Spinrauschen in Nulldimensionalen Strukturen

Von der Fakultät für Mathematik und Physik der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover

zur Erlangung des Grades Doktor der Naturwissenschaften Dr. rer. nat.

 $\underset{\text{von}}{\text{genehmigte Dissertation}}$

Ramin Dahbashi, M.Sc. GEBOREN AM 3. APRIL 1987 IN KIEL

2015

Referent: Prof. Dr. M. Oestreich Korreferent: Prof. Dr. R. J. Haug Tag der Promotion: 24. November 2015

für Kristina

Kurzzusammenfassung

In dieser Arbeit wird die Spindynamik lokalisierter Löcher in Halbleiter-Quantenpunkten mit der Methode der Spinrauschspektroskopie untersucht. Diese Technik ermöglicht eine optische Abfrage des Lochspins im thermodynamischen Gleichgewicht. Die Anzahl der abgefragten Spins reicht von einigen zehn in einem Ensemble von Quantenpunkten bis hin zu einem einzelnen Lochspin in einem individuellen Quantenpunkt. Die intrinsische Dynamik des Lochspins in Quantenpunkten wird im Wesentlichen durch die Hyperfeinwechselwirkung mit den Kernspins bestimmt, was im Kontext des Zentral-Spin-Problems steht.

Für Ensemble-Messungen kann die transversale Spinlebenszeit zu $T_2^* = 27$ ns bestimmt werden und liefert den Nachweis für einen positiv geladenen Quantenpunkt. Zudem wird die longitudinale Spin-

lebenszeit T_1 in Abhängigkeit vom externen longitudinalen Magnetfeld sowie der Leistung des Abfragelasers untersucht. Die Magnetfeldabhängigkeit bestätigt die Bedeutung der Hyperfeinwechselwirkung für Löcher und zeigt die Möglichkeit, dass ein Abschirmen der Dephasierung über die Hyperfeinwechselwirkung durch ein externes Magnetfeld möglich ist. Die Restabsorption des Abfragelasers zeigt den empfindlichen Einfluss auf die gemessene Spinlebenszeit.

Mit der polarisationsaufgelösten Photolumineszenz lässt sich insbesondere der Ladungszustand einzelner Quantenpunkte bestimmen. Die Abhängigkeit der integrierten Spinrauschleistung bestätigt den Zusammenhang des Spinrauschens mit einer einzelnen Resonanz eines geladenen Quantenpunktes. Wie für den Fall von Ensemble-Messungen wird ein numerisches Modell entwickelt, das den Verlauf der Spinlebenszeit in Abhängigkeit der Abfrageintensität wiedergibt. Hierfür wird die Ladungsfluktuation in der Umgebung des Quantenpunktes berücksichtigt. Weiterhin wird die Abhängigkeit der T_1 -Zeit vom externen Magnetfeld behandelt. Über die Untersuchung zum longitudinalen Magnetfeld lässt sich das effektive Kernmagnetfeld für den Lochspin zu 3...5 mT abschätzen. Zusätzlich zeigt die Spinlebenszeit einen Anstieg ohne Sättigung über vier Größenordnungen für kleine externe Magnetfelder bis 31 mT, der dem Zusammenhang $T_1 \propto B^{3/2}$ folgt. Für ein longitudinales Magnetfeld von 31 mT beträgt die experimentell bestimmte T_1 -Zeit 180 µs.

Die Korrelation höherer Ordnung zeigt für eine simulierte Spindynamik, dass hiermit Details zur Ladungsfluktuation aufgelöst werden können. Die Spektren lassen sich verschiedenen, zeitlich fluktuierenden Resonanzen zuordnen.

Schlagworte: Halbleiter, Quantenpunkte, Spindynamik, Spinrauschen

Abstract

In this thesis the spin dynamics of holes localized in semiconductor quantum dots is investigated by spin noise spectrosopy. Using this technique the hole spin can be optically probed while it remains in thermodynamic equilibrium. The number of spins that are probed in this way is up to a few tens in ensembles of quantum dots, down to as few as a single hole spin in an individual quantum dot. The intrinsic hole spin dynamics is mainly affected by the hyperfine interaction with the nuclear spin bath in the context of the central spin problem.

The transverse spin lifetime T_2^* is found to be 27 ns for the spin ensemble, this is given as evidence that the quantum dots are positively charged. Further, the longitudinal spin lifetime T_1 is investigated under the influence of the external longitudinal magnetic field and as a function of the probe laser power. The magnetic field dependence underlines the relevance of hyperfine interaction for hole spins in quantum dots. One can screen the influence of hyperfine interaction by an external magnetic field. The magnitude of residual laser absorption also has a significant effect on the spin lifetime.

Polarisation resolved photoluminescence is used to determine the charge status of the quantum dot. The integrated spin noise power confirms that the origin of the spin noise is from a single resonance of a charged quantum dot. A numerical model is developed to reproduce the dependence of the spin lifetime on the probe laser intensity. Charge fluctuations in the vicinity of the quantum dot are taken into account. Furthermore, the dependence of the T_1 time on an external magnetic field is investigated. Using this, the effective nuclear magnetic field is estimated for hole spins to be a 3...5 mT. The spin lifetime shows a significant increase without any saturation for small magnetic fields up to 31 mT. This relation is described by $T_1 \propto B^{3/2}$ behaviour. The measured T_1 time is 180 µs for a longitudinal magnetic field of 31 mT.

Simulations of the spin dynamics show that correlations of higher order reveal details about the charge fluctuations. The specific spectral peaks can be individually attributed to the different time-fluctuating resonances.

Keywords: semiconductor, quantum dots, spin dynamics, spin noise

Wissenschaftliche Beiträge

Veröffentlichungen in Fachzeitschriften

R. Dahbashi, J. Hübner, F. Berski, K. Pierz, M. Oestreich, *Optical Spin Noise of a Single Hole Spin Localized in an (InGa)As Quantum Dot*, Phys. Rev. Lett. **112**, 156601 (2014).

J. Hübner, F. Berski, **R. Dahbashi**, M. Oestreich, *The rise of spin noise spectroscopy in semiconductors: From acoustic to GHz frequencies*, physica status solid b **251** (9), 1824 (2014).

J. Hübner, **R. Dahbashi**, F. Berski, J. Wiegand, H. Kuhn, J. G. Lonnemann, M. Oestreich, *Spin noise spectroscopy in semiconductors: from a billion down to single spins*, Proc. SPIE, Spintronics VII **9167**, 91672R (2014).

M. Oestreich, **R. Dahbashi**, F. Berski, J. Hübner Spin noise spectroscopy: hole spin dynamics in semiconductor quantum dots, Proc. SPIE, Spintronics V **8461**, 946105 (2012).

Konferenzbeiträge

R. Dahbashi, J. Hübner, F. Berski, J. Wiegand, X. Marie, K. Pierz, H.W. Schumacher, M. Oestreich, *Spin Noise of Holes in Quantum Dots*, Vortrag auf der DPG-Frühjahrstagung, Berlin (2012)

R. Dahbashi, J. Hübner, F. Berski, J. Wiegand, X. Marie, K. Pierz, H.W. Schumacher, M. Oestreich, *Spin noise spectroscopy of heavyholes in (InGa)As quantum dots*, Poster auf der Konferenz Physics and Applications of Spin-related Phenomena in Semiconductors, Eindhoven (Niederlande) (2012)

R. Dahbashi, J. Wiegand, X. Marie, K. Pierz, H.W. Schumacher, J. Hübner, M. Oestreich, *Spin Dynamics of Heavy-Holes in (InGa)As Quantum Dots*, Poster auf Konferenz Optics of Excitons in Confined Systems, Rom (Italien) (2013)

R. Dahbashi, J. Hübner, F. Berski, J. Wiegand, K. Pierz, M. Oestreich, *Spin noise spectroscopy at the extrem limit: Spin dynamics of a single hole localized in an InGaAs quantum dot*, Vortrag auf dem NanoDay des Laboratorium für Nano- und Quantenengineering, Hannover (2013)

R. Dahbashi, J. Hübner, F. Berski, K. Pierz, and M. Oestreich, *Optical Spin Noise of a Single Hole in a Quantum Dot*, Vortrag auf der DPG-Frühjahrstagung, Dresden (2014) **R. Dahbashi**, J. Hübner, F. Berski, J. Wiegand, K. Pierz, and M. Oestreich, *Hole Spin Dynamics in a Single (InGa)As Quantum Dot*, Vortrag auf der International Conference on Quantum Dots, Pisa (Italien) (2014)

R. Dahbashi, J. Wiegand, K. Pierz, A. Ludwig, A. Wieck, M. Oestreich, and J. Hübner, *Spin Noise of Electrons and Holes in Single Quantum Dots*, Vortrag auf dem Quantum Dot Day, Cambridge (Vereinigtes Königreich) (2015)

R. Dahbashi, J. Wiegand, J. Hübner, K. Pierz, A. Ludwig, A. Wieck, and M. Oestreich, *Spin Dynamic of Electron and Holes in Single Quantum Dots*, Vortrag auf der DPG-Frühjahrstagung, Berlin (2015)

Inhaltsverzeichnis

1	Einl	eitung		17		
2	Theoretischer Hintergrund					
	2.1	Quant	enpunkte	22		
		2.1.1	Herstellung	25		
		2.1.2	Energieniveaus und Bandstruktur	27		
		2.1.3	Photolumineszenz und Feinstruktur	28		
	2.2	Spindy	ynamik und Spinlebenszeit	32		
		2.2.1	Hyperfeinwechselwirkung	34		
		2.2.2	Einfluss externer Magnetfelder	38		
		2.2.3	Unterschied für Elektronen und Löcher	41		
		2.2.4	Ladungsfluktuationen	45		

