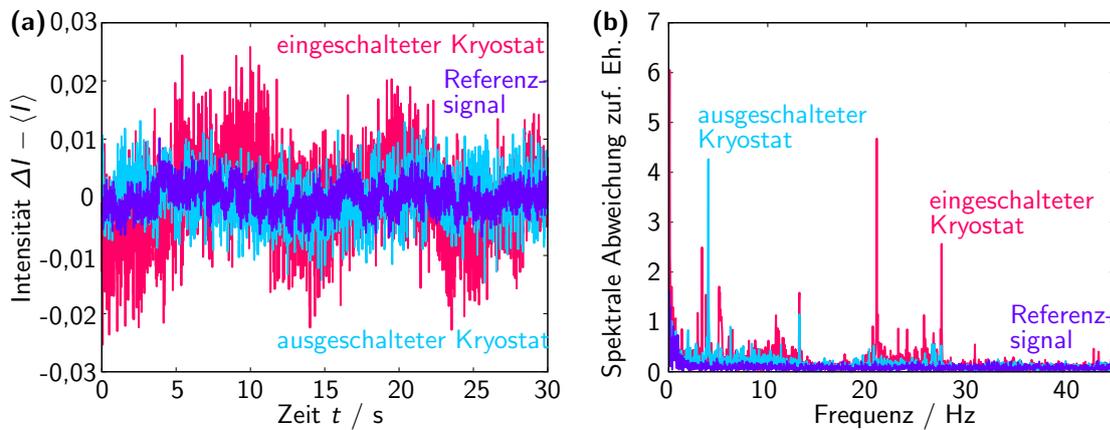


Abbildung 2.13: Rohdaten der Vibrationsmessungen in zufälligen Einheiten (zuf. Eh.). Dabei ist rot die Messkurve bei eingeschaltetem Kryostaten, blau die Messkurve bei ausgeschaltetem Kryostaten und lila die Referenzmessung mittig auf einem Chromstreifen. **(a)** Zeitspuren mit einer Länge von 30 Sekunden. **(b)** Spektrum der in Abb. a gezeigten Messdaten.

2 Aufbau und Funktionsweise des Kryostaten

Messkurve mittig auf einem Chromstreifen gemessen. Die reinen Messdaten sind in Abb. 2.13 zu sehen. Dabei ist zu erkennen, dass das Rauschen des Referenzsignals deutlich geringer ist, als die eigentlichen Messdaten.

Um nun die Längenablenkung zu messen, wird in die Mitte der verwendeten Flanke der Messung über die Gitterspalten eine Gerade angepasst. Diese gibt Auskunft über

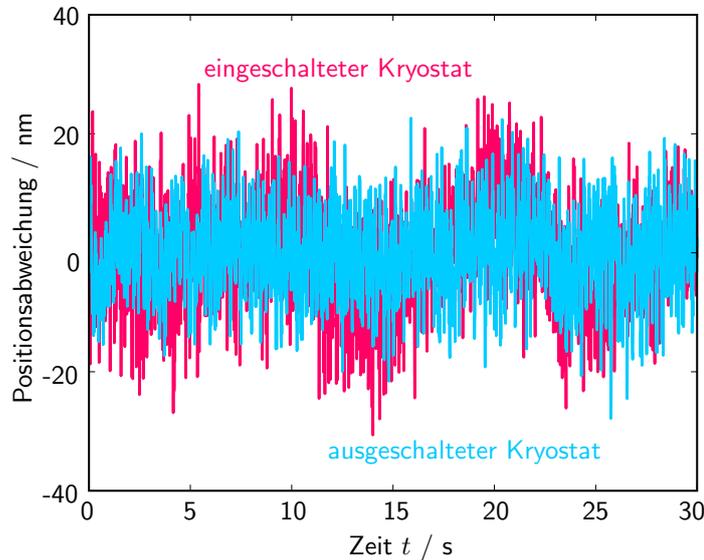


Abbildung 2.14: Vibrationsmessungen am Kryostaten. Rot ist die Messkurve des laufenden, kalten Kryostaten, blau ist das System bei ausgeschaltetem Pulsrohr und Helium-Kreis, jedoch eingeschalteter Vakuumpumpe.

den Zusammenhang zwischen Spannung und Position. Danach werden die bei der Vibrationsmessung gemessenen Spannungswerte in Positionen umgerechnet. Denn bei einer Vibration zwischen Laserstrahl und Gitter bewegt sich die Kante des Gitters weiter in den Laserstrahl hinein oder aus ihm hinaus. Diese Messkurve ist in Abb. 2.14 zu sehen. Dabei sind die Daten der Messkurven aus Abb. 2.13 mit der vorher bestimmten Geradengleichung in Positionsabweichungen umgerechnet worden. Für den in Betrieb befindlichen Kryostaten ergibt sich eine mittlere Auslenkung von $\pm 8,0$ nm, im ausgeschalteten Fall eine Auslenkung von $\pm 6,8$ nm. Die Vibrationen im ausgeschalteten Zustand kommen daher, da auch Vibrationen von außen, z.B. der laufenden Vakuumpumpe, der Lüftung oder vom im Labor anwesenden Personen, auf den Messaufbau übertragen werden.

Um die Vibrationen zu charakterisieren und die Schwingungsübertragung vom Pulsrohr auf die Probe zu überprüfen, wurde die Fouriertransformierte des Vibrationssignals berechnet. Anschließend wird der Bereich um 1,348 Hz genauer überprüft, da dies die Frequenz ist, bei der das Pulsrohr betrieben wird (siehe Abb. 2.15). Bei der genauen Analyse der Daten ist zu sehen, dass kaum Vibrationen vom Pulsrohr auf die Probe übertragen werden. Wird das gesamte Spektrum untersucht, so ist zu

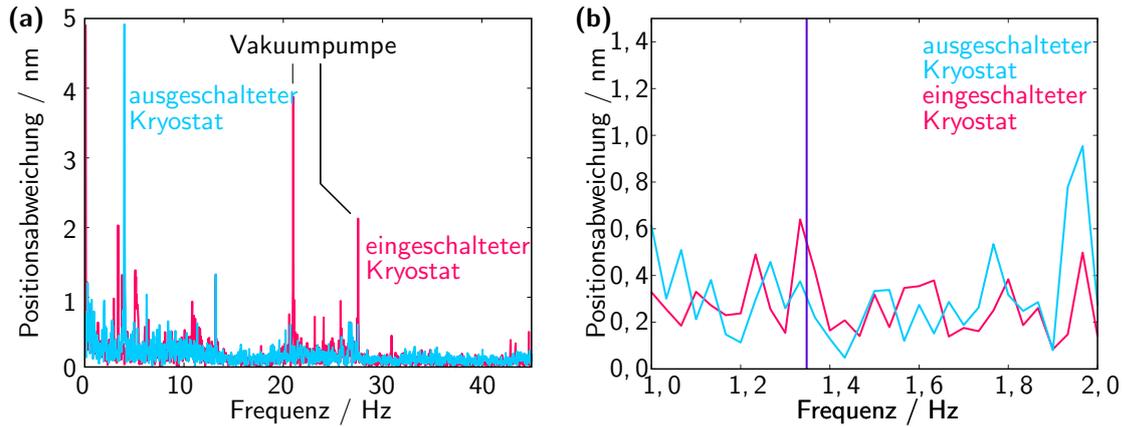


Abbildung 2.15: Spektren der gezeigten Rauschmessungen aus Abb. 2.14. **(a)** Spektren zwischen 0 Hz und 40 Hz. **(b)** Ausschnitt zwischen 1 Hz und 2 Hz. Die senkrechte lila Linie ist die Frequenz des Pulsrohrs bei 1,348 Hz.

erkennen, dass es eine Schwingung bei etwa 18 Hz und eine weitere bei 24 Hz gibt, die von der Vakuumpumpe stammen.

2.5 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde der verwendete Kryostat beschrieben und charakterisiert. Dabei wurden zu Beginn die Vorteile eines geschlossenen Kreislaufkryostaten im Gegensatz zu anderen Systemen, wie den Badkryostaten dargestellt. Im Speziellen wurde auf die Funktionsweise eines Pulsröhrenkühlers beschrieben und die Eigenschaften eines GM-Typ Kryostaten mit den eines einfachen Pulsröhrenkühlers verglichen. Ebenfalls wurde der Helium-Kühlkreis der Probe beschrieben, bei dem Helium am kalten Wärmetauscher des Pulsröhrenkühlers kondensiert und zur Probe strömt, dort expandiert wird und dabei die Probe kühlt. Im dritten Teil des Kapitels ging es um die thermischen Eigenschaften des Kryostaten. Dabei wurde die erreichbare Proben temperatur erläutert und auf Punkte mit einem erhöhten Wärmeeintrag auf die Probe eingegangen. Dabei wurde einerseits das Mikroskopobjektiv und der Montagezylinder, der den Probenhalter mit den Fahrtischen verbindet eingegangen. Am Ende des Kapitels wurde noch der Übertrag von Vibrationen des Pulsrohrs auf die Probe untersucht. Dabei wurde festgestellt, dass diese Vibrationen unterhalb von ± 10 nm liegen.

2 Aufbau und Funktionsweise des Kryostaten

3 Halbleiter-Quantenpunkte

Die Gruppe der Festkörper lässt sich anhand ihrer elektronischen Eigenschaften in Leiter, Isolatoren und Halbleiter einteilen. Halbleiter bestehen entweder aus nur ei-

I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII
H							He
Li	Be	B	C	N	O	F	Ne
Na	Mg	Al	Si	P	S	Cl	Ar
K	Ca	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr
Rb	Sr	In	Sn	Sb	Te	I	Xe
Cs	Ba	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn
Fr	Ra						

Abbildung 3.1: Hauptgruppenelemente, die Halbleitereigenschaften besitzen. Lila geschrieben sind die Elemente, die mit Halbleitereigenschaften kristallisieren, eingerahmt sind die Verbindungshalbleiter: Gelb sind die IV-IV-Verbindungshalbleiter, rot III-V-Verbindungshalbleiter, grün III-VI-Verbindungshalbleiter, blau die IV-VI-Verbindungshalbleiter. Daten nach [31].

nem Element wie z.B. Silizium (Si) oder Germanium (Ge) oder es handelt sich dabei um Verbindungshalbleiter. Diese bestehen aus mindestens zwei verschiedenen Elementen wie z.B. Galliumarsenid (GaAs), Aluminiumarsenid (AlAs) oder Aluminiumgalliumarsenid (AlGaAs) [32]. In Abb. 3.1 sind die wichtigsten Hauptgruppenelemente für die Halbleiterphysik gekennzeichnet.

3.1 Bandstrukturen und räumliche Ausdehnung

Im Folgenden werden nur kristalline Festkörper betrachtet. Aufgrund der periodischen Anordnung der Atome im Kristallgitter bilden sich aus den Orbitalen Energiebänder. Dabei wird das höchste besetzte Energieband, als Valenzband und das darauffolgende, unbesetzte oder teilweise besetzte Band, als Leitungsband, bezeichnet. Bei den Leitern liegt die Fermi-Energie innerhalb des Leitungsbands. Das führt

3 Halbleiter-Quantenpunkte

zu einer guten Leitfähigkeit [33]. Bei den Halbleitern und Isolatoren liegt die Fermi-Energie zwischen dem Valenzband und dem Leitungsband. Da sich in diesem Fall im Bereich der Fermi-Energie keine Zustände befinden, resultiert daraus eine schlechte Leitfähigkeit. Ist die Bandlücke größer als 3 eV handelt es sich um einen Isolator, ist sie kleiner handelt es sich um einen Halbleiter. Eine Ausnahme ist Diamant mit einer Bandlücke von 6 eV [31]. Die geringste Differenz zwischen dem Leitungsband und dem Valenzband wird als Bandlücke bezeichnet. Ist die Bandlücke zwischen einem Minimum und einem Maximum an der selben Stelle im reziproken Raum, so spricht man von einem direkten, andernfalls von einem indirekten Halbleiter [33]. Die in den hier beschriebenen Experimenten verwendeten Quantenpunkte sind aus GaAs, ein direkter Halbleiter mit einer Bandlücke von 1,4 eV [32]. Die Bandstruktur von GaAs ist in Abb. 3.2 zu sehen.

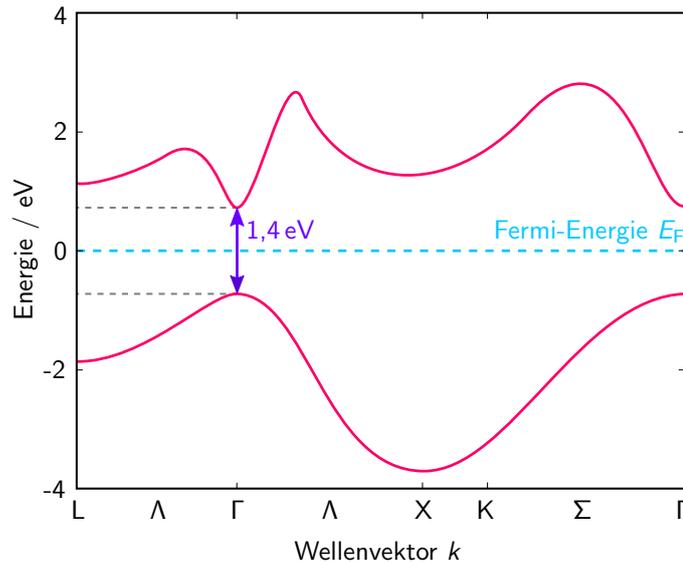


Abbildung 3.2: Schematischer Verlauf des Valenzbands und des Leitungsbands in einem dreidimensionalen GaAs-Halbleiterkristall. Lila hervorgehoben ist die Bandlücke. Blau gestrichelt ist die Fermi-Energie E_F . Nach [31].

Werden die möglichen Zustände eines Elektrons der Masse m in einem Halbleiter untersucht, so muss die Schrödingergleichung im dreidimensionalen Körper gelöst werden. Dafür wird ein Teilchen am Ort $\vec{r} = (r_x, r_y, r_z)$ im dreidimensionalen Kastenpotential V der Länge L betrachtet [34]. Dieses lautet:

$$V(\vec{r}) = \begin{cases} 0 & \text{für } 0 < r_x, r_y, r_z < L \\ \infty & \text{sonst} \end{cases} \quad (3.1)$$

Die zeitunabhängige Schrödingergleichung in drei Dimensionen ist:

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta \psi(\vec{r}) + V(\vec{r}) \cdot \psi(\vec{r}) = E \cdot \psi(\vec{r}) \quad (3.2)$$

Dabei ist \hbar das reduzierte plancksche Wirkungsquantum. Die stationäre Lösung dieser Gleichung berechnet sich zu:

$$\psi(\vec{r}) = \sqrt{\frac{8}{L^3}} \cdot \sin\left(\frac{\pi n_x}{L} \cdot r_x\right) \cdot \sin\left(\frac{\pi n_y}{L} \cdot r_y\right) \cdot \sin\left(\frac{\pi n_z}{L} \cdot r_z\right) \quad (3.3)$$

mit $n_x, n_y, n_z = 1, 2, 3, \dots$. Die Eigenzustände $\vec{k} = (k_x, k_y, k_z)$ dieser Lösung lauten:

$$k_x = \frac{\pi n_x}{L} \quad k_y = \frac{\pi n_y}{L} \quad k_z = \frac{\pi n_z}{L} \quad (3.4)$$

Die dazugehörigen Energieeigenwerte lauten:

$$E = \frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2m} \quad (3.5)$$

Als nächstes wird die Zahl der Zustände bestimmt, die bis zu einer Energie E existieren:

$$Z(\vec{k}_{\max}) = \frac{1}{(\pi/L)^3} \int_0^{\vec{k}_{\max}} d^3k = \frac{L^3}{6\pi^2} k^3 \quad (3.6)$$

$$\stackrel{(3.5)}{\implies} Z(E) = \frac{L^3}{6\pi^2} \left(\frac{2mE}{\hbar^2}\right)^{\frac{3}{2}} \quad (3.7)$$

Die Zustandsdichte berechnet sich als Ableitung der Anzahl der Zustände bis zu einer Grenzenergie.

$$D(E) = \frac{dZ}{dE} = \frac{L^3}{4\pi^2} \left(\frac{2m}{\hbar^2}\right)^{\frac{3}{2}} \sqrt{E} \propto \sqrt{E} \quad (3.8)$$

Wird nun die Ausdehnung eines Halbleitermaterials räumlich stärker eingeschränkt, in dem z.B. in ein Material mit einer großen Bandlücke eines mit einer geringeren Bandlücke eingebettet (siehe Abb. 3.3) wird, so ändert sich die Lage der Zustände und dementsprechend auch die Zustandsdichte [31]. Wird die Zustandsdichte für einen Potentialtopf mit weniger Dimensionen betrachtet, so ergibt sich [35]:

$$\text{2D-Quantenfilm: } D_{2D}(E) \propto \Theta(E - E_n) \quad (3.9)$$

$$\text{1D-Quantendraht: } D_{1D}(E) \propto \frac{1}{\sqrt{E - E_n}} \quad (3.10)$$

$$\text{0D-Quantenpunkt: } D_{0D}(E) \propto \delta(E - E_n) \quad (3.11)$$

Dabei ist Θ die Heavyside-Stufenfunktion und δ Dirac-Funktion. So ist zu erkennen, dass bei einem zweidimensionalen Quantenfilm die Zustandsdichte nicht von der Energie abhängt, bei einem eindimensionalen Quantendraht die Zustandsdichte mit $1/\sqrt{E}$. In einem nulldimensionalen Quantenpunkt ist die Zustandsdichte ein Deltapeak. Die verschiedenen Zustandsdichten sind in Abb. 3.4 veranschaulicht [35].

3 Halbleiter-Quantenpunkte

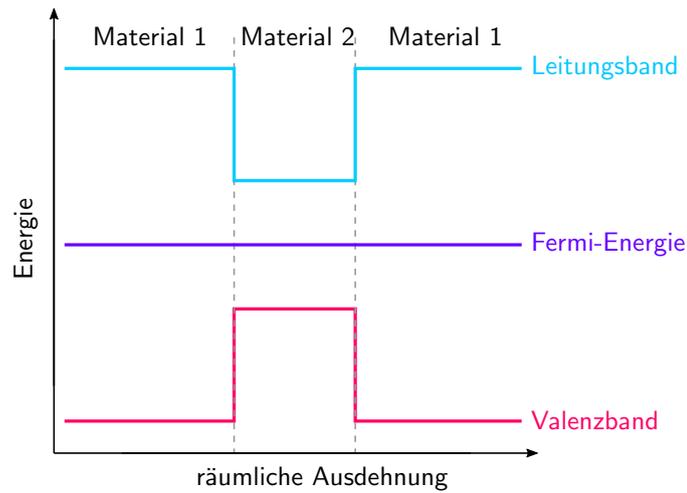


Abbildung 3.3: Schichtstruktur aus zwei verschiedenen Halbleitermaterialien mit unterschiedlicher Bandlücke. Diese besteht aus einem Material mit einer großen Bandlücke, in die eine dünne Schicht eines anderen Materials mit geringerer Bandlücke eingebettet ist.

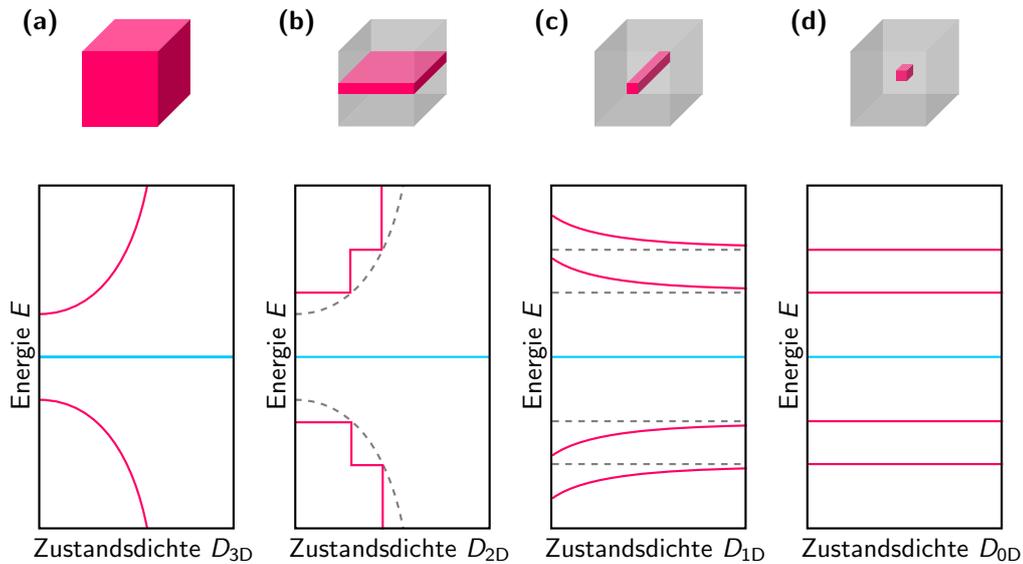


Abbildung 3.4: Verlauf der Zustandsdichte in unterschiedlich stark eingeschränkten Quantensystemen. Grau ist das Fermi-Niveau. **(a)** Zustandsdichte eines dreidimensionalen Körpers **(b)** Zustandsdichte eines zweidimensionalen Quantenfilms. Gestrichelt ist hier die Zustandsdichte des dreidimensionalen Systems. **(c)** Zustandsdichte eines eindimensionalen Quantendrahts. Gestrichelt ist die 0D-Zustandsdichte. **(d)** Zustandsdichte eines nulldimensionalen Quantenpunkts.

3.2 Herstellung von Halbleiter-Quantenpunkten

Es gibt verschiedene Verfahren zur Herstellung von Halbleiterquantenpunkten. Im Folgenden wird das Wachstum von selbstorganisierten Quantenpunkten durch Molekularstrahlepitaxie (engl. molecular beam epitaxy, kurz MBE) näher betrachtet.

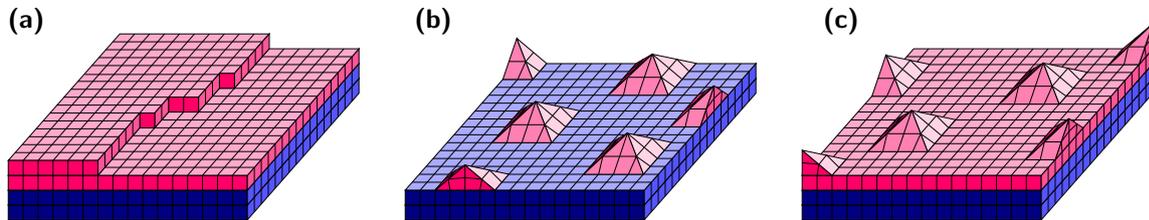


Abbildung 3.5: Die unterschiedlichen Wachstumsverfahren bei der Molekularstrahlepitaxie. **(a)** Van-der-Merwe-Wachstum **(b)** Vollmer-Weber-Wachstum **(c)** Stranski-Krastanow-Wachstum.

Werden zwei unterschiedliche Halbleitermaterialien in Schichten übereinander gewachsen, so existieren drei verschiedene Wachstumsarten. Dazu muss die Gitterkonstante der beiden Schichten, sowie Oberflächeneffekte zwischen den dem Substrat, der aufwachsenden Schicht sowie dem Vakuum betrachtet werden [36, 31].

Beim Van-der-Merwe-Wachstum legt sich die neu aufgewachsene Schicht flach auf die darunter liegende Schicht. Damit dies möglich ist, muss die Verspannung zwischen den Schichten gering sein. Deshalb darf die Abweichung der Gitterkonstante höchstens etwa 1 % betragen. Ebenfalls muss die aufwachsende Schicht in der Lage sein, die darunter liegende Schicht zu benetzen (siehe Abb. 3.5a) [36, 31].

Beim Vollmer-Weber-Wachstum bilden sich auf dem Substrat kleine Inseln. Diese liegen locker verteilt auf dem Probensubstrat. Dies passiert dadurch, dass die aufwachsende Schicht aufgrund von Oberflächeneffekten das Substrat nicht benetzen kann und sich in kleinen Tröpfchen absetzt. (siehe Abb. 3.5b) [36].

Das Stranski-Krastanow-Wachstum ist eine Mischung zwischen den beiden vorher genannten Wachstumsarten. Zuerst bildet sich eine geschlossene Schicht auf dem Substrat und bei einer bestimmten Dicke bilden sich dann Hügel aus. Dies tritt zum Beispiel auf, wenn die aufwachsende zuerst die Oberfläche der unteren Schicht benetzt sich aber mit steigender Anzahl an aufgewachsenen Monolagen eine immer stärkere Verspannung in der neuen Schicht entsteht, z.B. durch eine Abweichung in der Gitterkonstante. Diese Verspannung löst sich durch die Bildung von kleinen Erhebungen (siehe Abb. 3.5c). Die geschlossene Schicht wird als Benetzungsschicht (engl. wetting layer) bezeichnet [36, 37].

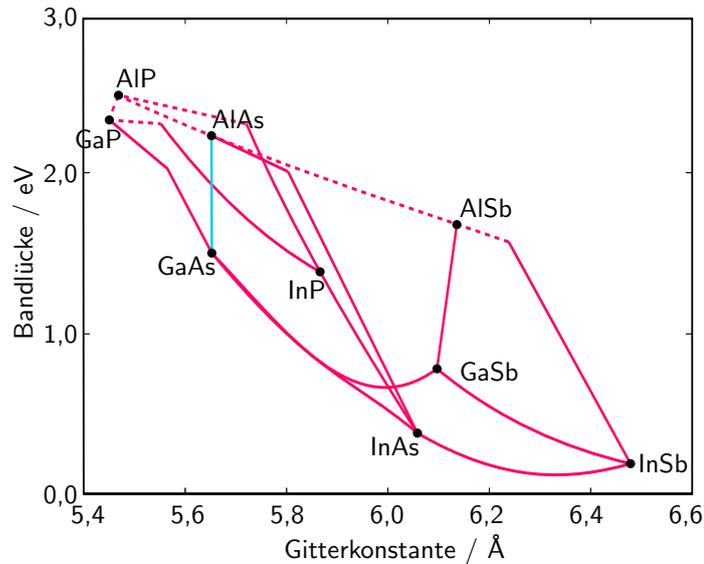


Abbildung 3.6: Zusammenhang zwischen Gitterkonstante und Bandlücke. Die Punkte stehen für die angegebenen Materialien, auf den Linien befinden sich die entsprechenden Mischungen. Durchgezogene Linien stehen für direkte Halbleiter, unterbrochene für indirekte. Das System aus AlAs und GaAs ist blau hervorgehoben. Die Daten stammen aus [31].

Ein Beispiel für die Anwendung des Stranski-Krastanow-Wachstums ist die Herstellung von InAs-Quantenpunkten in einer GaAs-Matrix. Dafür wird auf ein GaAs-Substrat (Gitterkonstante 5,64 Å) eine dünne Schicht InAs (Gitterkonstante 6,06 Å) aufgewachsen [31].

In Abb. 3.6 ist die Bandlücke und die Gitterkonstante für verschiedene Halbleiterverbindungen aufgetragen. Dabei sind durchgezogene Linien direkte Halbleiter und unterbrochene Linien indirekte Halbleiter. Die Linien zwischen den verschiedenen Halbleitern stellen eine Mischung dar, so z.B. die Linie zwischen GaAs und AlAs die verschiedenen Mischungsverhältnisse Aluminium und Gallium in von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ [31].

3.2.1 Herstellung von AlGaAs/GaAs-Quantenpunkten

Wie zuvor beschrieben, ist für das selbstorganisierte Wachstum von Quantenpunkten eine nennenswerte Abweichung in der Gitterkonstante, bzw. der Oberflächenenergie notwendig. In einer AlGaAs-Matrix können somit keine GaAs-Quantenpunkte wachsen, da diese Materialien sich sehr ähnlich sind (siehe Abb. 3.6) [16]. Deshalb muss für die Herstellung solcher Quantenpunkte ein anderes Verfahren, wie das Tröpfchen-Ätz-Verfahren, verwendet werden.

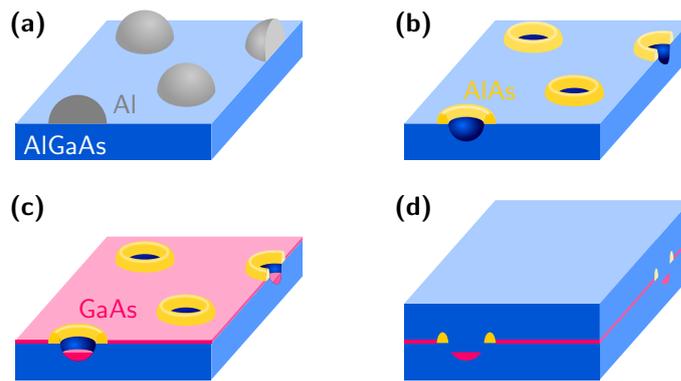


Abbildung 3.7: Wachstum eines GaAs-Quantenpunktes in einer GaAlAs-Matrix. Dabei ist blau die AlGaAs-Matrix, grau die Aluminium-Tropfen, gelb AlAs und rot GaAs. **(a)** Aluminiumtropfen werden auf dem Substrat abgeschieden. **(b)** Durch Backen lagern sich die Aluminiumatome in die Matrix ein und bilden Nanolöcher, an deren Rändern scheidet sich AlAs ab. **(c)** Die Schicht wird mit einer dünnen GaAs-Schicht überwachsen. **(d)** Die Struktur wird mit einer AlGaAs-Schicht überwachsen.

Dazu werden auf einen monokristallinen GaAs-Wafer erst eine Pufferschicht und darauffolgend eine $\text{Al}_{0,40}\text{Ga}_{0,60}\text{As}$ -Schicht aufgewachsen. Darauf werden Aluminiumtröpfchen mittels Vollmer-Weber-Wachstum abgeschieden (Abb. 3.7a). Das Substrat mit den Tröpfchen wird danach gebacken und das Aluminium lagert sich dabei in die Matrix des Substrats ein. Dabei diffundiert das Arsen aus der $\text{Al}_{0,40}\text{Ga}_{0,60}\text{As}$ -Schicht und es entstehen Nanolöcher (Abb. 3.7b), die von einem Ring aus AlAs umgeben sind. Danach wird eine 2 nm dünne Schicht GaAs abgeschieden (Abb. 3.7c). Diese füllt die Löcher teilweise auf und in dem Gebiet zwischen den Quantenpunkten bildet sich eine Benetzungsschicht (engl. wetting layer). Danach werden diese Löcher mit dem Matrixmaterial $\text{Al}_{0,40}\text{Ga}_{0,60}\text{As}$ überwachsen (Abb. 3.7d).

3.2.2 Die verwendeten GaAs-Quantenpunkte

Die verwendeten Proben wurden in der Arbeitsgruppe von A. Rastelli in Linz hergestellt. Es wurden verschiedene Proben untersucht. Dabei wurde darauf geachtet, dass die Dichte der Quantenpunkte auf der Probe gering ist, um einzelne Quantenpunkte untersuchen zu können. Bei der ersten Probe (Abb. 3.8a) befindet sich unter der AlGaAs-Schicht ein Bragg-Spiegel, der aus einem Stapel aus neun Schichten besteht. Jede dieser Schichten besteht aus 58,768 nm $\text{Al}_{0,20}\text{Ga}_{0,80}\text{As}$ und darunter befindet sich jeweils 67,646 nm $\text{Al}_{0,95}\text{Ga}_{0,05}\text{As}$. Über der Quantenpunktschicht befindet sich ebenfalls ein Bragg-Spiegel, der aus nur zwei Bragg-Schichten besteht.

Dieser Bragg-Spiegel dient dazu, die Quantenpunkte in einen Resonator einzubetten. Ein Quantenpunkt emittiert sein Licht gleichmäßig in alle Raumrichtungen. Der

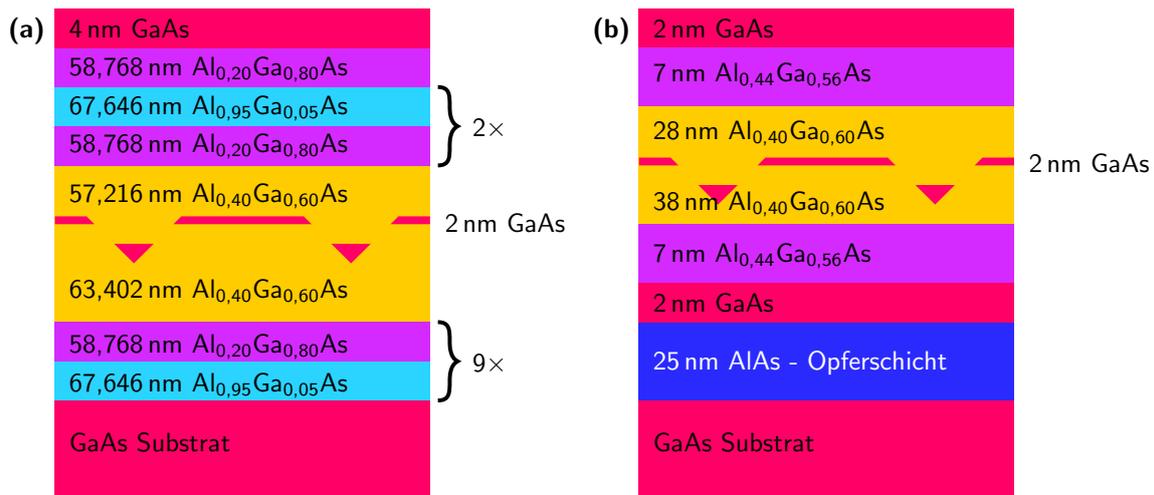


Abbildung 3.8: Schichtstrukturen für zwei der verwendeten Proben. **(a)** ist eine Probe, die oben und unten einen Bragg-Spiegel besitzt und so einen Resonator formt. Bei uns hat dies den Vorteil, dass mehr Licht auf der Oberseite das Halbleitermaterial verlässt. **(b)** stellt eine einfache Schichtstruktur mit Quantenpunkten dar. Diese enthält zusätzlich noch eine Opferschicht, an der die Schichtstruktur vom Substrat abgetrennt werden kann.

Brechungsindex von GaAs liegt bei etwa 3,3 [38]. Daraus ergibt sich ein Totalreflexionswinkel von unter 20° . Durch einen Spiegel auf der Rückseite wird das Licht, welches vom Quantenpunkt in Richtung des Substrats emittiert wird, reflektiert und zurück in Richtung der Oberfläche zurück geworfen. Somit ist es möglich, deutlich mehr Licht des Quantenpunkts an der Oberfläche zu erhalten.

Für Untersuchungen an plasmonischen Strukturen werden die Quantenpunkte als vom Substrat abgelöste Membranen benötigt. Um die zu untersuchende Membranen herzustellen, wird unter die eingebetteten Quantenpunkte eine Opferschicht (engl. sacrificial layer) eingebettet (Abb. 3.8b). Danach wird der Wafer auf die Probengröße gebrochen und die Opferschicht in einem chemischen Nassätzverfahren aufgelöst. Diese Quantenpunkte werden dann herausgefischt und auf dem gewünschten Substrat, z.B. Silizium, abgelegt.