	2.3	Spinra	uschspektroskopie	48			
		2.3.1	Faraday-Effekt	49			
		2.3.2	Optische Auswahlregeln	50			
		2.3.3	Statistik	51			
		2.3.4	Spinrausch-Spektrum	52			
		2.3.5	Blockade	54			
		2.3.6	Messgeometrie	57			
3	Vers	suchsau	fbau	61			
	3.1	Kanne	enmessplatz	62			
	3.2	Probe	nsystem	63			
	3.3	Photo	lumineszenzaufbau	67			
	3.4	Spinra	uschaufbau	71			
	3.5	Lasers	ysteme	75			
		3.5.1	Diodenlaser	76			
		3.5.2	Ringlaser	76			
4	Messungen am Quantenpunkt-Ensemble						
	4.1	Polarisationsaufgelöste Photolumineszenz					
	4.2	Spinrauschen					
		4.2.1	Abhängigkeit vom longitudinalen Magnetfeld	84			
		4.2.2	Abhängigkeit von der Laserintensität	86			
		4.2.3	Linienform des Spinrauschspektrums	89			
5	Messungen am Einzel-Quantenpunkt						
	5.1	Photolumineszenz und Feinstrukturaufspaltung 9					
	5.2	Spinrauschen					
		5.2.1	Abhängigkeit von der Laserenergie	98			
		5.2.2	Abhängigkeit von der Laserintensität	100			
		5.2.3	Abhängigkeit vom longitudinalen Magnetfeld	112			
		5.2.4	Korrelation höherer Ordnung	117			
6	Zus	ammen	fassung und Ausblick	125			

Α	Probe	131	
В	Abschätzung zur Integrationszeit höherer Korrelationen	135	
Literaturverzeichnis			
Symbol- und Abkürzungsverzeichnis			
Abbildungs- und Tabellenverzeichnis			
Lebenslauf			
Danksagung			

kapitel 1

Einleitung

Die Entwicklung der Informationstechnologie zum Quantencomputer setzt einen langlebigen kohärenten Zustand voraus. Dieser kann in Form des Spins eines Ladungsträgers realisiert werden. Die Größe eines einzelnen Spins stellt ein quantenmechanisches Zwei-Level-System dar [1, 2]. Damit lässt sich ein sogenanntes Qubit realisieren, welches dem quantenmechanischen Pendant eines Bit entspricht und sich durch die Superposition zweier möglicher Zustände auszeichnet. Zur Anwendung als Qubit in einem Quantencomputer muss der Spin initialisierbar, manipulierbar und auslesbar sein [3].

Insbesondere Systeme aus dem Bereich der Festkörperphysik - wie

der Spin lokalisierter Ladungsträger in Halbleiter-Quantenpunktenwerden in diesem Zusammenhang als aussichtsreiche Kandidaten angesehen. Ein Vorteil von Quantenpunkten liegt in der flexiblen Herstellung und der möglichen Implementierung in bestehende Halbleiterstrukturen durch positionskontrolliertes Wachstum [4]. Weiterhin existiert eine mögliche Skalierbarkeit durch die Wechselwirkung mit Licht und der Nutzung von Photonen als fliegende Qubits [5].

Quantenpunkte haben weitere besondere Eigenschaften. So stellen Quantenpunkte Einzelphotonenquellen mit exzellenten optischen Eigenschaften dar [3,6,7]. Zudem ermöglicht die effiziente Wechselwirkung mit Photonen die Verschränkung zwischen Photon und Quantenpunkt [5, 8–11] sowie die Erzeugung verschränkter Photonen-Paare mit Quantenpunkten [12]. Verschränkung bedeutet hier eine quantenmechanische Verbindung zweier Spins über weite Entfernungen.

Die für die Realisierbarkeit eines Quantencomputers notwendigen DiVincenzo-Kriterien [13,14] sind für Quantenpunkte beispielsweise mit der experimentellen Demonstration der Initialisierbarkeit [1, 2, 15–18], der Manipulation [19–24] und des Auslesens [25,26] vom Ladungsträgerspin gezeigt worden. Eine ganz wesentliche Kenngröße in diesem Zusammenhang ist die Kohärenzzeit oder Spinlebenszeit. Diese beschreibt die Dynamik des Informationsverlustes eines Spins und muss signifikant länger sein als die Manipulations- und Ausleseprozesse [27]. Wenngleich die Manipulation schon im Bereich von Pikosekunden durch die Nutzung gepulster Laser stattfinden kann, sind für spätere Anwendungen möglichst lange Spinlebenszeiten vorteilhaft.

Für einen lokalisierten Spin in einem Quantenpunkt ergibt sich für die Spinlebenszeit der Vorteil, dass viele Mechanismen unwirksam sind, die die Spinlebenszeit in höher-dimensionalen Systemen begrenzen [28]. Im Wesentlichen ist die Dynamik durch die Hyperfeinwechselwirkung mit den Spins der Kerne im Quantenpunkt-Volumen bestimmt. Hiermit stellt ein Quantenpunkt ein gutes Beispielsystem [29] für das Zentral-Spin-Problem [30–32] dar. Dieses Zentral-Spin-Problem bezeichnet ein System aus einem zentralen Spin und einem umgebenden Spinbad. Während Lochspins in Volumenmaterial oder Quantenfilmen im Vergleich zu Elektronen sehr kurze Lebenszeiten aufweisen [28], ist die für lokalisierte Löcher dominierende Hyperfeinwechselwirkung im Vergleich zu Elektronen im Quantenpunkt sogar verringert [28, 33, 34]. Lokalisierte Löcher zeigen sich somit als sehr vielversprechend in Bezug auf lange Spinlebenszeiten [1, 18, 20, 35]. Andere Varianten zur Minderung der Hyperfeinwechselwirkung sind die Verwendung von kernspinfreien Materialien wie etwa isotopenreinem Silizium [36] oder eine gezielte Kernspinpolarisation [37].

Die Wechselwirkung mit den Kernspins lässt sich zudem durch externe Magnetfelder verändern [28, 31, 33, 38]. In Hinblick auf den Einfluss externer Magnetfelder existieren zahlreiche Untersuchungen und Modelle für den Bereich hoher Magnetfelder [2, 39–42], wohingegen noch Unstimmigkeiten für kleine Magnetfelder vorherrschen [41, 43].

Diese Arbeit soll zum weiteren Verständnis der Spindynamik lokalisierter Löcher in Quantenpunkten im Kontext des Zentral-Spin-Problems beitragen. Insbesondere der Bereich kleiner Magnetfelder steht im Fokus der Untersuchungen. Als Methode wird die Spinrauschspektroskopie verwendet. Diese stellt eine Technik mit breiten Anwendungsmöglichkeiten und besonderen Eigenschaften dar [44]. Sie besitzt störungsfreien Charakter und das Spinsystem wird nicht nachhaltig verändert. Grundsätzlich ist im Grenzfall eine quantenmechanisch störungsfreie Messung ohne Projektion des Spinzustandes möglich [45]. Weiterhin kann mittels Spinrauschspektroskopie eine Verschränkung von Spin-Ensembles realisiert werden, wie für Atom-Ensembles gezeigt wurde [46,47]. Nach ersten Spinrauschmessungen am Quantenpunkt-Ensemble in 2010 [48] und 2012 [49,50]

1 Einleitung

stellt die in dieser Arbeit vorgestellte Detektion eines einzelnen Spins das ultimative Limit dar.

Im Folgenden werden zunächst die nötigen theoretischen Grundlagen erläutert. Hierzu zählen Halbleiter-Quantenpunkte und deren optische Eigenschaften, die Spindynamik lokalisierter Ladungsträger und das Prinzip der Spinrauschspektroskopie. Anschließend wird der Versuchsaufbau und das verwendete Probensystem von Löchern in Quantenpunkten dargestellt. Zur besseren Einordnung der Ergebnisse werden kurz Messungen aus [49,51] am Quantenpunkt-Ensemble vorgestellt um im Weiteren die Photolumineszenz- und Spinrauschmessungen am Quantenpunkt-Ensemble und schließlich am einzelnen Lochspin darzustellen. Hierbei wird die Abhängigkeit der Spinlebenszeit von externen Magnetfeldern und Eigenschaften des Abfragelasers untersucht. Es wird ein numerisches Modell erläutert, das die experimentellen Befunde wiedergibt und Ladungsfluktuationen in der Umgebung der Quantenpunkte berücksichtigt. Im Anschluss wird kurz auf Korrelationen höherer Ordnung eingegangen. Die Arbeit schließt mit einer kurzen Zusammenfassung und einem Ausblick auf weitere Untersuchungen. Teile dieser Arbeit sind in [52–55] veröffentlicht.

KAPITEL 2

Theoretischer Hintergrund

Zum Verständnis der in Kapitel 4 und 5 vorgestellten Ergebnisse dieser Arbeit sollen hier die nötigen theoretischen Grundlagen eingeführt werden. Hierzu zählen das System eines Halbleiter-Quantenpunktes (englisch: quantum dot, QD) und dessen Photolumineszenz (PL) sowie die Bestimmung des Ladungszustandes eines Quantenpunktes über die Photolumineszenz. Weiterhin werden die quantenmechanische Größe des Spins von Elektronen und Löchern im Quantenpunkt und deren Lebenszeit sowie Wechselwirkung mit dem umgebenden Kernspinbad (Hyperfeinwechselwirkung) behandelt. Insbesondere werden die Unterschiede zwischen Elektronen und Löchern im Zentral-Spin-Problem beschrieben, welches ein System aus einem zentralen Spin in einem Bad von Kernspins bezeichnet. Anschließend wird das Prinzip der Spinrauschspektroskopie (SRS) erläutert. Hierzu wird auf die optischen Auswahlregeln, den Faraday-Effekt sowie die Statistik der Ladungsträgerspins im thermodynamischen Gleichgewicht eingegangen.

2.1 Quantenpunkte

Halbleiterquantenpunkte sind ein spezielles System einer Halbleiter-Heterostruktur. Das bedeutet, dass unter Berücksichtigung der Bandlücke und der Gitterkonstante zweier Halbleiter eine Potentialstruktur für die Ladungsträger entsteht, die die Bewegung der Elektronen im Leitungsband bzw. der Löcher im Valenzband in allen drei Raumrichtungen einschränkt. Durch die vollständige Bewegungseinschränkung und der damit verbundenen Ausdehnung der Wellenfunktion in der Größenordnung der De-Broglie-Wellenlänge in Festkörpern handelt es sich um nulldimensionale Nanostrukturen [56,57].



Abbildung 2.1: Transmissionselektronenmikroskop-Aufnahme eines Halbleiter-Quantenpunktes (aus [3]).

Ein wesentliches Merkmal der eingeschränkten Dimensionalität von Ladungsträgern in Halbleitersystemen ist die veränderte Zustandsdichte. Die quasi-kontinuierliche Zustandsdichte von Volumen-Halbleitern [58] geht für Quantenpunkte in eine diskrete Zustandsdichte vollständig quantisierter Energien über (vgl. Abb. 2.2) [59]. Aufgrund der Analogie zur Zustandsdichte von Atomen werden Quantenpunkte auch als künstliche Atome bezeichnet [29,60].