3.3 Quantenmechanische Beschreibung von Quantenpunkten als Zwei-Niveau-System

Die quantenmechanische Beschreibung eines Zwei-Niveau-Systems kann in Büchern zur Quantenoptik z.B. in [39, 40] gefunden werden. Für die quantenmechanische Beschreibung eines Quantenpunkts in einem optischen Strahlungsfeld wird zuerst

3.3 Quantenmechanische Beschreibung von Quantenpunkten als Zwei-Niveau-System

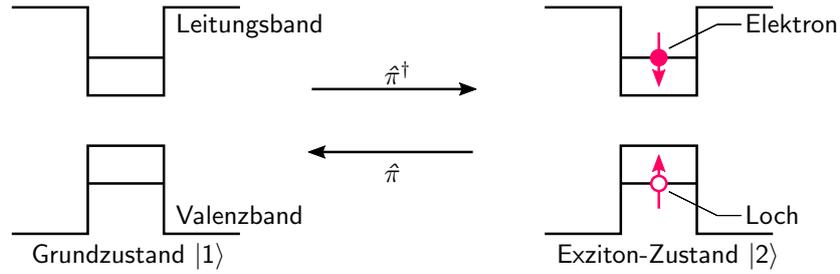


Abbildung 3.9: Anregung und Emission eines einzelnen Zwei-Niveau-Systems.

der Hamilton-Operator des Systems \hat{H} aufgestellt. Dieser lautet:

$$\hat{H} = \hat{H}_A + \hat{H}_{\text{WW}} \quad (3.12)$$

Für den Hamiltonoperator des Atoms gilt:

$$\hat{H}_A |i\rangle = E_i |i\rangle \quad \text{mit } E_i = \hbar\omega_i \quad (3.13)$$

$$\langle i | \hat{H}_A |j\rangle = \hbar\omega_i \delta_{ij} \quad \text{Die Zustände } |i\rangle \text{ sind orthonormal} \quad (3.14)$$

Hierbei sind $i, j = 1, 2, 3, \dots$ und \hbar das reduzierte, plancksche Wirkungsquantum. Das bedeutet, dass das Atom einen Satz orthonormaler Eigenzustände $|i\rangle$ besitzt. Zu jedem dieser Eigenzustände $|i\rangle$ gehört ein Energieeigenwert E_i . Damit lässt sich der Hamiltonoperator schreiben als:

$$\hat{H}_A = \sum_i E_i |i\rangle \langle i| \quad (3.15)$$

In einem Zwei-Niveau-System mit den beiden Zuständen $|1\rangle$ und $|2\rangle$ lässt sich der obige Hamiltonoperator vereinfacht schreiben als:

$$\hat{H}_A = \hbar\omega_0 |2\rangle \langle 2| = \hbar\omega_0 \hat{\pi}^\dagger \hat{\pi} \quad (3.16)$$

Mit $\hbar\omega_0 = E_2 - E_1$ und mit dem Null-Niveau der Energie bei E_1 . Dabei sind $\hat{\pi}$ und $\hat{\pi}^\dagger$ die Übergangsoperatoren. Diese sind definiert als:

$$\hat{\pi}^\dagger = |2\rangle \langle 1| \quad \hat{\pi} = |1\rangle \langle 2| \quad (3.17)$$

Dabei führt der Operator $\hat{\pi}^\dagger$ das System vom Grundzustand in den angeregten Zustand und der Operator $\hat{\pi}$ führt die entgegengesetzte Operation aus (Abb. 3.9). Aus der Quantenmechanik ist bekannt, dass für einen zeitunabhängigen Hamiltonoperator die Zeitentwicklung der Zustände sich schreiben lässt als

$$\Psi_n(\vec{r}, t) = e^{-iE_n t/\hbar} \psi_n(\vec{r}), \quad (3.18)$$

der die zeitabhängige Schrödingergleichung

$$\hat{H}\Psi = i\hbar \frac{d\Psi}{dt} \quad (3.19)$$

3 Halbleiter-Quantenpunkte

löst. Für die Wechselwirkung zwischen Feld und Atom wird nur die Dipol-Wechselwirkung betrachtet. Für das elektrische Feld \vec{E} werden ebene Wellen mit der Amplitude \vec{E}_0 und der Frequenz ω angesetzt. Damit lässt es sich schreiben als $\vec{E} = \vec{E}_0 \cos(\omega t)$ und der Hamiltonoperator der Wechselwirkung \hat{H}_{WW} :

$$\hat{H}_{\text{WW}} = e\vec{D} \cdot \vec{E}_0 \cos(\omega t) \quad (3.20)$$

Dabei ist \vec{D} das elektrische Dipolmoment des untersuchten Zwei-Niveau-Systems. Wird nun das gesamte System betrachtet und die Frequenz der Lichtwelle ω in der Nähe des Übergangs ω_0 gewählt, so lässt sich die Lösung des Systems als Linearkombination der beiden Zustände beschreiben:

$$\Psi(\vec{r}, t) = C_1(t)\Psi_1(\vec{r}, t) + C_2(t)\Psi_2(\vec{r}, t), \quad (3.21)$$

wobei die gemischten Zustände zu jedem Zeitpunkt normalisiert sind. Somit gilt:

$$\int |\Psi(\vec{r}, t)|^2 dV = |C_1(t)|^2 + |C_2(t)|^2 = 1 \quad (3.22)$$

Die zeitabhängige Schrödinger-Gleichung in Gl. 3.19 wird auf den in Gl. 3.21 definierten Zustand mit dem Hamiltonoperator aus Gl. 3.12 angewendet. Die Polarisation des elektrischen Feldes wird in x-Richtung definiert. Dann berechnet sich das Skalarprodukt zwischen dem elektrischen Feld und dem Dipolmoment $\vec{E}_0 \cdot \vec{D} = E_0 D_{12}^{(x)}$ mit E_0 der Amplitude des elektrischen Feldes und $D_{12}^{(x)}$ dem Dipolmoment in x-Richtung. Damit lässt sich das folgende Gleichungssystem für die Parameter C_1 und C_2 bestimmen:

$$\Omega_{\text{R}} \cos(\omega t) e^{-i\omega_0 t} C_2 = i \frac{dC_1}{dt} \quad (3.23)$$

$$\Omega_{\text{R}}^* \cos(\omega t) e^{i\omega_0 t} C_1 = i \frac{dC_2}{dt} \quad (3.24)$$

mit

$$\Omega_{\text{R}} = \frac{eE_0 D_{12}^{(x)}}{\hbar} \quad (3.25)$$

Bisher wurde außer acht gelassen, dass ein angeregter Zustand durch spontane Emission in den Grundzustand zurück kehrt. Deshalb muss in Gl. 3.24 ein Dämpfungsterm eingeführt werden. Damit lautet die Gleichung:

$$\Omega_{\text{R}}^* \cos(\omega t) e^{i\omega_0 t} C_1 - i\gamma C_2 = i \frac{dC_2}{dt} \quad (3.26)$$

Ebenfalls lässt sich die Dichtematrix $\rho = |\Psi\rangle\langle\Psi|$ bestimmen. Für das Zustandsgemisch aus Gl. 3.21 ergibt sich für die einzelnen Elemente der Dichtematrix:

$$\begin{aligned} \rho_{11} &= |C_1|^2 & \rho_{12} &= C_1 C_2^* \\ \rho_{21} &= C_1^* C_2 & \rho_{22} &= |C_2|^2 \end{aligned} \quad (3.27)$$

3.3 Quantenmechanische Beschreibung von Quantenpunkten als Zwei-Niveau-System

Damit und den Gln. 3.23 und 3.26 lassen sich die optischen Blochgleichungen herleiten, wobei die Terme mit der Frequenz $\omega_0 + \omega$ vernachlässigt werden (Drehwellen-Näherung).

$$\frac{d\rho_{22}}{dt} = -\frac{1}{2}i\Omega_R^* e^{i(\omega_0-\omega)t} \rho_{12} + \frac{1}{2}i\Omega_R e^{-i(\omega_0-\omega)t} \rho_{21} - 2\gamma\rho_{22} \quad (3.28)$$

$$\frac{d\rho_{12}}{dt} = \frac{1}{2}i\Omega_R e^{-i(\omega_0-\omega)t} (\rho_{11} - \rho_{22}) - \gamma\rho_{12} \quad (3.29)$$

Werden diese Gleichungen für den resonanten Fall ($\omega = \omega_0$) gelöst, so ergibt sich für die Besetzungswahrscheinlichkeit des oberen Niveaus ρ_{22} mit den Startbedingungen $\rho_{22} = \rho_{12} = 0$

$$\rho_{22} = \frac{1/2|\Omega_R|^2}{2\gamma^2 + |\Omega_R|^2} \left(1 - \left(\cos(\lambda t) + \frac{3\gamma}{2\lambda} \sin(\lambda t) \right) \right) e^{-\frac{3}{2}\gamma t} \quad (3.30)$$

mit:

$$\lambda = \sqrt{|\Omega_R|^2 - 1/4\gamma^2} \quad (3.31)$$

In Abb. 3.10 ist die Besetzungswahrscheinlichkeit des oberen Niveaus für unter-

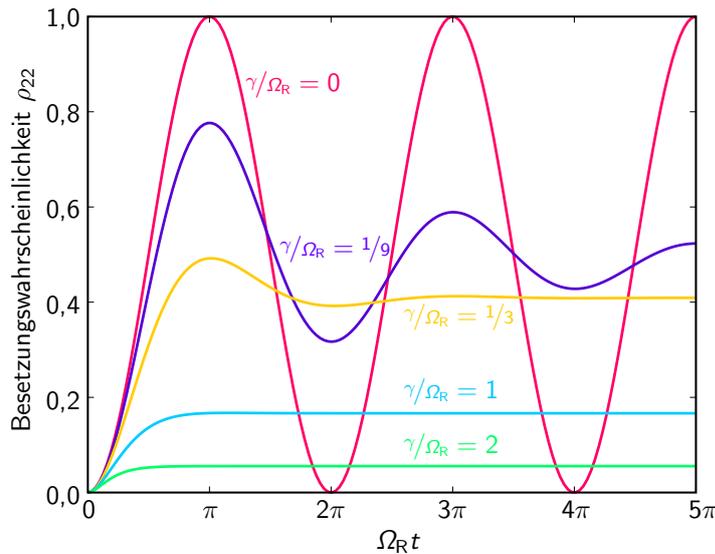


Abbildung 3.10: Besetzungswahrscheinlichkeit ρ_{22} des angeregten Zustands bei unterschiedlicher Dämpfung γ in Einheiten von Ω_R .

schiedliche Dämpfungswerte dargestellt. Dort ist zu erkennen, dass im Fall ohne Dämpfung ($\gamma = 0$) die Besetzung zwischen dem Zustand $|1\rangle$ und $|2\rangle$ schwankt, da die Besetzungswahrscheinlichkeit periodisch zwischen 0 und 1 schwankt. Mit steigender Dämpfung sinkt die Besetzungswahrscheinlichkeit des oberen Niveaus.

3 Halbleiter-Quantenpunkte

Die Zustände eines Zwei-Niveau-Systems lassen sich auf der Bloch-Kugel beschreiben. Die einzelnen Komponenten des Bloch-Vektors berechnen sich aus den Elementen der Dichte-Matrix ρ zu [41]:

$$u = \rho_{12} + \rho_{21} = 2 \operatorname{Re}(\rho_{12}) \quad (3.32a)$$

$$v = i(\rho_{12} - \rho_{21}) = 2 \operatorname{Im}(\rho_{21}) \quad (3.32b)$$

$$w = \rho_{11} - \rho_{22} \quad (3.32c)$$

Eine Blochkugel ist in Abb. 3.11a dargestellt.

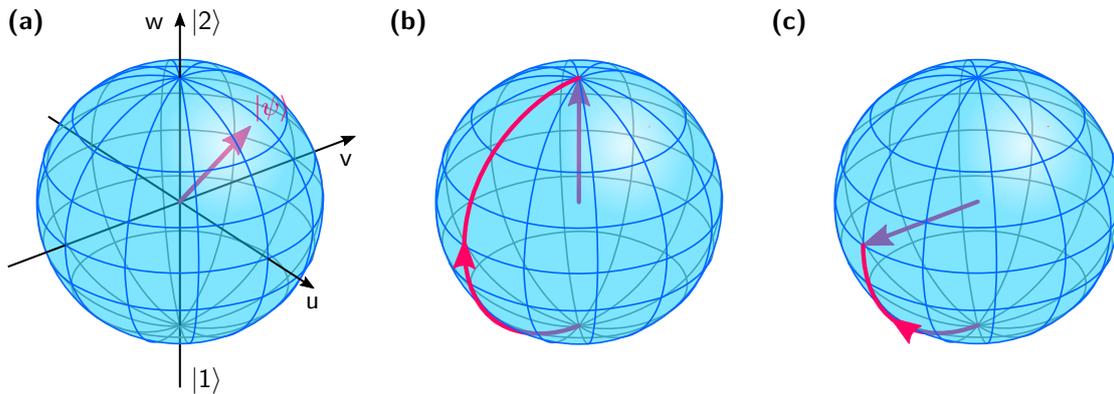


Abbildung 3.11: Darstellung der Rabi-Oszillationen auf der Bloch-Kugel. **(a)** Anordnung der Vektoren auf der Bloch-Kugel. **(b)** Einstrahlung eines π -Pulses. Dabei geht das System vom Grundzustand $|1\rangle$ in den angeregten Zustand $|2\rangle$ über. **(c)** Einstrahlung eines $\pi/2$ -Pulses. Das System geht vom Grundzustand $|1\rangle$ in einen gemischten Zustand $\frac{1}{2}(|1\rangle + |2\rangle)$ über. Dabei befindet sich der Zustand in der u - v -Ebene der Bloch-Kugel.

Wird auf einen Quantenpunkt nun ein Laserpuls mit der Länge $\Omega_R t = \pi$ eingestrahlt, so geht der Quantenpunkt, welcher zu Beginn im Grundzustand war in den angeregten Zustand über. Dies ist ein so genannter π -Puls (Abb. 3.11b). Wird hingegen ein Puls der Länge $\Omega_R t = \pi/2$ eingestrahlt, so entsteht ein Gemisch aus dem Grundzustand und dem angeregten Zustand $|\psi\rangle = \frac{1}{2}(|1\rangle + |2\rangle)$. Dieser Pulstyp wird als $\pi/2$ -Puls bezeichnet und ist in Abb. 3.11c abgebildet. Wird jetzt auf einen Quantenpunkt im Zustand $|2\rangle$ ein π -Puls abgegeben, so geht der Quantenpunkt wieder in den Grundzustand. Bei einem 2π -Puls geht das System aus dem Grundzustand in den angeregten Zustand über und danach wieder zurück in den Grundzustand.

3.4 Optische Eigenschaften von Halbleiter-Quantenpunkten

Wie in Abschnitt 3.1 gezeigt, haben Quantenpunkte, die ein 0D-System sind, diskrete Zustände. Werden optische Übergänge in einem Quantenpunkt untersucht, so können diese mit Exzitonen als Quasiteilchen beschrieben werden. Diese bestehen aus einem negativ geladenen Elektron im Leitungsband und einem positiv geladenen Defektelektron, auch Loch genannt, im Valenzband (siehe Abb. 3.12a). Gelangt ein weiteres Elektron oder Defektelektron in den Zustand, so bildet sich ein Trion. Das Trion ist geladen. Die Ladung hängt davon ab, ob es sich dabei um ein negativ geladenes Elektron oder ein positiv geladenes Defektelektron handelt [17, 8, 42].

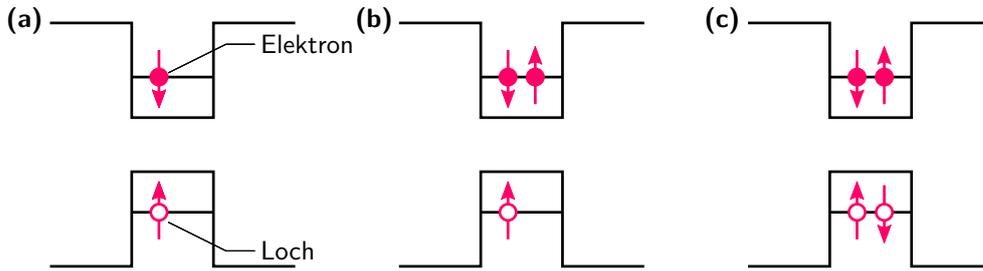


Abbildung 3.12: Unterschiedliche Exziton-Arten. **(a)** Exziton X. **(b)** Trion X^- . **(c)** Biexziton $2X$. Nach [17, 8, 42].

Der Spin des Elektrons oder Lochs unterscheidet sich von dem anderen Elektron oder Loch aufgrund des Pauli-Prinzips (siehe Abb. 3.12b). Sind zwei Löcher und zwei Elektronen in diesem Zustand, spricht man von einem Biexziton (siehe Abb. 3.12c).

Der Bohrradius des Exzitons eines Quantenpunkts lässt schreiben als

$$a = \frac{4\pi\epsilon\hbar^2}{\mu^*e^2} \quad \text{mit} \quad \frac{1}{\mu^*} = \frac{1}{m_e^*} + \frac{1}{m_h^*} \quad \Leftrightarrow \quad \mu^* = \frac{m_e^* \cdot m_h^*}{m_e^* + m_h^*}, \quad (3.33)$$

Dieser beschreibt die Delokalisierung des Exzitons und entspricht in etwa der Größe der räumlichen Abmessungen des Quantenpunkts [43, 44]. Dabei ist $\epsilon = \epsilon_0\epsilon_r$ die Permittivität, m_e^* die effektive Elektronenmasse und m_h^* die effektive Masse des Lochs. Daher werden Quantenpunkte als künstliche Atome betrachtet.

Der Aufbau für die Photolumineszenz (siehe Abb. 3.13) besteht aus einem diodengepumpten Festkörperlaser (Thorlabs CPS532, Mittelwellenlänge 532 nm, Ausgangsleistung 4,5 mW), von dem 10 % der Leistung in einem Strahlteiler abgespalten und in ein konfokales Mikroskop geführt werden. Dort wird die Quantenpunktprobe abgerastert und das Lumineszenzlicht wieder vom Objektiv eingesammelt. Anschließend wird das an der Probe reflektierte Licht in zwei Bandpassfiltern geblockt und die

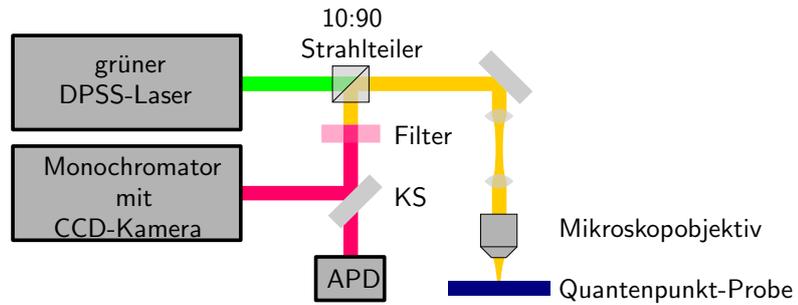


Abbildung 3.13: Aufbau für Photolumineszenz-Messungen. Die Quantenpunktprobe wird mit einem grünen Laserstrahl beschienen. Dabei emittieren die Quantenpunkte Licht, das vom Mikroskopobjektiv wieder eingesammelt wird und wahlweise mit einer APD oder mit einem Monochromator mit angeschlossener CCD-Kamera detektiert wird. KS bezeichnet einen Klappspiegel um den Strahlengang anpassen zu können.

Intensität des Lumineszenzlichts mit einer Lawinenfotodiode (engl. avalanche photodiode, kurz APD) gemessen. Solch eine Messung ist in Abb. 3.14 zu sehen. Dafür wurde die in Abb. 3.8a gezeigte Probe verwendet. Darin ist zu erkennen, dass die

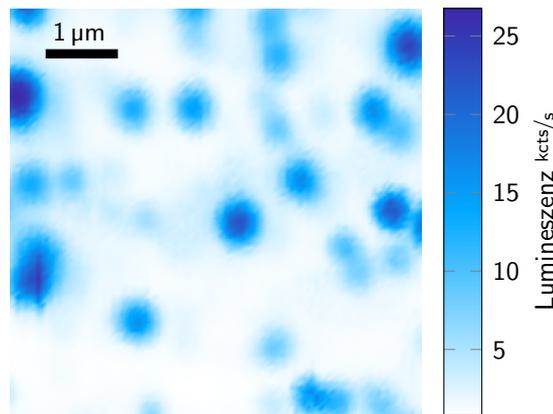


Abbildung 3.14: Darstellung einer abgerasterten Quantenpunktprobe. Die blauen Punkte sind einzelne Quantenpunkte.

Dichte der Quantenpunkte so gering ist, dass mit dem Mikroskopobjektiv einzelne Quantenpunkte lokalisiert und vermessen werden können. Im nächsten Schritt wird ein Quantenpunkt ausgewählt und das Spektrum auf einem Monochromator untersucht. Dafür wurden Spektren bei unterschiedlichen Anregeleistungen gemessen. Einige Spektren sind in Abb. 3.15a dargestellt. Darin liegt die Exziton-Linie bei 1,5986 eV und ist als Linie X gekennzeichnet. Dies lässt sich darüber bestimmen, dass die Anregeleistung des grünen Lasers immer weiter reduziert und das Spektrum gemessen wird. Die Linie, die bei einer sehr geringen Anregeleistung verbleibt, ist die Exziton-Linie [45]. Das Spektrum bei einer Anregeleistung von 80 nW ist in Abb. 3.15a oben als Detailabbildung dargestellt. Die Breite der Exzitonlinie liegt unter 100 μeV , welche durch das Auflösungsvermögen des Monochromators und

die Pixelgröße der CCD-Kamera (engl. charged coupled device) beschränkt ist. Die tatsächliche Breite wird geringer sein.

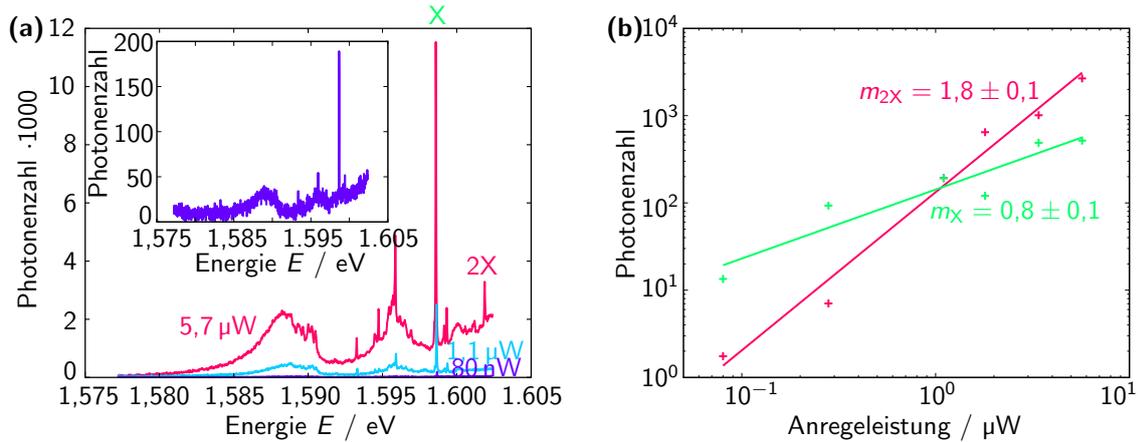


Abbildung 3.15: Messungen des Lumineszenzspektrums eines Quantenpunkts bei 7,5 K. Bei der mit dem Buchstaben 'X' gekennzeichneten Linie handelt es sich um die Exziton-Linie, bei der mit '2X' gekennzeichneten Linie um das Biexziton. **(a)** Gemessene Spektren des Quantenpunkts bei verschiedenen Anregeleistungen. In der Detailabbildung ist das Spektrum bei der niedrigsten Anregeleistung (80 nW) abgebildet. Dabei ist zu erkennen, dass beim Reduzieren der Anregeleistung die X-Linie verbleibt. **(b)** Leistungsabhängige Photonenzahl und die entsprechenden Ausgleichsgeraden. Die Linien sind in Abb. (a) gekennzeichnet.

In einem nächsten Schritt werden für unterschiedliche Linien im Spektrum die Intensität der Linie gegen die Anregeleistung aufgetragen. Dies ist in Abb. 3.15b zu sehen. Dabei ist zu erkennen, dass die Exziton-Linie (Linie X in Abb. 3.15b) linear skaliert. Die Biexziton-Linie hingegen skaliert quadratisch und ist die Linie 2X in dieser Abbildung, da deren Anregung ein Zwei-Photonen-Prozess ist [45, 46].

Da die Lage der Energieniveaus in einem Quantenpunkt abhängig von der Breite des Quantenpunktes ist, kann sich die Energie des Exziton-Übergangs für den Dipol in x-Richtung von dem in y-Richtung unterscheiden. In einem perfekten Quantenpunkt ist der Exziton-Übergang entartet und hat in x- und y-Richtung die selbe Energie. Weicht er hingegen von der idealen runden Form ab, unterscheidet sich die Breite in beiden Raumrichtungen und die Energie des Exzitons unterscheidet sich für die beiden Polarisationsrichtungen (siehe Abb. 3.16a, innere Abbildung). Dies wird als Feinstrukturaufspaltung bezeichnet [47].

Bei den Experimenten zur Resonanzfluoreszenz ist es wichtig, die Polarisation des Exzitons zu kennen. Dafür werden Quantenpunkte mit einer großen Feinstrukturaufspaltung gesucht. Zur Messung der Feinstrukturaufspaltung wird vor dem Monochromator eine Halbwellenplatte und ein Polarisationsfilter aufgestellt. Danach wird die Halbwellenplatte in mehreren Schritten um 360° gedreht. Für jede Position der Halbwellenplatte wird danach das durch den Polarisator transmittierte Spektrum auf dem

3 Halbleiter-Quantenpunkte

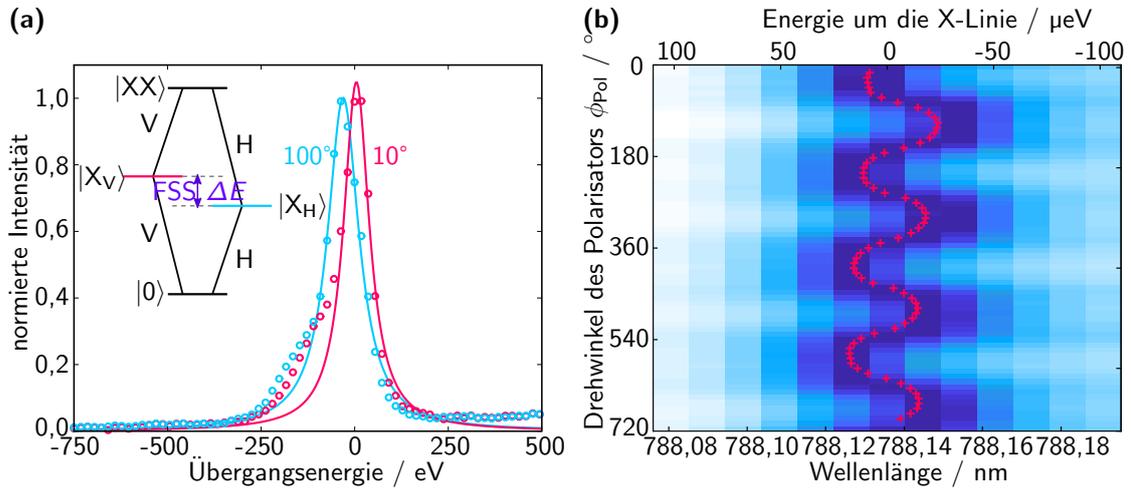


Abbildung 3.16: Messung der Feinstrukturaufspaltung an GaAs Quantenpunkten. **(a)** Weicht die Form des Quantenpunkts von der idealen Form ab, spaltet sich das Energieniveau für das Exziton in zwei Niveaus auf. Dabei ist ein Niveau horizontal und das andere vertikal polarisiert. Diese Aufspaltung ist in den beiden Messkurven zu erkennen. Die Kreise sind die Messwerte, die durchgezogenen Linien eine daran angepasste Lorentzkurve. Die Energie ist zentriert um den Mittelwert des gemessenen Exzitonübergangs bei 1,5731 eV. In der inneren Abbildung ist das Termschema der Aufspaltung für die beiden verschiedenen Emissionsrichtungen zu sehen. Angelehnt an [10]. **(b)** Die roten Kreuze geben die Mitte eines Lorentzfitts der Exziton-Linie in dem entsprechenden Spektrum an.

Monochromator gemessen. Diese Spektren werden dann in Abhängigkeit des Winkels aufgetragen. Danach wird die Position der Exzitonlinie bestimmt. Dafür wird in jedem Spektrum an die Linie eine Lorentzkurve angepasst. In Abb. 3.16a sind Spektren der Exzitonlinie für zwei verschiedene Analysatorstellungen (10° und 100°) zu sehen. Das Farbverlaufsbild (Abb. 3.16b) zeigt die Spektren und die roten Kreuze die Position des Maximums des Lorentzfitts. Anschließend wird der Drehwinkel der Halbwellenplatte in den Drehwinkel des Polarisators umgerechnet, hierbei gilt $\phi_{Pol} = 2\phi_{\lambda/2}$ [48]. Die Oszillation wiederholt sich nach 180° Drehwinkel des Polarisators. Dies kommt daher, dass am Polarisator keine Unterscheidung der Phase des elektrischen Feldes möglich ist. Vergleichbare Experimente und weiterführende theoretische Überlegungen an ähnlichen Proben sind in [49, 50] zu finden.

3.5 Messungen an Membranen

Ein ebenfalls breit untersuchtes Forschungsgebiet ist die Kopplung von einzelnen Quantenpunkten an plasmonische Wellenleiter. Das ist z.B. notwendig, um optische Gatter wie optische Transistoren zu realisieren [51, 52]. Dafür müssen Quantenpunkten in Wellenleitern eingebettet werden. Dafür gibt es verschiedene Möglichkeiten. Einerseits kann der Wellenleiter ober- und unterhalb des Quantenpunkts liegen oder

rechts und links seitlich daneben. Zwei mögliche Anordnungen der Wellenleiter ist in Abb. 3.17 zu sehen. Dafür muss die Schicht mit den Quantenpunkten vom Substrat

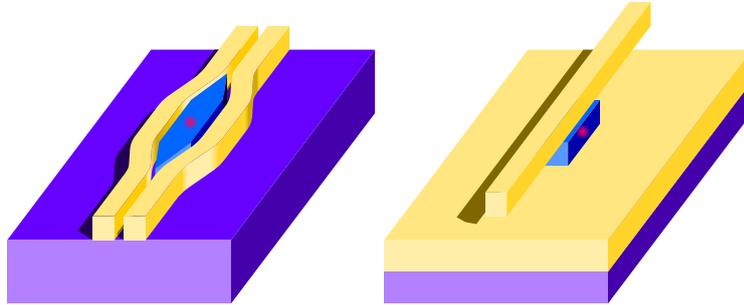


Abbildung 3.17: Quantenpunkte, die in eine Membran eingebettet sind, können an plasmonische Wellenleiter gekoppelt werden. Dabei kann der Wellenleiter seitlich oder oben und unten angeordnet werden.

entfernt und auf ein anderes Substrat abgelegt werden. Dafür kann beispielsweise Glas oder ein Siliziumwafer verwendet werden. Danach muss aus dieser Membran ein einzelner Quantenpunkt ausgeschnitten werden, um ihn in einen Wellenleiter einzubetten.

Die Form, in der die Membran zugeschnitten wurde, ist an [51] angelehnt. Dafür wurde die umgebende Matrix in Schiffchenform um die Quantenpunkte weg geschnitten. Dabei muss beachtet werden, dass ein Beschneiden der Matrix, dazu führt, dass die Einschränkung der Quantenpunkte schlechter wird. Um plasmonische Wellenleiter an die Quantenpunkte anzukoppeln, darf der Abstand jedoch nicht zu groß sein. Eine Skizze für solch eine mögliche Form ist in Abb. 3.18 zu sehen. Als Breite für die Quantenpunktmatrix wurde deshalb 400 nm gewählt. Der Quantenpunkt liegt bei

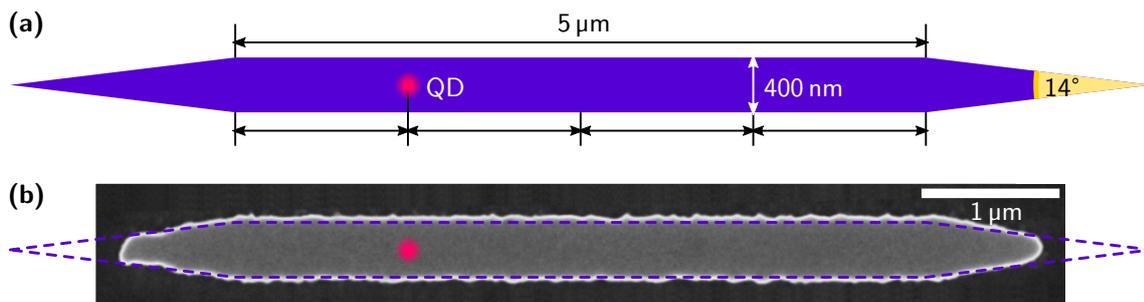


Abbildung 3.18: Aufbau der Schiffchen mit einem Quantenpunkt. Die Länge des Schiffchens beträgt ohne die Spitzen 5 µm, die Spitzen sind von der Länge her so bestimmt, dass sich an der Spitze ein Winkel von 14° ergibt. Die Breite beträgt 400 nm. **(a)** Skizze der Anordnung. **(b)** Elektronenmikroskopische Aufnahme eines Schiffchens. Bild von P. Schnauber, TU Berlin.

etwa einem Viertel der Länge des dicken Teils. Die Spitzen sind an den beiden Enden angebracht, damit sich der Brechungsindex im Wellenleiter nur langsam ändert. Würde jedoch das GaAs in der Mitte zwischen den beiden Wellenleitern einfach enden, würde es aufgrund des starken Brechungsindex im Wellenleiter zu Reflexionen kommen. Die Länge des Schiffchens ist $5\ \mu\text{m}$ und der Winkel der Spitze beträgt 14° .

3.5.1 Herstellung der Schiffchen

Die für die Membranherstellung verwendete Schichtstruktur der Probe ist in Abschnitt 3.2.2 bereits beschrieben worden. Solch eine Probe wird in Probenstücke von ca. $1,5\ \text{mm}$ Kantenlänge gebrochen. Diese Probenstücke werden von oben mit etwas Lack geschützt und in ein Ätzbad gegeben. Darin wird die Opferschicht heraus geätzt. Dabei trennt sich das Substrat von der Membran. Danach wird die Membran aus der Ätzlösung gefischt und in Wasser gelegt. Aufgrund der Oberflächenspannung schwimmt die Membran mit dem Lack darauf. Danach wird diese mit dem neuen Substrat (z.B. Silizium oder Glas) herausgefischt [51]. Die Dicke der Membran beträgt etwa $86\ \text{nm}$. Der Prozess ist in Abb. 3.19a-e dargestellt.

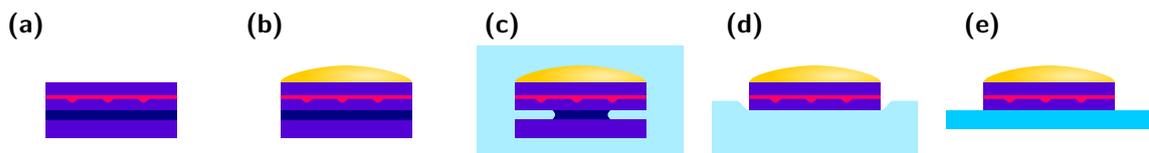


Abbildung 3.19: Verfahren zur Herstellung der Membrane. **(a)** Die Halbleiterprobe wird in kleine Stücke geschnitten. **(b)** Oben wird ein Lack aufgetragen, um die Quantenpunkte zu schützen. **(c)** Die Probe wird in das Ätzbad gegeben und die Opferschicht heraus geätzt. **(d)** Die Probe wird in Wasser gegeben. **(e)** Die Probe wird mit dem neuen Substrat herausgefischt.