Abbildung 2.2: Zustandsdichte als Funktion der Energie für Halbleitersysteme unterschiedlicher Dimension berechnet aus der Effektiven-Masse-Näherung (aus [59]).

Die in dieser Arbeit untersuchten Quantenpunkte basieren auf den III-V Verbindungshalbleitern Galliumarsenid (GaAs) und Indiumarsenid (InAs), welche in der Zinkblende-Struktur kristallisieren. Die für optische Prozesse wichtigsten Bänder befinden sich im Impulsraum am Γ -Punkt. In der Beschreibung mittels 8-Band kp-Störungstheorie sind dies ein Leitungs- und drei Valenzbänder [61]. Die Va-

lenzbänder sind unterteilt in Schwer- (HH) und Leichtloch (LH) sowie das Split-Off Band (SO), wobei letzteres wegen des großen energetischen Abstands im Folgenden außer Acht gelassen wird (vgl. Abb. 2.3). Die Verspannung und lokale Einschränkung der Ladungsträger führt zu einer Aufspaltung Δ_{LH} von Schwer- und Leichtlochband am Γ -Punkt [1, 28, 33].



Abbildung 2.3: Energiedispersion von Leitungsband (e), Schwerlochband (HH), Leichtlochband (LH) und Split-Off-Band (SO) im Halbleiter mit der Bandlücke $E_{\rm g}$ und der aufgehobenen Entartung zwischen Leicht- und Schwerlochband $\Delta_{\rm LH}$.

Die starke Lokalisierung der Elektron- und Lochwellenfunktion auf den Bereich des Quantenpunktes erhöht die Coulomb-Wechselwirkung der beiden entgegengesetzt geladenen Teilchen und führt damit zu einer Wechselwirkungsenergie, die der Bindungsenergie des Exzitons (X) entspricht. Das Exziton ist ein gebundenes Elektron-Lochpaar, dessen Bindungsenergie die Übergangsenergie des Komplexes verringert. Zur Berechnung der Bindungsenergie eines solche Exziton-Komplexes wird ein angepasstes Wasserstoffmodell verwendet. Für Volumen-Halbleiter führen Exzitonen zu Energiezuständen innerhalb der Bandlücke. In Quantenpunkten verschiebt die Exziton-Bindungsenergie die entsprechenden diskreten Übergangsenergien. Zudem können zusätzliche Ladungsträger im Quantenpunkt geladene Exzitonen-Komplexe bewirken, deren Übergangsenergien wiederum durch die Coulomb-Wechselwirkung der beteiligten Ladungsträger verändert sind (weitere Details in Abschnitt 2.1.3).

2.1.1 Herstellung

Eine Methode zur Herstellung optisch aktiver Quantenpunkte ist das Stranski-Krastanov-Verfahren [59,62]. Hierbei wird mit Molekularstrahlepitaxie (englisch: molecular beam epitaxy, MBE) auf ein Halbleitermaterial (hier: GaAs) ein Material mit geringerer Bandlücke und größerer Gitterkonstante aufgebracht (hier: InAs) (vgl. Abb. 2.4).



Abbildung 2.4: Bandlücke und Gitterkonstante von verschiedenen Element- und Verbindungshalbleitern (aus [61]).

Durch die Fehlanpassung der Gitterkonstanten, die im Bereich > 5%liegen sollte [63], kommt es zu einer Verspannung im Materialsystem. Nach dem Aufbringen von etwa 1,5 Atomlagen InAs bilden sich InAs-Inseln [64].



Abbildung 2.5: Deformation und Verspannungsabbau bei Inselbildung von Quantenpunkten beim Stranski-Krastanov-Wachstum (aus [65]).

Diese energetische Relaxation der Verspannungsenergie zu Inseln geschieht hierbei selbstorganisiert und mit einer zufälligen Verteilung. Die statistische Verteilung von Größe, Anzahl sowie Position der InAs-Inseln lassen sich durch Parameter wie Temperatur und InAs-Gehalt beeinflussen. Anschließend werden die InAs-Inseln und die verbleibende Benetzungsschicht (englisch: wetting layer, WL) mit dem Basismaterial GaAs überwachsen und man erreicht eine dreidimensionale Potentialtopf-Struktur im Leitungs- und Valenzband in der Größe von einigen Nanometern [3]. Es gibt andere Arten von Quantenpunkten, bei denen beispielsweise die lokale Position der Quantenpunkte gezielt durch vorgeätzte Löcher beeinflusst werden kann [4,66], verspannungsfreie Droplet-Quantenpunkte [67,68] sowie Kontakt-definierte [69] und kolloidale Quantenpunkte [70], die hier nicht weiter behandelt werden.

2.1.2 Energieniveaus und Bandstruktur

Der Vorteil der Quantenpunkte als künstliche Atome gegenüber wirklichen Atomen liegt in der Einstellbarkeit der Absorptions- und Emissionswellenlänge. Diese herausragende Eigenschaft eines Quantenpunktes hängt hauptsächlich von der Wahl der kombinierten Halbleiter-Materialien und der Größe des Quantenpunktes ab. So lassen sich Quantenpunkte über einen weiten Spektralbereich herstellen. Es existieren Galliumnitrid-Quantenpunkte mit der Übergangsenergie im UV-Bereich [71] bis hin zu InAs-Quantenpunkten auf Indiumphosphid-Substrat im Telekommunikationsband (1,5 μ m) [72]. Die hier untersuchten (InGa)As-Quantenpunkte liegen im Nahinfrarot-Bereich.

Die diskreten Energie-Niveaus eines Quantenpunktes lassen sich in erster Näherung in Analogie zum quantenmechanischen Potentialtopf herleiten. Hierbei wird vereinfacht ein unendlich hohes Rechteckpotential für alle quantisierten Raumrichtungen angenommen. Damit ergibt sich für ein Teilchen mit effektiver Masse m^* auf einer in L_z eingeschränkten Dimension und einer stehenden Welle der Wellenlänge λ_n für den Wellenvektor $k_{z,n}$ [63]:

$$k_{z,n} = \frac{2\pi}{\lambda_n} = \frac{n\pi}{L_z}.$$
(2.1)

Hieraus folgt eine Grundzustandsenergie ΔE_z

$$\Delta E_z = \frac{\hbar^2 k_{z,1}^2}{2m^*} = \left(\frac{\hbar^2}{2m^*}\right) \left(\frac{\pi^2}{L_z^2}\right),\tag{2.2}$$

die von Null verschieden ist. Die Energien der höheren Zustände $E_{n,z}$ ergeben sich zu:

$$E_{n,z} = n^2 \Delta E_z. \tag{2.3}$$

Für die in allen drei Raumdimensionen eingeschränkten Ladungsträger resultieren insgesamt die vollständig quantisierten Energieniveaus [73]:

$$E(n_x, n_y, n_z) = \frac{\hbar^2 \pi^2}{2m^*} \left(\frac{n_x^2}{L_x^2} + \frac{n_y^2}{L_y^2} + \frac{n_z^2}{L_z^2} \right).$$
(2.4)

Diese Überlegung dient keiner absoluten Reproduktion der Quantenpunkt-Energien, da deren tatsächliche Form stark von einem Quader abweicht. Sie spiegelt aber das wesentliche Ergebnis wider, dass die Lagen der einzelnen Elektron- und Loch-Energieniveaus und damit die Übergangsenergien in erster Linie von der räumlichen Ausdehnung des Quantenpunkt-Potentials abhängen, vollständig quantisiert sind und eine von Null verschiedene Grundzustandsenergie besitzen. Eine realistischere Betrachtung zu den Energieniveaus findet sich z.B. in [73] in Form einer sphärischen Geometrie oder der sogenannten "inverted lense"-Geometrie.

Neben der Größe der Quantenpunkte hat unter anderem auch die Menge des eindiffundierten GaAs beim Überwachsen einen Einfluss auf die Emissionswellenlänge. So können verschiedene Ausheiz-Schritte im Wachstumsprozess diese Diffusion erhöhen und so eine gezielte Verschiebung der Emission zu höheren Energien bewirken [74, 75].

2.1.3 Photolumineszenz und Feinstruktur

Bei einer optischen Anregung im Barriere-Material der Quantenpunkte relaxieren die photogenerierten Elektronen und Löcher in die energetisch niedrigeren Quantenpunkt-Zustände. Im Falle eines anfangs unbesetzten Quantenpunktes findet die strahlende Rekombination (Photolumineszenz) von Elektron und Loch aus den niedrigsten Energieniveaus im Quantenpunkt statt. Durch eine erhöhte Anregungsdichte freier Elektronen und Löcher können mehrfach besetzte Exzitonen (2X, ...) oder geladene Exziton-Komplexe $(X^+$ bzw. $X^-)$ in der Signatur der Photolumineszenz auftauchen (vgl. Abb. 2.6). Dies ist ebenso durch eine vorhandene Gleichgewichtsladung der Quantenpunkte über eine Dotierung möglich.



Abbildung 2.6: Unterschiedliche Exzitonen-Komplexe im Quantenpunkt: neutrales Exziton (X^0) , positiv geladenes (X^+) und negativ geladenes Exziton (X^-) sowie Biexziton (2X).

Im Folgenden werden nur einfache Exzitonen-Komplexe im Grundzustand betrachtet. Die Quantenpunkte können durch eine Dotierung mit Elektronen (*n*-Dotierung) oder Löchern (*p*-Dotierung) einen zusätzlichen Ladungsträger (im thermodynamischen Gleichgewicht) enthalten. Über die Charakteristik in der Photolumineszenz kann unterschieden werden, ob der optische Übergang von einem neutralen (X^0) oder einem geladenen Exziton¹ (X^+) resultiert. Diese Signatur in der Photolumineszenz dient im weiteren Verlauf der vorläufigen Identifikation der neutralen und positiv geladenen Quantenpunkte [76].

Durch die Anwesenheit eines Elektron- und Lochspins im Exziton-

¹In der hier untersuchten Arbeit handelt es sich aufgrund einer *p*-artigen Hintergrunddotierung durch Kohlenstoffverunreinigungen im MBE-Wachstums-Prozess um positiv geladene Exzitonen. Es wird später noch ausführlicher auf eine Begründung der positiven Ladung der Quantenpunkte eingegangen.

Komplex kommt es zu einer Austauschwechselwirkung der beiden Spin-Spezies. Diese Austauschenergie des Exzitons E_{exchange} kann mit der Exziton-Wellenfunktion Ψ_X und den Elektron- und Lochkoordinaten $\vec{r_e}$ bzw. $\vec{r_h}$ über

$$E_{\text{exchange}} \propto \int \int d^3 r_1 d^3 r_2 \Psi_X^* \left(\vec{r}_e = \vec{r}_1, \vec{r}_h = \vec{r}_2 \right) \\ \times \frac{1}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} \Psi_X \left(\vec{r}_e = \vec{r}_2, \vec{r}_h = \vec{r}_1 \right)$$
(2.5)

beschrieben werden. Eine Separation des Integrals im realen Raum führt zu einem Hamilton-Operator des neutralen Exzitons für den kurzreichweitigen Anteil, d.h. sofern Elektron und Loch aus derselben Wigner-Seitz-Einheitszelle beitragen, in der Form

$$\mathcal{H}_{\text{exchange}} = -\sum_{i=x,y,z} \left(a_i J_{h,i} S_{e,i} + b_i J_{h,i}^3 S_{e,i} \right), \qquad (2.6)$$

mit dem Elektronspin S_e und dem Lochspin J_h sowie den Spin-Spin-Kopplungskonstanten a_i und b_i . Der Wert des Elektronspins beträgt $S_e = 1/2$ mit $S_{e,z} = \pm 1/2$ und der des Lochspins $J_h = 3/2$ mit $J_{h,z} = \pm 3/2$ in Wachstumsrichtung z. Aufgrund der im Vergleich zur Feinstruktur großen Aufspaltung Δ_{LH} gegenüber den Leichtlochzuständen in Quantenpunkten werden im Weiteren nur reine Schwerlochzustände berücksichtigt. Es gibt zwei Arten von Exzitonen: dunkle Exzitonen, deren z-Projektion des Gesamtspins $|M| = |S_{e,z} + J_{h,z}| = 2$ beträgt und die damit aufgrund der nötigen Drehimpulserhaltung bei Wechselwirkung mit Photonen (Drehimpuls ± 1) optisch inaktiv sind. Weiterhin gibt es die optisch aktiven Exzitonen, sogenannte helle Exzitonen, mit Gesamtdrehimpuls |M| = 1. Mit den Exzitonen-Zuständen $|1\rangle, |-1\rangle, |2\rangle$ und $|-2\rangle$ als Basis ergibt sich als Matrix für den Hamilton-Operator

$$\mathcal{H}_{\text{exchange}} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} +\delta_0 & +\delta_1 & 0 & 0\\ +\delta_1 & +\delta_0 & 0 & 0\\ 0 & 0 & -\delta_0 & +\delta_2\\ 0 & 0 & +\delta_2 & -\delta_0 \end{pmatrix}_{(|1\rangle,|-1\rangle,|2\rangle,|-2\rangle)} .$$
 (2.7)

Hierbei gilt für $\delta_0 = 1, 5 (a_z + 2, 25b_z), \ \delta_1 = 0, 75 (b_x - b_y)$ und $\delta_2 = 0,75 (b_x + b_y)$. Es zeigt sich eine energetische Aufspaltung der $|1\rangle$ und $|-1\rangle$ Zustände gegenüber den $|2\rangle$ und $|-2\rangle$ Zuständen um δ_0 . Aufgrund einer in der Regel nicht vorliegenden Rotationssymmetrie für selbstorganisierte Halbleiter-Quantenpunkte $(b_x \neq b_y)$ unterscheiden sich zudem die Zustände $|1\rangle$ und $|-1\rangle$ um δ_1 . Als Eigenzustände der Matrix 2.7 ergeben sich dadurch symmetrische und antisymmetrische Linearkombinationen von $|1\rangle$ und $|-1\rangle$. Zusätzlichen Beiträge in der Aufspaltung durch die Berücksichtigung der langreichweitigen Wechselwirkung, welche hauptsächlich in helle und dunkle Exzitonen aufspaltet, sind in δ_0 und δ_1 als Modifikation der Terme Δ_0 und Δ_1 in der Matrix 2.7 enthalten. Hieraus resultiert eine Aufspaltung wenn keine Rotationssymmetrie (D_{2d} -Symmetrie) vorliegt (vgl. Abb. 2.7 (rechts)). Aufgrund der Basis aus Linearkombinationen der beiden Exziton-Zustände weisen die beiden energetisch aufgespaltenen hellen Exziton-Zustände eine orthogonale lineare Polarisation auf. Die Achsen der linearen Polarisation definieren sich über die elliptische Form des Quantenpunktes, die sich entlang von Kristallachsen im Wachstum ausprägt.

Sofern es sich um ein geladenes Exziton im Grundzustand handelt, entfällt die Austauschwechselwirkung durch die verschwindende Spindichte des doppelt vorliegenden Ladungsträgers im Spin-Singlett-Zustand. Diese Signatur der Aufspaltung für neutrale Exzitonen liegt bei vollständiger Abwesenheit externer Magnetfelder vor [76]. Für externe Magnetfelder ergibt sich zusätzlich eine wesentlich stärkere lineare Aufspaltung über die Zeeman-Energie.



Abbildung 2.7: Aufspaltung neutraler Exzitonen im Quantenpunkt mit (links) und ohne D_{2d} -Symmetrie (rechts) (nach [76]). Bei nicht-rotationssymmetrischen Quantenpunkten ergibt sich eine Feinstrukturaufspaltung der hellen Exziton-Zustände von Δ_1 .

2.2 Spindynamik und Spinlebenszeit

Für die quantenmechanische Größe des Spins, in diesem Fall der Spin eines lokalisierten Elektrons oder Lochs im Quantenpunkt, ist die Spinlebenszeit und die damit verbundene Spindynamik eine zentrale Kenngröße. In diesem Abschnitt sollen die entscheidenden Mechanismen und Vorgänge, die die Spinlebenszeit bestimmen, erläutert werden. Im Anschluss wird der Einfluss externer Magnetfelder auf die Spindynamik betrachtet. Das System aus Ladungsträgerspin und Kernspins ist ein ideales Modell des Zentral-Spin-Problems [29]. Gemäß der Quantenmechanik kann der Spinzustand immer nur in Bezug auf die Beobachtungsrichtung bestimmt werden. Wird beispielsweise ein Spin oder ein Ensemble von Spins polarisiert, geht diese Spininformation aufgrund verschiedener Prozesse mit der Zeit in ein thermodynamisches Gleichgewicht zurück. Diese Dynamik wird

über die Spinlebenszeit beschrieben. Es werden zwei verschiedene

Spinlebenszeiten unterschieden [77], wie sie in den Spin-Bloch-Gleichungen eingeführt werden [78]. Zum einen die longitudinale Spinrelaxationszeit T_1 , welche die Rückkehr in eine Gleichgewichtssituation beschreibt und mit einer Energieabgabe an die Umgebung einhergeht. Daneben gibt es die transversale Spindephasierungszeit T_2 , die unter Berücksichtigung reversibler Prozesse im Spin-Ensemble als T_2^* bezeichnet wird [44,79]. Als wesentliche Prozesse, welche die Spinlebenszeit bestimmen, wirken bei verschiedenen Halbleitersystemen in unterschiedlich starker Ausprägung der Elliott-Yafet-, der Dyakonov-Perel- und der Bir-Aronov-Pikus-Mechanismus [77, 80– 82]. Für den hier untersuchten Fall stark lokalisierter, nicht-wechselwirkender Ladungsträger mit vollständig quantisierten Energien sind diese genannten Prozesse aber zu vernachlässigen im Vergleich zur dominierenden Hyperfeinwechselwirkung, welche im folgenden Abschnitt näher betrachtet wird [83, 84].

Zudem kann für lokalisierte Ladungsträger die Spindvnamik über die Wechselwirkung mit Phononen oder die Quadrupolwechselwirkung der Kernspins bestimmt werden, die durch verspannungsinduzierte Gradienten lokaler elektrischer Felder hervorgerufen wird [50, 85]. Die Wechselwirkung mit Phononen ist aber insbesondere bei tiefen Temperaturen und niedrigen Magnetfeldern unwirksam [42]. Bei großen Magnetfeldern gewinnen Phononen-assistierte Spin-Bahn-Mechanismen an Bedeutung [2, 39, 83], während die Phononen-assistierte Spinflip-Rate für schwache Magnetfelder sehr klein wird durch die geringe Zeeman-Aufspaltung und die verschwindende Phononen-Zustandsdichte bei passender Energie [40, 41, 86]. Aus [87] ergibt sich, dass insbesondere Ein-Phonon-Prozesse bei niedrigen Magnetfeldern unwirksam werden, während Zwei-Phonon-Prozesse bei kleinen Magnetfeldern und endlichen Temperaturen eine Rolle spielen können (> 2 K in [43] oder > 7 K in [41]). Weiterhin kann die Spinflip-Raman-Streuung die Spinlebenszeit limitieren [16, 25]. Die Quadrupolwechselwirkung trägt zur Dephasierung des Zentral-Spins bei, sofern die Stärke in der Größenordnung der Hyperfeinwechselwirkung liegt [85]. Im Folgenden wird die Hyperfeinwechselwirkung des lokalisierten Ladungsträgers mit den Kernspins genauer behandelt.