Anschließend kann aus einer so gewonnenen Membran die für die weiteren Experimente benötigte Form ausgeschnitten werden. Dafür wird in der Regel reaktives Ionenätzen (engl. reactive ion etching, kurz RIE) [51] verwendet. Die im Folgenden untersuchten Proben wurden an der TU Berlin hergestellt. Das Herstellungsprinzip ist in [53] ausführlich beschrieben. Da die Probenpräparation in einem Rasterelektronenmikroskop (kurz REM) stattfindet, befindet sich die Quantenpunktmembran auf einem Siliziumsubstrat, um eine gute elektrische Leitfähigkeit zu erreichen. Das Verfahren ist in Abb. 3.20a-d visualisiert. Um die Quantenpunkte auf der Probe zu lokalisieren, wurde in einem Rasterelektronenmikroskop zuerst ein Kathodolumineszenzbild aufgenommen und die Spektren der Quantenpunkte untersucht. In jedem Schreibfeld des Elektronenmikroskops wurden sechs Quantenpunkte ausgesucht und der Bereich außen herum frei geschnitten. Dafür wurde ein auf der Probe vorhandener Positiv-Lack so belichtet, dass die ausgesuchten Quantenpunkte

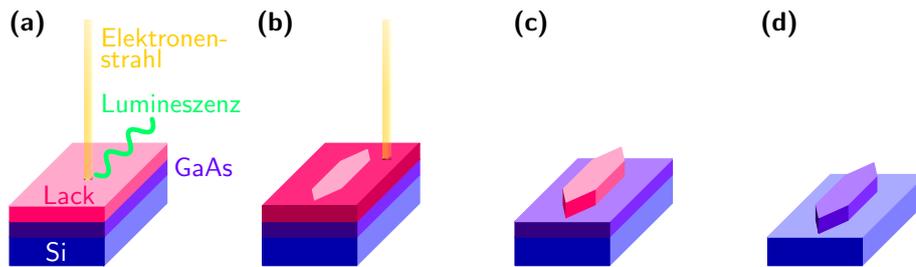


Abbildung 3.20: Verfahren zur Herstellung der Membran-Schiffchen. **(a)** Die Quantenpunkte werden mit Hilfe von Kathodolumineszenz gesucht und das Spektrum charakterisiert. **(b)** Um die gefundenen Quantenpunkte werden Schiffchen gelegt und der äußere Bereich belichtet. **(c)** Der Photolack wird entwickelt. **(d)** Die Membran wird in einem Trockenätzverfahren ausgeschnitten. Abschließend wird die Probe gereinigt und Lackreste entfernt.

in den oben beschriebenen Schiffchen beim nachfolgenden Ätzprozess stehen bleiben. Abschließend wurde der Lack entwickelt und die Quantenpunkt-Matrix sowie umliegenden Quantenpunkte weggeätzt.

3.5.2 Messungen an den Schiffchen

Die Messungen, welche in Abschnitt 3.4 beschrieben wurden, werden an Membran-schiffchen wiederholt. Zuerst wird eine Übersichtskarte der Membran aufgenommen. Dabei sind die Stellen zu erkennen, an denen die einzelnen Schiffchen freigeschnitten wurden. Die Lumineszenz eines solchen Feldes ist in Abb. 3.21a zu sehen. Die weißen Flächen sind die Bereiche, in denen keine Quantenpunkte mehr vorhanden sind. Die blauen Punkte sind die einzelnen Quantenpunkte. In jedem Feld sollte

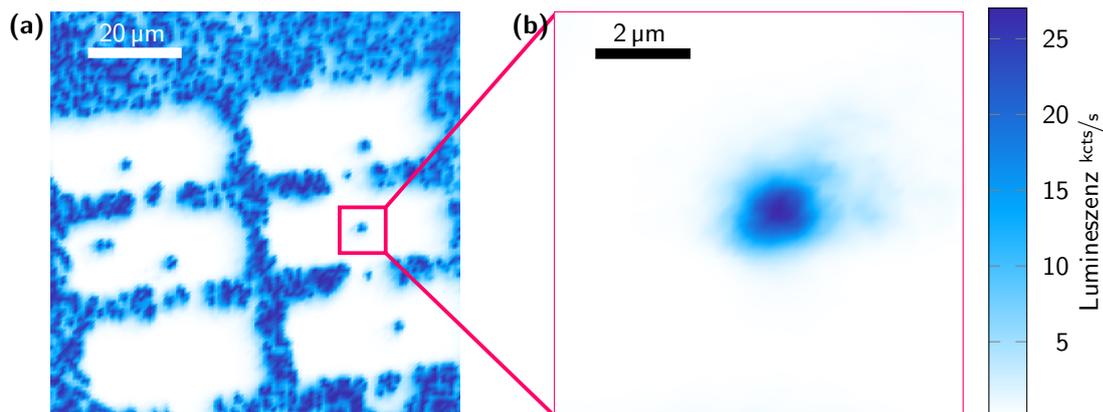


Abbildung 3.21: Lumineszenzbilder der strukturierten Quantenpunktmembran. **(a)** Übersicht über ein Feld mit sechs Schiffchen. **(b)** Detailaufnahme eines Quantenpunkts. Dabei handelt es sich um den in Abb. (a) gekennzeichneten Quantenpunkt.

ein Schiffchen zu sehen sein. In den drei Feldern auf der linken Seite ist jeweils ein Quantenpunkt zu sehen, auf der rechten Seite im obersten auch, in dem Feld darunter sind weitere Quantenpunkte vorhanden, das bedeutet, dass die umgebende Membran nicht vollständig geätzt wurde. Im letzten Feld ist nichts zu erkennen, das bedeutet, dass der Quantenpunkt beschädigt wurde. Ein einzelner Quantenpunkt in einem Schiffchen ist in Abb. 3.21b zu sehen. Anschließend werden die Spektren eines solchen Quantenpunkts untersucht, um die Lage des Exzitons zu bestimmen. Ein solches Spektrum ist in Abb. 3.22 zu sehen. Darin sind jedoch keine Linien mehr zu erkennen. Eine mögliche Erklärung hierfür wäre, dass die Schiffchen während der Prozessierung mit einer großen Menge an Elektronen bestrahlt wurden, einerseits bei der Messung der Kathodo-Lumineszenz, andererseits bei der Belichtung des Photolacks direkt über den Quantenpunkten. Diese Elektronen könnten die Zerstörung verursacht haben. Ebenfalls wäre es möglich, dass durch Oxidationsprozesse an der etwa 100 nm dünnen Membran Schäden aufgetreten sind. In weiteren Experimenten muss dies dann genauer untersucht werden.

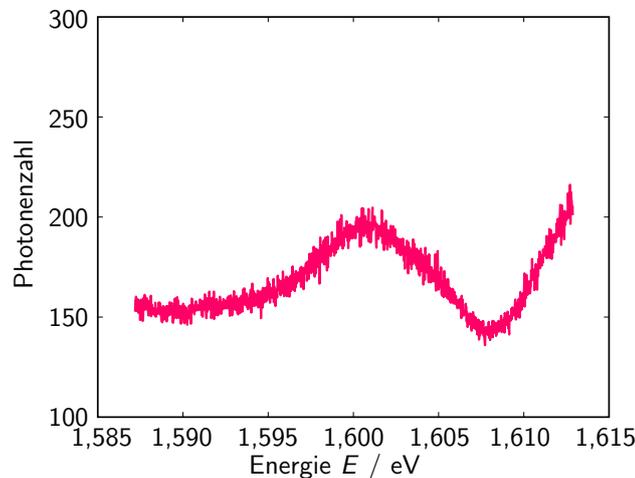


Abbildung 3.22: Spektrum des in Abb. 3.21b gezeigten Quantenpunkts.

3.6 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden die grundlegenden physikalischen Eigenschaften von niedrigdimensionalen Halbleitersystemen mit einem Schwerpunkt auf Halbleiterquantenpunkten beschrieben. Nulldimensionale Quantenpunkte besitzen diskrete Energieniveaus, deren Zustandsdichte proportional zu $\delta(E - E_n)$ ist. Diese Energieniveaus sind vergleichbar mit denen eines Atoms, deshalb kann ein Quantenpunkt als künstliches Atom beschrieben werden. Bei einer Betrachtung des Exzitons und des Grundzustands lässt sich der Quantenpunkt als Zwei-Niveau-System betrachten.

Es wurden die verschiedenen Wachstumsarten von Schichten aus unterschiedlichen Halbleitermaterialien aufgezeigt. Die wichtigsten sind das Van-der-Merwe-Wachstum, bei dem glatte Schichten entstehen, das Vollmer-Weber-Wachstum, bei dem einzelne Quantenpunkten ohne Benetzungsschicht und das Stranski-Krastanow-Wachstum, bei dem die Quantenpunkte mit einer Benetzungsschicht wachsen. Da GaAs-Quantenpunkte so nicht hergestellt werden können, wurde anschließend noch das Wachstum von Quantenpunkten mit dem Ätzen von Nanolöchern beschrieben, mit dem die im Folgenden verwendeten Proben hergestellt wurden.

Danach wurden die optischen Eigenschaften von Quantenpunkten beschrieben. Zuerst wurden die optischen Blochgleichungen und die Rabi-Oszillationen in einem Zwei-Niveau-System hergeleitet. Anschließend wurde das Spektrum eines Quantenpunkts diskutiert und auf die Exzitonlinie und das Biexziton eingegangen. Danach wurde auf die Feinstrukturaufspaltung der Exzitonlinie diskutiert. Aufgrund von Abweichungen von der perfekten Symmetrie kann sich hierbei die Exzitonlinie aufspalten. Dabei ist dann die Übergangsenergie des Exzitons in den beiden Dipolrichtungen unterschiedlich.

Am Ende des Kapitels wurde noch auf die Herstellung und Untersuchung von einzelnen Quantenpunkten in einer Halbleitermembran eingegangen. Dafür wurde aus der ursprünglichen Schichtstruktur eine Opferschicht herausgeätzt, um eine ca. 100 nm dicke Schicht mit den Quantenpunkten in der Mitte zu erhalten. Diese Membran wurde auf ein anderes Trägermaterial abgelegt. Danach wurde beschrieben, wie mit Hilfe der Kathodo-Lumineszenz die Quantenpunkte untersucht und Schiffchen aus der Membran mit einem Trockenätzschritt ausgeschnitten werden können. Dabei muss jedoch darauf geachtet werden, dass die Quantenpunkte nicht beschädigt werden.

4 Resonanzfluoreszenzexperimente

Um einzelne Halbleiterquantenpunkte zu untersuchen, gibt es verschiedene Methoden. Eine dieser Methoden ist die Resonanzfluoreszenz [20]. Dieser Prozess wurde erstmals von Mollow 1969 an einzelnen Natrium-Atomen beschrieben [18]. Zwischen den verschiedenen Energieniveaus eines Quantensystems sind optische Übergänge möglich. Bei der Fluoreszenz wird ein Elektron von einem niedrigen Energieniveau auf ein höheres Energieniveau angehoben und dabei wird ein Photon absorbiert. Dann wird durch innere Prozesse das Elektron in das Minimum des angeregten Energieniveaus strahlungslos relaxiert (Kasha-Regel) und geht schließlich von diesem, unter Abgabe eines weiteren Photons, wieder in den Grundzustand über (siehe Abb. 4.1a) [54]. Das absorbierte Photon ist energiereicher als das emittierte Pho-

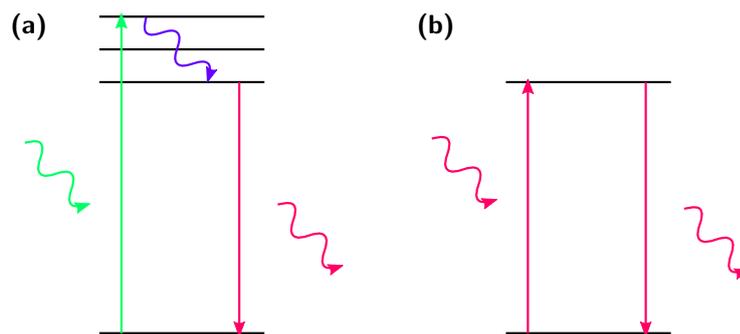


Abbildung 4.1: (a) Fluoreszenz an einem Mehrzustandssystem. Dabei wird ein Elektron aus einem niedrigeren Energieniveau auf ein Höheres angehoben. Danach relaxiert es durch die Vibrationszustände dieses Niveaus und relaxiert unter Abgabe eines Photons in ein energetisch tiefer gelegenes Niveau. (b) Bei der Resonanzfluoreszenz eines Zwei-Niveau-Systems wird ein Elektron aus dem Grundzustand in den angeregten Zustand durch Absorption eines Photons gebracht. Danach relaxiert dieses wieder in den Grundzustand.

ton. Dadurch wird das Emissionsspektrum der Fluoreszenz rotverschoben. Bei der Resonanzfluoreszenz hingegen sind nur zwei Energieniveaus in einem Fluoreszenzprozess eingebunden. Dabei wird das Photon von einem Energieniveau aus auf ein höheres Energieniveau angehoben und relaxiert wieder aus demselben Niveau in den Grundzustand. Daraus ergibt sich, dass im Vergleich zur Fluoreszenz die Emissionswellenlänge gleich der Wellenlänge des absorbierten Lichts ist (siehe Abb. 4.1b).

4.1 Mathematische Beschreibung der Resonanzfluoreszenz im Fall exakt resonanter Anregung

Eine Beschreibung für die Resonanzfluoreszenz mit Hilfe der Quantenelektrodynamik lässt sich z.B. in [18, 39, 40, 55] finden. Dafür wird ein Quantenpunkt mit einem Laserstrahl beschienen. Die Laserfrequenz beträgt ω , die Übergangsenergie des Quantenpunkts beträgt ω_0 . Dabei wechselwirken n Photonen des eingestrahlichten Lichtfelds mit dem Quantenpunkt. Das entsprechende Termschema ist in Abb. 4.2a dargestellt. Dabei ist die Frequenzdifferenz Δ zwischen dem Exzitonübergang des

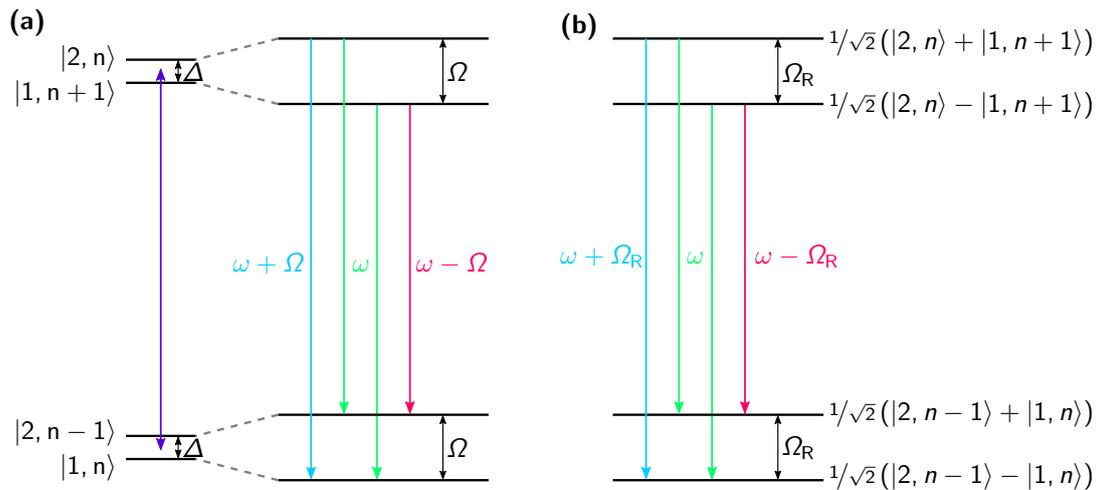


Abbildung 4.2: Termschema für ein Zwei-Niveau-System bei niedrigen und hohen Leistungen des anregenden, elektromagnetischen Feldes. Wobei ω_0 die Frequenz des Übergangs und ω die Frequenz des einfallenden Lichtfeldes ist. **(a)** Termschema eines Zwei-Zustands-Atoms. Dabei ist $\Delta = \omega_0 - \omega$. Bei höheren Leistungen bilden sich aus den beiden Energieniveaus so genannte dressed states aus [56, 57]. **(b)** Hierbei handelt es sich um einen Spezialfall von (a), der exakt resonanten Anregung, bei der $\omega_0 = \omega$ gilt. Hierbei bilden sich gemischte Zustände [58, 59].

Quantenpunkts und der Frequenz des anregenden Lichtfelds und berechnet sich zu

$$\Delta = \omega_0 - \omega. \quad (4.1)$$

Die generalisierte Rabi-Frequenz ist wie folgt definiert:

$$\Omega = \sqrt{\Omega_R^2 + \Delta^2} \quad (4.2)$$

Dabei ist Ω_R die einfache Rabi-Frequenz des Systems. Die sich bei der Aufspaltung bildenden Zustände sind sogenannte dressed states. Wird jetzt die Frequenz des

anregenden Feldes genau auf die Frequenz des anregenden Feldes angepasst, so ist $\Delta = 0$. Die generalisierte Rabi-Frequenz ist dabei gleich der einfachen Rabi-Frequenz Ω_R . Das hierbei auftretende Termschema ist in Abb. 4.2b dargestellt [57].

4.1.1 Bestimmung des Hamiltonoperators eines Zwei-Niveau-Systems und des anregenden Feldes

Im Folgenden wird nur der Spezialfall ohne Linienverbreiterung und mit exakt resonanter Anregung betrachtet. Dafür wird der Hamiltonoperator des Systems betrachtet. Dieser besteht aus drei Teilen, einem Anteil, der das Atom beschreibt \hat{H}_A , einer für die Beschreibung des elektromagnetischen Feldes \hat{H}_F und einem dritten Teil, der die Wechselwirkung zwischen Feld und Atom beschreibt \hat{H}_{WW} . Der Hamiltonoperator des Systems \hat{H} lautet:

$$\hat{H} = \hat{H}_A + \hat{H}_F + \hat{H}_{\text{WW}} \quad (4.3)$$

Der Hamiltonoperator H_A wurde bereits in Abschnitt 3.3 beschrieben. Der Hamiltonoperator \hat{H}_F des elektrischen Feldes lässt sich aus dem quantenmechanischen harmonischen Oszillator herleiten. Daraus ergibt sich:

$$\hat{H}_F = \sum_{\vec{k}} \hbar \omega_{\vec{k}} \left(\hat{a}_{\vec{k}}^\dagger \hat{a}_{\vec{k}} + \frac{1}{2} \right) \quad (4.4)$$

mit \vec{k} dem Wellenvektor der entsprechenden Mode, $\omega_{\vec{k}}$ der Winkelfrequenz der Mode und den Operatoren $\hat{a}_{\vec{k}}^\dagger$ und $\hat{a}_{\vec{k}}$, die ein Photon mit der Energie $\hbar \omega_{\vec{k}}$ erzeugen bzw. vernichten. Aus den Maxwell-Gleichungen und der Coulomb-Eichung lässt sich eine quantenmechanische Definition auch für den elektrischen Feldoperator $\hat{\vec{E}}(\vec{r}, t)$ ableiten. Dieser lässt sich wie folgt schreiben:

$$\hat{\vec{E}}(\vec{r}, t) = \sum_{\vec{k}} \hat{\vec{E}}_{\vec{k}}(\vec{r}, t) = \sum_{\vec{k}} i \sqrt{\frac{\hbar \omega_{\vec{k}}}{2 \varepsilon_0 V}} \vec{\varepsilon}_{\vec{k}} \left(\hat{a}_{\vec{k}} e^{-i \omega_{\vec{k}} t + i \vec{k} \vec{r}} - \hat{a}_{\vec{k}}^\dagger e^{i \omega_{\vec{k}} t - i \vec{k} \vec{r}} \right) \quad (4.5)$$

Dabei ist t die Zeit, \vec{r} der Ort, ε_0 die elektrische Feldkonstante, V das Modenvolumen und $\vec{\varepsilon}_{\vec{k}}$ die Polarisation der Mode. Dieses Feld wird in die positiven und negativen Frequenzanteile aufgespalten. Damit ergibt sich:

$$\hat{\vec{E}}(\vec{r}, t) = \hat{\vec{E}}^+(\vec{r}, t) + \hat{\vec{E}}^-(\vec{r}, t) \quad (4.6)$$

mit:

$$\hat{\vec{E}}^+(\vec{r}, t) = i \sum_{\vec{k}} \sqrt{\frac{\hbar \omega_{\vec{k}}}{2 \varepsilon_0 V}} \vec{\varepsilon}_{\vec{k}} \hat{a}_{\vec{k}}(t) e^{i \vec{k} \vec{r}} \quad (4.7)$$

$$\hat{\vec{E}}^-(\vec{r}, t) = -i \sum_{\vec{k}} \sqrt{\frac{\hbar \omega_{\vec{k}}}{2 \varepsilon_0 V}} \vec{\varepsilon}_{\vec{k}} \hat{a}_{\vec{k}}^\dagger(t) e^{-i \vec{k} \vec{r}} \quad (4.8)$$

4.1.2 Wechselwirkung zwischen elektrischem Feld und Atom

In einem weiteren Schritt wird die Wechselwirkung zwischen dem Atom und dem elektromagnetischen Feld untersucht. Dabei ist der stärkste Anteil die Dipolwechselwirkung. Deshalb wird im folgenden die Dipolnäherung verwendet. Für den Hamiltonoperator \hat{H}_{WW} der Wechselwirkung ist gleich dem Hamiltonoperator \hat{H}_{ED} eines elektrischen Dipols und damit ergibt sich (vgl. 3.20):

$$\hat{H}_{\text{WW}} = \hat{H}_{\text{ED}} = e \sum_j \vec{r}_j \hat{E}(\vec{r}_0, t) = e \underline{\underline{D}} \hat{E}(\vec{r}_0, t) \quad (4.9)$$

mit \vec{r}_0 dem Ort des Atoms und dem Dipol-Tensor $\underline{\underline{D}} = \sum_{i,j} \vec{D}_{ij} |i\rangle \langle j|$. Mit dem Ergebnis für das elektrische Feld aus Gl. 4.5:

$$\hat{H}_{\text{WW}} = ie \sum_{\vec{k}} \sum_{i,j} \sqrt{\frac{\hbar \omega_{\vec{k}}}{2\epsilon_0 V}} \vec{\epsilon}_{\vec{k}} \vec{D}_{ij} \left(\hat{a}_{\vec{k}} e^{-i\omega_{\vec{k}}t + i\vec{k}\vec{r}} - \hat{a}_{\vec{k}}^\dagger e^{i\omega_{\vec{k}}t - i\vec{k}\vec{r}} \right) |i\rangle \langle j| \quad (4.10)$$

Der Dipol wird in die x-z-Ebene gelegt und die Abstrahlung des Dipols erfolgt in y-Richtung. Die Lage der Vektoren ist in Abb. 4.3 veranschaulicht. Außerdem wird das betrachtete System auf ein Zwei-Niveau-System reduziert. Damit lässt sich Gl.

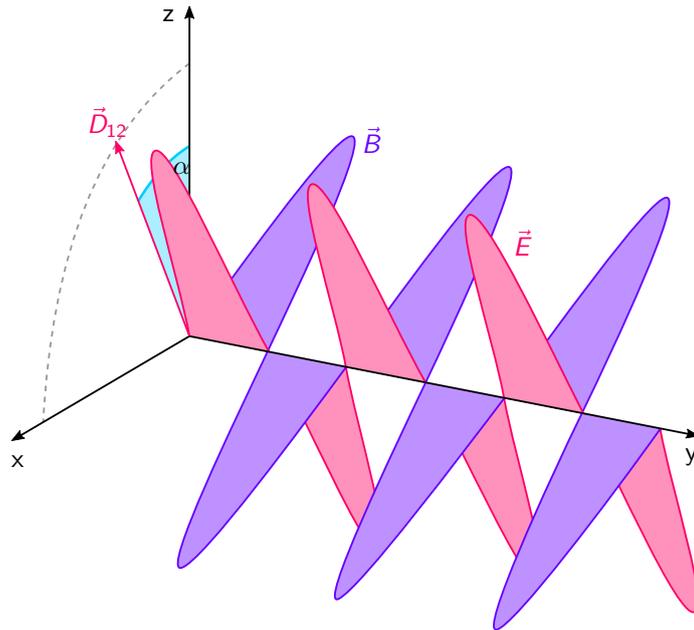


Abbildung 4.3: Lage der Vektoren und Felder im Raum. Das elektrische Feld \vec{E} und das magnetische Feld \vec{B} werden von einem Dipol mit dem Dipolvektor \vec{D}_{12} in y-Richtung in den Raum abgestrahlt. Der Dipol liegt in der x-z-Ebene und ist um den Winkel α von der x-Achse gekippt.

4.1 Mathematische Beschreibung der Resonanzfluoreszenz im Fall exakt resonanter Anregung

4.10 umschreiben zu:

$$\hat{H}_{\text{WW}} = i\hbar \sum_{\vec{k}} g_{\vec{k}} \left(\hat{a}_{\vec{k}} e^{-i\omega_{\vec{k}}t + i\vec{k}\vec{r}} - \hat{a}_{\vec{k}}^{\dagger} e^{i\omega_{\vec{k}}t - i\vec{k}\vec{r}} \right) (|1\rangle \langle 2| + |2\rangle \langle 1|) \quad (4.11)$$

mit den Übergangsoperatoren aus Gl. 3.17

$$\hat{H}_{\text{WW}} = i\hbar \sum_{\vec{k}} g_{\vec{k}} \left(\hat{a}_{\vec{k}} e^{-i\omega_{\vec{k}}t + i\vec{k}\vec{r}} - \hat{a}_{\vec{k}}^{\dagger} e^{i\omega_{\vec{k}}t - i\vec{k}\vec{r}} \right) (\hat{\pi} + \hat{\pi}^{\dagger}) \quad (4.12)$$

mit

$$g_{\vec{k}} = e \sqrt{\frac{\omega_{\vec{k}}}{2\hbar\epsilon_0 V}} \vec{\epsilon}_{\vec{k}} \vec{D}_{12} \quad (4.13)$$

Wenn die Klammern in Gl. 4.12 ausmultipliziert werden, besteht der Hamiltonoperator der Wechselwirkung aus vier Termen. Diese lassen sich in Feynman-Diagrammen veranschaulichen und sind in Abb. 4.4 dargestellt. Dabei ist zu erkennen, dass bei

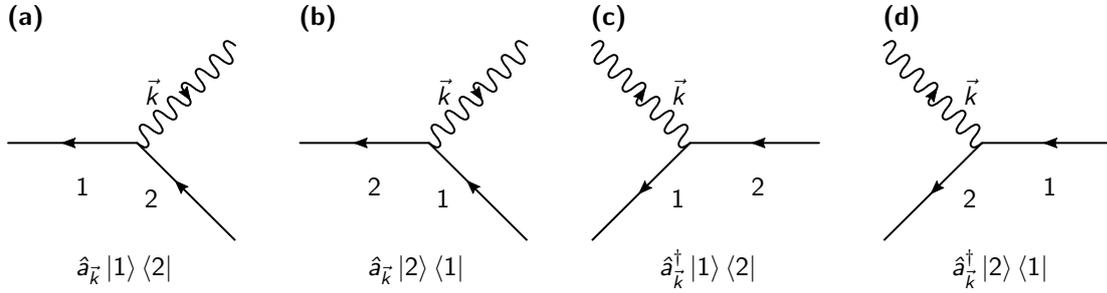


Abbildung 4.4: Feynman-Diagramme für die vier verschiedenen Terme aus Gl. 4.12. Angelehnt an [39]. **(a)** Ein Atom im angeregten Zustand geht unter Aufnahme eines Photons in den Grundzustand über (keine Energieerhaltung). **(b)** Ein Atom im Grundzustand geht unter Aufnahme eines Photons in den angeregten Zustand über (Photonenabsorption). **(c)** Ein Atom im angeregten Zustand geht unter Abgabe eines Photons in den Grundzustand über (Photonenemission). **(d)** Ein Atom im Grundzustand geht unter Abgabe eines Photons in den angeregten Zustand über (keine Energieerhaltung).

nur zwei der vier Terme die Energieerhaltung erfüllt ist. Dabei handelt es sich einerseits um die Photonenaufnahme (Abb. 4.4b). Hierbei geht ein Elektron vom Grundzustand in den angeregten Zustand über und absorbiert dabei ein Photon. Das entsprechende Matrixelement berechnet sich zu:

$$\langle n_{\vec{k}} - 1, 2 | \hat{H}_{\text{WW}} | n_{\vec{k}}, 1 \rangle = i\hbar g_{\vec{k}} e^{i\omega_{\vec{k}}t + i\vec{k}\vec{r}_0} \sqrt{n_{\vec{k}}} \quad (4.14)$$

Dabei ist $n_{\vec{k}}$ die Anzahl der Photonen der Mode.

Andererseits gibt es die Photonemission (Abb. 4.4c), bei der ein Elektron vom angeregten Zustand in den Grundzustand über geht und dabei ein Photon emittiert. Hierbei lautet das Matrixelement:

$$\langle n_{\vec{k}} + 1, 1 | \hat{H}_{\text{WW}} | n_{\vec{k}}, 2 \rangle = -i\hbar g_{\vec{k}} e^{i\omega_{\vec{k}}t - i\vec{k}\vec{r}_0} \sqrt{n_{\vec{k}} + 1} \quad (4.15)$$

4 Resonanzfluoreszenzexperimente

Bei den beiden anderen Fällen ist die Energierhaltung nicht gegeben. Bei $\hat{a}_{\vec{k}} |1\rangle \langle 2|$ (Abb. 4.4a) tritt ein Energieverlust von $2\hbar\omega_0$ auf, da ein Photon absorbiert wird und dabei ein Elektron vom angeregten Zustand in den Grundzustand übergeht. Im Fall $\hat{a}_{\vec{k}}^\dagger |2\rangle \langle 1|$ (Abb. 4.4d) wird ein Photon abgegeben und das Atom geht vom Grundzustand in den angeregten Zustand über. Dies führt zu einem Energiegewinn von $2\hbar\omega_0$ [39, 40]. Diese beiden Fälle werden weggelassen aufgrund der Drehwellennäherung (engl. Rotating-Wave Approximation) [39, 60]. Damit lautet der Hamiltonoperator der Wechselwirkung aus Gl. 4.12:

$$\hat{H}_{\text{WW}} = i \sum_{\vec{k}} \hbar g_{\vec{k}} \left(\hat{\pi}^\dagger \hat{a}_{\vec{k}} e^{-i\omega_{\vec{k}}t + i\vec{k}\vec{r}} - \hat{a}_{\vec{k}}^\dagger \hat{\pi} e^{i\omega_{\vec{k}}t - i\vec{k}\vec{r}} \right) \quad (4.16)$$

Der Hamiltonoperator des Gesamtsystems lässt sich mit den Ergebnissen aus Gln. 4.3, 3.16, 4.4 und 4.16 wie folgt beschreiben:

$$\hat{H} = \underbrace{\hbar\omega_0 \hat{\pi}^\dagger \hat{\pi} + \sum_{\vec{k}} \hbar\omega_{\vec{k}} \hat{a}_{\vec{k}}^\dagger \hat{a}_{\vec{k}}}_{\text{Systemteil}} + i \sum_{\vec{k}} \hbar g_{\vec{k}} \underbrace{\left(\hat{\pi}^\dagger \hat{a}_{\vec{k}} e^{-i\omega_{\vec{k}}t + i\vec{k}\vec{r}} - \hat{a}_{\vec{k}}^\dagger \hat{\pi} e^{i\omega_{\vec{k}}t - i\vec{k}\vec{r}} \right)}_{\text{Wechselwirkungsteil}} \quad (4.17)$$

Zur Berechnung der Erwartungswerte der Übergangoperatoren wird der Hamiltonoperator in einen Systemteil und einen Wechselwirkungsteil aufgespalten. Danach werden die Übergangoperatoren in das Wechselwirkungsbild transferiert und die Bewegungsgleichung ermittelt. Daraus lässt sich die Zeitabhängigkeit der Übergangoperatoren $\hat{\pi}$ und $\hat{\pi}^\dagger$ im Wechselwirkungsbild berechnen:

$$\hat{\pi}(t) = \hat{\pi} e^{-i\omega_0 t} \quad \hat{\pi}^\dagger(t) = \hat{\pi}^\dagger e^{i\omega_0 t} \quad (4.18)$$

Im Wechselwirkungsbild lassen sich dann die Erwartungswerte der Übergangoperatoren berechnen mit:

$$\langle \hat{O}(t) \rangle = \text{Tr}(\hat{\rho}_I(t) \hat{O}_I(t)) \quad (4.19)$$

mit $\rho_I(t)$ der Dichtematrix im Wechselwirkungsbild und $\hat{O}_I(t)$ einem Operator im Wechselwirkungsbild. Aus Gl. 4.19 und der Definition aus Gl. 3.17 ergibt sich für die Erwartungswerte der Übergangoperatoren:

$$\langle \hat{\pi}(t) \rangle = \text{Tr}(\rho_I(t) \hat{\pi}) e^{-i\omega_0 t} = \rho_{21}(t) e^{-i\omega_0 t} \quad (4.20)$$

$$\langle \hat{\pi}^\dagger(t) \rangle = \rho_{12}(t) e^{-i\omega_0 t} \quad (4.21)$$

$$\langle \hat{\pi}^\dagger(t) \hat{\pi}(t) \rangle = \rho_{22}(t) \quad (4.22)$$

Aus den optischen Blochgleichungen (siehe Abschnitt 3.3, Gln. 3.28-3.29):

$$\frac{d\rho_{22}}{dt} = -\frac{1}{2}i\Omega_{\text{R}}^* e^{i(\omega_0 - \omega)t} \rho_{12} + \frac{1}{2}i\Omega_{\text{R}} e^{-i(\omega_0 - \omega)t} \rho_{21} - 2\gamma\rho_{22} \quad (4.23)$$

$$\frac{d\rho_{12}}{dt} = \frac{1}{2}i\Omega_{\text{R}} e^{-i(\omega_0 - \omega)t} (\rho_{11} - \rho_{22}) - \gamma\rho_{12} \quad (4.24)$$

lassen sich die Elemente der Dichtematrix wie folgt berechnen:

$$\rho_{22} = \frac{\frac{1}{4}|\Omega_R|^2}{(\omega_0 - \omega)^2 + \gamma^2 + \frac{1}{2}|\Omega_R|^2} \quad (4.25)$$

$$\rho_{12} = -\Omega_R e^{-i(\omega_0 - \omega)t} \frac{\frac{1}{2}\Omega_R(\omega_0 - \omega - i\gamma)}{(\omega_0 - \omega)^2 + \gamma^2 + \frac{1}{2}|\Omega_R|^2} \quad (4.26)$$

4.1.3 Spektrum und Korrelationsfunktion erster und zweiter Ordnung

Als Erstes wird das Spektrum der Resonanzfluoreszenz untersucht. Das Spektrum wird durch Fouriertransformation des vom Quantenpunkt abgestrahlten elektrischen Feldes E_S beschrieben.

$$E_S(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} E_S(t) e^{i\omega t} dt \quad (4.27)$$

Wird die gemittelte spektrale Intensität untersucht so lässt sich zeigen, dass das Betragsquadrat der Fourier-Transformierten sich zu

$$|E_S(\omega)|^2 = \left(\frac{T}{4\pi^2} \right) \int_{-\infty}^{\infty} \langle E_S^*(t) E_S(t + \tau) \rangle e^{i\omega\tau} d\tau \quad (4.28)$$

berechnet. Dabei ist T die Zeit über die, die Intensität gemittelt wird und $\langle E_S^*(t) E_S(t + \tau) \rangle$ die Korrelationsfunktion des elektrischen Feldes [39]. Für das normierte Spektrum $F(\omega)$ ergibt sich damit:

$$F(\omega) = \frac{|E_S(\omega)|^2}{\int_{-\infty}^{\infty} |E_S(\omega)|^2 d\omega} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} g^{(1)}(\tau) e^{i\omega\tau} d\tau \quad (4.29)$$

Dabei ist der Zusammenhang zwischen dem normierten Spektrum und der Korrelationsfunktion erster Ordnung $g^{(1)}$ das Wiener-Khintchine-Theorem [39]. Die Korrelationsfunktion erster Ordnung berechnet sich zu:

$$g^{(1)}(\tau) = \frac{\langle \hat{E}_S^-(\vec{r}, t) \hat{E}_S^+(\vec{r}, t + \tau) \rangle}{\langle \hat{E}_S^-(\vec{r}, t) \hat{E}_S^+(\vec{r}, t) \rangle} = \frac{\langle \hat{\pi}^\dagger(t) \hat{\pi}(t + \tau) \rangle}{\langle \hat{\pi}^\dagger(t) \hat{\pi}(t) \rangle} \quad (4.30)$$

Einsetzen der Ergebnisse aus dem vorherigen Abschnitt liefert:

$$g^{(1)}(\tau) = e^{i\omega\tau} \left[\frac{2\gamma^2}{2\gamma^2 + \Omega_R^2} + \frac{1}{2} e^{-\gamma\tau} + \frac{(\gamma - 2i\lambda)^2 e^{-i\lambda\tau - 3\gamma\frac{\tau}{2}}}{8i\lambda(3\gamma + 2i\lambda)} - \frac{(\gamma + 2i\lambda)^2 e^{i\lambda\tau - 3\gamma\frac{\tau}{2}}}{8i\lambda(3\gamma - 2i\lambda)} \right] \quad (4.31)$$

mit

$$\lambda = \sqrt{\Omega_R^2 - \left(\frac{\gamma}{2}\right)^2} \quad (4.32)$$

Damit ergibt sich für das normierte Spektrum

$$\begin{aligned} F(\omega_S) = & \frac{2\gamma^2}{2\gamma^2 + \Omega_R^2} \delta(\omega_S - \omega) + \frac{\frac{\gamma}{2\pi}}{(\omega_S - \omega)^2 + \gamma^2} + \\ & \frac{3\gamma\lambda(\Omega_R^2 - 2\gamma^2) + \gamma(5\Omega_R^2 - 2\gamma^2)(\omega + \lambda - \omega_S)}{8\pi\lambda(2\gamma^2 + \Omega_R^2) \left[(\omega + \lambda - \omega_S)^2 + \left(\frac{3\gamma}{2}\right)^2 \right]} + \\ & \frac{-3\gamma\lambda(\Omega_R^2 - 2\gamma^2) + \gamma(5\Omega_R^2 - 2\gamma^2)(\omega - \lambda - \omega_S)}{-8\pi\lambda(2\gamma^2 + \Omega_R^2) \left[(\omega - \lambda - \omega_S)^2 + \left(\frac{3\gamma}{2}\right)^2 \right]} \end{aligned} \quad (4.33)$$

mit $\Omega_R > 1/2\gamma$. Für eine sehr große Rabi-Frequenz $\Omega_R \gg 1/2\gamma$ lässt sich das Spektrum zu

$$F(\omega_S) = \frac{\frac{3\gamma}{8\pi}}{(\omega - \Omega_R - \omega_S)^2 + \left(\frac{3\gamma}{2}\right)^2} + \frac{\frac{\gamma}{2\pi}}{(\omega - \omega_S)^2 + \gamma^2} + \frac{\frac{3\gamma}{8\pi}}{(\omega + \Omega_R - \omega_S)^2 + \left(\frac{3\gamma}{2}\right)^2} \quad (4.34)$$

vereinfachen.