2.2.1 Hyperfeinwechselwirkung

Die quantenmechanische Größe des Ladungsträgerspins unterliegt über die Fermi-Kontakt-Kopplung, die Dipol-Dipol-Kopplung und die Kopplung des Ladungsträger-Bahndrehimpulses an den Kernspin der Hyperfeinwechselwirkung mit den umgebenden Kernspins [88], sofern diese von Null verschieden sind, wie es für InAs gegeben ist [31]. Der einzelne Ladungsträger steht unter dem Einfluss von etwa 10^5 Kernspins im Volumen des Quantenpunktes. Die Dynamik eines Gesamtspins \vec{S} in einem Magnetfeld $\vec{b} = \vec{B}/B$ kann über die Lösung der Bewegungsgleichung gemäß [31] beschrieben werden:

$$\vec{S}(t) = \left(\vec{S}_0 \cdot \vec{b}\right) \vec{b} + \left[\vec{S}_0 - \left(\vec{S}_0 \cdot \vec{b}\right) \vec{b}\right] \cos\left(\omega_L t\right) \\ + \left(\left[\vec{S}_0 - \left(\vec{S}_0 \cdot \vec{b}\right) \vec{b}\right] \times \vec{b}\right) \sin\left(\omega_L t\right),$$
(2.8)

wobei ω_L die Larmor-Frequenz und $\vec{S_0}$ die Ausgangspolarisation bezeichnet. Die Larmor-Frequenz selbst errechnet sich aus dem effektiven g-Faktor g^* , dem Bohrschen Magneton μ_B , dem reduzierten Planckschen Wirkungsquantum \hbar und dem effektiven Magnetfeld B:

$$\omega_L = \frac{g^* \mu_B B}{\hbar} \quad \text{bzw.} \quad \nu_L = \frac{g^* \mu_B B}{h}. \tag{2.9}$$

Betrachtet man nun den Fall mehrerer Ladungsträgerspins in verschiedenen Quantenpunkten, so führt die zufällige Verteilung der Kernspins und damit der effektiven Kernmagnetfelder jedes einzelnen Quantenpunktes zu unterschiedlichen Larmor-Frequenzen und damit zu einer Änderung der Phasenbeziehung der Ladungsträgerspins, was einen Verlust des ursprünglichen Gesamtspins zur Folge hat (vgl. Abb. 2.8). Das effektive Kernmagnetfeld eines Quanten-



Abbildung 2.8: Prinzip der Dephasierung einer Ursprungsspinpolarisation wegen der unterschiedlichen Präzession der Ladungsträger (blau) in ihren individuellen Kernmagnetfeldern (grau, Overhauser-Feld) (aus [89]).

punktes $\vec{B_N}$ (Overhauser-Feld) kann in einer ersten Näherung für kurze Zeiten als konstant angenommen werden, da die Präzessionsfrequenz des Ladungsträgers im Kernmagnetfeld wesentlich höher ist als die Präzessionsbewegung der Kernspins im Feld des Ladungsträgers [31]. Hiermit lässt sich die Bewegung des Spins wiederum über Gleichung 2.8 beschreiben. Das effektive Kernmagnetfeld wird über die Position \vec{R} und den Spin \hat{I} der Kerne und mit der Wellenfunktion des Elektrons² $\Psi(\vec{R})$ beschrieben [31,90]:

$$\vec{B}_N = \frac{\nu_0}{\mu_B g_e} \left\langle \sum_j A^j \left| \Psi \left(\vec{R}^j \right) \right|^2 \hat{I}^j \right\rangle_N.$$
(2.10)

²Den Berechnungen in [31] folgend, werden hier zunächst Elektronspins angenommen. Der Übergang zu den eigentlich gemessenen Lochspins wird später behandelt.

Hierbei bezeichnet ν_0 das Volumen der primitiven Einheitszelle und g_e den Elektron-g-Faktor. A^j berechnet sich gemäß $A^j = (a_j \mu_B g_e / \nu_0)$ $(1/|\Psi(\vec{R}^j)|^2)$ mit a_j als Magnetfeld eines einzelnen Kerns für das Elektron. Folgen die Kernmagnetfelder der Quantenpunkte einer Gaußschen Wahrscheinlichkeitsverteilung, ergibt sich aus der Bewegungsgleichung der Spins (Gleichung 2.8) für die gemittelte Gesamtspinpolarisation [31]:

$$\left\langle \vec{S}(t) \right\rangle = \frac{\vec{S}_0}{3} \left(1 + 2 \left[1 - 2 \left(\frac{t}{2T_\Delta} \right)^2 \right] \exp\left[- \left(\frac{t}{2T_\Delta} \right)^2 \right] \right), \quad (2.11)$$

wobe
i T_{Δ} die charakteristische Ensemble-Dephasierungszeit

$$T_{\Delta} = \frac{\hbar}{\mu_B g_e \Delta_B} = \hbar \sqrt{\frac{3N_L}{4\sum_j I^j \left(I^j + 1\right) \left(A^j\right)^2}} \tag{2.12}$$

beschreibt. Hierbei bezeichnet Δ_B die Breite der Wahrscheinlichkeitsverteilung der Kernmagnetfelder als Maß für das effektive Kernmagnetfeld und N_L die Zahl der Kerne. Die zeitliche Entwicklung der Ursprungspolarisation (vgl. Abb. 2.9) zeigt einen Abfall der Spinpolarisation auf 1/3 innerhalb dieser ersten Zeitskala in den als konstant angenommenen Kernmagnetfeldern [31]. Betrachtet man die Raumrichtung als drei Quantisierungsachsen, so ergibt sich bei zufällig ausgerichtetem Kernmagnetfeld und einem zufällig ausgerichteten Elektronspin, dass im Mittel 1/3 entlang des Kernmagnetfeldes zeigen und somit keine Larmor-Präzession ausführen.

Für längere Zeiten kann auch die Richtung der Kernmagnetfelder nicht mehr als konstant angenommen werden, da diese ebenfalls im Einfluss des Ladungsträger-Feldes (Knight-Feld) präzidieren. Das bedeutet für länger betrachtete Zeiten variiert das Kernmagnetfeld, was wiederum zu einem weiteren Verlust der verbliebenen Spinpolarisation der Elektronen führt [29, 91]. Bei dieser Betrachtung muss


Abbildung 2.9: Zeitliche Entwicklung der Spinpolarisation gemäß Formel 2.11.

also auch das Kernmagnetfeld als zeitabhängig $\vec{b}(t)$ beschrieben werden. Dies führt zu folgendem Zeitverhalten der Spinpolarisation [31]:

$$\left\langle \vec{S}(t) \right\rangle = \left\langle \vec{b}(t) \left[\vec{b}(t) \cdot \vec{S}(t) \right] \right\rangle.$$
 (2.13)

Durch die schnelle Präzessionsbewegung der Elektronen im Kernmagnetfeld gilt die Annahme, dass sich die transversalen Komponenten des Knight-Feldes für die Kerne herausmitteln. Somit verbleibt der longitudinale Anteil zum Overhauser-Feld, unter dessen Einfluss die einzelnen Kernspins präzidieren. Durch die inhomogene Verteilung des Knight-Feldes mit der Elektron-Wellenfunktion ergibt sich eine räumlich inhomogene Präzessionsbewegung der Kerne (vgl. Abb. 2.10). Dieser langsamere Prozess sowie ein darauf noch folgender weiterer Dephasierungsmechanismus über die Dipol-Dipol-Wechselwirkung der Kernspins untereinander, die zu einer Diffusion der Kernspinpolarisation aus dem Quantenpunkt führt [31], werden im Folgenden nicht weiter beachtet.



Abbildung 2.10: Der longitudinale Anteil des Elektronspins (blau) zum Overhauser-Feld (grau) führt über die inhomogene Wellenfunktion zu einem inhomogen verteilten Knight-Feld (grün) für die Kernspins (schwarz) (aus [89]).

2.2.2 Einfluss externer Magnetfelder

Die Wechselwirkung von Kern- und Ladungsträgerspin lässt sich aufgrund der Tatsache, dass es sich um magnetische Momente handelt, wesentlich durch das Anlegen externer Magnetfelder beeinflussen. Grundsätzlich führt ein externes longitudinales Magnetfeld, d.h. entlang der Beobachtungsrichtung des Spins, zu einer Unterdrückung des Einflusses der Hyperfeinwechselwirkung. Ist das externe Magnetfeld genügend groß im Vergleich zum internen Overhauser-Feld, so kann der Anteil der stochastisch verteilten Overhauser-Felder für die Dynamik der Ladungsträgerspins als kleine Störung gegenüber dem konstanten homogenen Magnetfeld betrachtet werden.

Die theoretische Herleitung dieses Effektes gilt unter der Annahme eines starken externen Magnetfeldes mit einer größeren Zeeman-Aufspaltung der Ladungsträger als der inhomogenen Verbreiterung durch die Hyperfeinwechselwirkung [31]. Das zu berücksichtigende Magnetfeld für die Spindynamik setzt sich aus internem Kernmagnetfeld $\vec{B_N}$ und externem Magnetfeld \vec{B} zusammen. Dies führt unter Annahme derselben Kernmagnetfeld-Verteilung wie oben zu einer Zeitentwicklung der gemittelten Spinpolarisation gemäß [31]:

$$\left\langle \vec{S}(t) \right\rangle = R_{\parallel}(t) \left(\vec{S}_0 \cdot \vec{b} \right) \vec{b} + R_{\perp}^0(t) \left[\vec{S}_0 - \left(\vec{S}_0 \cdot \vec{b} \right) \vec{b} \right] + R_{\perp}^1(t) \left(\left[\vec{S}_0 - \left(\vec{S}_0 \cdot \vec{b} \right) \vec{b} \right] \times \vec{b} \right),$$

$$(2.14)$$

mit $\vec{b} = \vec{B}/|B|$ als Richtungsvektor des äußeren Magnetfeldes. R_{\parallel} und $R_{\perp}^{0,1}$ bezeichnen die longitudinalen und transversalen Anteile der Spinpolarisation in Bezug auf das externe Magnetfeld. Die Dynamik des Kernspins kann für genügend starke externe Magnetfelder, d.h. größer als die Breite der Verteilung der Kernmagnetfelder $(\beta = B/\Delta_B \gg 1)$, folgendermaßen genähert werden [31]:

$$\left\langle \vec{S}(t) \right\rangle \approx \underbrace{\left(1 - \frac{1 - \cos\left(\omega_{L}t\right)}{\beta^{2}} \exp\left[- \left(\frac{t}{2T_{\Delta}}\right)^{2} \right] \right)}_{R_{\parallel}} \left(\vec{S}_{0} \cdot \vec{b} \right) \vec{b} + \left(\underbrace{\left[\cos\left(\omega_{L}t\right) + \frac{1 - \cos\left(\omega_{L}t\right)}{2\beta^{2}} \right]}_{R_{\perp}^{0}} \left[\vec{S}_{0} - \left(\vec{S}_{0} \cdot \vec{b} \right) \vec{b} \right] \right.$$

$$+ \underbrace{\sin\left(\omega_{L}t\right)}_{R_{\perp}^{1}} \left(\left[\vec{S}_{0} - \left(\vec{S}_{0} \cdot \vec{b} \right) \vec{b} \right] \times \vec{b} \right) \right) \underbrace{\exp\left[- \left(\frac{t}{2T_{\Delta}}\right)^{2} \right]}_{R_{\perp}^{0,1}}.$$

$$(2.15)$$

Aus dieser Näherung ergibt sich für große β ein Erhalt der parallelen Spinkomponente R_{\parallel} während der transversale Anteil $R_{\perp}^{0,1}$ präzidiert und somit wegen des inhomogen verteilten Kernmagnetfeldes verloren geht. Abbildung 2.11 zeigt den zeitlichen Verlauf der parallelen



Abbildung 2.11: Zeitliche Entwicklung der Spinpolarisation in einem externem Magnetfeld gemäß Formel 2.15 unter Berücksichtigung der Komponenten-Benennung aus Formel 2.14.

 R_{\parallel} und transversalen Komponenten $R_{\perp}^{0,1}$.

Der transversale Anteil der Spinpolarisation erfährt durch externe Magnetfelder eine Modulation der Spinbewegung mit der Larmor-Frequenz. Der langlebigere Anteil parallel zum externen Magnetfeld weist wegen der Parallelität zum externen Magnetfeld keine Modulation auf.³ Insgesamt ergibt sich so für ein starkes externes longitudinales Magnetfeld eine Unterdrückung der Spinlebenszeitbegrenzung über den Mechanismus der Hyperfeinwechselwirkung, was sich in einer verlängerten Spinlebenszeit in einem externen longitudinalen Magnetfeld niederschlägt. Aufgrund der Tatsache, dass in diesem Fall die Hyperfeinwechselwirkung nicht mehr der bestimmende Prozess der Lebenszeit ist, sind andere Mechanismen für die begrenzte Spinlebenszeit verantwortlich (s. Abschnitt 2.2). So gewin-

³Diese Modulation führt im später vorgestellten Prinzip der Spinrauschspektroskopie zu einer Verschiebung des transversalen Anteils, während der longitudinale Anteil um Null zentriert gemessen wird.

nen beispielsweise die Spinflip-Raman-Streuung [16], die schwache Streuung mit akustischen Phononen und schwache Zwei-Phononen-Prozesse [88] an Bedeutung.

Experimentelle Arbeiten zeigen für Elektronen in InAs/GaAs-Quantenpunkten eine Verlängerung der Spinlebenszeit unter dem Einfluss eines externen Magnetfeldes B_z in der Größenordnung von 100 mT. So wird die ursprüngliche Lebenszeit von 500 ps soweit verlängert, dass diese auf der Zeitskala der strahlenden Lebensdauer (2000 ps) nicht mehr aufgelöst werden kann [38]. Ebenso kann auch in negativ geladenen InP-Quantenpunkten das Abschirmen der Hyperfeinwechselwirkung durch ein externes Magnetfeld (in der Größenordnung von 100 mT) in Wachstumsrichtung beobachtet werden [92].

2.2.3 Unterschied für Elektronen und Löcher

Nach der allgemeinen Betrachtung der Hyperfeinwechselwirkung und deren Verhalten in einem externen Magnetfeld, wird nun genauer auf die Unterschiede zwischen den Wechselwirkungsmechanismen von Elektron- und Lochspin mit dem Kernspinbad eingegangen. Für Elektronen mit einer s-artigen Wellenfunktion ergibt sich eine endliche Aufenthaltswahrscheinlichkeit am Ort der Kerne. Diese führt zu einem ausgeprägten Beitrag der Fermi-Kontakt-Kopplung, der hauptsächlich die Wechselwirkung mit den Kernspins bestimmt. Nach [88] setzt sich die Wechselwirkung zwischen Kern- und Ladungsträgerspin aus drei Beiträgen zusammen. Neben dem Fermi-Kontakt-Term gibt es die Dipol-Dipol-Kopplung und die Kopplung des Ladungsträger-Bahndrehimpulses an den Kernspin. Für Löcher mit ihrem *p*-artigen Valenzbandzustand im Schwer- und Leichtlochband (vgl. Abb. 2.12) hat der für Elektronen wesentliche Beitrag der Fermi-Kontakt-Kopplung einen verschwindenden Einfluss [33, 93]. Wegen der unwirksamen Fermi-Kontakt-Kopplung und der nur relevanten Dipol-Dipol-Kopplung ist die Stärke der Hyperfeinwechselwirkung für lokalisierte Löcher etwa eine Größenordnung geringer als für Elektronen in Quantenpunkten [28, 88, 94, 95], weshalb entsprechend längere Spinlebenszeiten zu erwarten sind. Entgegen häufiger Annahmen [1,38,96,97] zeigt sich aber, dass die Hyperfeinwechselwirkung dennoch der bestimmende Mechanismus für die Spinlebenszeit lokalisierter Löcher ist [28, 33, 88, 94, 98].



Abbildung 2.12: Der Ladungsträgerspin befindet sich im Einfluss von ca. 10^5 Kernspins (oben). Schematische Darstellung der vorhandenen Aufenthaltswahrscheinlichkeit von s-artigen Elektronen (links) und *p*-artigen Löchern (rechts) an der Kernposition (angepasst aus [3]).

Die Dipol-Dipol-Kopplung für *p*-artige Elektronen oder Löcher lässt sich mit folgendem Hamilton-Operator beschreiben [99]:

$$\mathcal{H}_{dd}\left(\vec{I}\right) = 2\mu_B \frac{\mu_I \vec{I}}{I} \left(\frac{\vec{l}}{\rho^3} - \frac{\vec{s}}{\rho^3} + 3\frac{\vec{\rho}\left(\vec{s}\cdot\vec{\rho}\right)}{\rho^5}\right).$$
 (2.16)

Hierbei bezeichnet $\vec{\rho}$ die relative Ladungsträgerposition, \vec{s} den Ladungsträgerspin, μ_i das Kernmagneton und $\vec{l} = \vec{\rho} \times \vec{p}/\hbar$ den Bahndrehimpuls. Für die Betrachtung reiner Schwerlochzustände zeigt sich aber in [28], dass die Dipol-Dipol-Wechselwirkung mit den Kernspins stark anisotrop ist. So ergibt sich als Hamilton-Operator für die reinen Schwerlochzustände nach [28]:

$$\mathcal{H}_{dd}^{hh} = \frac{8\mu_B\mu_I}{5I} \left|\Psi\left(\vec{R}\right)\right|^2 \nu_0 \left\langle\frac{1}{\rho^3}\right\rangle \begin{pmatrix}I_z & 0\\ 0 & -I_z\end{pmatrix}_{\left(\varphi_{3/2},\varphi_{-3/2}\right)}.$$
 (2.17)

Die Anisotropie der Hyperfeinwechselwirkung hat zur Folge, dass diese keine Dephasierung der z-Komponente der Spinpolarisation reiner Schwerloch-Zustände bewirkt (auch in Abwesenheit eines externen longitudinalen Magnetfeldes) [28]. In der Praxis liegt aber im Allgemeinen eine Beimischung von Leichtloch-Zuständen vor. Form und Verspannung der Quantenpunkte führen zu einer Mischung von Leicht- und Schwerlochzustand [29]. Eine solche Beimischung führt zu einer Verringerung der Anisotropie der Hyperfeinwechselwirkung [28].⁴

Die Spinlebenszeit und die Berechnung der Hyperfeinwechselwirkung für Löcher wird gemäß [33] abgeschätzt. Hierfür wird wie oben beschrieben ein statisches Kernmagnetfeld \vec{B}_N^h sowie die Entartung von Schwer- und Leichtlochzustand durch das Einschlusspotential und die biaxiale Verspannung angenommen. Für die Wirksamkeit der Hyperfeinwechselwirkung wird die Beimischung von Leichtlochzuständen $\varphi_{\pm 1/2} = |J = 1/2, J_z = \pm 1/2\rangle$ berücksichtigt [101], was zu einer angepassten Beschreibung der Schwerlochzustände $\varphi_{\pm 3/2} =$ $|J = 3/2, J_z = \pm 3/2\rangle$ gemäß [102]

$$\widetilde{\varphi}_{\pm 3/2} = \frac{1}{\sqrt{1+\left|\alpha\right|^2}} \left(\varphi_{\pm 3/2} \mp \alpha \varphi_{\mp 1/2}\right)$$
(2.18)

⁴Es gibt spezielle Quantenpunkt-Systeme, in denen tatsächlich reine Schweroder Leichtloch-Zustände vorliegen [100].

führt. $\alpha = |\alpha| e^{i\delta}$ ist hier ein Maß für die Beimischung von Leichtlöchern und $|\alpha|$ liegt im Bereich von 0,2 bis 0,7 [33]. Hieraus folgt für das effektive Kernmagnetfeld mit der Summe über alle Gitterkerne mit dem magnetischen Moment μ_i , dem Spin \vec{I} , der Position \vec{R} und der Lochwellenfunktion $\Psi(\vec{R})$ für ein Loch in dem Einfluss der Dipol-Dipol-Kopplung:

$$\vec{B}_{N}^{h} = \frac{\nu_{0}}{g_{h}\mu_{B}} \sum_{j} \frac{C_{j}}{1+|\alpha|^{2}} \left|\Psi\left(\vec{R}^{j}\right)\right|^{2} \\ \times \left(\frac{2|\alpha|}{\sqrt{3}} \left(\tilde{I}_{x}^{j}\vec{e}_{x}+\tilde{I}_{y}^{j}\vec{e}_{y}\right)+\tilde{I}_{z}^{j}\vec{e}_{z}\right).$$

$$(2.19)$$

Die Dipol-Dipol-Hyperfeinkonstanten C_j werden für As- und In-Kerne aus [103] abgeleitet zu $C_{As} = 4, 4 \pm 0, 3 \mu \text{eV}$ und $C_{In} = 4, 0 \pm 0, 5 \mu \text{eV}$. Für eine konstante Wellenfunktion innerhalb des Quantenpunktes ergibt sich eine Ensemble-Dephasierungszeit T_{Δ}^{h} mit N_{L} beteiligten Kernen:

$$\frac{2|\alpha|/\sqrt{3}}{1+|\alpha|^2}\sqrt{\frac{4\sum_j I^j (I^j+1) (C_j)^2}{3N_L}} = \frac{\hbar}{T_{\Delta}^h}.$$
 (2.20)

So folgt mit $N_L = 6 \cdot 10^4$ und $|\alpha| = 0,5$ eine Dephasierungszeit von $T^h_{\Delta} = 14$ ns [33]. Aus dieser Dephasierungszeit lässt sich ein Rückschluss auf das effektive Kernmagnetfeld über

$$g_h \mu_B \Delta_{\parallel} = \frac{2 |\alpha|}{\sqrt{3}} g_h \mu_B \Delta_{\perp} = \frac{\hbar}{T_{\Delta}^h}$$
(2.21)

ziehen, wobei g_h den Loch-g-Faktor und Δ_{\parallel} bzw. Δ_{\perp} die Wahrscheinlichkeitsverteilung der longitudinalen und transversalen Kernmagnetfelder beschreiben. [33]

Für die Auswirkung der Hyperfeinwechselwirkung auf die Spinlebenszeit für lokalisierte Löcher gilt insgesamt, dass die Stärke des Effektes wesentlich mit der Spin-Bahn-Mischung von Schwer- und Leichtlochzustand und damit von dem Wert von $|\alpha|$ abhängt [28,39, 88].