Der Verlauf des Spektrums ist schematisch für verschiedene Anregeleistungen in Abb. 4.5a dargestellt. Dabei ist zu sehen, dass bei geringen Anregeleistungen ($\Omega_R \ll 1/2\gamma$) im Spektrum nur ein Lorentz-förmiger Peak mit natürlicher Linienbreite bei der Frequenz des Übergangs zu sehen ist. Wird die Anregeleistung erhöht und es kommt zur Bildung von dressed states und so entstehen zwei Seitenbänder. Dabei handelt es sich um das Mollow-Triplett. Die Aufspaltung zwischen den beiden Zuständen ist Ω_R [39, 57].

In einem weiteren Schritt wird die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung berechnet. Bei Einzelphotonenquellen ist diese immer bei $\tau = 0$ kleiner als 1. Das bedeutet, dass zu einem gegebenen Zeitpunkt nur ein Photon emittiert werden kann. Die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung ist definiert als [39]:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{E}_S^-(\vec{r}, t) \hat{E}_S^-(\vec{r}, t + \tau) \hat{E}_S^+(\vec{r}, t + \tau) \hat{E}_S^+(\vec{r}, t) \rangle}{\langle \hat{E}_S^-(\vec{r}, t) \hat{E}_S^+(\vec{r}, t) \rangle^2} \quad (4.35)$$

$$= \frac{\langle \hat{\pi}^\dagger(t) \hat{\pi}^\dagger(t + \tau) \hat{\pi}(t + \tau) \hat{\pi}(t) \rangle}{\langle \hat{\pi}^\dagger(t) \hat{\pi}(t) \rangle^2} \quad (4.36)$$

Werden die Ergebnisse aus dem vorhergehenden Abschnitt eingesetzt, so ergibt sich für die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung:

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - \left[\cos(\lambda\tau) + \frac{3\gamma}{2\lambda} \sin(\lambda\tau) \right] e^{-\frac{3\gamma\tau}{2}} \quad (4.37)$$

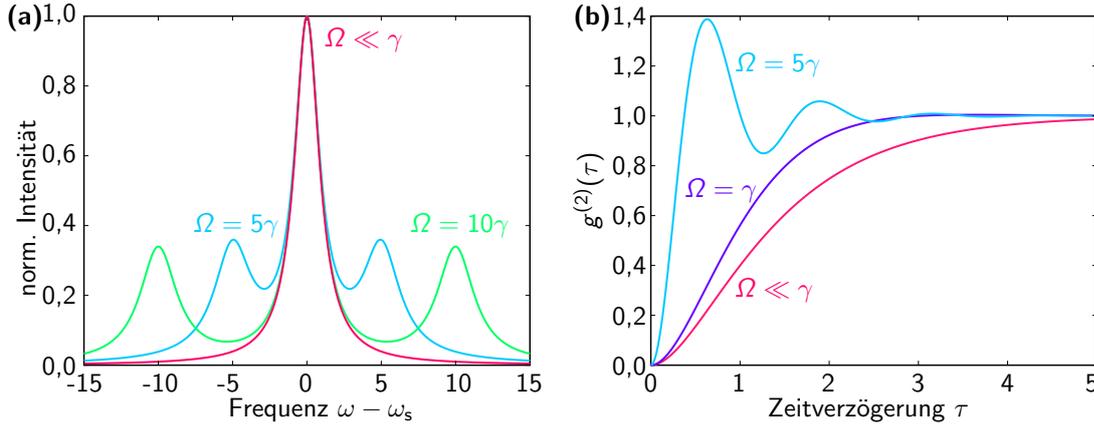


Abbildung 4.5: Spektren und Korrelationsfunktion zweiter Ordnung mit verschiedenen Werten für Ω/γ . **(a)** Spektren bei Resonanzfluoreszenzmessungen für unterschiedliche Leistungen. Bei höheren Leistungen spaltet sich die Linie in das Mollow-Triplett auf. Der Abstand der Seitenbänder ist die Rabi-Frequenz. **(b)** Korrelationsfunktion zweiter Ordnung zu den in Abb. (a) gezeigten Spektren. Dabei ist Antibunching zu erkennen.

Diese Korrelationsfunktion ist für $g^{(2)}(0) = 0$. Somit liegt bei der Resonanzfluoreszenz Antibunching vor. Der Verlauf dieser Korrelationsfunktion ist für drei verschiedene Dämpfungsparameter in Abb. 4.5b dargestellt. Prozesse, die Antibunching aufweisen sind Prozesse, bei denen zu einem spezifischen Zeitpunkt $\tau = 0$ nur ein Photon abgegeben wird [57]. Sie sind somit Einzelphotonenquellen. Dies wurde 1977 experimentell von Kimble, Dagenais und Mandel bei der Resonanzfluoreszenz an Natrium-Atomen nachgewiesen [61].

Durch das einfallende elektrische Feld des Laserstrahls wird der Dipol des Quantenpunkts angeregt. Anschließend kann dieser nicht weiter angeregt werden. Dafür muss der Dipol zuerst Energie abgeben, diese wird wieder als Licht abgestrahlt. Da die Anregung resonant erfolgt, wird maximal ein Photon abgegeben.

4.2 Aufbau des Resonanzfluoreszenz-Experiments

In der Literatur finden sich eine Vielzahl an verschiedenen Versuchsaufbauten zur Resonanzfluoreszenz. Ein Vergleich der numerischen Apertur NA des Mikroskopobjektivs zwischen dem hier beschriebenen Versuchsaufbau und anderen in der Literatur beschriebenen Aufbauten ist in Tab. 4.1 angegeben. Ebenfalls ist zum besseren Vergleich der verwendete Spektralbereich und die Art der Quantenpunkte angegeben.

Dabei fällt auf, dass die NA des hier verwendeten Objektivs größer ist als bei allen anderen Experimenten. Nur bei Tripathi u. a. 2018 werden Quantenpunkte des

Tabelle 4.1: Vergleich des hier beschriebenen Versuchsaufbau zur Resonanzfluoreszenz mit anderen Publikationen.

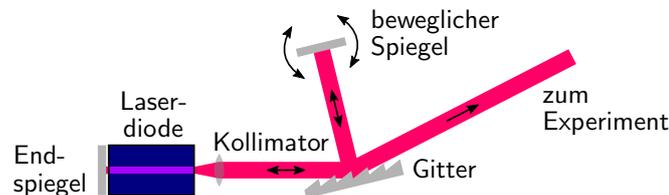
	Publikation	Quantenpunkte	Wellenlänge	NA	Anm.
	hier beschrieben	GaAs	780 nm bis 790 nm	0,90	
[20]	Matthiesen u. a. 2012	InAs	960 nm bis 980 nm	0,5	*
[62]	Kuhlmann u. a. 2013	InGaAs	950 nm	0,68	*
[63]	Monniello u. a. 2014	InAs		0,5	§
[64]	Kurzmann u. a. 2016	InAs	950 nm	0,65	*
[65]	Tripathi u. a. 2018	GaAs	780 nm	0,42	

* Zur Verbesserung der NA wurde auf dem Quantenpunkt eine Solid Immersion Lens (kurz SIL) angebracht.

§ Hier wird eine andere Geometrie verwendet. Die Anregung erfolgt von der Seite und die Detektion befindet sich an der Oberseite.

gleichen Materialsystems verwendet. Alle anderen benutzen Indium-basierte Quantenpunkte.

Der Versuchsaufbau zur Messung der Resonanzfluoreszenz besteht aus drei Hauptbestandteilen. Für die Anregung benutzen wir einen von 751,0 nm bis 798,6 nm durchstimmbaren Laser der Firma Sacher Lasertechnik. Der Laser hat eine Linienbreite von unter 100 kHz bei einer Betrachtungsdauer von 1 ms und zwischen 2 MHz und 5 MHz bei einer Betrachtungsdauer von 1 s [66, 67]. Bei dem Laser handelt es sich

**Abbildung 4.6:** Skizze der Funktionsweise eines Littman-Metcalf-Lasers.

um einen Diodenlaser mit externem Resonator, bei dem die Durchstimmbarkeit mit Hilfe einer Littman-Metcalf-Konfiguration erreicht wird [66]. Der Aufbau des Lasers ist schematisch in Abb. 4.6 dargestellt. Der Laser besteht aus einer Laserdiode, dahinter befindet sich der rückseitige Resonatorspiegel. Auf der anderen Seite wird der Strahl kollimiert und anschließend über ein Gitter geführt. Die nullte Ordnung wird mit einem beweglichen Spiegel zurückgeworfen. Dieser Spiegel dient dazu, die Emissionswellenlänge über einen Bereich von 40 GHz durchzustimmen. Die erste Ordnung des Gitters ist der ausgekoppelte Laserstrahl und dieser wird dann zum Experiment geführt [68]. Dies ist notwendig, um die Emissionslinie des Lasers exakt auf die Exziton-Linie des Quantenpunkts anzupassen.

Ein Überblick über den verwendeten Aufbau ist in Abb. 4.7 dargestellt. Um die notwendige Unterdrückung des Anregelichts zu erreichen, wird das Licht des Lasers zu-

4.2 Aufbau des Resonanzfluoreszenz-Experiments

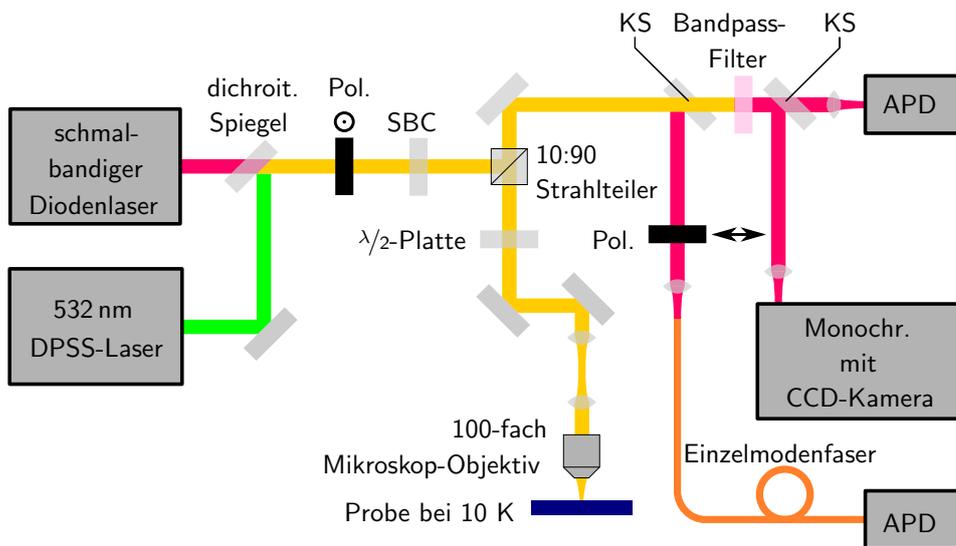


Abbildung 4.7: Skizze des Aufbaus zur Resonanzfluoreszenz-Experiments. Pol. sind die Glan-Thompson-Polarisatoren, KS sind Klappspiegel um den Strahlengang anpassen zu können.

erst an einem Glan-Thompson-Prisma (B. Halle Nachfl., Unterdrückung von $1 \cdot 10^{-8}$) s-polarisiert. Mit dem danach folgenden Soleil-Babinet-Kompensator (B. Halle Nachfl.) wird die Polarisation so weit vorkompensiert, dass das einfallende Licht am Ort des zweiten Glan-Thompson-Prismas wieder möglichst genau s-polarisiert ist. Dies ist möglich, da mit einem Soleil-Babinet-Kompensator jede beliebige Polarisation eingestellt werden kann. Eine detailliertere Beschreibung findet sich in [48]. An einem 10:90 Strahlteilerwürfel wird das Licht mit 10% in Richtung der Probe geführt, die restlichen 90% in eine Strahlfalle. Die Polarisation des Anregungslichts des Lasers wird an der Halbwellenplatte mit der Polarisation so ausgerichtet, dass die Polarisation auf 45° zum Dipol des zu untersuchenden Quantenpunkts ausgerichtet ist. Danach folgt ein fokaler Aufbau mit einem Scanspiegel und zwei Linsen mit 150 mm Brennweite. Durch das telezentrische Linsensystem lässt sich aus einer Strahlableitung an einem beweglich montierten Spiegel eine Positionsabweichung im Fokus des Objektivs erreichen. Dafür befindet sich im Fokus der zweiten Linse die rückseitige Fokusebene des Objektivs. Wird der Strahl jetzt von der optischen Achse weg gelenkt, so trifft er im Fokus der zweiten Linse auf die optische Achse und tritt in das Linsensystem des Objektivs ein (siehe Abb. 4.8, Foto in Abb. 4.10a).

Wenn ein Lichtstrahl unter einem Winkel in ein Objektiv eintritt, dann tritt der Strahl ebenfalls unter diesem Winkel wieder aus dem Objektiv aus. Für die Experimente wurde eine Kalibration des Scanspiegels vorgenommen. Dafür wurde in den Fokus des Objektivs ein Gitter mit einer Gitterkonstante von $10 \mu\text{m}$ positioniert.

Da die Probe für die Messungen bei Temperaturen von unter 10 K gehalten werden muss, befindet sich diese in einer Vakuumkammer, die auf $1 \cdot 10^{-6}$ mbar abge-

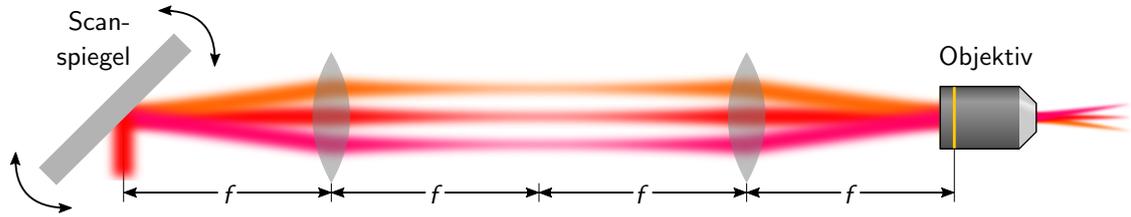


Abbildung 4.8: Strahlführung über den Scanspiegel und das telezentrische Linsensystem zum Mikroskopobjektiv. Gelb ist die rückseitige Fokusebene des Objektivs [69, 70].

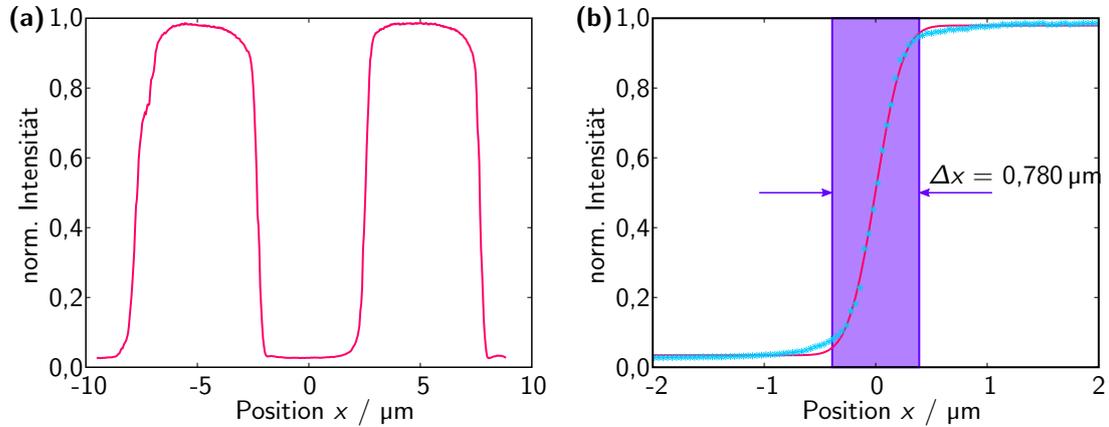


Abbildung 4.9: Messungen am Gitter mit einem Linienabstand $10\ \mu\text{m}$. **(a)** Intensitätsverteilung zur Kalibration des Scan-Spiegels. **(b)** Gemessene Flankensteilheit und Auflösung des Mikroskops.

pumpt wird. Aufgrund des geringen Abstands des Objektivs (Olympus MPlanFL N 100x/0.90 BD P, Arbeitsabstand 1 mm, $NA=0,90$, Vergrößerung 100-fach, polarisationserhaltend) zur Probenoberfläche befindet sich dieses ebenfalls im Vakuum. Die Auflösung des Mikroskops wurde an einer Kante des oben beschriebenen Kalibrationsgitters nachgemessen. Eine beispielhafte Messung ist in Abb. 4.9a zu sehen. Das Auflösungsvermögen des Mikroskops berechnet sich wie folgt [71]:

$$d \geq 0,61 \frac{\lambda}{NA} \quad (4.38)$$

Mit den bekannten Parametern des Objektivs und der Anregungswellenlänge des Lasers bei 780 nm ergibt sich eine theoretische Auflösung von 0,529 μm . Die experimentell bestimmte Auflösung liegt mit 0,780 μm etwas darüber. Der Verlauf einer Flanke der Gittermessung ist in Abb. 4.9b zu sehen.

Die Probe wird mit Silberleitlack auf einen Probenhalter aus Kupfer geklebt. Dieser wird dann in den Probenwärmetauscher eingeschraubt. Der Probenwärmetauscher wird von flüssigem Helium durchflossen und auf Temperaturen von 6 K bis 8 K gehalten.

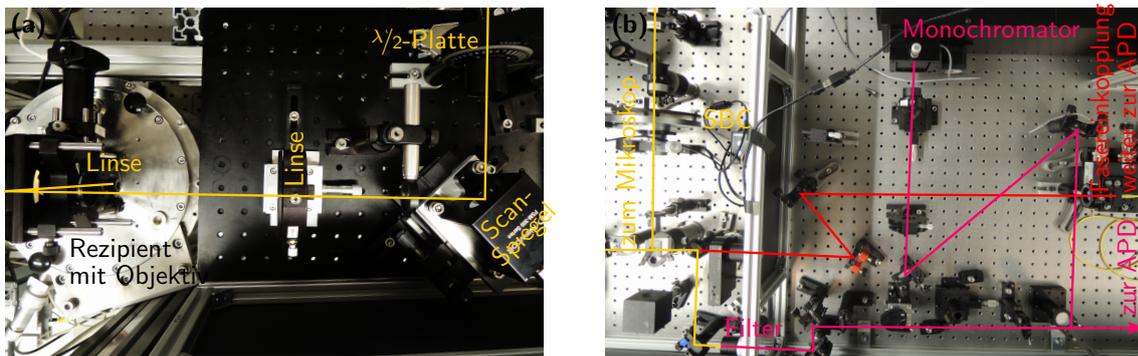


Abbildung 4.10: Fotos des Aufbaus zur Messung der Resonanzfluoreszenz **(a)** Strahlführung durch den konfokalen Aufbau zum Objektiv. **(b)** Strahlführung mit den unterschiedlichen Pfaden in der Detektion. Dabei wird bei der Lumineszenzmessung mit dem Monochromator oder einer APD detektiert, bei der Resonanzfluoreszenz mit einer zweiten APD, die über eine Einzelmodenfaser am Eingang verfügt.

Von der Probe läuft das Licht der Fluoreszenz und das reflektierte Anregelicht kolinear überlagert zurück durch den konfokalen Aufbau zur Halbwellenplatte. Dort wird das reflektierte Anregelicht wieder s-polarisiert und die Fluoreszenz hat dann eine gekippte Polarisation im Bezug auf das Anregungslicht. Danach wird das Licht wieder durch den 10:90 Strahlteilerwürfel geführt und 90 % des Lichts gehen in Richtung der Detektion. Dabei wird zuerst an einem weiteren Glan-Thompson-Prisma (B. Halle Nachfl., Unterdrückung von $1 \cdot 10^{-8}$) das Anregelicht abgeblockt, da dieser so eingestellt ist, dass die Transmission für s-polarisiertes Licht minimal ist, das Quantenpunktlicht wird nur teilweise blockiert, da die Polarisation nicht der des

anregenden Feldes entspricht. Danach wird das Licht in eine Einzelmodenfaser eingekoppelt und mit einer APD (MPD, PD050 CTB) gemessen (Foto in Abb. 4.10b).

Um die Quantenpunkte aufzufinden und zu charakterisieren, ist ein Lumineszenzaufbau in dem Aufbau zur Messung der Resonanzfluoreszenz integriert. Dafür wird ein grüner, diodengepumpter Festkörperlaser (Thorlabs, CPS532, Ausgangsleistung 4,5 mW), der an einem dichroitischen Spiegel (Chroma, ZT635rdc) mit dem nahinfraroten Laser kollinear überlagert wird, verwendet. Der weitere Aufbau ist der selbe wie in der Resonanzfluoreszenz. Jedoch wird vor dem zweiten Glan-Thompson-Prisma bei Fluoreszenzmessungen ein Spiegel in den Strahlengang geklappt, um das Fluoreszenzlicht detektieren zu können. Zuerst wird an zwei Bandpassfilter (Chroma, ET775/50 bei 532 nm OD 6 und Semrock, Brightline 786/22 bei 532 nm OD 5) das Anregelicht des grünen Lasers herausgeblockt und danach wird das Licht entweder mit einer Lawinenfotodiode (Excelitas, PCM CP 3516 H) oder auf einem Monochromator (Princeton Instruments, Acton SP2750) und einer CCD-Kamera (Princeton Instruments, Pixis 100BR) gemessen.

4.3 Messung der Unterdrückung durch die gekreuzte Polarisation

Da die Wellenlänge des Anregelichtes gleich der Wellenlänge des emittierten Lichts des Quantenpunkts ist, ist es nicht möglich das Anregelicht vor der Detektion mit Farbfiltern heraus zu filtern. Deshalb wird hier die gekreuzte Polarisation verwendet. Dafür wird, wie im vorhergehenden Abschnitt beschrieben, zwei Glan-Thompson-Polarisatoren mit einer spezifizierten Unterdrückung von $1 \cdot 10^{-8}$ verwendet.

4.3.1 Theoretische Vorüberlegungen

Zur Bestimmung der Unterdrückung wird zuerst der Analysator um 360° gedreht und die Intensitätsänderung mit einem Powermeter untersucht. Dabei wird die ungefähre Lage der beiden Minima bestimmt. Anschließend wird ein Minimum ausgesucht und an diesem mit einer APD die Intensität des transmittierten Lichts gemessen. Die Messung der Intensität mit der APD kann nur im Minimum erfolgen, um die APD nicht zu beschädigen. Außerdem würde das Drehen des Glan-Thompson-Prismas aufgrund seiner Dicke zu einem Strahlversatz an der Einkopplung zur Einzelmodenfaser führen und so das Ergebnis verfälschen. Deshalb wird nur die Intensität in einem Gebiet von $\pm 2^\circ$ um das Minimum gemessen. An die Messdaten wird eine \sin^2 -Funktion angepasst, anhand dessen Maximum die Unterdrückung schließlich berechnet wird. Für die Anpassung der Funktion wird der dekadische Logarithmus zuerst auf die Messdaten angewendet, um im Bereich des Minimums eine möglichst große Flankensteigung

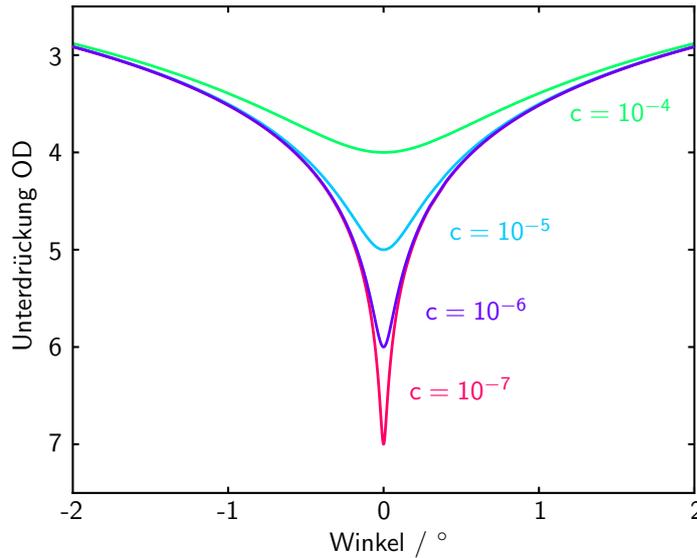


Abbildung 4.11: Verlauf der Unterdrückung bei verschiedenen Winkeln für verschiedene Werte der maximal erreichbaren Unterdrückung.

zu erhalten, wie z.B. in [62] beschrieben. Die dann verwendete Ausgleichsfunktion lautet:

$$I(\alpha) = A + \log_{10} \left(\frac{\sin^2(\alpha + \delta) + c}{c} \right) \quad (4.39)$$

Dabei ist δ die Abweichung der tatsächlichen Position des Minimums von der erwarteten Position und c ist die Unterdrückung. A ist nur eine konstante Verschiebung der Intensität, bedingt durch das Rauschen der APD. Die erwartete Nullposition ist bei 0° . Um die Unterdrückung in optischer Dichte (OD) zu erhalten, muss in einem weiteren Schritt der Funktionswert der Ausgleichsfunktion 4.39 bei 90° bestimmt werden. Das ist die theoretische Position der maximalen Transmission des Analysators. Dieses Ergebnis anschließend von der ermittelten Ausgleichsfunktion 4.39 abgezogen. Damit gibt der Funktionswert des Minimums die Unterdrückung in OD an. Der Intensitätsverlauf dieser Funktion ist für verschiedene Unterdrückungswerte in Abb. 4.11 dargestellt. Wird z.B. eine Unterdrückung des Anregelichts von $1 \cdot 10^{-6}$ benötigt und die maximal erreichbare Unterdrückung beträgt $1 \cdot 10^{-7}$, so muss der Winkel des Analysators auf $\pm 0,054^\circ$ genau eingestellt werden. Dafür ist eine sehr präzise einstellbare Mechanik notwendig. In den Experimenten wird deshalb dafür eine motorisierte Montierung verwendet.

4.3.2 Unterdrückungsmessungen

Für die Messung der Unterdrückung wird die an einem GaAs-Substrat reflektierte Intensität bei Raumtemperatur für verschiedene Positionen des Analysators durch-

geführt. Dabei wird die Position des Analysators im Bereich von $\pm 1,5^\circ$ in $0,1^\circ$ -Schritten bewegt. Bei jeder Position des Analysators wurden 1000 Messpunkte mit einer Integrationszeit von 0,01 sec aufgenommen. Die erhaltenen Messdaten sind in Abb. 4.12a zu sehen. Dabei konnte eine Unterdrückung von $4,15 \cdot 10^{-6}$ erreicht werden.

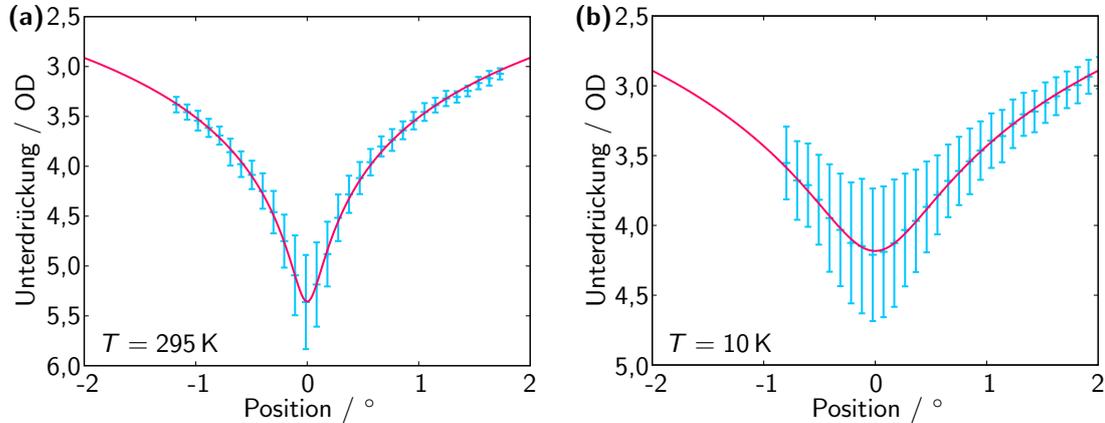


Abbildung 4.12: Gemessene Unterdrückung des Resonanzfluoreszenzaufbaus bei verschiedenen Temperaturen. **(a)** Gemessen bei Raumtemperatur. **(b)** Gemessen am 10 K kalten GaAs-Substrat.

Danach wird die Messung noch einmal bei 10 K wiederholt. Dabei wird eine Unterdrückung von $6,3 \cdot 10^{-5}$ erreicht. Diese ist deutlich geringer als bei Raumtemperatur. Eine mögliche Ursache für den großen Unterschied zwischen der Messung bei Raumtemperatur und der Messung bei tiefen Temperaturen ist ein Temperaturübertrag von der 10 K kalten Probe auf das Mikroskopobjektiv, das bei Raumtemperatur ist. Dass dabei eine Abkühlung der Objektivspitze eintritt, wurde in Abschnitt 2.3 gezeigt. Dies kann zu einer Veränderung der optischen Eigenschaften und des Fokus führen, da das Objektiv auf Raumtemperatur angepasst ist. Als Abhilfe könnte ein Aluminiumzylinder über das Objektiv gestülpt werden, um Wärme von der Aufhängung des Objektivs zur Objektivspitze zu transportieren und den Einfluss von der Probe und dem Kaltschild auf das Objektiv zu minimieren.

Ebenfalls ist der Probenhalter in das Kaltschild eingeschraubt, dieses ist über drei Edelstahlstangen mit einem Aluminiumzylinder auf den Fahrtischen montiert. Aufgrund der Wärmeleitfähigkeit von Aluminium wird die Temperatur durch den Zylinder nach unten abgeleitet. Durch die Abkühlung des Zylinders ändert sich die Länge des Zylinders und die Probe sinkt nach unten. Deshalb sind regelmäßige Korrekturen des Fokus nach unten notwendig. Um diese Probleme zu minimieren wurde der Aluminiumzylinder durch einen Edelstahlzylinder mit geringerer Querschnittsfläche ersetzt. Aufgrund der schlechten Wärmeleitfähigkeit wird jetzt weniger Wärme in den Zylinder transportiert [72, 73].

4.3.3 Zeitliche Stabilität

In einem weiteren Schritt wird die zeitliche Stabilität des Minimums untersucht. Dazu wird die Messung der Tiefe und der Position des Minimums mehrfach hintereinander wiederholt. Die einzelnen Messungen wurden, genauso wie in Abschnitt 4.3.2 beschrieben, durchgeführt. Die Stellung des Soleil-Babinet-Kompensators und der Halbwellenplatte vor dem Mikroskop bleibt während der Messreihe unverändert. Die Gesamtmesszeit beträgt 310 s. Die Daten werden wie oben beschrieben analysiert. Aus der berechneten Ausgleichsfunktion ergibt sich die Tiefe des Minimums und dessen Position. Der Verlauf von Position und Tiefe des Minimums in einer Stunde ist in Abb. 4.13 dargestellt.

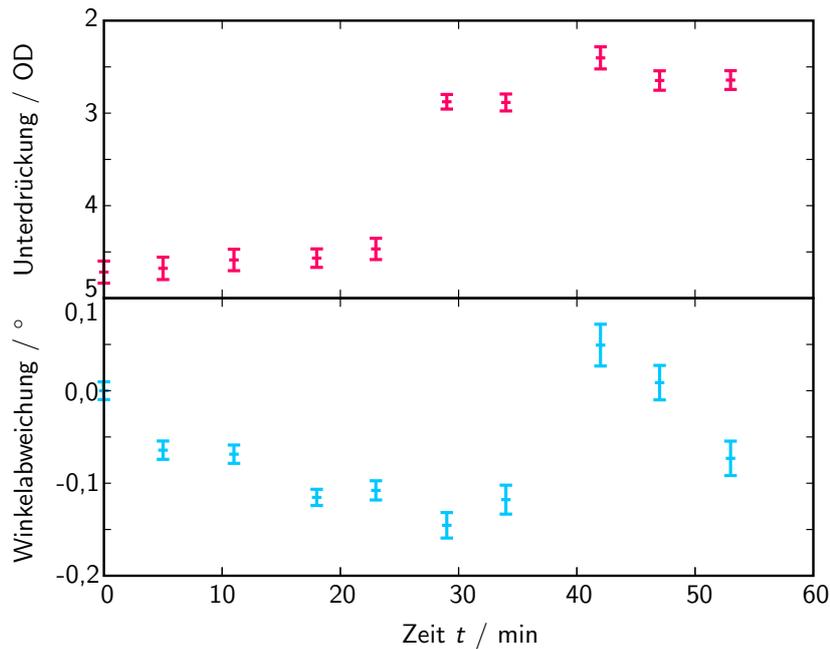


Abbildung 4.13: Zeitliche Stabilität der Unterdrückung bei Raumtemperatur. Im oberen Teil ist die Unterdrückung in OD zu sehen, im unteren Teil die Position des Analysators. Die Messdaten sind im Anhang in Abb. A.1 zu sehen.