Auch für Löcher in Quantenpunkten kann experimentell eine Abschirmung der Kernspin-Fluktuationen und eine damit verbundene unterdrückte Dephasierung über die Hyperfeinwechselwirkung beobachtet werden. So wird in [33] die Lochspin-Lebenszeit schon durch ein Magnetfeld im Bereich weniger mT um einen Faktor 2,5 verlängert. Für ein ähnliches Probensystem zeigen Pump-Abfrage-Experimente ebenfalls die Möglichkeit des Abschirmens der Hyperfeinwechselwirkung für Löcher [94].

Für alle weiteren Betrachtungen und insbesondere bei der Unterscheidung zwischen Einzel-Quantenpunkt und Quantenpunkt-Ensemble gilt in dieser Arbeit, dass eine wiederholte Messung eines einzelnen Spins und eines homogenen Spin-Ensembles für die Mechanismen, die die Spinlebenszeit bestimmen, keinen qualitativen Unterschied macht [29, 38].

2.2.4 Ladungsfluktuationen

In der Umgebung eines Quantenpunktes gibt es lokale Fehlstellen und Verunreinigungen, die als Fallen für freie Ladungsträger wirken. Der Zustand dieser umgebenden Störstellen kann als eine Ladungskonfiguration der Quantenpunkt-Umgebung beschrieben werden. In jeder Ladungskonfiguration wirkt ein spezifisches elektrisches Feld auf den Quantenpunkt. Die Stark-Verschiebung beschreibt eine Änderung der Resonanzenergie des Quantenpunktes unter dem Einfluss eines elektrischen Feldes [104, 105].

Im zeitlichen Verlauf fluktuiert die Besetzung dieser Störstellen und damit die Stark-Verschiebung der Quantenpunkt-Resonanz durch ein Umladen der Defektzustände (auch spektrale Diffusion genannt)

[106–108] und kann zu einer Verbreiterung der gemessenen Linienbreite eines Quantenpunktes führen [76, 109]. Die Ursache des Einfangens von Ladungsträgern in der Umgebung des Quantenpunktes kann darauf zurückgeführt werden, dass die Benetzungsschicht eine unvermeidbare Rauigkeit der Grenzschicht aufweist [110]. Freie Ladungsträger, die an diesen Störstellen eingefangen werden können, entstehen durch Photoinduktion oder Auger-Effekte [111]. Durch die Abhängigkeit der Ladungsfluktuationen von der Anzahl freier Ladungsträger ergibt sich ein wesentlicher Zusammenhang der Stärke des Effektes mit der optischen Leistungsdichte [108, 109, 111]. So kann die Ladungsfluktuation durch geringe optische Leistung deutlich reduziert werden [109]. Hierbei zeigt sich insbesondere eine Abhängigkeit der Größe der energetischen Verschiebung von der optischen Leistung. Desweiteren hängt die Stärke der Ladungsfluktuation von einer angelegten Spannung im Falle einer Schottky-Diodenstruktur ab. Eine größere elektrische Spannung über der Quantenpunktstruktur führt zu einer verringerten Ausprägung der Ladungsfluktuationen [108]. Dieser Zusammenhang lässt sich über das starke wirksame elektrische Feld in der Struktur erklären, was zu einem schnellen Abfließen freier Ladungsträger führt, die nicht mehr zu Ladungsfluktuationen beitragen können [108]. Die Verschiebungen der Quantenpunkt-Resonanz kann auf Zeitskalen im Bereich länger als Millisekunden stattfinden [110, 112]. Dadurch kann die Dynamik dieses Effektes als konstant im zeitlichen Bereich der Hyperfeinwechselwirkung angenommen werden. Ladungsfluktuationen können für längere Zeiten ein Dephasierungsmechanismus sein [20]. Ein Einfluss der optischen Leistungsdichte auf den Effekt zeigt sich sowohl bei nicht-resonanter Anregung [110, 111] als auch bei resonanter Anregung [113, 114].

In [113] wird gezeigt, dass die Ladungsfluktuationen über einen Bereich von etwa 30 μ eV auftreten (vgl. Abb. 2.13). Hierbei wird die Energie des Quantenpunktes mit der Methode der Resonanzfluores-



Abbildung 2.13: Differentielle Reflektivität in Abhängigkeit der Leistung des nicht-resonanten Lasers zeigt im Bereich der relevanten Erzeugung freier Ladungsträger eine diskrete Anzahl von Resonanzlinien mit einer Verteilung von etwa 30 μeV (aus [113]).

zenz vermessen. Zusätzlich wird ein optisch nicht-resonanter Laser zur Besetzungskontrolle der Defektzustände verwendet. Sowohl bei niedriger als auch bei hoher Leistung des nicht-resonanten Lasers zeigt sich eine ungestörte Linienform des Quantenpunktes, während bei einer mittleren Leistung stufenartige Übergänge zu erkennen sind. Der Bereich und die Ausprägung dieses Überganges ist stark abhängig vom Quantenpunkt. In diesem Fall generiert der nichtresonante Laser Elektron-Loch-Paare in der Barriere, wobei das Loch bei tiefen Temperaturen eingefangen wird und eine positive Raumladung erzeugt, welche die Quantenpunkt-Resonanz verschiebt. Große Sprünge in der Resonanz werden durch eine veränderte Zahl dieser positiven Raumladungen erzeugt, während kleinere Verschiebungen aus unterschiedlichen Abständen der Raumladungen zum Quantenpunkt resultieren. [113]

2.3 Spinrauschspektroskopie

In dieser Arbeit wird zur Bestimmung der Spindynamik von Löchern im Quantenpunkt die Methode der Spinrauschspektroskopie verwendet. Zum Verständnis dieser Messmethode wird im Folgenden ein kurzer Überblick über die wesentlichen Bestandteile und die physikalischen Grundlagen gegeben. Das wesentliche Merkmal der Spinrauschspektroskopie ist die Messung der Spindynamik im thermodynamischen Gleichgewicht, das bedeutet ohne jegliche externe Polarisation oder Manipulation der Spinpopulation. Im Gegensatz zu vielen anderen Methoden, wie beispielsweise Pump-Abfrage- [33] oder Resonanzfluoreszenz-Experimenten [95], ist damit eine im Prinzip störungsfreie Abfrage der intrinsischen Spinlebenszeit möglich. Auf Abweichungen dieses theoretischen Limits wird im Abschnitt 2.3.5 eingegangen.

Die Spinrauschspektroskopie, deren erste Überlegungen auf F. Bloch [78] zurückgehen, fand zunächst Anwendung im Bereich der Atomgase [115, 116] bis sie schließlich seit 2005 [117] auch auf zahlreiche Halbleitersysteme angewendet werden konnte [51, 53, 80, 118– 125]. Zudem gibt es zahlreiche Adaptionen der Spinrauschspektroskopie von einer erweiterten Detektionsbandbreite durch die Verwendung gepulster Laser [126, 127] bis zur Verwendung zweier verstimmter Laser deren Korrelation die homogene Linienbreite in einem Quantenpunkt-Ensemble wiedergibt [128].

In der Spinrauschspektroskopie wird das Rauschen, d.h. die Fluktuation, der Spinpolarisation eines Spin-Ensembles oder eines einzelnen Spins gemessen. Hierbei ist entscheidend, dass im thermodynamischen Gleichgewicht keine Spinpolarisation vorliegt oder vorliegen muss. Aufgrund der jederzeit vorhandenen Fluktuation der Gesamtspinpolarisation um einen Mittelwert von Null (bei Abwesenheit einer Spinpolarisation) ergibt sich eine messbare Standardabweichung der Spinpolarisation. Dem Fluktuations-Dissipations-Theorem folgend, lässt sich aus dem Rauschen im thermischen Gleichgewicht die Antwort des Systems auf eine von außen aufgebrachte Störung ablesen [129].

2.3.1 Faraday-Effekt

Der Faraday-Effekt, benannt nach und 1845 entdeckt von Michael Faraday [130], beschreibt die Rotation von linear polarisiertem Licht in einem Medium unter dem Einfluss eines Magnetfeldes in Ausbreitungsrichtung. Hierbei ist der Drehwinkel der Lichtpolarisation direkt proportional zum Magnetfeld und abhängig von der Richtung (vgl. Abb. 2.14). Das bedeutet, dass sich der Drehwinkel bei mehrmaligem Durchlaufen des Mediums erhöht [131].



Abbildung 2.14: Schematische Darstellung der Faraday-Rotation (aus [132]).

Linear polarisiertes Licht setzt sich aus den beiden zirkularen Kom-

ponenten zusammen. Dementsprechend kann die Faraday-Rotation auch über einen Unterschied der Brechungsindizes für rechts- und linkszirkular polarisiertes Licht (n^+ bzw. n^-) beschrieben werden, was zu einer Phasenänderung der beiden Komponenten und damit zu einer Rotation um den Winkeln θ der Polarisationsachse führt [133]:

$$\theta = \frac{\omega d}{c} \left(\frac{n^+ - n^-}{2} \right), \qquad (2.22)$$

wobe
i ω die Lichtfrequenz, cdie Lichtgeschwindigkeit und
 ddie Länge des Mediums beschreibt. Wie sich der Einfluss der fluktu
ierenden Spinpolarisation im Detail auf den Brechungs
index auswirkt, wird im folgenden Abschnitt erläutert.

2.3.2 Optische Auswahlregeln

Eine zufällige Spinpolarisation, bedingt durch die Fluktuation im thermischen Gleichgewicht, bedeutet eine unterschiedliche Besetzung bzw. Projektion der Spinzustände \uparrow und \downarrow in Bezug auf die Beobachtungsrichtung. Die optischen Auswahlregeln beschreiben die Wahrscheinlichkeiten der Wechselwirkung verschiedener Lichtpolarisationen mit den Zuständen unter Drehimpulserhaltung [82]. So ist ersichtlich, dass eine stärkere Besetzung einer Spinorientierung eine Blockade der entsprechenden Absorption zur Folge hat. Dieser magnetische zirkulare Dichroismus [44] kann zur Untersuchung der Spinpolarisation genutzt werden. Nachteil hieran ist die unweigerlich verbundene Energieübertragung vom Laser in das Halbleitersystem über die Absorption der Photonen. Über die Kramers-Kronig-Relationen ist mit der unterschiedlichen Absorption rechtsund linkszirkularen Lichtes auch ein unterschiedlicher Brechungsindex verbunden [58]. Aufgrund der Tatsache, dass der Brechungsindex mit Verstimmung zur Resonanz langsamer abfällt als der Absorptionskoeffizient, kann über einen genügend verstimmten Abfragelaser mittels der Faraday-Rotation die Spinpolarisation mit verschwindendem Energieübertrag bestimmt werden. Für Quantenpunkte können durch die Aufhebung der Entartung von Schwer- und Leichtlochband stark vereinfachte optische Auswahlregeln angenommen werden [94] (vgl. Abb. 2.15).