Hierbei ist zu sehen, dass das Minimum für etwa 25 min stabil ist und dann die Unterdrückung stark abnimmt. Die Position des Minimums hingegen schwankt die gesamte Zeit über um einen Wert von etwa $0,1^\circ$. Eine Winkeländerung um $0,1^\circ$ bedeutet bei einer Unterdrückung von $1 \cdot 10^{-6}$ eine Änderung der Unterdrückung auf $4 \cdot 10^{-6}$, bei einer Unterdrückung von $1 \cdot 10^{-7}$ sinkt sie auf $3 \cdot 10^{-6}$. Die Abweichung in der gemessenen Position des Minimums kann daher kommen, dass die wiederholte Anfahrt einer bestimmten Position mit dem Motor (Thorlabs PRM1Z8), der den Analysator bewegt, nicht so genau durchführbar ist, um die Position des ermittelten Minimums erneut anzufahren. In der Beschreibung des Motors wird als Abweichung für die erneute Anfahrt einer Position eine Abweichung von $\pm 0,1^\circ$ angegeben. Damit ist die im

Experiment beobachtete Abweichung der Position des Minimums erklärbar. Die Drift der Unterdrückung nach 30 Minuten wird eine andere Ursache haben. Hier ist eine Möglichkeit, dass minimale Bewegungen in der mechanischen Aufhängung von optischen Komponenten auftreten. Diese führen dann zu einer geringen Veränderung des vorliegenden Polarisationszustands des reflektierten Laserlichts. Um die ursprünglich erreichte Unterdrückung wieder zu erreichen, ist eine Korrektur der Verzögerung am Soleil-Babinet-Kompensator notwendig.

4.3.4 Räumliche Lage des Minimums

Für die Einkopplung des Strahls in die Einzelmodenfaser vor der APD ist das Faserende auf einem Fahrtisch montiert, der das Ende in die drei Raumrichtungen um jeweils $10\ \mu\text{m}$ verschieben kann. Dies erfolgt mit piezoelektrischen Linearaktuatoren im Fahrtisch. Zur Kontrolle der räumlichen Lage des Minimums wird das auf dem Fahrtisch montierte Faserende durch den Fokus der Einkoppellinse bewegt. Dabei wird die Intensität der APD an 2500 verschiedenen Positionen gemessen und an der entsprechenden Stelle aufgetragen. So entsteht für jede Analysatorposition eine Karte der Intensitätsverteilung im Fokus des Faserkopplers. Aus den einzelnen Intensitätsmessungen wird für jede einzelne Position die Unterdrückung wie oben beschrieben berechnet. Eine Messung, bei der die Intensität in einem Bereich von $5\ \mu\text{m}$ nach links bzw. rechts sowie nach oben und unten gemessen wurde, ist in Abb. 4.14 zu sehen. Dabei wurde der Analysator in einem Bereich von 4° um die erwartete Minimaposition gedreht. Darin ist zu sehen, dass die Unterdrückung in den Bereichen des Strahls größer, in denen die Intensität am höchsten ist. Das liegt daran, dass bei

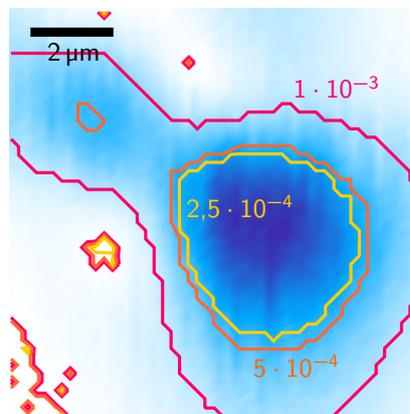


Abbildung 4.14: Vergleich zwischen der Intensität des Minimums und der Stärke der Unterdrückung. Dabei stellt die Farbkarte im Hintergrund die Intensität in Abhängigkeit der Faserposition dar und die Konturlinien im Vordergrund geben die Stärke der Unterdrückung an. Dabei ist zu sehen, dass in den Bereichen, an denen die Intensität des an der Probe reflektierten Laserstrahls am höchsten ist, auch die Unterdrückung groß ist.

geringen Strahlintensitäten das Signal-zu-Rausch-Verhältnis an der APD schlechter wird und im Minimum die Intensität am Rand im Rauschen untergeht. Dass die maximale Unterdrückung hierbei eher gering ist liegt an der deutlich größeren Messdauer dieser Abbildung, da die Messung an in einem Quadrat von 50×50 Punkten erfolgt.

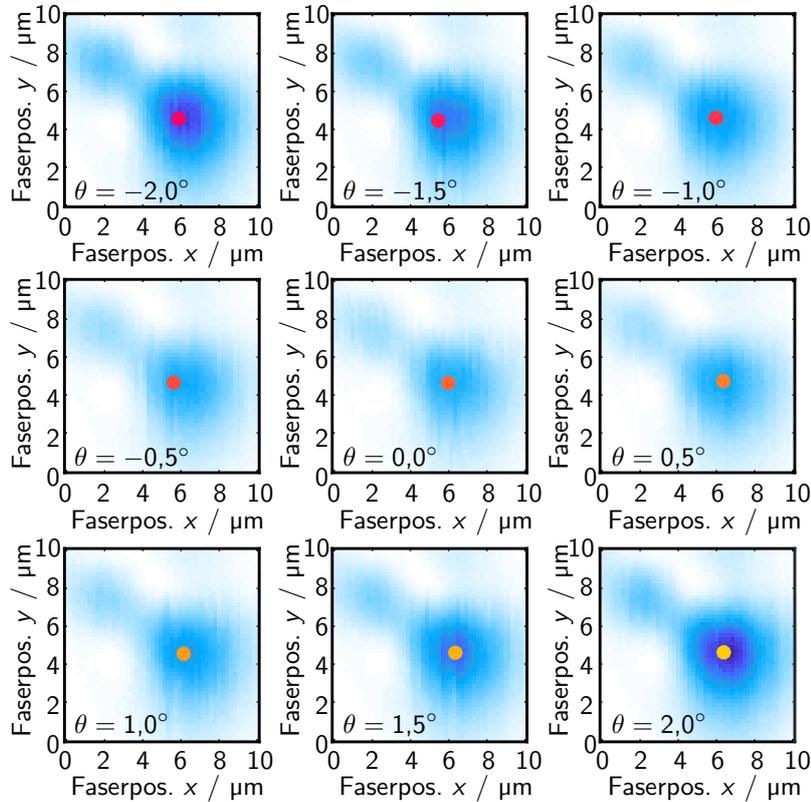


Abbildung 4.15: Gemessene Intensität hinter der Faser für verschiedene Positionen der Faserspitze. In den einzelnen Abbildungen sind verschiedene Winkel des Analysator-Prismas θ dargestellt. Der Messfehler der Maximabestimmung ist kleiner als die farbigen Punkte.

Aus den gemessenen Intensitäten an den verschiedenen Faserpositionen wird die Position der größten Intensität bestimmt. Dies erfolgte durch die Bestimmung des Mittelwerts in x- und y-Richtung an den 10 Punkten, die die größte Intensität aufweisen. Für neun verschiedene Winkel ist dies in Abb. 4.15 zu sehen. Die Standardabweichung in x-Richtung der so bestimmten Punkte beträgt zwischen $0,15 \mu\text{m}$ und $0,20 \mu\text{m}$. Nur bei der Analysatorposition von 0° beträgt diese $0,4 \mu\text{m}$. Dies ist die Position mit der geringsten, gemessenen Gesamtintensität, wodurch die Positionsbestimmung des Intensitätsmaximums durch das Rauschen erschwert wurde. Wird der Fehler in y-Richtung betrachtet, so ist dieser deutlich größer als die Streuung der Messpunkte. Die Position dieser Punkte sind für alle gemessenen Analysatorwinkel Winkel in Abb. 4.16 dargestellt. Da der Drehwinkel des Analysators nur 4° beträgt,

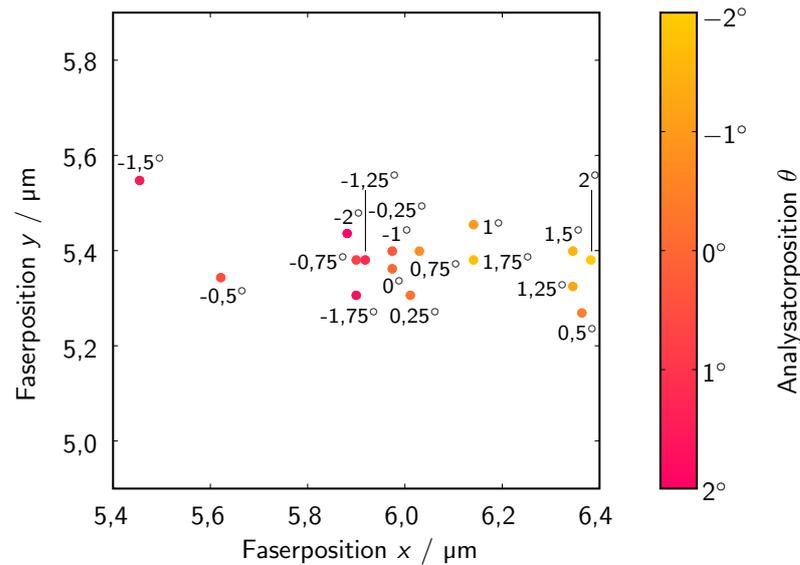


Abbildung 4.16: Position der maximalen Intensität bei verschiedenen Analysator-Positionen. Die Position des Analysators θ wird durch die Farbe der Punkte angegeben.

bewegen sich die Punkte alle annähernd auf einer Linie. Wird der Verlauf der Punkte bei verschiedenen Winkeln betrachtet, so ist zu erkennen, dass die Position des Maximums nicht exakt an einem Punkt bleibt, sondern etwas zur Seite driftet. Eine mögliche Ursache dafür ist eine nicht ideale Justage des Analysators. Das Glan-Thompson-Prisma, das als Analysator dient, hat eine Länge von 30 mm. Durch eine nicht perfekte Strahlführung in diesem Prisma kommt es bereits bei einem geringen Drehwinkel zu einer größeren, räumlichen Abweichung. Wird die Strahlablenkung durch einen 30 mm langen Calcitblock untersucht, so ergibt sich für eine Strahlabweichung von $0,45 \mu\text{m}$ bei einem Drehwinkel von 4° eine Abweichung des einfallenden Strahls von der optischen Achse des Glan-Thompson-Polarisators von unter $0,1^\circ$.

4.4 Zusammenfassung

Zu Beginn des Abschnitts wurden die Unterschiede zwischen Fluoreszenz und der Resonanzfluoreszenz beschrieben. Bei der Resonanzfluoreszenz wird ein Zwei-Niveau-System mit einer Lichtwelle beschienen, deren Frequenz mit der Frequenz des Übergangs in dem untersuchten Zwei-Niveau-System übereinstimmt. Das elektrische Feld dieser Welle regt den Dipol des Quantensystems an. Danach kann das System nicht weiter angeregt werden. Strahlt der Dipol die Energie wieder ab, so befindet sich das System wieder im Grundzustand und kann erneut angeregt werden. Die Polarisation der emittierten Lichtwelle entspricht der Polarisation des Dipols des Quantenpunkts. Aufgrund der hohen Feldstärke des anregenden Feldes, bilden sich im Fall der exakten Resonanz dressed states aus, die aus einer Überlagerung der beiden Zustände

des Zwei-Niveau-Systems mit dem Photonenzustand entstehen. Dadurch bilden sich im Spektrum drei Spitzen aus, wobei die Mittlere exakt bei der Übergangsenergie ist und die beiden äußeren, schwächeren Peaks jeweils um die Rabi-Frequenz Ω_R verschoben sind. Anschließend wurde die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ berechnet und gezeigt, dass diese zur Zeit $\tau = 0$ null ist. Das bedeutet, dass die Resonanzfluoreszenz als Einzelphotonenquelle genutzt werden kann und dabei immer nur ein Photon zeitgleich emittiert wird.

Anschließend wurde auf den in den Experimenten verwendeten Aufbau eingegangen. Dieser Aufbau besteht aus einem sehr schmalbandigen durchstimmbaren Laser, der zuerst mit einem Glan-Thompson-Prisma linear polarisiert wird. Danach wird der Strahl in ein konfokales Mikroskop geführt, in dessen Fokus der Strahl auf die Probe trifft. In der Detektion wird das Anregelicht mit einem zweiten Glan-Thompson-Prisma heraus geblockt und danach in eine Einzelmodenfaser eingekoppelt und mit Hilfe einer Lawinenphotodiode detektiert. Zur Charakterisierung des Aufbaus wurde die Intensität des Lasers hinter der Einzelmodenfaser für verschiedene Analysatorpositionen mit der APD gemessen. Dabei hat sich gezeigt, dass eine Unterdrückung von $4,15 \cdot 10^{-6}$ erreichbar ist. Danach wurde diese Messung bei tiefen Temperaturen im Kryostat wiederholt. Dabei war eine Unterdrückung von $6,3 \cdot 10^{-5}$ zu erreichen. Mögliche Ursachen für diese schlechtere Unterdrückung wären eine thermische Drift im Mikroskopobjektiv oder das Kaltschild des Kryostaten kühlt seine Aufhängung. Dadurch kann es zu einer Drift des Fokus auf der Probe kommen. Danach wurde noch bei Raumtemperatur die Stabilität des Minimums überprüft. Dabei war zu sehen, dass die Position des Minimums nicht ausreichend stabil ist. Eine mögliche Ursache dafür wäre eine unzureichende Stabilität in der motorisierten Analysatormontierung, sodass die Minimumposition nicht präzise mehrfach wieder angefahren werden konnte. Ebenfalls war die Tiefe des Minimums für ca. 30 min stabil, danach sank die Unterdrückung deutlich. Das kann daran liegen, dass sich die Justage an Komponenten im Strahl verschob und dadurch die Einstellung des Soleil-Babinet-Kompensators nicht mehr korrekt war.

Am Ende wurde noch die Faser in einem Feld von $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$ durch den Fokus bewegt um den Bereich des Minimums genauer zu untersuchen. Dabei wurde beobachtet, dass die Tiefe des Minimums viel schlechter ist als bei der Messung an einem Punkt. Eine mögliche Erklärung wäre, da diese Messung sehr viel Zeit benötigt hat, dass während der Messung das Minimum bereits weggedriftet ist und die Messdaten ausgeschmiert sind.

5 Anrege-Abfrage-Experimente

Anrege-Abfrage-Experimente werden häufig genutzt um den zeitlichen Verlauf der Dynamik eines Systems abzubilden [74]. Dafür werden zwei gepulste Laserstrahlen auf die zu untersuchende Probe geführt. Je kürzer die Laserpulse sind, desto höher ist die erreichbare Zeitauflösung. Der Aufbau eines solchen Experiments ist schematisch

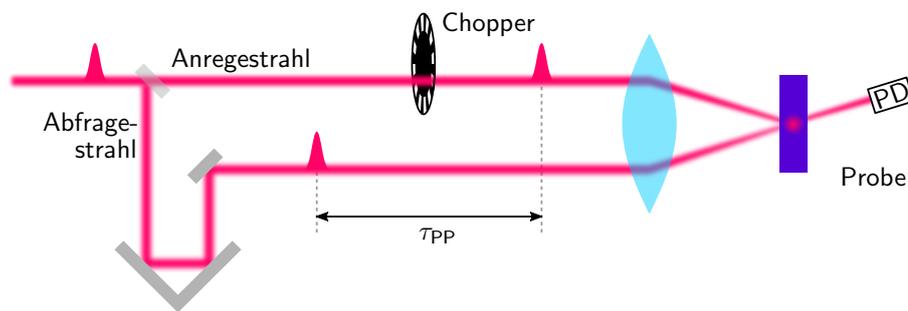


Abbildung 5.1: Funktionsprinzip eines Anrege-Abfrage-Experiments.

in Abb. 5.1 dargestellt. Dabei wird die Probe einmal angeregten Zustand gemessen und einmal im Grundzustand [74]. Dafür wird im Experiment die Probe zu einem Zeitpunkt t_0 mit dem Anrege-laser beschienen und in einen angeregten Zustand versetzt. Zum Zeitversatz τ_{PP} später trifft ein Puls des Abfrage-lasers auf die Probe. Dort wird er, je nach Material und verwendetem Aufbau, an der Probe transmittiert oder reflektiert und weiter zum Detektor geführt. Danach wird die Probe noch ein zweites Mal im Grundzustand gemessen. Dabei wird am Chopper das Anrege-licht geblockt und erreicht die Probe nicht. Somit ist zum Zeitpunkt τ_{PP} die Probe noch im Grundzustand. Danach wird aus den Messdaten das Intensitätsverhältnis $\Delta T/T$ (in Reflexionsexperimenten $\Delta R/R$) berechnet [74].

Damit es möglichst keinen Jitter gibt, ist es notwendig, dass der Zeitversatz τ_{PP} zwischen Anrege-puls und Abfrage-puls konstant ist. Um dies zu erreichen ist es notwendig, dass beide Laserstrahlen die gleiche Repetitionsrate besitzen. Dafür wird in der Regel ein Laser verwendet, der eine feste Repetitionsrate besitzt. Dieser Laserstrahl wird in zwei Teilstrahlen aufgespalten.

In diesen Experimenten wird eine Quantenpunkt-Probe, wie in Abschnitt 3.2.2 beschrieben, benutzt. Auf dieser wird mit Hilfe von Lumineszenz ein einzelner Quantenpunkt ausgesucht und mit Anrege-Abfrage-Experimenten untersucht.

Dabei kann durch einen Laserpuls des Anregelasers der Quantenpunkt, z.B. zu Rabi-Oszillationen, angeregt werden. Diese wurden bereits in Abschnitt 3.3 beschrieben. Diese Oszillationen können danach mit einem Puls des Abfragelasers abgetastet werden [21].

Um ein ausreichend großes Signal-zu-Rausch-Verhältnis zu erreichen, musste bei den in [22] Experimenten recht lange gemessen werden. Um dieses Experiment zu beschleunigen wird die Repetitionsrate des anregenden Lasers erhöht, um in der selben Zeit mehr Laserpulse zu erhalten. Dies ist möglich, da die Lebensdauer des Exzitons bei ca. 200 ps ist [22] und der zeitliche Abstand zweier Laserpulse des verwendeten Systems bei 12 ns beträgt. Ebenfalls wird die Detektion beschleunigt, indem eine schnelle Zeilenkamera wie in [23] verwendet wird.

5.1 Aufbau zur Anrege-Abfrage-Spektroskopie

Für diese Experimente werden zwei Titan-Saphir-Kurzpuls laser (kurz Ti:Saphir-Laser) benutzt (Laser Quantum, Gigajet twin c/c). Diese beiden Laser werden von einem diodengepumpten Nd:YVO₄- Festkörperlaser (Laser Quantum, Finesse Pure) bei 532 nm mit jeweils 5 W gepumpt. Eine Übersicht über den Strahlverlauf im Resonator ist in Abb. 5.2 zu sehen. Die Laser sind soft-aperture-Kerrlinsenmodenkoppelt und haben eine Pulslänge von 40 fs. Die Repetitionsrate der Laser liegt bei $f_{\text{Rep}} = 1$ GHz. Damit die Repetitionsrate bei beiden Lasern gleich ist, verfügt

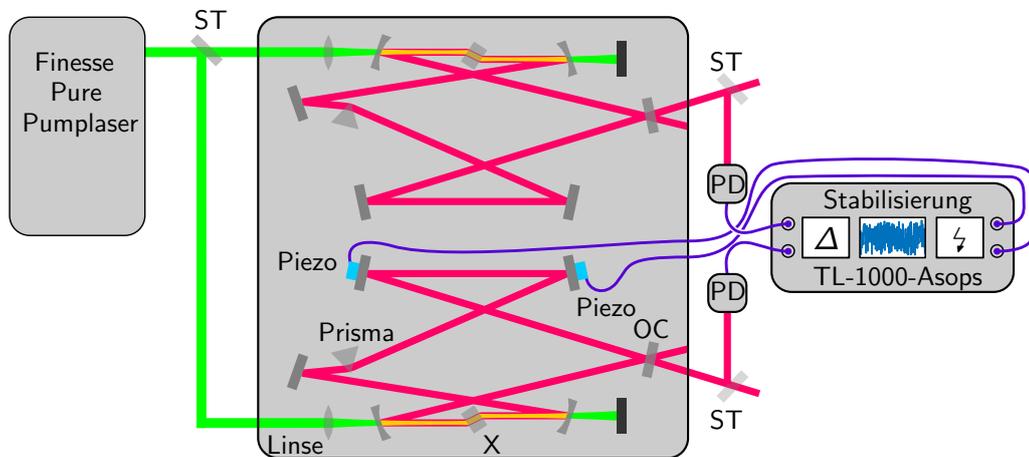


Abbildung 5.2: Skizze des Aufbaus des verwendeten Ti:Saphir-Lasersystems. Grün ist die Strahlführung des Pumplichts, rot die Strahlführung des Ti:Saphir-Lichts und gelb ist die Überlagerung der beiden Strahlen. Blau sind die beiden Piezos zur Anpassung der Repetitionsrate. Das Prisma ist zur Wellenlängenselektion im Resonator vorhanden. Hier steht ST für Strahlteiler, OC für Auskoppelspiegel, X für den Faserkristall und PD für Photodiode. Nach [75].

einer der beiden Resonatoren über zwei piezoelektrische Linearaktuatoren (kurz Piezos), mit denen die Resonatorlänge über einen Regelkreis angepasst wird. Dafür wird direkt hinter dem Laser mit zwei schnellen Photodioden die Repetitionsrate gemessen. Zur Kopplung der beiden Laser wird das Spektrum des Signals der beiden Photodioden betrachtet. Darin lässt sich der Peak bei der Repetitionsrate des entsprechenden Lasers erkennen. Die Repetitionsraten der beiden Laser werden zuerst durch Verschieben des Auskoppelspiegels in einem der beiden Laserresonatoren zur Übereinstimmung gebracht. Anschließend wird die Regelung (TL-1000-Asops, Laser Quantum) gestartet. Aus den gemessenen Signalen der Photodioden wird dabei ein Fehlersignal erzeugt, das in Hochspannungssignale für die Piezos gewandelt wird. Damit wird die Resonatorlänge verändert und die Repetitionsrate der beiden Laser auf eine an der Regelung eingestellte Frequenzdifferenz Δf angepasst [76]. Bei den Experimenten wird $\Delta f = 0$ Hz gewählt.

Die Wellenlänge des Emissionsmaximums der Laser kann mit einem im Resonator verbauten Prisma angepasst werden. Dies wird zur Anpassung der Wellenlänge des Lasers an die Exziton-Linie der Quantenpunkte genutzt. In den Versuchen wurde das Emissionsmaximum auf 785 nm gewählt.

Der Versuchsaufbau für die Anrege-Abfrage-Experimente wird im Folgenden beschrieben (siehe Abb. 5.3). Die beiden Laserstrahlen werden jeweils durch einen Pulsformer geführt, wie in Abb. 5.4 dargestellt, damit das Spektrum des Lasers an das Exziton des Quantenpunkts angepasst werden kann. Die Pulsformer bestehen aus einem Volumen-Bragg-Gitter mit 900 Linien/mm (Wasatch Photonics), die den Strahl in seine einzelnen Spektralanteile aufspalten. Dahinter folgt eine Linse, in deren Brennpunkt das Gitter steht. Auf der anderen Seite befindet sich ein Spiegel im Brennpunkt der Linse. Zur besseren Verdeutlichung ist in Abb. 5.4 ein nicht gefalteter Pulsformer ohne Spiegel dargestellt. Vor diesem Spiegel befinden sich zwei Blenden in der Fourierebene des Pulsformers [74, 77]. Durch diesen gefalteten Aufbau ist nur eine Linse und ein Gitter notwendig. Danach führt der Strahl zurück durch die Linse und das Gitter und führt über den Einkoppelspiegel des Pulsformers (Foto in Abb. 5.5a). Hier wird das Spektrum so beschnitten, dass die spektrale Breite etwa 1 nm mittig um die Wellenlänge der Exzitonlinie liegt.

Der Strahl des Abfragelasers führt über eine Verzögerungsstrecke zu einem akustooptischen Modulator, kurz AOM (Opto-Electronic, MT110-A1.5-IR), der als Chopper genutzt wird. Der Pumpstrahl wird ebenfalls durch einen AOM (Opto-Electronic, MT110-A1.5-IR) geführt, um den Strahl modulieren zu können. Danach wird die Polarisation der beiden Strahlen an zwei Halbwellenplatten senkrecht zu einander polarisiert und in einem polarisierenden Strahlteilerwürfel kolinear überlagert (Foto in Abb. 5.5b). Durch die optischen Eigenschaften der AOMs sind die überlagerten Laserstrahlen nicht gaußförmig. Um dies wieder zu erreichen, wird der Laserstrahl fokussiert und durch eine Lochblende geführt.

An dem 10:90-Strahlteilerwürfel wird bei diesem Experiment der 90%-Anteil des Strahls genutzt, um die Lage der Pulse der beiden Ti:Saphir-Laser zueinander zu

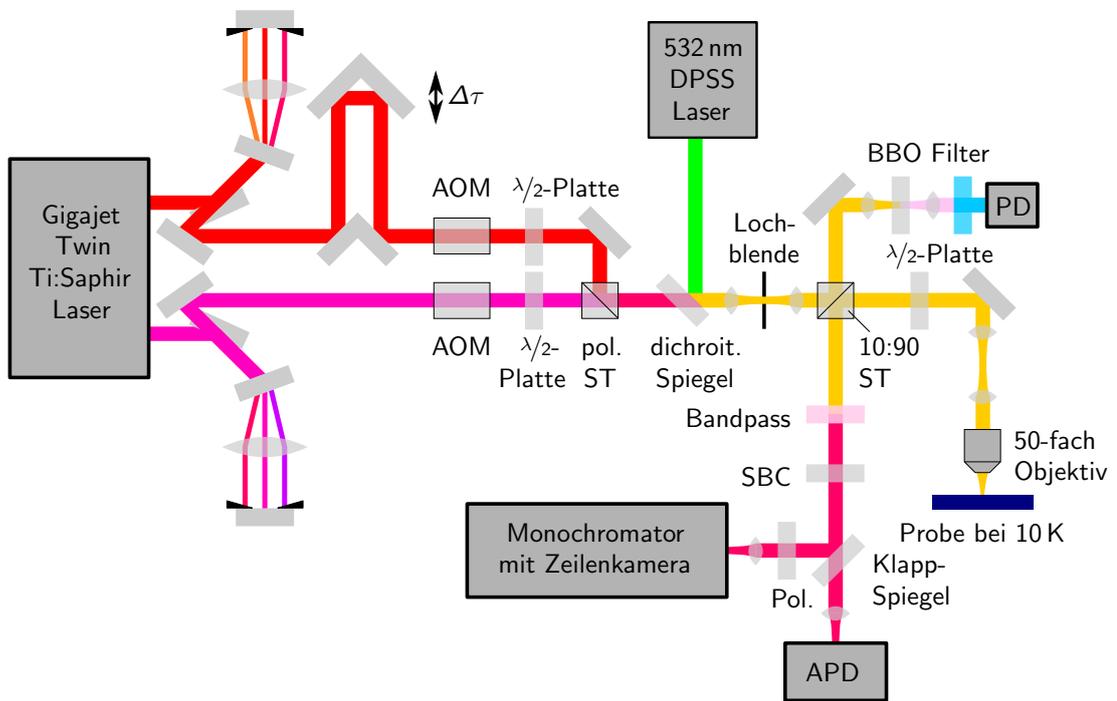


Abbildung 5.3: Skizze des experimentellen Aufbau für die schnellen Anrege-Abfrage-Spektroskopie. ST: Strahlteiler, pol. ST: polarisierender Strahlteiler, Pol.: Polarisator.

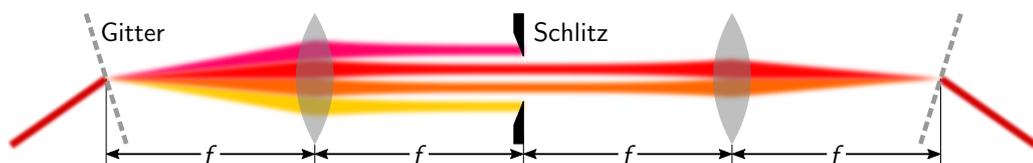


Abbildung 5.4: Aufbau eines Pulsformers. Dieser besteht aus einem Gitter, der den Strahl in die Spektralanteile aufspaltet, eine Linse, zwei Rasierklingen in der Fourierebene einer zweiten Linse und einem zweiten Gitter.

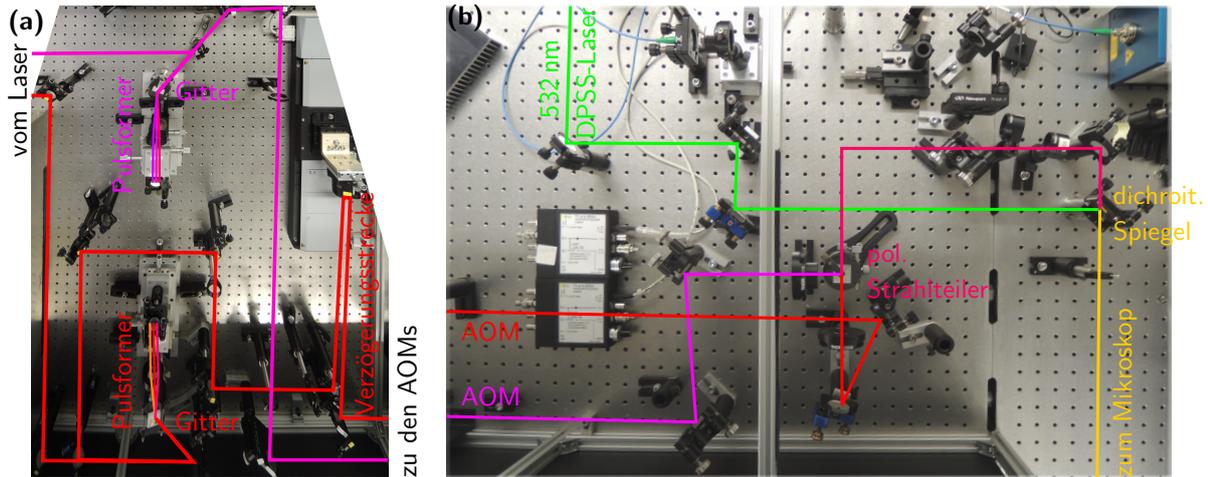


Abbildung 5.5: Fotos der Strahlführung der beiden Laserstrahlen zur Probe bei der Anrege-Abfrage-Spektroskopie. **(a)** Die beiden Laserstrahlen werden durch den jeweiligen Pulsformer geführt und der Abfragestrahl (rot) danach noch über die Verzögerungsstrecke, um die Länge des optischen Weges anzupassen. **(b)** Anschließend werden die beiden Strahlen durch die AOMs geführt und danach an einem polarisierenden Strahlteiler kolinear überlagert und am folgenden dichroitischen Spiegel wird der grüne Laserstrahl ebenfalls kolinear mit den beiden roten Strahlen überlagert.

bestimmen. Dafür wird die Kreuzkorrelation zwischen dem Anrege- und dem Abfragestrahl bestimmt. Hier werden die Strahlen in einen 0,8 mm dicken β -Bariumborat-Kristall (kurz BBO-Kristall) fokussiert und dort eine Summenfrequenz erzeugt. Dieses Licht wird mit zwei Schottgläsern (BG62) herausgefiltert und auf einer Photodiode gemessen. Aufgrund der selben Repetitionsrate ist der zeitliche Abstand zwischen zwei Laserpulsen beider Laser identisch, jedoch der zeitliche Abstand zwischen den Pulsen des ersten und des zweiten Lasers schwankt mit jedem Start der Regelschleife. Deshalb muss nach jedem Start der Regelschleife die zeitliche Lage der Laserpulse neu bestimmt werden. Dafür wird die Verzögerungsstrecke des Abfragelasers genutzt. Dabei wird die Intensität des Summenfrequenz-Signals auf der Photodiode maximiert. Die Position dieses Maximums ist dann die Nullposition für die nächsten Messungen. Von dieser Position ausgehend kann dann der Zeitversatz zwischen Anrege- und Abfragestrahl bestimmt werden.

Der 10%-Anteil des Laserstrahls am Strahlteiler wird für das Anrege-Abfrage-Experiment verwendet. Dafür wird das Licht durch einen konfokalen 4- f -Aufbau, wie im Abschnitt 4.2 beschrieben, in die rückseitige Fokusebene eines 50-fach Mikroskopobjektivs (Olympus LCPlan 50-fach, Arbeitsabstand 5 mm, NA 0,65) geleitet. Die Probe wird mit einem Pfannenkryostat (Cryovac, Pfannenkryostat Typ Micro) auf Temperaturen von ca. 10 K gekühlt.

Das Licht wird an der Probe reflektiert und läuft den selben Weg zurück. Dann

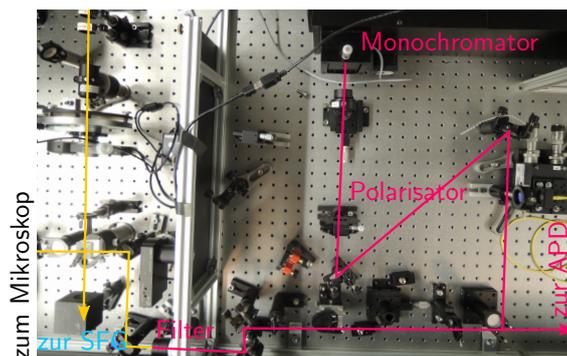


Abbildung 5.6: Foto der Detektion des Aufbaus zur schnellen Anrege-Abfrage-Spektroskopie.

schließt sich an dem 90:10-Strahlteilerwürfel in 90%-Richtung die Detektion an. Hier wird zunächst das Pumplicht mit Hilfe eines Polarisators herausgeblockt. Damit dies möglich ist, steht ein Soleil-Babinet-Kompensator (Thorlabs, SBC-VIS) davor. Mit einer am Monochromator angeschlossenen Zeilenkamera (e2v, AVIIVA EM4, BA0, Pixelgröße $10\ \mu\text{m}$, Bildrate bis zu $126\ \text{kHz}$) kann das Spektrum des Abfragestrahls gemessen werden. Die Kamera wird mittels eines Framegrabbers (Matrox Solios eCLXCL) ausgelesen (Foto in Abb. 5.6).

Um die Quantenpunkte vorher zu analysieren und die Lage des Exzitons zu bestimmen, ist hier, wie in dem Resonanzfluoreszenzaufbau, ein Lumineszenzaufbau integriert. Die Einkopplung des grünen Laserstrahls erfolgt identisch zu dem Resonanzfluoreszenzaufbau. In der Detektion stehen zwei Filter (Chroma ET775/50 und Semrock 786/22 BrightLine HC), um das Licht des Lumineszenzlasers heraus zu filtern, die das Licht des Abfragelasers sowie das Fluoreszenzlicht ungehindert passieren lassen. Die Detektion erfolgt danach ebenfalls wieder entweder mit einer Lawinenfotodiode oder mit Hilfe des Monochromators und der CCD-Kamera.

5.2 CCD-Kamera und Framegrabber

Ein CCD-Sensor ist ein Halbleiter-Bauelement, mit dem einfallendes Licht detektiert werden kann. Dieser besteht aus einer Metall-Oxid-Halbleiter-Struktur (engl. metal-oxide-semiconductor, kurz MOS). Er ist mit einem MOS-Kondensator vergleichbar. Dieser besteht in der Regel aus einem p-dotierten Siliziumsubstrat. Darüber liegt als Isolator eine dünne Schicht aus Siliziumoxid (SiO_2) [78, 79]. Als oberste Schicht befinden sich Metallelektroden darauf. Von dieser Seite trifft das Licht im Betrieb auf den Sensor. Typische Pixelgrößen liegen zwischen $1\ \mu\text{m}$ und $20\ \mu\text{m}$. Durch das Anlegen von elektrischen Feldern an den Elektroden wird die Bandstruktur unter diesen so verschoben, dass sich Töpfe für Elektronen unter den Pixeln bilden. Trifft Licht auf solch ein Pixel, bildet sich ein Elektronen-Loch-Paar. Das Elektron wird

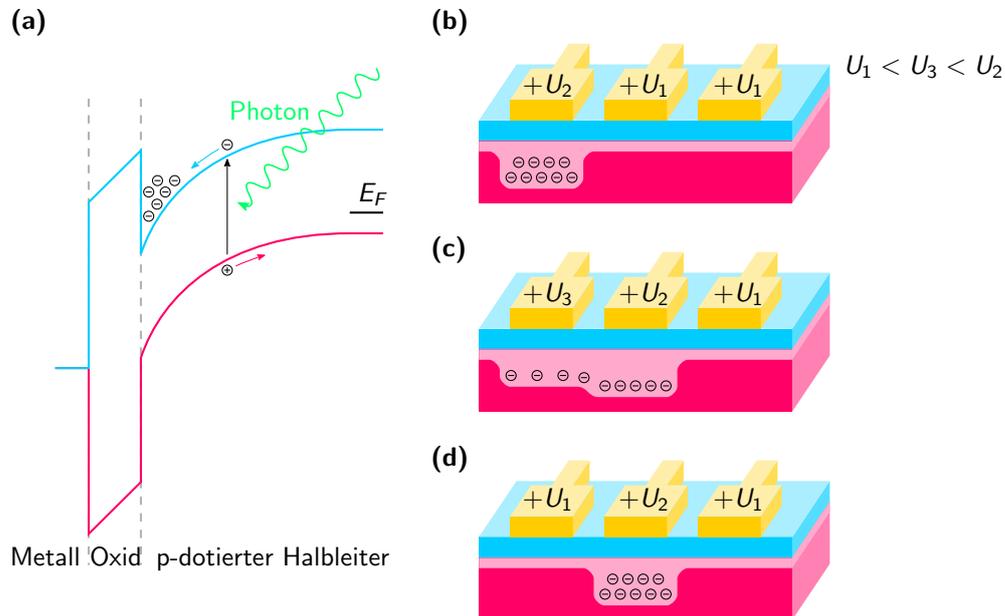


Abbildung 5.7: Funktion und Aufbau eines CCD-Sensors. Dieser besteht aus einem p-dotierten Siliziumsubstrat, darüber einer Isolatorschicht aus SiO_2 und darauf befinden sich Elektroden. Von oben trifft das zu detektierende Licht auf den Sensor. **(a)** Durch Anlegen eines äußeren elektrischen Feldes über die Elektroden auf der Schichtstruktur wird die Bandstruktur so verbogen, dass sich ein Topf für Elektronen bildet. Durch das einfallende Licht werden Elektron-Loch-Paare erzeugt. Die Elektronen fließen aufgrund des Potentials in den Topf und die Löcher werden in das Substrat transportiert. **(b)** Durch Lichteinfall sind Elektronen in einem Potentialtopf unter den Kontakten gespeichert. Durch Anlegen von verschiedenen Spannungen lassen sich die Elektronen von einem Topf zum nächsten transportieren. An dem Topf, der mit den Elektronen beladen ist, liegt eine höhere Spannung, als an den umliegenden Töpfen an. **(c)** Jetzt wird die Spannung am Nachbartopf auf den Wert, der zum Speichern der Elektronen notwendig ist, erhöht und an dem Topf, in dem die Elektronen sich befanden leicht gesenkt. **(d)** Die Spannung an dem Topf, in dem die Elektronen sich befanden wird auf die normale Spannung gesenkt.

aufgrund des Potentialverlaufs in dem Topf gespeichert und das Loch in das Substrat transportiert (Abb. 5.7a).

Das Auslesen des Sensors erfolgt durch Messen der Spannung an den einzelnen Töpfen. Dafür werden die Elektronen zuerst in ein oder mehrere Ausleseregister verschoben. Wie in Abb. 5.7b zu sehen ist, befinden sich eine gewisse Anzahl an Elektronen in einem Topf. An der Elektrode über diesem Topf ist eine höhere Spannung angelegt als an den benachbarten Zellen. Um diese Ladungsträger nach rechts zu bewegen, wird an der daneben liegenden Zelle die Spannung erhöht, sodass sich dort ebenfalls ein Topf ausbildet. Danach wird die Spannung an der ursprünglichen Zelle wieder etwas reduziert, damit die Elektronen von der ursprünglichen Zelle in die benachbarte Zelle strömen (Abb. 5.7c). Anschließend wird an der Ausgangszelle die Spannung auf einen geringen Spannungswert reduziert (Abb. 5.7d) [78, 80].

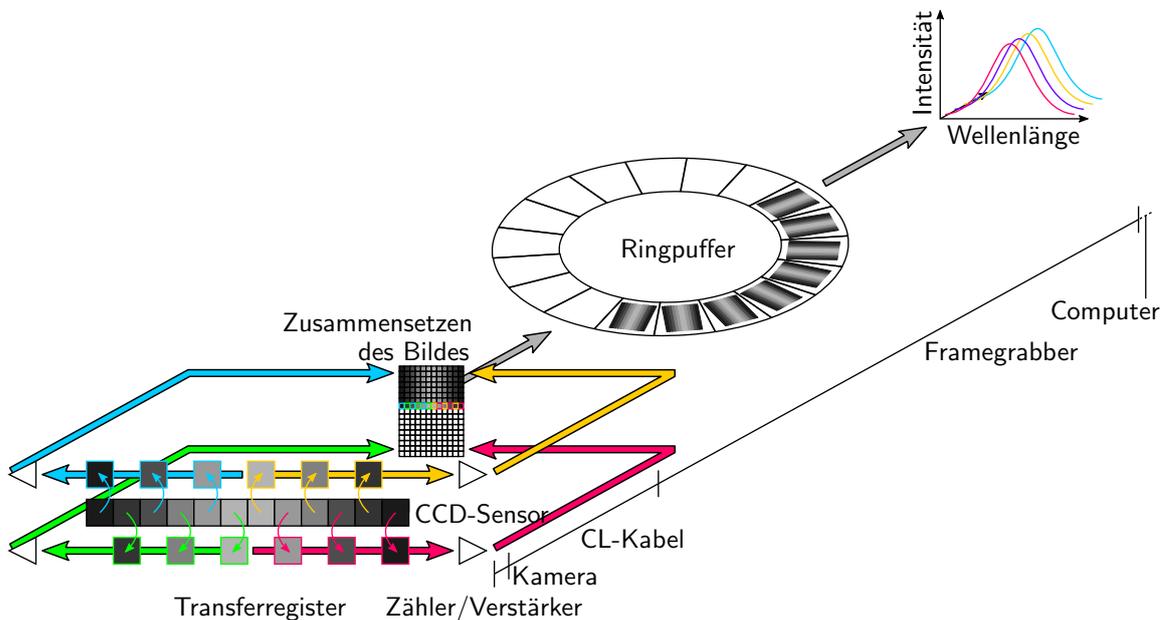


Abbildung 5.8: Aufbau der CCD-Kamera. Das Auslesen der einzelnen Pixel der Kamera erfolgt durch das Schieben der Elektronen in Schieberegistern. Danach werden die Schieberegister parallel ausgelesen, die Anzahl der Elektronen nacheinander für die einzelnen Pixel bestimmt und diese Anzahl über die vier Cameralink-Verbindungen (rot, gelb, grün, blau) an den Framegrabber übermittelt. Dort werden aus den vier einzelnen Kanälen das Spektrum wieder zusammengesetzt, anschließend 1000 Spektren zu einem Bild zusammengefasst und in einem Ringpuffer abgelegt. Anschließend werden die Bilder dort ausgelesen und am Rechner ausgewertet.

Um einen CCD-Sensor auszulesen, werden nach der Belichtung die Elektronen aus dem Sensor in ein oder mehrere Transferregister verschoben. Diese sind genau wie die einzelnen Pixel aufgebaut. Danach werden die Elektronen aus dem Transferregister Pixel für Pixel ausgelesen und dabei die Ladung der Zelle mit Hilfe einer Spannungsmessung bestimmt. Die Helligkeit eines einzelnen Pixels wird aus der Ladung und

damit anhand der Anzahl an Photoelektronen der jeweiligen Zelle bestimmt. Je mehr Elektronen in einem Pixel sind, desto mehr Licht ist eingefallen. In der Praxis gibt es verschiedene Anordnungen der Register. Im Folgenden wird der Auslesemechanismus der verwendeten Zeilenkamera detailliert beschrieben. Dieser ist in Abb. 5.8 visualisiert. Die Zeilenkamera besteht aus einem 1024 Pixel umfassendes CCD-Pixelarray. Nachdem die Elektronen verschoben sind beginnt das eigentliche Auslesen. Dafür wird die Spannung an den einzelnen Pixeln gemessen. Während die Transferregister ausgelesen werden kann der Sensor bereits erneut belichtet werden. Bei der in den Experimenten verwendeten Kamera werden für den Ausleseprozess vier Zähler verwendet. Danach werden die gemessenen Werte an den Framegrabber über vier serielle Cameralink-Leitungen (kurz CL-Kabel) übertragen [81]. Der Framegrabber ist ein Modul, das die Daten der Kamera verarbeitet und zu den gemessenen Bildern zusammensetzt [82]. Dafür werden die Werte der Pixel wieder in die ursprüngliche Reihenfolge zusammengesetzt und dann 1000 Zeilen zu einem Bild vereinigt. Dieses Bild wird danach in einem Ringpuffer abgelegt. Die Daten werden anschließend mit einem selbst entwickelten Programm aus dem Ringpuffer ausgelesen und verarbeitet.

5.2.1 Ansteuerung und Synchronisation der Zeilenkamera

Angesteuert und konfiguriert wird die Kamera über den Framegrabber. Vor einer Messung wird die Belichtungszeit in der Kamera abgespeichert. Danach wartet die Kamera auf Triggerpulse von außen. Der zeitliche Ablauf ist in Abb. 5.9 grafisch dargestellt.

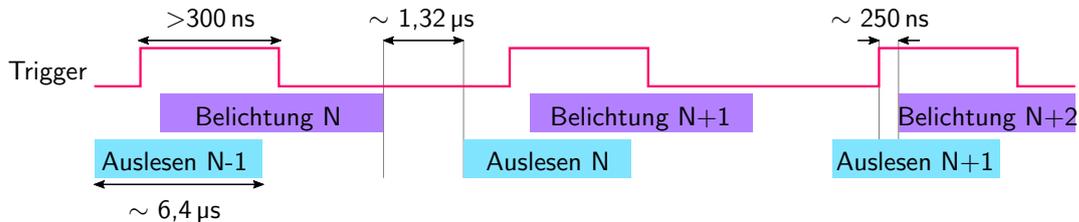


Abbildung 5.9: Steuerzeiten bei der verwendeten Zeilenkamera.

Nachdem ein Triggerpuls die Kamera erreicht beginnt die Belichtung $t_d \approx 250$ ns später. Nach dem Ende der vorkonfigurierten Belichtungszeit, werden die erzeugten Photoelektronen innerhalb von $t_{dr} = 1,32$ µs in die vier Transferregister verschoben. Sobald dieser Schritt abgeschlossen ist, wartet die Kamera auf den nächsten Triggerpuls, um die erneute Belichtung zu starten. Währenddessen werden die vier Transferregister gleichzeitig ausgelesen und dabei Pixel für Pixel an den Framegrabber mit einer Datenrate von 40 MHz übermittelt. Die maximal mögliche Bildrate

ergibt sich aus der eingestellten Belichtungszeit t_{int} sowie den Zeiten t_{d} und t_{dr} . Dabei ist zu beachten, dass bei einer Belichtungszeit, die kürzer als die Auslesezeit $t_{\text{readout}} = 6,4 \mu\text{s}$ ist, die Auslesezeit limitierend für die maximale Bildrate ist. Damit lässt sich als maximale Bildrate eine Frequenz von 126 kHz erreichen.

5.2.2 Bestimmung des Rauschens der Kamera

Um das Rauschen der Kamera zu untersuchen, müssen verschiedene Rauschquellen berücksichtigt werden [83]. Wichtige Rauschquellen sind hier das Dunkelstromrauschen, das Ausleserauschen und das Photonenrauschen. Das Dunkelstromrauschen entsteht durch zufällige Entstehung von einzelnen Elektron-Loch-Paaren im Sensor. Dies ist von der Temperatur des Sensors abhängig und lässt sich durch Kühlen des Sensors reduzieren. Das Ausleserauschen entsteht durch thermisches Rauschen der elektronischen Bauteile im Ausleseprozess. Hierbei handelt es sich um weißes Rauschen mit sehr hoher Bandbreite. Bei den hier verwendeten hohen Intensitäten des einfallenden Lichts ist die Hauptrauschquelle das Schrotrauschen des einfallenden Lichts [83]. Dies wird im Folgenden genauer betrachtet.

Wie im vorhergehenden Abschnitt beschrieben, ist die gemessene Intensität von der Anzahl der ermittelten Photoelektronen n_e im entsprechenden Pixel abhängig. Daraus kann dann mit Hilfe der Quanteneffizienz QE des CCD-Chips und der in der Kamera verwendeten Verstärker-Einstellungen g die eingefallene Photonenzahl n_ν berechnet werden.

$$n_\nu = \frac{n_e}{QE \cdot g} \quad (5.1)$$

Aus der Photonenzahl lässt sich mit Hilfe des Zusammenhangs $E = h\nu = hc/\lambda$ die eingefallene Leistung P auf ein Pixel berechnen.

$$P = \frac{E}{T} = \frac{hc}{\lambda \cdot T} n_\nu = \frac{hc}{\lambda \cdot T} \cdot \frac{n_e}{QE \cdot g} \quad (5.2)$$

Dabei ist T die Zeit, über die die Intensität gemessen wurde.

Für die Bestimmung wird jetzt eine bestimmte Anzahl N an Spektren mit der Zeilenkamera gemessen. Danach wird die Intensität der Signalspektren $n_e^+(\lambda)$ und die Intensität der Referenzspektren $n_e^-(\lambda)$ bestimmt. Dabei ist

$$n_e^+(\lambda) = \sum_{k=1}^{N/2} n_{e,2k}(\lambda) \quad n_e^-(\lambda) = \sum_{k=1}^{N/2} n_{e,2k-1}(\lambda) \quad (5.3)$$

Diese Intensitäten n_e^+ und n_e^- werden mit der Gleichung 5.2 in die Leistungen P^+ und P^- umgerechnet. Das experimentell gemessene Rauschlevel σ des Schrotrauschens eines optischen Sensors berechnet sich zu [84]:

$$\sigma = \sqrt{2 \frac{hc}{\lambda} P^+ \Delta f} \quad (5.4)$$

Dabei ist Δf die Bandbreite des verwendeten Detektors. Bei einer CCD-Kamera lässt sich die Bandbreite über das Nyquist-Shannon-Theorem $\Delta f = 2/T$ bestimmen. Damit ergibt sich mit den Gln. 5.2 und 5.3

$$\sigma = \frac{2hc}{\lambda T} \sqrt{n_e^+(\lambda)} \quad (5.5)$$

Da bei Anrege-Abfrage-Experimenten $\Delta R/R$ betrachtet wird, wird das Rauschen auch auf diese Form umgeschrieben. Somit ergibt sich für die experimentelle Leistungsschwankung:

$$P_{\text{rel}} = \frac{P^+(\lambda) - P^-(\lambda)}{P^+(\lambda) + P^-(\lambda)} \quad (5.6)$$

und für die Schrotrauschgrenze mit dem Ergebnis aus Gl. 5.5

$$\sigma_{\text{rel}} = \frac{\frac{2hc}{\lambda T} \sqrt{n_e^+(\lambda)}}{P^+(\lambda) + P^-(\lambda)} \quad (5.7)$$

Aufgrund der Quantennatur des Lichts ist das Rauschen eines optischen Sensors durch das Schrotrauschen begrenzt. Deshalb kann dieses Rauschen bei einer Messung nicht unterschritten werden und limitiert die Messung. Eine solche Messung wird als schrotrauschbegrenzt bezeichnet [85].

Um das Rauschen der Zeilenkamera zu überprüfen, wird eine unterschiedliche Anzahl an Spektren des Lasers mit der Zeilenkamera gemessen und das erwartete Rauschen der Kamera mit den Formeln 5.6 und 5.7 berechnet. Ein Beispiel für solch eine Messung ist in Abb. 5.10 zu sehen. Dabei wurden $20 \cdot 10^6$ Spektren gemessen. Die Hälfte wurde als Signaldaten benutzt, die andere als Referenzdaten. Die Belichtungszeit lag bei $45 \mu\text{s}$ je Spektrum, wobei Laserlicht für $40 \mu\text{s}$ auf die Kamera fiel. Um auf jedem Spektrum die gleiche Menge an Licht zu haben, wurde zwischen zwei Belichtungen für $5 \mu\text{s}$ der Laser mit Hilfe des AOM abgeblockt. Zur Darstellung des gemessenen Rauschens wird das gemessene Signal P_{rel} in Pakete zu 16 Pixel aufgespalten. In diesen Paketen wird die Intensität gemittelt und die Standardabweichung hinzu gezählt.

$$\bar{P}_{\text{rel}}(n) = \langle P_{\text{rel}}(n), \dots, P_{\text{rel}}(n + 15) \rangle + \text{Std}(P_{\text{rel}}(n), \dots, P_{\text{rel}}(n + 15)) \quad (5.8)$$

Dabei ist $\text{Std}(P_{\text{rel}}(n + \tilde{n}))$ die Standardabweichung des Pixelpakets. Die Pixelpakete werden mit der Pixelnummer des ersten Pixels indiziert ($n = 1, 17, \dots, 1009$).

Für verschiedene Messdauern ist das experimentell bestimmte Rauschen in Abb. 5.11b dargestellt. Aus den verschiedenen Messkurven wird der Mittelwert des experimentell bestimmten Rauschens zwischen $758,9 \text{ nm}$ und $763,2 \text{ nm}$ berechnet. Zu diesem Mittelwert wird mit der Standardabweichung dazu gezählt und als gemessenes Rauschen verwendet. Der berechnete Wert ist mit ansteigender Messdauer in Abhängigkeit der Wellenlänge in Abb. 5.11a zu sehen. Zum Vergleich wird für jeden Messpunkt der theoretisch erwartete Wert mit der Gl. 5.7 berechnet und der Mittelwert im selben Wellenlängenbereich bestimmt. Dabei ist das gemessene Rauschen stets über der Schrotrauschgrenze mit einem Faktor von etwa 2.

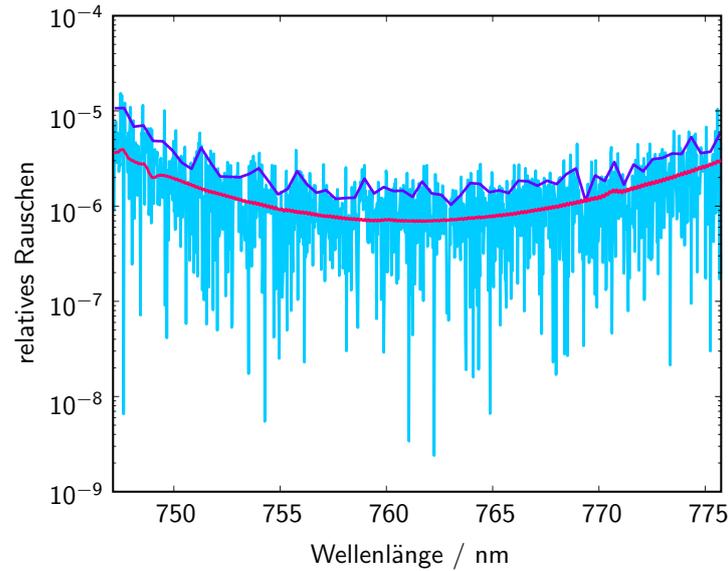


Abbildung 5.10: Gemessenes Schrotrauschen bei unterschiedlichen Wellenlängen. Blau sind die gemessenen Daten P_{rel} , lila ist die Summe aus dem Mittelwert aus Paketen von 16 Pixeln aus P_{rel} und der Standardabweichung des Pakets sowie rot die Schrotrauschgrenze σ_{rel} . Diese Daten wurden mit einer Messzeit von 450 s gemessen.

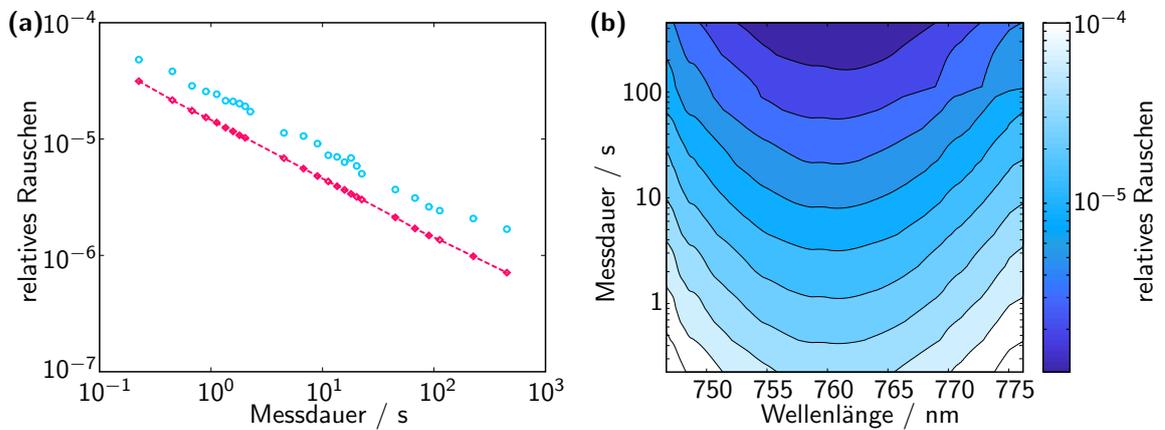


Abbildung 5.11: Gemessenes Schrotrauschen bei unterschiedlichen Messzeiten. **(a)** Blau sind die gemessenen Daten P_{rel} und rot ist die Schrotrauschgrenze σ_{rel} gemittelt zwischen 758,9 nm und 763,2 nm. **(b)** Schrotrauschen bei unterschiedlichen Wellenlängen und unterschiedlicher Länge der Messung.

5.3 Steuerung und Kontrolle des Experiments

Um das Experiment zu steuern, ist eine präzise Ansteuerung der AOMs und des Framegrabbers erforderlich. Dafür wird ein Field Programmable Gate Array (kurz FPGA) von National Instruments (MyRIO) verwendet.

5.3.1 Schematische Beschreibung der Ansteuerung

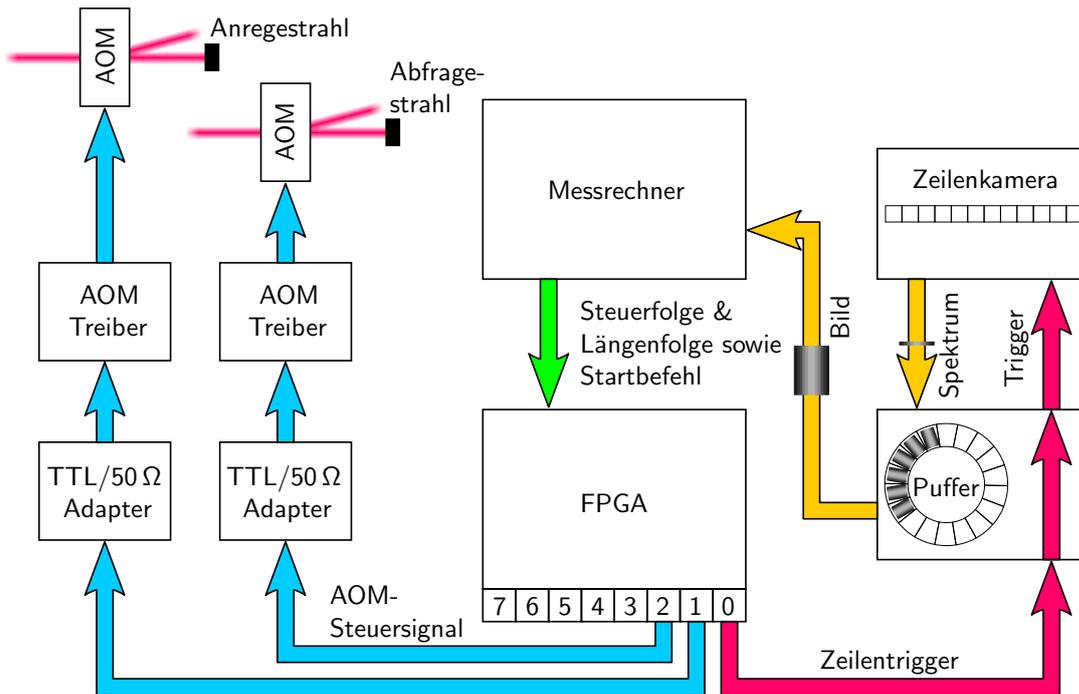


Abbildung 5.12: Ansteuerung der verschiedenen Komponenten mit Hilfe eines FPGA. Rote Pfeile stellen das Triggersignal für die Zeilenkamera dar, blaue Pfeile sind die Steuerleitungen für die AOMs, gelbe Pfeile die Messdaten und der grüne Pfeil symbolisiert die Interaktion zwischen Messrechner und FPGA.

Die dafür entwickelte Ansteuerung ist in Abb. 5.12 schematisch dargestellt. Dieser führt die Pulserzeugung in einer Schleife aus, die mit dem Systemtakt von 100 MHz ausgeführt wird. Dazu wird am Anfang eine am Rechner definierte Pulsfolge in den Speicher des FPGA übertragen. Anschließend wird die Ausgabe der Pulssequenz durch einen äußeren Startpuls gestartet. Dann beginnt der FPGA und stellt TTL-Signale an den Ausgängen bereit. Diese werden anschließend mit Koaxialleitungen an die entsprechenden Geräte verteilt. Dabei wurde darauf geachtet, dass die beiden Steuerleitungen für die beiden AOMs gleich lang sind. Für die AOMs werden diese auf Spannungspulse gewandelt mit einer Amplitude zwischen 0 V und 5 V. Die tatsächlich verwendete Spannungsamplitude hängt von der gewünschten Leistung im gebeugten Laserstrahl hinter dem AOM ab. Je höher die Spannung ist, desto mehr

Licht wird im AOM abgelenkt. Anschließend wird das Spannungssignal mit 110 MHz in der Endstufe moduliert. Dies ist notwendig, damit sich im Kristall des AOMs eine stehende Schallwelle aufbaut und dort als Beugungsgitter funktioniert.

Die Triggersignale für die Kontrolle der Zeilenkamera werden über den Framegrabber an die Kamera gesendet. Dafür wird der TTL-Puls vom Framegrabber empfangen und eine neue Pulssequenz erzeugt. Die Länge des TTL-Pulses wird zuvor im Framegrabber definiert. Die Belichtungszeit wird über eine serielle Schnittstelle in der Zeilenkamera eingestellt. Nach Ende der Aufnahme wird der Sensor, wie im vorherigen Abschnitt beschrieben, ausgelesen und die Daten in den Puffer des Framegrabbers geschrieben.

5.3.2 Beschreibung des FPGA-Programms

Das FPGA-Programm wurde in Labview (National Instruments, Labview for MyRIO 64 bit) entwickelt. Eine beispielhafte Pulssequenz für die beiden AOM und die Kamera ist in Abbildung 5.13 dargestellt. Damit die Ausführung möglichst schnell ist, werden acht Anschlussleitungen des FPGA zu einem 8-bit Port zusammen gefasst. Mit 8 Bit kann eine Ganzzahl zwischen 0 und 255 dargestellt werden. Im Programm kann jetzt ein entsprechender Wert dem Port zugewiesen werden. Dabei werden alle Ausgänge gleichzeitig geschaltet. Jedem angeschlossenen Gerät wird dabei ein festvergebenes Bit der Zahl zugeordnet. In dem gezeigten Beispiel in Abb. 5.13 wird dem Kameratrigger das Bit 0, dem AOM des Anregelasers Bit 1 und dem AOM des Abfragelasers Bit 2 zugeordnet. Wird jetzt eine Zahlenfolge generiert und an den Port gesendet, werden alle Ausgänge zeitgleich geschaltet. Die Zahlenfolge wird von außen

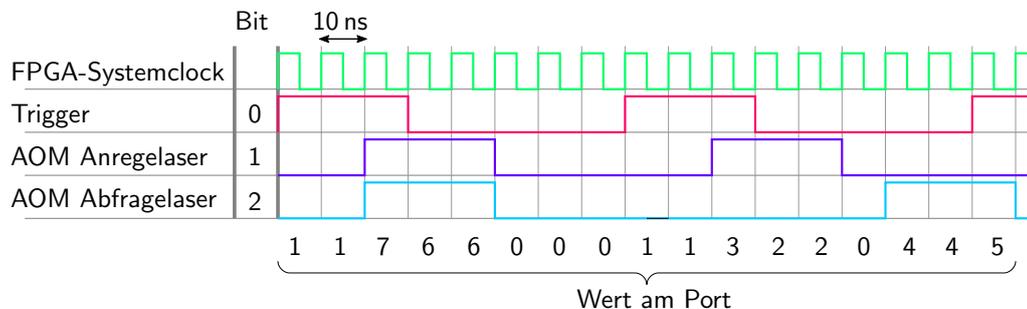


Abbildung 5.13: Beispiel für die Erzeugung der Pulssequenz im FPGA.

über FIFOs (engl. first in first out) an den FPGA übertragen. Dies erfolgt nach dem Prinzip einer Warteschlange. Dort werden die Werte im internen Arbeitsspeicher (engl. random access memory, kurz RAM) abgelegt. Der zuerst gesendete Wert wird als erster Wert empfangen und gespeichert. Somit lässt sich die Pulsfolge auch leicht von außen dynamisch einstellen. Da die Pulse eine gewisse Länge haben müssen, um von den Geräten erkannt zu werden, steht häufig der selbe Wert mehrmals hinter

einander. Um Speicherplatz im RAM zu sparen und die Zahl der langsamen Speicherzugriffe gering zu halten, wird die Folge jetzt so modifiziert, dass jeder Wert der Folge gezählt wird und am Ende zwei Folgen vorliegen. In der einen stehen die Werte, im Folgenden als Steuerfolge bezeichnet, und in der Anderen, später Längenfolge genannt, in der die Häufigkeiten jedes Wertes stehen. Somit wird im Programm jeder Wert entsprechend lang am Ausgang ausgegeben. Für das Beispiel aus der Abb. 5.13 sind die beiden Folgen für die Werte und die Länge in Tab. 5.1 dargestellt. Außerdem besteht die Möglichkeit, die Folge mehrmals hinter einander auszugeben.

Tabelle 5.1: Aufstellung von Wert und Anzahl für die in Abb. 5.13 beispielhaft dargestellte Pulssequenz.

Wert	1	7	6	0	1	3	2	0	4	5
Anzahl	2	1	2	3	2	1	2	1	2	1

Um die hohe Ausführungsgeschwindigkeit im FPGA zu erreichen, besteht das Programm aus zwei Teilen. Im langsamen Teil stehen die Steueranweisungen zwischen FPGA und Computer, in dem die Daten der Zahlenfolgen vom Rechner auf den RAM des FPGA übertragen werden. Sobald eine Messung gestartet wird, beginnt der FPGA mit der Ausführung einer Einzelzyklusschleife. Das bedeutet, dass die gesamte Schleife mit dem Systemtakt des FPGA von 100 MHz durchlaufen wird. Der Ablauf dieser Schleife ist schematisch in Abb. 5.14 dargestellt, das dazu gehörige Labview Blockdiagramm in Abb. 5.15. Als Startwerte bekommt die Schleife den ersten Wert mit der entsprechenden Länge, sowie die Anzahl, wie oft die vordefinierte Sequenz ausgegeben werden soll, übergeben. Dabei wird bei jedem Zyklus geprüft, ob der Wert im Zähler für die Länge noch größer als Null ist. Falls das der Fall ist, wird der Wert am Ausgang auf den aktuellen Wert der Steuerfolge gesetzt und der Zähler der Länge um 1 reduziert. Falls der Wert gleich Null ist, muss geprüft werden, ob die vorgegebene Folge abgearbeitet ist. Wenn dies noch nicht der Fall ist, wird der Zeiger auf den nächsten Wert gerichtet und der nächste Wert der Steuerfolge, sowie die Länge dieses Abschnitts in die jeweiligen Schieberegister aus dem RAM geladen. Danach wird die Schleife am Anfang fortgesetzt. Wenn auch die Folge zu Ende ist, muss noch überprüft werden, ob die Pulssequenz erneut ausgegeben werden soll. Dafür wird die am Anfang übergebene Anzahl der Sequenzdurchgänge um Eins reduziert und der Zeiger auf das erste Element der Sequenz zurück gesetzt, der erste Wert der Steuerfolge sowie die dazugehörige Länge aus der Längenfolge aus dem RAM geholt und die Schleife am Anfang fortgesetzt. Wenn dies nicht der Fall ist, wird die Schleife beendet. Danach wird der langsame Programmteil weiter ausgeführt und es sind wieder Steuereingaben über die FIFOs möglich. Dabei werden die Signale an den Ausgängen ausgeschaltet.

Soll nun eine Messung gestartet werden, wird zuerst im Steuerprogramm, vom Computer aus, die Pulssequenz über FIFOs an den FPGA übertragen. Wenn diese Übertragung abgeschlossen ist, wird noch das Start-Signal für die Messung gesendet. Der

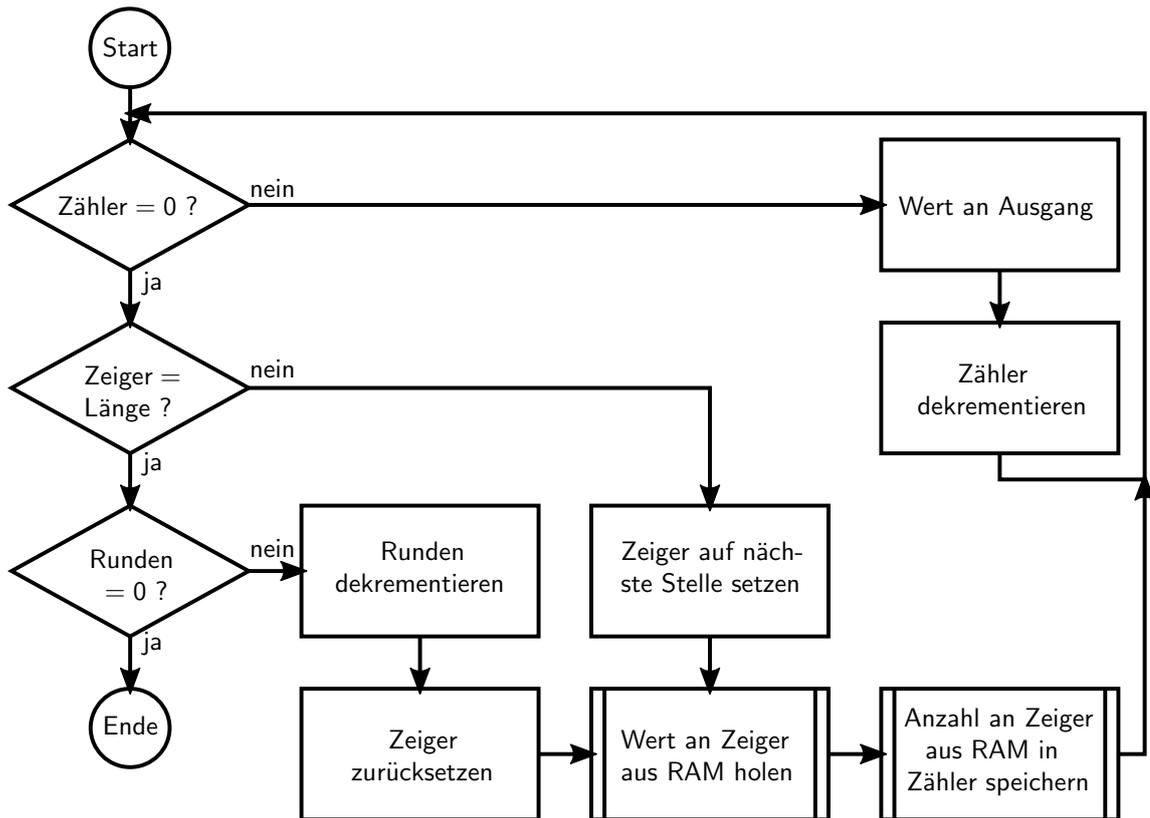


Abbildung 5.14: Erzeugung der Pulssequenz im FPGA.

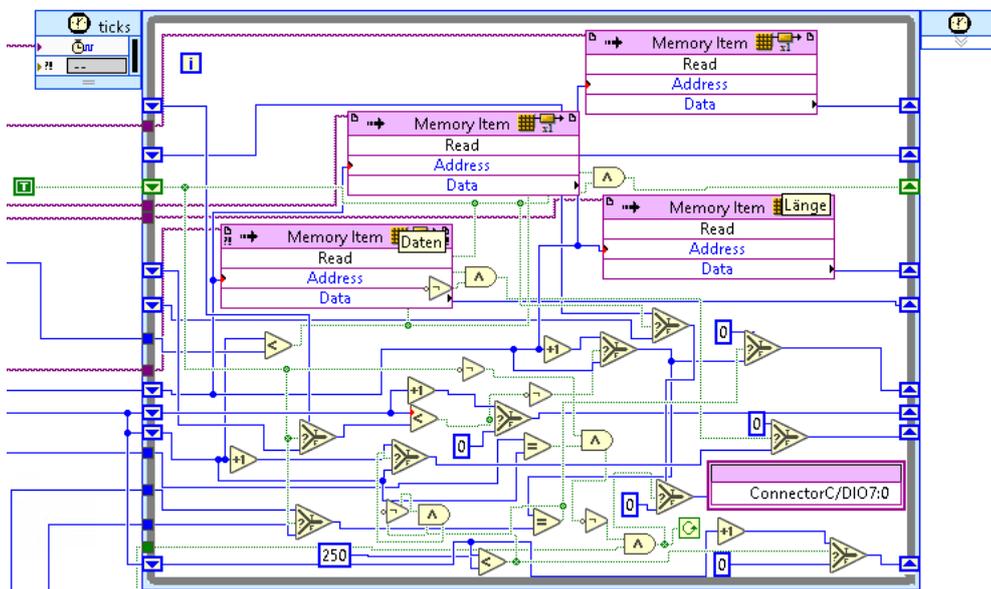


Abbildung 5.15: Labview Blockdiagramm des Programms zur Erzeugung der Pulssequenz im FPGA. Das vollständige FPGA-Programm befindet sich im Anhang in Abb. A.2.

Framegrabber wird gleichzeitig in Bereitschaft versetzt, damit dieser auf Daten der Kamera wartet. Der FPGA arbeitet jetzt das zu Beginn des Abschnitts beschriebene Programm ab. Dabei werden die Triggersignale für die Kamera sowie die Steuersignale für die AOMs generiert. Sobald die erste Zeile von der Kamera an den Framegrabber übertragen wird, beginnt dieser ein Bild aufzubauen. Wenn 1000 Zeilen übertragen sind, speichert der Framegrabber das fertige Bild im Ringpuffer ab. Das Messprogramm holt dieses dort ab und wertet die Spektren aus.

Da der Systemtakt, mit dem die Pulse erzeugt werden, bei 100 MHz und die Repetitionsrate der beiden Laser bei 1,0 GHz liegt, erreichen zwischen zwei Takten des FPGA nur 10 Pulse des Lasers die Kamera. Damit beträgt die relative Abweichung der auf der Kamera detektierten Lichtmenge zwischen zwei Spektren bei einer durchschnittlichen Pulslänge eines AOM-Pulses von 7,5 μ s maximal 0,1 %.

5.3.3 Auslesen des Framegrabbers

Die Daten jedes Pixels der Kamera werden als vorzeichenfreie 12 bit-Ganzzahlen zum Messrechner übertragen. Das bedeutet, dass eine Datenrate von bis zu 185 MB/s notwendig ist. Da diese Datenmenge zwar von der Kamera zum Rechner übertragen, jedoch nur mit großem technischen Aufwand dort auf Festplatten gespeichert werden kann, müssen die gemessenen Daten sofort aggregiert und weiterverarbeitet werden. Dafür wurde ein Messprogramm entwickelt. Dieses Programm besteht aus mehreren Programmteilen. Im ersten Teil, der für die Steuerung des FPGA dient, kann, solange keine Messung stattfindet, die Pulsfolge für den FPGA definiert werden. Wird die Messung gestartet, wird aus der eingegebenen Pulsfolge die in Abschnitt 5.3.2 erläuterten Zahlenfolgen erzeugt und über die FIFOs an den FPGA übertragen. Danach beginnt der eigentliche Messprozess, in dem das Messprogramm die Ausgabe der Pulsfolge am FPGA startet.

Anschließend werden die Daten, die im Framegrabber zu Bildern aus je 1000 Spektren zusammen gesetzt wurden, in eine Queue geladen. Aus der Queue werden die Bilder anschließend wieder einzeln entnommen und die entsprechenden Pixel addiert. Dabei muss beachtet werden, dass die Zahlen bei einer längeren Messdauer von mehreren Sekunden sehr groß werden. Bei einer Messzeit von 100s und der maximalen Zeilenrate sind dafür 27 Bit notwendig. Um auch noch längere Messzeiten zu ermöglichen, wurden dafür Variablen als vorzeichenfreie Ganzzahl mit einer Länge von 64 bit definiert. Damit wird nach einer Messung ein Feld mit aggregierten 1000 Spektren dem Nutzer zur Verfügung gestellt. In den Anrege-Abfrage-Experimenten wurde die Pulsfolge so definiert, dass die Spektren mit gerader Zeilennummer als Referenzspektren betrachtet werden und die Spektren mit ungerader Zeilennummer als Signalspektren. Daraus lässt sich anschließend das $\Delta R/R$ der Messung berechnen.

5.4 Diskussion der gemessenen Spektren

Wird ein mit der Zeilenkamera gemessenes Spektrum betrachtet, wie z.B. in Abb. 5.16 fällt auf, dass auf dem eigentlich gaußförmigen Spektrum eine Oszillation beobachtet wird. Um diese Oszillation zu untersuchen, wird die Fouriertransformierte des Spektrums betrachtet. Darin ist zu erkennen, dass zusätzlich zur Linie in der Mitte des Spektrums auch noch zwei Seitenbänder bei ± 12 ps vorhanden sind. Diese werden durch Dünnschichtinterferenzen im CCD-Chip der Zeilenkamera hervorgerufen. Da

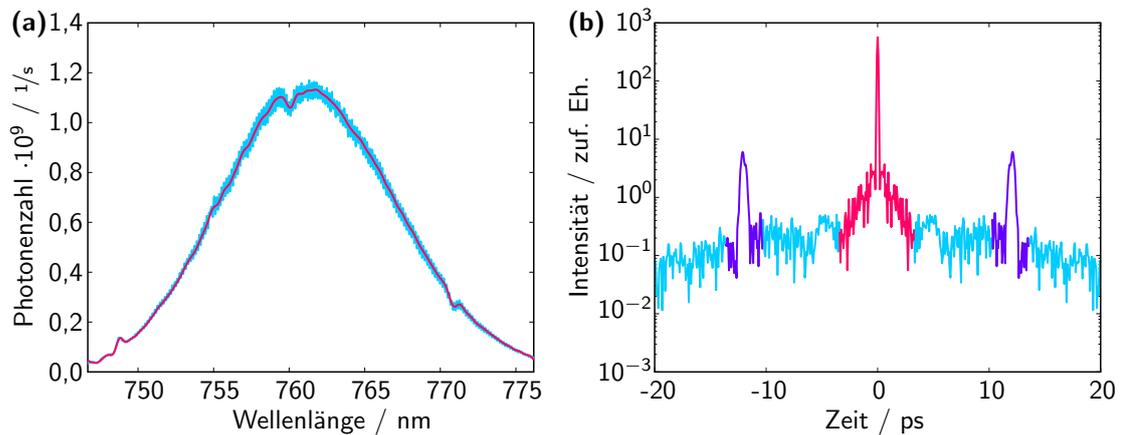


Abbildung 5.16: Spektrum des Ti:Saphir-Lasers, gemessen mit dem Monochromator und der Zeilenkamera. **(a)** In blau ist das gemessene Spektrum zu sehen. In der Fouriertransformierten des Spektrums wurden die beiden Seitenbänder durch den Mittelwert der beiden Randwerte ersetzt und mit der inversen Fouriertransformation in den Spektralraum rücktransformiert (rote Linie). **(b)** Fouriertransformierte des Spektrums aus Abb. a. Der in rot markierte Bereich ist der eigentliche Laserpuls. Dieser wurde für die Rücktransformation in Abb. a verwendet. Lila sind die beiden Peaks bei -12 ps und 12 ps gekennzeichnet, die für die Fringes verantwortlich sind.

diese Oszillationen die eigentlichen Messungen stören, wird in der Fouriertransformierten die beiden Seitenbänder in einem Bereich von $3,4$ ps durch den Mittelwert der daneben liegenden Randpunkte ersetzt (lila Bereich in Abb. 5.16b). Anschließend wird die inverse Fouriertransformation darauf angewendet. Das Ergebnis ist das Spektrum ohne Interferenzeffekte und ist in Abb. 5.16a (rote Kurve) zu sehen. Die kleinen Einbuchtungen, welche zu einer Abweichung von der idealen Gaußform führen, ist in Verunreinigungen auf den Silberspiegeln in den Pulsformern zurück zu führen.

5.5 Reihenfolge Signal-Referenz

Um bei einem Anrege-Abfrage-Experiment das $\Delta R/R$ korrekt bestimmen zu können, ist es notwendig zu wissen, ob das gemessene Spektrum ein Signalspektrum oder ein

Referenzspektrum ist. Um zu gewährleisten, dass bei der Auswertung jedes Spektrum korrekt zugeordnet werden kann, ist eine zeitliche Kontrolle über die Zeiten, zu denen Laserlicht auf die Zeilenkamera fällt und zu welchen Zeiten die Kamera die Messdaten aufnimmt, notwendig. Dafür müssen die Schaltzeiten in den einzelnen elektronischen Komponenten berücksichtigt werden. Zur experimentellen Synchronisation wird mit Hilfe des FPGA eine Pulssequenz erzeugt. Die verwendete Pulssequenz ist schematisch in Abb. 5.17 dargestellt. Dabei werden im Abstand von $2 \cdot (t_{\text{Puls}} + t_{\text{PP}})$ Triggerpulse an die Zeilenkamera gesendet. t_{Offset} später beginnt der FPGA die Pulssequenz an den AOM zu senden. Dabei gibt es zwischen zwei Triggerpulsen zwei mögliche Zeitfenster, in denen der AOM für die Länge t_{Puls} aktiviert werden kann (graue Rahmen in Abb. 5.17). Zwischen den einzelnen Zeitfenstern ist eine Pause von t_{PP} . In dem in der Abbildung gezeigten Beispiel besteht die Sequenz aus vier Triggerpulsen, wobei nach dem ersten Triggerpuls gleich ein Puls an den AOM gesendet wird. Ein weiterer Puls erfolgt nach dem vierten Triggerpuls, aber erst in der zweiten Hälfte der Periode des Triggerpulses.

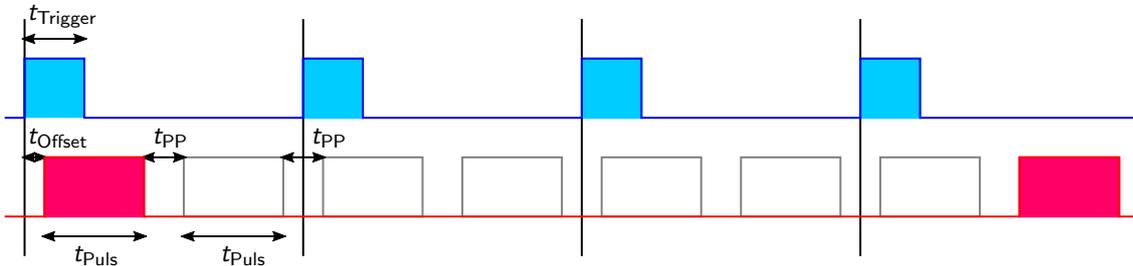


Abbildung 5.17: Verwendete Pulssequenz zur Bestimmung der Zeitkonstante für Anrege-Abfrage-Messungen. Blau ist die Triggersequenz, rot die für den verwendeten Ti:Saphir-Laser. Dabei ist t_{Puls} die Zeitdauer, die der AOM Licht in Richtung des Mikroskops ablenkt, t_{PP} ist die Zeit zwischen zwei Pulsen, in denen Licht zur Zeilenkamera gelangt. t_{Trigger} ist die Zeit, die ein Triggerpuls dauert und t_{Offset} ist die Zeit die zwischen dem ersten Triggerpuls und dem ersten Lichtpuls vom AOM vergeht.

In dem Experiment wird nun der Offset t_{Offset} variiert. In der Messung wurde das in Abb. 5.17 dargestellte Pulsmuster verwendet. Dabei wird für die Zeit t_{Puls} $1 \mu\text{s}$ und t_{PP} $5 \mu\text{s}$ gewählt. Dadurch wird eine große Separation zwischen zwei benachbarten Zeitfeldern erreicht. Damit beträgt die Zeit zwischen zwei Triggerpulsen $12 \mu\text{s}$. Der Zeitversatz t_{Offset} wird jetzt zwischen $-24 \mu\text{s}$ und $24 \mu\text{s}$ in 100 Schritten variiert. Für jeden Zeitversatz wurden 1 999 000 Spektren gemessen. Anschließend wird jedes Spektrum einem der vier Triggerpulse zugeordnet. Die dabei erhaltenen Messreihen werden dann als $I_1(t_{\text{Offset}}, \lambda)$ bis $I_4(t_{\text{Offset}}, \lambda)$ bezeichnet. Für acht verschiedene Zeiten t_{Offset} ist das in Abb. 5.18a und b dargestellt. Werden diese Bilder mit der ursprünglichen Pulssequenz verglichen, so ist zu sehen, dass die vorher definierte Pulssequenz in den korrekten Zeilen der gemessenen Spektren bei einem Offset von $-18,2 \mu\text{s}$ auftauchen.

Aus den gemessenen Daten wird in einem nächsten Schritt Δ^R/R berechnet. Dabei

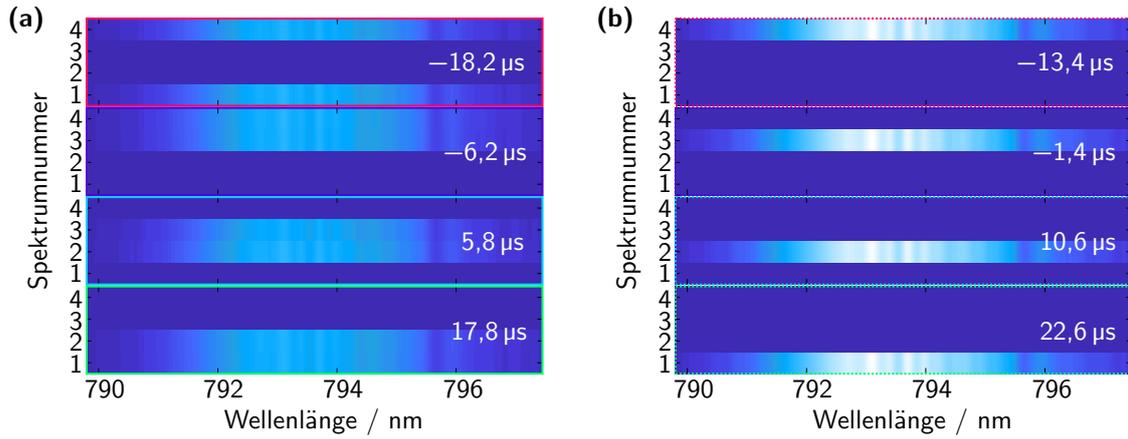


Abbildung 5.18: Gemessene Spektren zu den verschiedenen Triggerpulsen. Die farbigen Rahmen geben die Positionen der gemessenen Spektren mit Hilfe der Pfeile in Abb. 5.17 an. **(a)** Bei einem Zeitversatz von $-18,2 \mu\text{s}$, $-6,2 \mu\text{s}$, $5,8 \mu\text{s}$ und $17,8 \mu\text{s}$. **(b)** Bei einem Zeitversatz von $-13,4 \mu\text{s}$, $-1,4 \mu\text{s}$, $10,6 \mu\text{s}$ und $22,6 \mu\text{s}$.

ist

$$R_{\text{Sig}} = I_1(t_{\text{Offset}}, \lambda) + I_3(t_{\text{Offset}}, \lambda) \quad R_{\text{Ref}} = I_2(t_{\text{Offset}}, \lambda) + I_4(t_{\text{Offset}}, \lambda) \quad (5.9)$$

das an der Probe reflektierte Signal- bzw. Referenzspektrum. Die daraus resultierenden Messkurve bei der Zentralwellenlänge $\lambda = 793,6 \text{ nm}$ in Abhängigkeit von t_{Offset} ist in Abb. 5.19 zu sehen. Dabei ist zu erkennen, dass $|\Delta R/R|$ für einige Zeiten ungefähr 1 ist und für andere ungefähr 0. Zu den Zeiten, an denen $|\Delta R/R| \approx 1$ gilt, sind die beiden Pulse des AOM im gleichen Bild der Zeilenkamera was bedeutet, dass entweder die doppelte Lichtmenge im Signalspektrum und nur das Rauschen der Kamera im Referenzspektrum ist oder genau umgekehrt. Ist $|\Delta R/R| \approx 0$, dann ist die gleiche Lichtmenge im Signalspektrum wie im Referenzspektrum. Jetzt werden die Zeiten, zu denen $|\Delta R/R| \approx 0$ und $|\Delta R/R| \approx 1$ gilt, genauer betrachtet. Dafür wird die Intensität in den vier einzelnen Spektren betrachtet. Dies ist in Abb. 5.18 zu sehen.

In einem nächsten Schritt wird das Minimum zwischen $20,6 \mu\text{s}$ und $16,8 \mu\text{s}$ genauer untersucht. In Abb. 5.20a ist der Verlauf dreier Kurven beispielhaft gezeigt (mit Pfeilen im ersten Minimum der Abb. 5.19 gekennzeichnet). Dabei fällt auf, dass auf den Kurven ein recht hohes Rauschen zu sehen ist. Deshalb wird das in Abschnitt 5.4 beschriebene Verfahren auf die gemessene Spektren angewendet. Nach dem Anwenden dieser Korrektur ergeben sich die Messkurven wie in Abb. 5.20b dargestellt. Dabei ist zu erkennen, dass bei $-19,7 \mu\text{s}$ und bei $-16,8 \mu\text{s}$ das Signal deutlich geringer ist als bei $-18,2 \mu\text{s}$. Ebenfalls ist auffällig, dass das Rauschen der Kurve bei $-16,8 \mu\text{s}$ deutlich stärker ausgeprägt ist, als bei den beiden Anderen. Dass das Rauschen an den Rändern ansteigt liegt daran, dass dort die Intensität des Laserspektrums abnimmt und dadurch kleine Änderungen einen deutlich stärkeren Einfluss auf das Messsignal erhalten. Deshalb wird für die eigentlichen Anrege-Abfrage-Messungen ein Verlauf

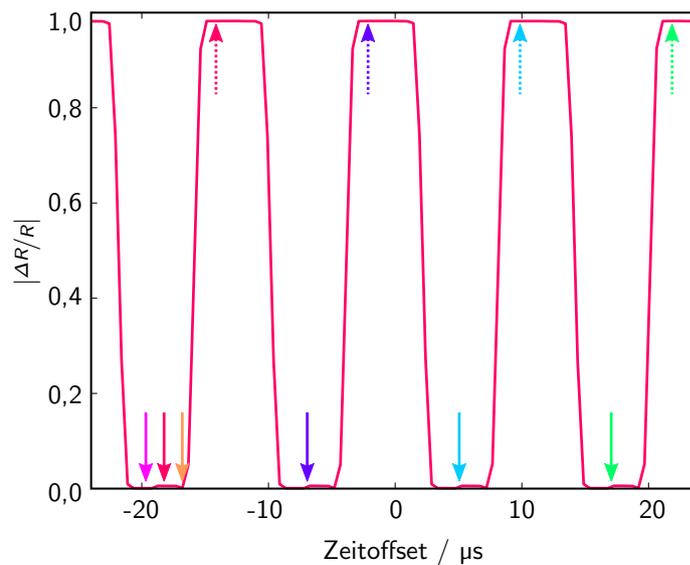


Abbildung 5.19: Der Offset zwischen Triggerpuls und Puls an den AOM wurde im Bereich von $-24\ \mu\text{s}$ bis $24\ \mu\text{s}$ variiert. Dabei ist zu sehen, dass es Zeiten gibt, bei denen $|\Delta R/R|$ annähernd 1 ergibt. Das sind die Fälle, in denen das gesamte Laserlicht innerhalb eines Zeitfensters auf die Kamera trifft. Es gibt Bereiche, in denen $|\Delta R/R|$ ungefähr 0 ergibt, also der Referenzpuls und der Signalpuls in zwei hintereinander ausgelesenen Spektren. Zu den mit Pfeilen gekennzeichneten Zeiten ist die Summe der gemessenen Intensität zu den einzelnen Triggerpulsen in Abb. 5.18 zu sehen.

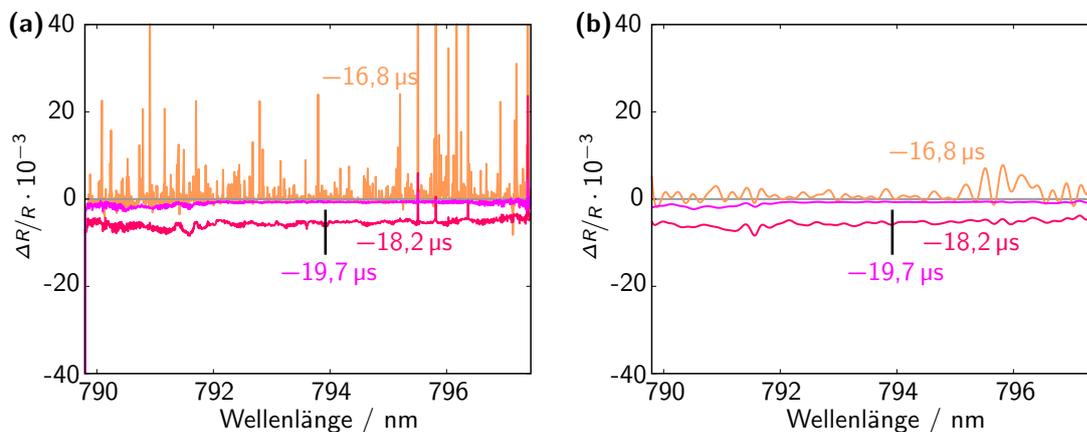


Abbildung 5.20: Gemessenes spektrales $\Delta R/R$ für verschiedene Zeitverzögerungen im Minimum. **(a)** Messdaten mit den Fringes der Messung. **(b)** Um die Lage Messdaten genauer erkennen zu können, wurden die Messdaten wie in Abschnitt 5.4 beschrieben, verarbeitet.

der spektralen Kurve bei $-19,7\ \mu\text{s}$ gesucht. Das Rauschen des Messsignals in der Größenordnung von $3 \cdot 10^{-4}$ bei einem Zeitversatz von $-19,7\ \mu\text{s}$ entspricht dem erwartbaren Rauschen (vgl. Abschnitt 5.2.2), da die gesamte Belichtungszeit, in der Laserlicht auf die Kamera fällt, weniger als $0,5\ \text{s}$ je Spektrum beträgt. Dies ist für diese Messung ausreichend, da nur die zeitliche Lage des Minimums bestimmt werden soll.

5.6 Messergebnisse der Anrege-Abfrage-Experimente

Mit diesem Aufbau ist es jetzt möglich, ein Anrege-Abfrage-Experiment an einer $10\ \text{K}$ kalten GaAs-Quantenpunktprobe durchzuführen. Dafür wird an den AOMs die Pulssequenz, die in Abb. 5.21 dargestellt ist, verwendet. Die Triggerpulse haben eine Länge von $1\ \mu\text{s}$, die Laserpulse eine Länge von $7,5\ \mu\text{s}$. Da die Unterdrückung des Anregelichts nicht perfekt ist, ist es notwendig, dass in den Referenzspektren die gleiche Lichtmenge des Anregelasers auftritt wie in den Signalspektren. Deshalb wird nach bzw. vor der Messung des Referenzspektrums der Anregelaser auf die Probe geführt. Darum wird diese spezielle Anordnung an Feldern mit Anrege- und Abfragelaser gewählt. In den beiden Fällen, die AOMs im Anrege- und Abfragestrahl gleichzeitig aktiviert waren, wurde ein Signalspektrum und im andern Fall ein Referenzspektrum gemessen. Zwischen den beiden Pulsen für die AOMs war eine Pause von $2,5\ \mu\text{s}$. Um die Schaltzeiten und Signallaufzeiten in den Leitungen zu korrigieren, wurde der Triggerpuls $3\ \mu\text{s}$ später abgesendet als die Steuerpulse für die AOMs.

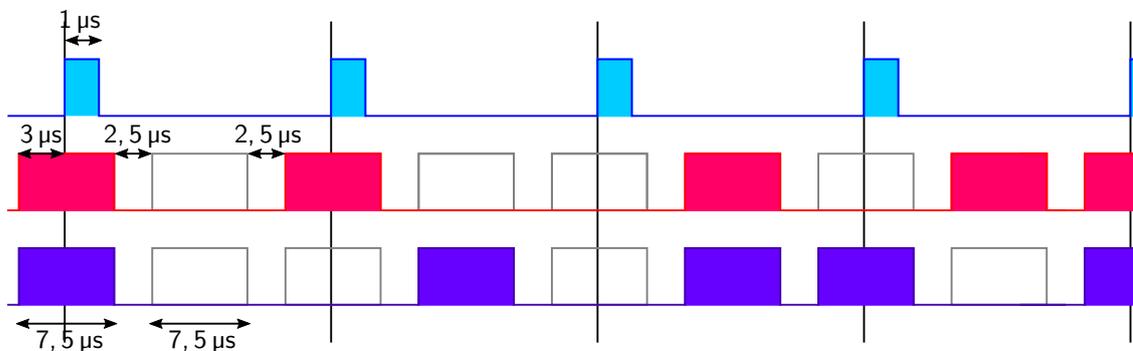


Abbildung 5.21: Verwendete Pulssequenz während der Anrege-Abfrage-Experimente. Blau ist der Trigger, rot ist der Anregelaser und lila der Abfragelaser.

Die Messung erfolgte bei drei verschiedenen Zeitverzögerungen, die mit der Verzögerungsstrecke eingestellt werden. Dabei werden $\tau_{\text{PP}} = 0\ \text{ps}$, $10\ \text{ps}$ und $-10\ \text{ps}$ als Zeitversatz gewählt. Die Belichtungszeit je Spektrum beträgt $80\ \mu\text{s}$ und es werden $60\ 000$ Spektren zu jedem Zeitversatz gemessen, wobei jeweils die Hälfte Signal- bzw. Referenzspektren sind.

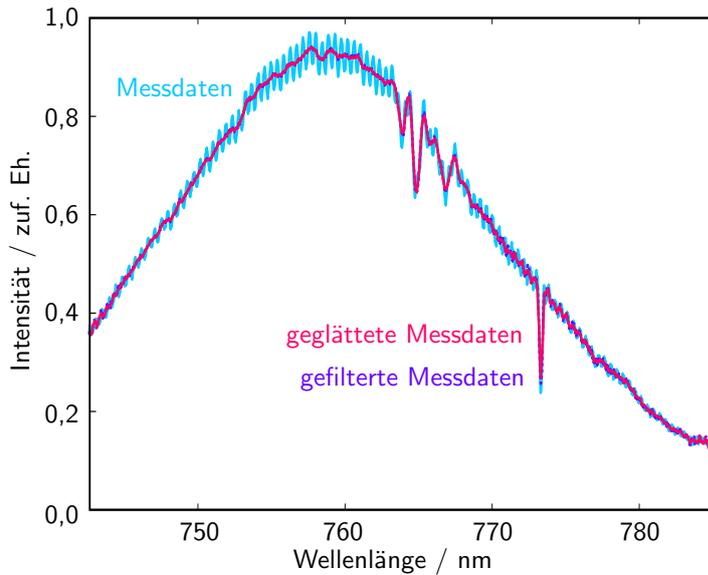


Abbildung 5.22: Gemessenes Spektrum bei $\tau_{PP} = 0$. Die gemessenen Daten (blau) wurden danach in der Fouriertransformierten gefiltert (lila) und anschließend wurden jeweils die drei nebeneinander liegenden Pixel verbunden (rot).

Zuerst werden die Messdaten, wie in Abschnitt 5.4 beschrieben, geglättet (siehe Abb. 5.22). Danach werden jeweils drei nebeneinander liegende Pixel zusammengezählt und als ein Pixel betrachtet. Die Intensitätseinbrüche im Spektrum stammen von Verunreinigungen auf dem Spiegel in der Fourierebene des Pulsformers. Aus den so aufbereiteten Messdaten wird im Anschluss für jeden Pixelblock das $\Delta R/R$ berechnet.

Diese Messergebnisse sind in Abb. 5.23a dargestellt. Zur Kontrolle wurde der Anregelaser abgeblockt und die Messung einmal wiederholt. Dabei ist zu sehen, dass die Reflektivität $\Delta R/R$ der Probe sich nicht verändert und nur Rauschen um den Wert Null zu sehen ist.

Um das gemessene $\Delta R/R$ genauer untersuchen zu können, wird der allgemeine spektrale Verlauf entfernt. Dafür werden kubische Splines an die Messkurve bei $\tau_{PP} = -10$ ps angepasst und mit diesen der Verlauf der Messkurve approximiert. Bei diesem Zeitpunkt kann davon ausgegangen werden, dass keine Anregung der Probe durch den Anregepuls des Lasers mehr vorhanden ist. Die daraus erhaltene Messkurve wird dann von den Messkurven bei den verschiedenen Zeitversätzen wieder abgezogen. Die sich dabei ergebenden Messkurven sind in Abb. 5.23b dargestellt. Werden die so aufbereiteten Messergebnisse betrachtet, so ist zu erkennen, dass durch die Anregung der Probe durch den Laserpuls die Reflektivität der Probe zunimmt. Dies gilt vor allem für die kleineren Wellenlängen. Bereits nach 10 ps ist die Anregung bereits deutlich zurück gegangen. Dies ist nicht überraschend, da die Probe das Licht des Anregepulses absorbiert und deshalb weniger Licht des Abfragestrahls absorbieren kann.

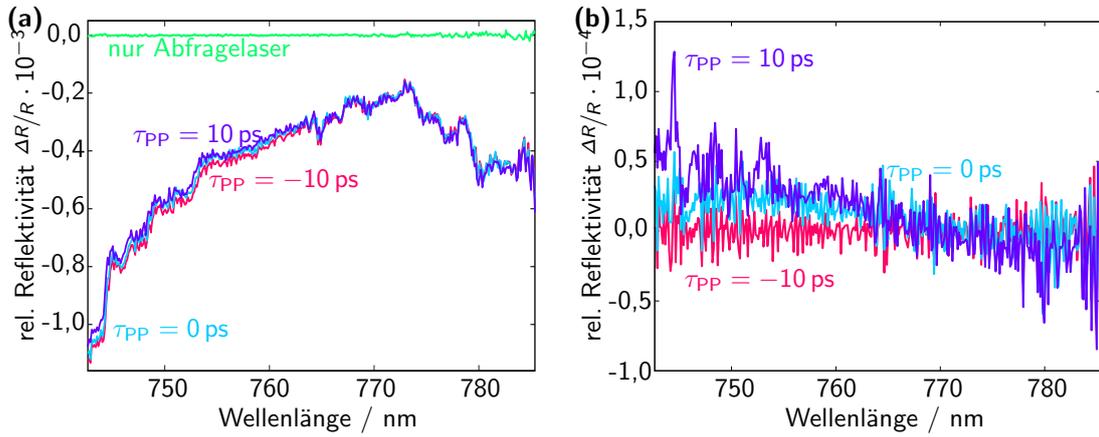


Abbildung 5.23: (a) Absolutes $\Delta R/R$ bei $\tau_{PP} = -10$ ps (rot), $\tau_{PP} = 0$ ps (blau) und $\tau_{PP} = 10$ ps (lila). Außerdem ist die Messkurve ohne Anregung dargestellt (grün). Die gemessenen Daten wurden wie in Abschnitt 5.4 beschrieben gefiltert. (b) Die Messkurve bei $\tau_{PP} = -10$ ps wurde mit einer Folge von kubischen Splines approximiert und dann von den Messdaten bei allen drei Zeitverzögerungen abgezogen. Dadurch sind die drei Messkurven leichter vergleichbar.

5.7 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wird der entwickelte Aufbau für Anrege-Abfrage-Experimente beschrieben. Dabei wird zuerst auf die Verwendung schneller Komponenten im Speziellen eingegangen. Zu Beginn werden die beiden verwendeten Ti:Saphir-Oszillatoren beschrieben, die aus einem Ringresonator bestehen, die mit einer Repetitionsrate von 1 GHz Laserpulse mit einer Länge von 40 fs abgeben. Einer der beiden Resonatoren verfügt über zwei Piezos, über die die Repetitionsrate der beiden Laser mit einem Regelkreis stabilisiert wird. Danach wird der Strahl durch zwei AOMs geführt, die als Chopper dienen. Diese werden von einem FPGA angesteuert, der die Pulse mit einer hohen zeitlichen Genauigkeit erzeugen kann. Das Steuerprogramm des FPGA erzeugt ebenfalls die Triggerpulse für die Zeilenkamera. Das Steuerprogramm ist in der Lage, die einzelnen Triggerpulse mit einer Genauigkeit von 10 ns zu erzeugen. Danach muss die Kamera mit den AOMs synchronisiert werden. Dafür werden Pulse mit verschiedenen Abständen erzeugt und mit der Zeilenkamera gemessen. Daraus lässt sich die Zeit bestimmen, mit der die Auslösung der Kamera verzögert werden muss. Anschließend wird die verwendete Zeilenkamera beschrieben. Diese Kamera kann Spektren mit bis zu 126 kHz aufnehmen. Ebenfalls wird der Ausleseprozess der Kamera über einen Ringpuffer in einem Framegrabber erläutert. Für die abschließenden Messungen ist es notwendig, ebenfalls das Rauschen der Kamera zu analysieren. Dabei wurde festgestellt, dass das Rauschen durch das Schrotrauschen des Lasers limitiert ist und der Ausleseprozess der Kamera nur einen verschwindend geringen Anteil daran hat. Am Ende wird gezeigt, dass der beschriebene Messaufbau dazu geeignet ist, Anrege-Abfrage-Experimente an einzelnen Quantenpunkten durchzuführen.

Dazu wird eine Quantenpunktprobe verwendet und ein Anrege-Abfrage-Experiment bei 10 K durchgeführt. Dabei wird für die Zeitverzögerung $\tau_{PP} = -10$ ps, $\tau_{PP} = 0$ ps und $\tau_{PP} = 10$ ps gewählt. Dabei ist zu erkennen, dass ohne Anregelaser sich die Reflektivität der Probe nicht verändert und unter dem Einfluss des Anregelaser sich eine Änderung der Reflektivität zeigt.

6 Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wird aufgezeigt, dass es möglich ist, Experimente an einzelnen Quantenpunkten durchzuführen. Die Ergebnisse dieser Versuche stellen eine gute Grundlage für weiterführende Experimente an Quantenpunkten dar. Im zweiten Teil dieses Kapitels werden Möglichkeiten für weitergehende Experimente beschrieben und Ideen aufgezeigt, die bereits bestehenden Versuchsaufbauten zu modifizieren und dadurch zu optimieren.

6.1 Zusammenfassung der Ergebnisse

Da bei den Experimenten an den hier verwendeten Quantenpunkten Temperaturen von unter 10 K notwendig sind, wird ein Kryostat verwendet. Um den Kryostat für lange Zeit in kaltem Zustand halten zu können und somit die Abkühl- und Aufheizzeiten zu reduzieren, wurde ein geschlossenes System gewählt. Dieser Kryostat wurde speziell für diese Experimente von der Fa. Cryovac angefertigt. Anschließend wurde überprüft, ob er die für die Experimente erforderlichen Eigenschaften erfüllt. Dafür wurde die erreichbare Basistemperatur gemessen und dann die thermischen Einflüsse der kalten Probe auf das Objektiv sowie die Aufhängung des Probenhalters untersucht. Am Ende wurden noch die Vibrationen des Probenhalters vermessen. Dafür wurde auf den Probenhalter ein Referenzgitter positioniert und danach am Rand einer Gitterlinie das Reflexionsverhalten gemessen. Anhand dieser Messdaten konnte berechnet werden, wie stark die Probe im Vergleich zum einfallenden Laserstrahl schwankt. Dabei wurde festgestellt, dass die Schwankung im Mittel geringer als 20 nm Spitze-zu-Spitze ist.

Die Experimente wurden an einzelnen GaAs-Quantenpunkten durchgeführt. Da eine Probenherstellung mit Stranski-Krastanow- oder Vollmer-Weber-Wachstum bei dem verwendeten Materialsystem nicht möglich ist, werden diese mit dem Tröpfchen-Ätz-Verfahren hergestellt. Dabei wurde die Schichtstruktur gezeigt und daran deren Eigenschaften erläutert.

Für die Messungen an den Quantenpunkten, ist es notwendig, diese zuvor zu charakterisieren. Dafür wird die Photolumineszenz der Quantenpunkte vermessen. Es werden die Quantenpunkte mit einem Laser bei einer Wellenlänge von 532 nm angeregt und die Emission vermessen. Als Erstes wird die Position der Quantenpunkte auf der Probe ermittelt, indem mithilfe des Scanspiegels der Anregestrahl über die

Probe verschoben und die Intensität des emittierten Lichts ortsabhängig mit einer APD gemessen wird. Anschließend wird für ausgewählte Quantenpunkte das Spektrum des emittierten Lichts gemessen, um die Lage der Exziton-Linie zu bestimmen. Ebenfalls wird die Feinstrukturaufspaltung des Exzitons bestimmt. Diese Informationen sind für die weiteren Experimente notwendig.

Bei den Experimenten zur Resonanzfluoreszenz ist es notwendig, eine Unterdrückung des Anregelichts von mindestens 10^{-6} zu erreichen. Dafür wird ein Aufbau mit gekreuzten Polarisatoren verwendet. Bei Raumtemperatur ist es möglich, eine Unterdrückung $4,15 \cdot 10^{-6}$ zu erreichen. Wird danach die zeitliche Stabilität untersucht, so ist zu sehen, dass die zeitliche Stabilität etwa eine halbe Stunde beträgt. Das bedeutet, dass bereits nach 30 Minuten die Einstellung des Soleil-Babinet-Kompensators korrigiert werden muss. Da für die Messungen an den einzelnen Quantenpunkten jedoch tiefe Temperaturen von 10 K an der Probe notwendig sind, wird die Unterdrückungsmessung bei dieser Temperatur wiederholt. Dafür wird eine Halbleiterprobe im Kryostaten abgekühlt und die Unterdrückung daran gemessen. Dabei ist eine Unterdrückung von nur noch $6,2 \cdot 10^{-5}$ erreichbar. Eine Messung der zeitlichen Stabilität ist nicht möglich, da das Minimum bei einer weiteren Messung bereits deutlich schlechter ist. Eine mögliche Ursache dafür liegt in einer unzureichenden Abschirmung des Mikroskopobjektivs bei Raumtemperatur von der sehr kalten Probe, da der Arbeitsabstand bei nur 1 mm liegt. Eine weitere mögliche Ursache ist eine Längenänderung des Metallzylinders zwischen Probenhalter und den Fahrtischen. Hierbei gibt es ebenfalls eine große Temperaturdifferenz, die über die Aufhängung in thermischen Kontakt zu einander stehen. Es wurde beobachtet, dass während der Messungen in regelmäßigen Zeitabständen ein Nachfokussieren nötig ist. Dabei muss immer der Fokus des Objektivs in Richtung der Probe korrigiert werden. Das kann bedeuten, dass die Probe immer weiter nach unten sinkt, indem sich der Metallzylinder abkühlt und sich dabei zusammenzieht. Deshalb wurde der ursprüngliche Aluminiumzylinder durch einen Edelstahlzylinder mit geringerer Wandstärke ersetzt. Dadurch ist es möglich, die thermische Leitfähigkeit zu reduzieren und den Einfluss der Längenausdehnung auf die Position des Fokus zu minimieren.

Das andere, beschriebene Experiment ist ein schnelles Anrege-Abfrage-Experiment, bei dem sowohl die AOMs als auch die zur Detektion verwendete Zeilenkamera synchron ausgelöst werden muss. Das ist notwendig, damit in jedem Signal- und Referenzspektrum die selbe Menge an Licht auf die Zeilenkamera fällt. Um diese Synchronisation technisch realisieren zu können, wurde ein FPGA verwendet. Dabei wird eine am Computer vordefinierte Pulsfolge von dem FPGA mit einer Taktfrequenz von 100 MHz wiedergegeben. Das bedeutet, dass die Pulssequenz mit einer Genauigkeit von 10 ns ausgegeben wird. Werden Spektren mit einer Integrationszeit von $7,5 \mu\text{s}$ gemessen, beträgt die relative Abweichung der Intensität maximal 0,1 % zwischen zwei Spektren.

Ebenfalls muss das Rauschen der Kamera analysiert werden, um die notwendige Belichtungszeit zu kennen. Dafür werden Spektren mit einer unterschiedlichen Be-

lichtungsdauer und daraus folgend mit einer unterschiedlichen Lichtmenge gemessen. Hierdurch lässt sich das Rauschen bestimmen und mit der berechneten Schrotrauschgrenze vergleichen. Als Ergebnis wurde festgestellt, dass eine Belichtungszeit von 100 s bei einer Leistung 15 mW vor dem Mikroskop notwendig ist.

Wird das Spektrum mit der Zeilenkamera gemessen, so sind Fringes im Spektrum zu erkennen. Diese Fringes stören die weitere Auswertung der Messdaten, weshalb diese entfernt werden. Dafür wurde das Spektrum fourier-transformiert und die beiden Seitenbänder in der Fourier-Transformierten durch den Mittelwert der beiden Randpunkte ersetzt. Anschließend wird darauf die inverse Fourier-Transformation angewendet und das Ergebnis als gemessenes Spektrum betrachtet.

Um mit den schnellen Anrege-Abfrage-Experimenten beginnen zu können, ist es notwendig, die Synchronisation zwischen Auslösen der Zeilenkamera und den Pulsen der AOMs festzulegen. Dafür werden für verschiedene Zeitdifferenzen Spektren gemessen und die optimale Versatzzeit bestimmt.

Mit den Resultaten lassen sich damit jetzt Anrege-Abfrage-Experimente durchführen. Dies wurde beispielhaft an einer Probe aus GaAs durchgeführt. Dabei ist zu sehen, dass die Probe durch den Pumpstrahl angeregt wird, was dazu führt, dass die Reflektivität steigt. Sofort danach beginnt die Probe zu relaxieren und die Reflektivität geht wieder auf das ursprüngliche Niveau zurück.

6.2 Ausblick für weiterführende Arbeiten

Mit den hier gezeigten Aufbauten und Ergebnissen sind weitergehende Forschungsarbeiten möglich. In den Experimenten zur Resonanzfluoreszenz ist es zunächst notwendig, das Problem der schlechteren Unterdrückung bei tiefen Temperaturen zu lösen. Ein möglicher Lösungsansatz wäre das Anbringen von Heizelementen im Kryostat, um den Wärmetransport im Objektiv sowie dem Zylinder unterhalb des Probenhalters zu reduzieren. Dafür müsste ein Heizelement an die Objektivspitze angebracht werden. Das Gleiche sollte mit dem Zylinder möglich sein, wodurch sich die Temperatur des Objektivs und des Zylinders auf Raumtemperatur regeln ließe. Damit könnte das Problem der Längenausdehnung des Zylinders sowie die Effekte, die durch die Abkühlung der Objektivspitze entstehen, auf ein Minimum reduziert werden.

Mit den beschriebenen Experimenten lassen sich nicht nur einzelne Quantenpunkte untersuchen. Der Versuchsaufbau ermöglicht es, neben den Quantenpunkten plasmatische Wellenleiter zu positionieren und so die Kopplung zwischen Quantenpunkt und Wellenleiter zu studieren. So können etwa zwei Quantenpunkte miteinander gekoppelt werden. Hierfür können zum Beispiel die in Abschnitt 3.5 gezeigten Membrane, mit Wellenleitern ausgestattet werden.

Damit die Quantenpunkte beim Ausschneiden nicht beschädigt werden, muss das Verfahren überdacht werden. Eine Möglichkeit ist es, das Materialsystem zu wechseln und stattdessen InAs-Quantenpunkte zu verwenden. Das Kathodolumineszenz-Verfahren wurde an diesen Quantenpunkten bereits erfolgreich angewendet. Jedoch haben diese Quantenpunkte eine Exziton-Linie, die weiter im infraroten Spektralbereich liegt. Deshalb sind in der Folge Änderungen am verwendeten Lasersystem notwendig. Ebenfalls kann über ein verändertes Ausschneideverfahren nachgedacht werden, bei dem die Quantenpunkte weniger hochenergetischen Elektronen ausgesetzt sind, da diese die Probe beschädigen könnten.

A Anhang

A.1 Abkürzungsverzeichnis

0D	0 dimensional
1D	1 dimensional
2D	2 dimensional
3D	3 dimensional
APD	Lawinenphotodiode
AOM	Akustooptischer Modulator
BBO	β -Bariumborat
CCD	Charged Coupled Device
CL	Cameralink
DPSS-Laser	Diodengepumpter Festkörperlaser
FIFO	First in First out
FPGA	Field Programmable Gate Array
GM	Gifford-McMahon
InAs	Indiumarsenid
MBE	Molekularstrahlepitaxie
MOS	Metall Oxid Halbleiter
MOVPE	Metallorganische Dampfphasenepitaxie
OD	Optische Dichte
PD	Photodiode
Piezo	piezoelektrischer Linearaktuator
RAM	Random Access Memory
REM	Rasterelektronenmikroskop
RIE	Reaktives Ionenätzen

A Anhang

SBC	Soleil-Babinet-Kompensator
SIL	Solid Immersion Lens
Ti:Saphir-Laser	Titan-Saphir-Kurzpulslaser
TTL	Transistor-Transistor-Logik
X	Exziton
X ⁺	positiv geladenes Trion
X ⁻	negativ geladenes Trion
2X	Biexziton
zuf. Eh.	zufällige Einheiten

A.2 Bilder zur Resonanzfluoreszenz

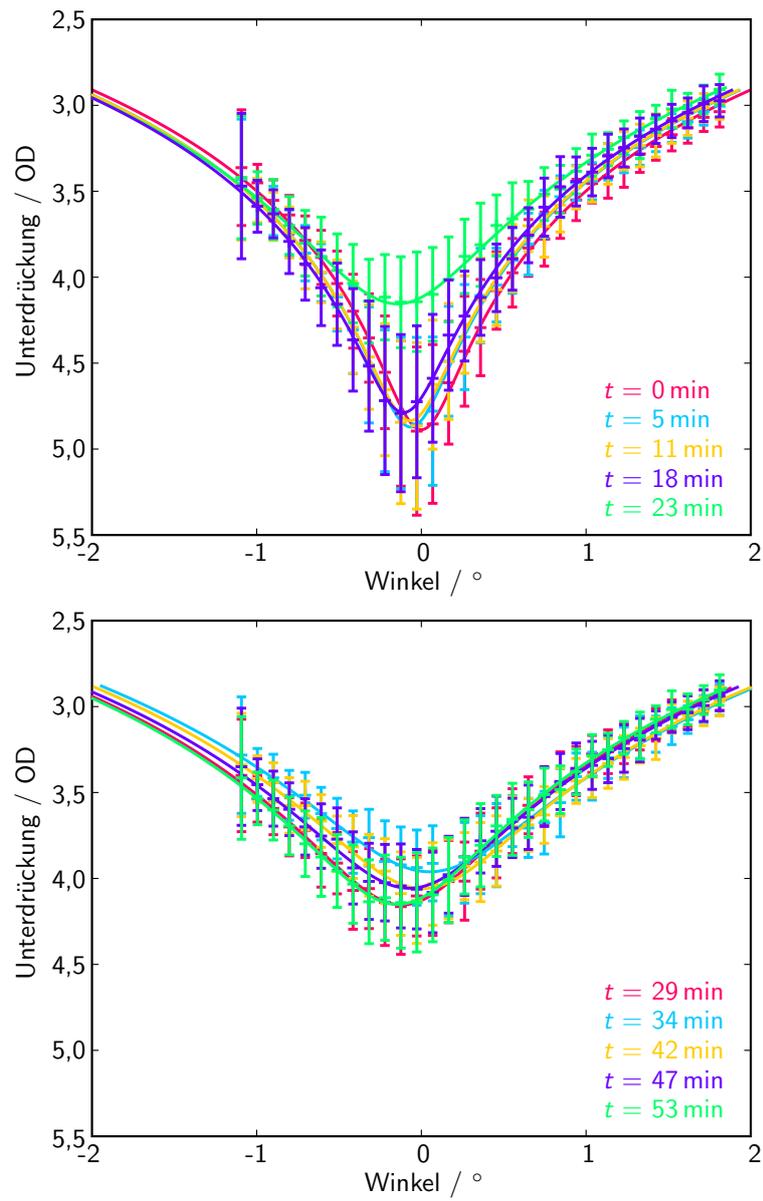


Abbildung A.1: Messdaten und Ausgleichsfunktionen zur Abb. 4.13.

A.3 FPGA Labview-Programm

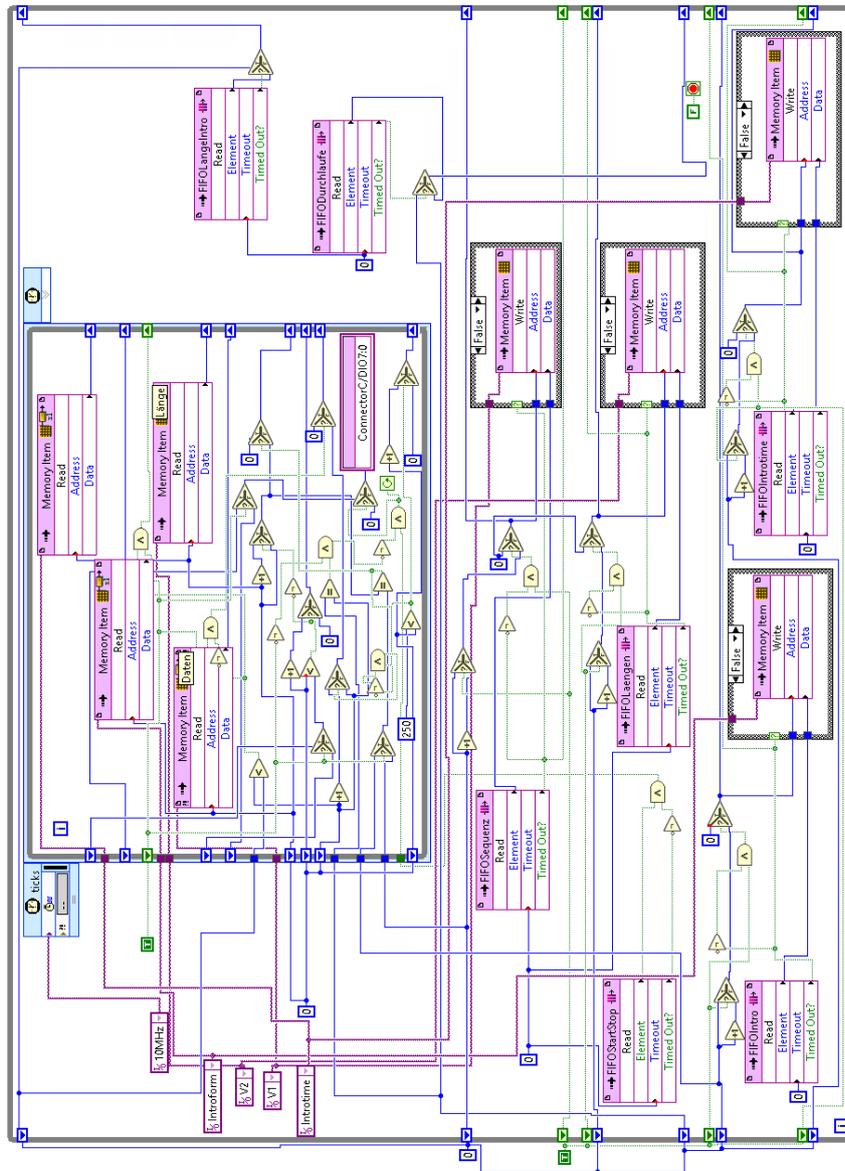


Abbildung A.2: Vollständiges Blockdiagramm zum Steuerprogramm des FPGA.

Literatur

- [1] R. P. Feynman. „Simulating physics with computers“. In: *Int. J. Theor. Phys.* 21.6 (1982), S. 467–488. DOI: 10.1007/BF02650179.
- [2] P. W. Shor. „Algorithms for Quantum Computation: Discrete Logarithms and Factoring“. In: *Proceedings, 35th Annual Symposium on Foundations of Computer Science* (1994), S. 124–134. URL: <http://www-math.mit.edu/~shor/papers/algsfqc-dlf.pdf>.
- [3] L. K. Grover. „A fast quantum mechanical algorithm for database search“. In: *Proceedings, 28th Annual ACM Symposium on the Theory of Computing (STOC)* (1996), S. 212–219. URL: <https://arxiv.org/abs/quant-ph/9605043>.
- [4] C. H. Bennett und D. P. DiVincenzo. „Quantum information and computation“. In: *Nature* 404.6775 (2000), S. 247–255. DOI: 10.1038/35005001.
- [5] M. Hayashi u. a. *Introduction to Quantum Information Science (Graduate Texts in Physics)*. 1. Aufl. Springer-Verlag, 2015.
- [6] A. Imamoglu u. a. „Quantum Information Processing Using Quantum Dot Spins and Cavity QED“. In: *Phys. Rev. Lett.* 83 (20 1999), S. 4204–4207. DOI: 10.1103/PhysRevLett.83.4204.
- [7] D. Loss und D. P. DiVincenzo. „Quantum computation with quantum dots“. In: *Phys. Rev. A* 57 (1 1998), S. 120–126. DOI: 10.1103/PhysRevA.57.120.
- [8] X. Li u. a. „An All-Optical Quantum Gate in a Semiconductor Quantum Dot“. In: *Science* 301.5634 (2003), S. 809–811. DOI: 10.1126/science.1083800.
- [9] S. Ates u. a. „Post-Selected Indistinguishable Photons from the Resonance Fluorescence of a Single Quantum Dot in a Microcavity“. In: *Phys. Rev. Lett.* 103 (16 2009), S. 167402. DOI: 10.1103/PhysRevLett.103.167402.
- [10] A. J. Shields. „Semiconductor quantum light sources“. In: *Nat. Photonics* 1.4 (2007), S. 215–223. DOI: 10.1038/nphoton.2007.46.
- [11] D. Bimberg. „Quantum dot based nanophotonics and nanoelectronics“. In: *Electron. Lett.* 44.3 (2008), S. 168–171. DOI: 10.1049/el:20080074.
- [12] R. Gross und A. Marx. *Festkörperphysik*. 2. Aufl. de Gruyter, 2014.
- [13] J. Kim u. a. „A single-photon turnstile device“. In: *Nature* 397.6719 (1999), S. 500–503. DOI: 10.1038/17295.

- [14] P. Michler u. a. „A Quantum Dot Single-Photon Turnstile Device“. In: *Science* 290.5500 (2000), S. 2282–2285. DOI: 10.1126/science.290.5500.2282.
- [15] A. N. Vamivakas u. a. „Nanoscale Optical Electrometer“. In: *Phys. Rev. Lett.* 107 (16 2011), S. 166802. DOI: 10.1103/PhysRevLett.107.166802.
- [16] D. Sonnenberg u. a. „Highly versatile ultra-low density GaAs quantum dots fabricated by filling of self- assembled nanoholes“. In: *Appl. Phys. Lett.* 101 (2012), S. 143106.
- [17] S. L. Portalupi und P. Michler. „Resonantly Excited Quantum Dots: Superior Non-classical Light Sources for Quantum Information“. In: *Quantum Dots for Quantum Information Technologies*. Hrsg. von P. Michler. Springer, 2017. Kap. 3, S. 77 –121.
- [18] B. R. Mollow. „Power Spectrum of Light Scattered by Two-Level Systems“. In: *Phys. Rev.* 188 (5 Dez. 1969), S. 1969. DOI: 10.1103/PhysRev.188.1969.
- [19] R. E. Grove, F. Y. Wu und S. Ezekiel. „Measurement of the spectrum of resonance fluorescence from a two-level atom in an intense monochromatic field“. In: *Phys. Rev. A* 15 (1 1977), S. 227. DOI: 10.1103/PhysRevA.15.227.
- [20] C. Matthiesen, A. N. Vamivakas und M. Atatüre. „Subnatural Linewidth Single Photons from a Quantum Dot“. In: *Phys. Rev. Lett.* 108 (9 2012), S. 093602. DOI: 10.1103/PhysRevLett.108.093602.
- [21] C. Wolpert u. a. „Transient Reflection: A Versatile Technique for Ultrafast Spectroscopy of a Single Quantum Dot in Complex Environments“. In: *Nano Lett.* 12.1 (2012), S. 453. DOI: 10.1021/nl203804n.
- [22] C. Wolpert. „Ultrafast Spectroscopy of Single Quantum Dots“. Diss. Physikalisches Institut der Universität Stuttgart, 2012.
- [23] F. Kanal u. a. „100-kHz shot-to-shot broadband data acquisition for high-repetition-rate pump–probe spectroscopy“. In: *Opt. Express* 22.14 (2014), S. 16965–16975. DOI: 10.1364/OE.22.016965.
- [24] M. Benyoucef u. a. „Temperature dependent optical properties of single, hierarchically self-assembled GaAs/AlGaAs quantum dots“. In: *Nanoscale Res. Lett.* 1.2 (2006), S. 172.
- [25] C. Enns und S. Hunklinger. *Tieftemperaturphysik*. Springer, 2000.
- [26] K. Jousten, Hrsg. *Wutz Handbuch Vakuumtechnik*. Vieweg+Teubner Verlag, 2004.
- [27] J. Law. *Closed Cycle Cryostat Type Spectro*. Cryovac Ges. für Tieftemperaturtechnik. 2018.
- [28] A. T. A. M. de Waele. „Basic Operation of Cryocoolers and Related Thermal Machines“. In: *J. Low Temp. Phys.* 164 (2011), S. 179–236. DOI: 10.1007/s10909-011-0373-x.

- [29] M. D. Atrey. „Cryocooler Technology: The Path to Invisible and Reliable Cryogenics“. In: *Cryocoolers - Theory and Applications*. Hrsg. von M. D. Atrey. Springer Nature Switzerland, 2020. Kap. 1, S. 1–46.
- [30] TransMIT-Center for Adaptive Cryotechnology und Sensors. *Two-Stage 4 K Pulse Tube Cooler - User Manual*. PTD406-C (Ser. No. 039). 2014.
- [31] P. Y. Yu und M. Cardona. *Fundamentals of Semiconductors*. 4. Aufl. Springer Verlag, 2010.
- [32] H. Ibach und H. Lüth. *Festkörperphysik - Einführung in die Grundlagen*. Springer, 2009.
- [33] J. Smoliner. *Grundlagen der Halbleiterphysik*. Springer Spektrum, 2018.
- [34] W. Demtröder. *Experimentalphysik 3*. 5. Aufl. Springer Spektrum, 2016.
- [35] T. Edvinsson. „Optical quantum confinement and photocatalytic properties in two-, one- and zero-dimensional nanostructures“. In: *R. Soc. Open Sci.* 5 (2018), S. 180387. DOI: 10.1098/rsos.180387.
- [36] T. Fauster u. a. *Oberflächenphysik*. 2. Aufl. De Gruyter, 2019.
- [37] J.-S. Lee. „Growth of Self-Organized Quantum Dots“. In: *Semiconductor Quantum Dots*. Hrsg. von Y. Masumoto und T. Takagahara. Springer, 2002. Kap. 1, S. 1–58.
- [38] F. Cardarelli. *Materials Handbook - A Concise Desktop Reference*. Springer, 2000.
- [39] R. Loudon. *The quantum theory of light*. Clarendon Press, 1983.
- [40] M. Orszag. *Quantum Optics*. 3. Aufl. Springer, 2016.
- [41] R. P. Feynman, F. L. Vernon und R. W. Hellwarth. „Geometrical Representation of the Schrödinger Equation for Solving Maser Problems“. In: *J. Appl. Phys.* 28.1 (1957), S. 49–52. DOI: 10.1063/1.1722572.
- [42] A. Schliwa und M. Winkelnkemper. „Theory of Excitons in InGaAs/GaAs Quantum Dots“. In: *Semiconductor Nanostructures*. Hrsg. von D. Bimberg. Springer, 2008. Kap. 7, S. 139–164.
- [43] C. Schneider, S. Höfling und A. Forchel. „Growth of III-V semiconductor quantum dots“. In: *Quantum Dots: optics, electron transport and future applications*. Hrsg. von Alexander Tartakovskii. 1. Aufl. Cambridge University Press, 2012. Kap. 1, S. 3–20.
- [44] D. Bimberg, S. Rodt und U. W. Pohl. „Halbleiter-Quantenpunkte – ein Blick in die Welt der Nanos“. In: *Physik im 21. Jahrhundert - Essays zum Stand der Physik*. Hrsg. von W. Martienssen und D. Röß. Springer, 2011. Kap. 3, S. 109–142.
- [45] P. Tighineanu u. a. „The Mesoscopic Nature of Quantum Dots in Photon Emission“. In: *Quantum Dots for Quantum Information Technologies*. Hrsg. von P. Michler. Springer Nature, 2017. Kap. 5, S. 165–198.

- [46] A. Graf u. a. „Excitonic states in GaAs quantum dots fabricated by local droplet etching“. In: *Phys. Rev. B* 89 (11 2014), S. 115314. DOI: 10.1103/PhysRevB.89.115314.
- [47] Y. H. Huo, A. Rastelli und O. G. Schmidt. „Ultra-small excitonic fine structure splitting in highly symmetric quantum dots on GaAs (001) substrate“. In: *Appl. Phys. Lett.* 102.15 (2013), S. 152105. DOI: 10.1063/1.4802088.
- [48] K. Iizuka. *Elements of Photonics, Volume I: In Free Space and Special Media*. John Wiley & Sons, 2002.
- [49] L. Wang u. a. „Self-assembled quantum dots with tunable thickness of the wetting layer: Role of vertical confinement on interlevel spacing“. In: *Phys. Rev. B* 80 (8 2009), S. 085309. DOI: 10.1103/PhysRevB.80.085309.
- [50] J. D. Plumhof u. a. „Experimental investigation and modeling of the fine structure splitting of neutral excitons in strain-free GaAs/Al_xGa_{1-x}As quantum dots“. In: *Phys. Rev. B* 81 (12 2010), S. 121309. DOI: 10.1103/PhysRevB.81.121309.
- [51] X. Wu u. a. „On-Chip Single-Plasmon Nanocircuit Driven by a Self-Assembled Quantum Dot“. In: *Nano Letters* 17.7 (2017), S. 4291–4296. DOI: 10.1021/acs.nanolett.7b01284.
- [52] D. E. Chang u. a. „A single-photon transistor using nanoscale surface plasmons“. In: *Nature Physics* 3.11 (2007), S. 807–812. DOI: 10.1038/nphys708.
- [53] M. Gschrey u. a. „In situ electron-beam lithography of deterministic single-quantum-dot mesa-structures using low-temperature cathodoluminescence spectroscopy“. In: *Appl. Phys. Lett.* 102.25 (2013), S. 251113. DOI: 10.1063/1.4812343.
- [54] D. Wöhrle, M. W. Tausch und W.-D. Stohrer. *Photochemie*. Wiley-VCH, 1998.
- [55] H. J. Kimble und L. Mandel. „Theory of resonance fluorescence“. In: *Phys. Rev. A* 13 (6 1976), S. 2123–2144. DOI: 10.1103/PhysRevA.13.2123.
- [56] A. N. Vamivakas u. a. „Spin-resolved quantum-dot resonance fluorescence“. In: *Nat. Phys.* 5.3 (März 2009), S. 198–202. DOI: 10.1038/nphys1182.
- [57] A. N. Vamivakas u. a. „Resonance fluorescence from a single quantum dot“. In: *Quantum Dots: optics, electron transport and future applications*. Hrsg. von Alexander Tartakovskii. 1. Aufl. Cambridge University Press, 2012. Kap. 5, S. 86–101.
- [58] D. Meschede. *Optik, Licht und Laser*. 3. Aufl. Vieweg+Teubner, 2008.
- [59] W. Vogel und D.-G. Welsch. *Quantum Optics*. Wiley-VCH, 2006.
- [60] M. O. Scully und M. S. Zubairy. *Quantum optics*. Cambridge University Press, 1997.

- [61] H. J. Kimble, M. Dagenais und L. Mandel. „Photon Antibunching in Resonance Fluorescence“. In: *Phys. Rev. Lett.* 39 (11 1977), S. 691–695. DOI: 10.1103/PhysRevLett.39.691.
- [62] A. V. Kuhlmann u. a. „A dark-field microscope for background-free detection of resonance fluorescence from single semiconductor quantum dots operating in a set-and-forget mode“. In: *Rev. Sci. Instrum.* 84 (2013), S. 073905. DOI: 10.1063/1.4813879.
- [63] L. Monniello u. a. „Indistinguishable single photons generated by a quantum dot under resonant excitation observable without postselection“. In: *Phys. Rev. B* 90 (4 2014), S. 041303. DOI: 10.1103/PhysRevB.90.041303.
- [64] A. Kurzmann u. a. „Photoelectron generation and capture in the resonance fluorescence of a quantum dot“. In: *Appl. Phys. Lett.* 108 (2016), S. 263108. DOI: 10.1063/1.4954944.
- [65] L. N. Tripathi u. a. „Resonance fluorescence from an atomic-quantum-memory compatible single photon source based on GaAs droplet quantum dots“. In: *Appl. Phys. Lett.* 113.2 (2018), S. 021102. DOI: 10.1063/1.5034402.
- [66] Sacher Lasertechnik GmbH. *Manual LION Series*.
- [67] Sacher Lasertechnik GmbH. *Technical Note – No. 14*. URL: <http://docs.sacher-laser.com/linewidth.pdf>.
- [68] R. Paschotta. *RP Photonics Encyclopedia - External-cavity Diode Lasers*. URL: https://www.rp-photonics.com/external_cavity_diode_lasers.html (besucht am 01.04.2020).
- [69] R. Paschotta. *RP Photonics Encyclopedia - Laser Scanners*. URL: https://www.rp-photonics.com/laser_scanners.html (besucht am 02.04.2020).
- [70] R. Paschotta. *RP Photonics Encyclopedia - Telecentric Lenses*. URL: https://www.rp-photonics.com/telecentric_lenses.html (besucht am 02.04.2020).
- [71] W. Zinth und U. Zinth. *Optik - Lichtstrahlen - Wellen - Photonen*. 2. Aufl. Oldenbourg Wissenschaftsverlag, 2009.
- [72] H.-J. Bargel und G. Schulze, Hrsg. *Werkstoffkunde*. 11. Aufl. Springer Vieweg, 2012.
- [73] E. Hornbogen, G. Eggeler und E. Werner. *Werkstoffe*. 12. Aufl. Springer Vieweg, 2019.
- [74] A. M. Weiner. *Ultrafast Optics*. John Wiley & Sons, 2009.
- [75] Laser Quantum GmbH. *Gigajet Twin c/c*. 2013.
- [76] Laser Quantum GmbH. *TL-1000-ASOPS Repetition Rate Offset Stabilization Unit*. 2013.
- [77] A. M. Weiner. „Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators“. In: *Review of Scientific Instruments* 71.5 (2000), S. 1929–1960. DOI: 10.1063/1.1150614. URL: <https://doi.org/10.1063/1.1150614>.

- [78] C. Papadopoulos. *Solid-State Electronic Devices*. Springer, 2014.
- [79] F. Thuselt. *Physik der Halbleiterbauelemente*. Springer Spektrum, 2018.
- [80] D. F. Barbe. „Imaging Devices Using the Charge-Coupled Concept“. In: *Proc. IEEE* 63.1 (1975), S. 38–67. DOI: 10.1109/PROC.1975.9707.
- [81] e2v semiconductors SAS. *AVIIVA EM2-EM4 Line Scan Camera*. 2014.
- [82] Matrox Electronic Systems Ltd. *Matrox Solios Installation and Hardware Reference*. Manual no. Y10898-101-0500.
- [83] E. Hering und R. Martin, Hrsg. *Photonik*. Springer, 2006.
- [84] J. Eichler und H. J. Eichler. *Laser - Bauformen, Strahlführung, Anwendungen*. 7. Aufl. Springer, 2010.
- [85] R. Heilmann. *Rauschen in der Sensorik*. 1. Aufl. Springer Vieweg, 2020.

Eigene Publikationen

Zeitschriftenartikel

- [1] C. Li, N. Krauß, **G. Schäfer**, L. Ebner, O. Kliebisch, J. Schmidt, S. Winnerl, M. Hettich, T. Dekorsy, “High-speed asynchronous optical sampling based on GHz Yb:KYW oscillators”, *Opt. Express* **25**, 9204 (2017).
- [2] N. Krauß, **G. Schäfer**, J. Flock, O. Kliebisch, C. Li, H. G. Barros, D. C. Heinecke, T. Dekorsy, “Two-colour high-speed asynchronous optical sampling based on offset-stabilized Yb:KYW and Ti:sapphire oscillators”, *Opt. Express* **23**, 18288 (2015).

Konferenzbeiträge

- [3] **G. Schäfer**, A. Rastelli, M. Lippitz, “Resonance fluorescence on plasmon-quantum dot hybrids”, DPG spring meeting 2019 (2019).
- [4] **G. Schäfer**, A. Rastelli, M. Lippitz, “Speeding up a single quantum dot pump-probe experiment”, DPG spring meeting 2018 (2018).
- [5] **G. Schäfer**, A. Rastelli, M. Lippitz, “Speeding up a single quantum dot pump-probe experiment”, 5th international workshop on the optical properties of nanostructures (2018).
- [6] **G. Schäfer**, C. Dicken, C. Wolpert, A. Rastelli, M. Lippitz, “Speeding up a single quantum dot pump-probe experiment”, DPG spring meeting 2017 (2017).
- [7] **G. Schäfer**, C. Dicken, M. Lippitz, “Speeding up a single quantum dot pump-probe experiment”, Dpg spring meeting 2016 (2016).
- [8] **G. Schäfer**, C. Dicken, C. Wolpert, A. Rastelli, M. Lippitz, “Speeding up a single quantum dot experiment”, 13th international workshop on nonlinear optics and excitation kinetics in semiconductors (2016).

Erklärung

Hiermit versichere ich an Eides statt, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die von mir angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe.

Weiterhin erkläre ich, dass ich die Hilfe von gewerblichen Promotionsberatern bzw. –vermittlern oder ähnlichen Dienstleistern weder bisher in Anspruch genommen habe, noch künftig in Anspruch nehmen werde.

Zusätzlich erkläre ich hiermit, dass ich keinerlei frühere Promotionsversuche unternommen habe.

2. Mai 2021

Gerhard J. Schäfer