Abbildung 2.15: Optische Auswahlregeln in einem Quantenpunkt. Die Drehimpulserhaltung erlaubt verschiedene Übergänge für rechts- (σ^+) und links-zirkular polarisiertes Licht (σ^-) .

2.3.3 Statistik

Geht man von einer Gesamtzahl an Spins $N = N_{\uparrow} + N_{\downarrow}$ und der Abwesenheit einer Spinpolarisation im Mittel aus, d.h. $\langle N_{\uparrow} - N_{\downarrow} \rangle = 0$, ist im Allgemeinen die Standardabweichung ungleich Null:

$$\sigma_{N_{\uparrow}-N_{\downarrow}} = \sqrt{\left\langle \left(N_{\uparrow}-N_{\downarrow}\right)^2\right\rangle} = \sqrt{N}.$$
(2.23)

Dieser Gleichung liegt zugrunde, dass es sich um nicht-wechselwirkende Spins handelt und somit eine Binomial-Statistik verwendet wird [80].

2.3.4 Spinrausch-Spektrum

Die Dynamik der Spins, welche über die Spinrauschspektroskopie gemessen wird, zeigt sich anhand der Charakteristik eines Rauschspektrums. Die zeitlich fluktuierende Spinpolarisation wird über den Faraday-Effekt auf die Polarisationsachse des Abfragelasers übertragen.⁵ Aus der Fourier-Transformation der Autokorrelationsfunktion einer Spinpolarisation ergibt sich die spektrale Leistungsdichte des Spinrauschens gemäß dem Wiener-Khintchine-Theorem [134]. So ergibt sich beispielsweise für einen homogenen Zerfall einer Spinpolarisation mit der Zerfallsrate Γ_s eine Lorentz-Kurve⁶ im Frequenzraum, wobei für die Beziehung von Spinlebenszeit $\tau_s = 1/\Gamma_s$ zur Breite der Kurve $\nu_{\rm FWHM}$ gilt:

$$\tau_s = \frac{1}{\Gamma_s} = \frac{1}{\pi \nu_{\rm FWHM}}.$$
(2.24)

Die zufällig ausgerichteten Spins können mit einem externen transversalen Magnetfeld mit einer Larmor-Präzession moduliert werden. Hierdurch wird das Spektrum zu höheren Frequenzen verschoben. Abbildung 2.16 zeigt ein typisches Spinrauschspektrum von Volumen-GaAs unter dem Einfluss eines transversalen Magnetfeldes mit den messbaren physikalischen Größen.

Die Absorptionslinie einer einzelnen, optischen, homogen verbreiterten Resonanz ist Lorentz-förmig [135]. Das Spinrauschsignal ergibt sich aus der Brechungsindex-Änderung dieser Resonanz, wel-

 $^{^5\}mathrm{Genaueres}$ zur experimentellen Methodik findet sich in Abschnitt 3.

 $^{^6\}mathrm{Ein}$ homogener Prozess wird im Allgemeinen über einen exponentiellen Zerfall beschrieben.



Abbildung 2.16: Typisches Spinrauschspektrum mit den messbaren Größen: Spinlebenszeit über die Breite der Kurve, g-Faktor über die Mittelfrequenz und Anzahl beteiligter Ladungsträger über die Fläche.

che proportional zur Ableitung der Absorptionslinie ist. Die Energieabhängigkeit des Spinrauschsignals folgt dem Quadrat des Brechungsindex. Befindet sich der Abfragelaser in Resonanz mit dem Übergang, verschwindet das Spinrauschsignal, während es maximal wird für eine Verstimmung des Abfragelasers zur Resonanz um eine halbe Linienbreite. Für den Fall, dass sich das fluktuierende Spinsystem aus verschiedenen Beiträgen mit unterschiedlichen energetischen Positionen zusammensetzt, geht diese Schmetterlingsform in eine verbreiterte Form über. Die Entwicklung der spektralen Linienform ist in Abb. 2.17 dargestellt. So lässt sich beispielsweise anhand einer detaillierten spektralen Untersuchung unterscheiden, ob es sich um eine homogene oder inhomogene Verbreiterung handelt [136].



Abbildung 2.17: Die Lorentz-förmige Absorptionslinie einer Resonanz hat einen Brechungsindex proportional zur Ableitung dieser Form. Das Spinrauschsignal skaliert mit dem Quadrat des Brechungsindex. Eine energetische Verteilung des untersuchten Spinsystems führt zu einer verbreiterten Kurve.

2.3.5 Blockade

An dieser Stelle wird auf den grundlegenden Mechanismus eingegangen, der eine Verbreiterung des gemessenen Spinrauschspektrums, d.h. eine Verlängerung der gemessenen Spinlebenszeit bewirkt. Trotz der energetischen Verstimmung des Abfragelasers zur Resonanz des Quantenpunktes lässt sich eine gewisse Restabsorption im Quantenpunkt nicht vermeiden. Dies gilt insbesondere für Systeme, die nicht nur aus einer einzelnen optischen Resonanz bestehen, oder bei hohen Abfrageintensitäten.

Grundsätzlich wird davon ausgegangen, dass der untersuchte Quantenpunkt mit einem Loch geladen ist und sich dementsprechend nur ein Ladungsträger im Quantenpunkt befindet. Die Absorption eines photogenerierten Elektron-Loch-Paares im Quantenpunkt mit einer Rate $\Gamma_{\rm abs} = 1/\tau_{\rm abs}$ führt dazu, dass der Lochspin in dop-

pelter Form, also im Spin-Singlett-Zustand vorliegt, und somit eine nicht messbare Spindichte von Null ergibt. Aufgrund der relativ schnellen Spindephasierung des Elektrons im Quantenpunkt in der Größenordnung der strahlenden Lebensdauer des Elektron-Loch-Paares $\tau_{\rm rad}$ findet keine deterministische Rekombination eines bestimmten Spinzustandes des zurückgelassenen Loches statt [29,137]. Prinzipiell liegt während der Zeit $\tau_{\rm rad}$ nun ein messbarer Elektronspin im Quantenpunkt vor, der aber eine deutlich kürzere Spinlebenszeit und damit ein erheblich verbreitertes Rauschspektrum hat. Die unterschiedlichen Spinlebenszeiten von Elektron und Loch im Quantenpunkt ergeben sich aus den in Abschnitt 2.2.3 erläuterten unterschiedlichen Kopplungsmechanismen an die Kernspins. Zudem liegt die optische Resonanz für einen negativ geladenen Quantenpunkt energetisch an einer anderen Stelle und weist somit quasi kein messbares Spinrauschen auf.



Abbildung 2.18: Schematisch zeitlicher Verlauf eines ursprünglich positiv geladenen Quantenpunktes. Nach der Absorption mit einer Rate Γ_{abs} eines Elektron-Loch-Paares liegen die beiden Löcher mit einer verschwindenden Spindichte von Null vor und sind nicht mehr messbar. Das Elektron rekombiniert innerhalb der strahlenden Lebensdauer τ_{rad} nicht deterministisch mit einem Loch, da die Elektron-Spinlebensdauer in der Größenordnung von τ_{rad} liegt. Anschließend ist wieder Spinrauschen in τ_{frei} messbar.

Die Rate der Absorption $\Gamma_{\rm abs}$ bestimmt die geringstmögliche experimentelle Spinrelaxationsrate $\Gamma_{\rm exp}$. Dementsprechend bestimmt die Absorptionsrate die gemessene Spinrelaxationsrate

$$\Gamma_{\rm exp} = \Gamma_s + \Gamma_{\rm abs}, \qquad (2.25)$$

die sich von der intrinsischen Spinrelaxationsrate Γ_s unterscheidet. Abbildung 2.18 zeigt diesen zeitlichen Zusammenhang von Absorption und blockiertem Loch-Spinrauschen schematisch.



Abbildung 2.19: Schematische Darstellung der besetzten Quantenpunkt-Zustände durch Absorption des Lasers (rot) und daraus resultierendes Ausbleichen resonanter Quantenpunkte und Verbreitung quasi-resonanter Quantenpunkte in einem Ensemble.

Die Absorptionsrate wiederum hängt empfindlich von der energetischen Verstimmung ab. Abbildung 2.19 zeigt schematisch den Fall eines Quantenpunkt-Ensembles: die nah an der Laserenergie gelegenen Quantenpunkte sind bei entsprechend hoher Abfrageintensität dauerhaft ausgeblichen. Die etwas weiter entfernten Quantenpunkte weisen eine signifikante Störung in der gemessenen Spinlebenszeit durch die vorhandene Absorption auf. Die weit entfernten Quantenpunkte erfahren schließlich keine deutliche Verbreiterung. Insgesamt führt eine hohe Leistung des Abfragelasers zu einem Ausbleichen von Quantenpunkt-Resonanzen durch die sehr starke Besetzung des Quantenpunktes. Weiteres zu der Ausprägung und zur Modellierung dieses Effektes und zur Anpassung für den Fall eines einzelnen Quantenpunktes findet sich in Abschnitt 4.2.2, 4.2.3 und 5.2.2.

2.3.6 Messgeometrie

Die longitudinale Spinlebenszeit T_1 der Ladungsträger im Quantenpunkt kann durch ein longitudinales Magnetfeld parallel zur Beobachtungsrichtung verlängert werden, da der dephasierende Einfluss der Hyperfeinwechselwirkung unterdrückt wird. Ein transversal angelegtes Magnetfeld senkrecht zur Beobachtungsrichtung verschiebt das Spektrum, sofern der g-Faktor von Null verschieden ist, und gibt die transversale Spinlebenszeit T_2 wieder. Mit der Methode der Spinrauschspektroskopie lässt sich immer nur die Projektion der Spinpolarisation auf die Beobachtungsrichtung (im Folgenden z-Richtung) messen. Im Zusammenspiel mit der Variation des externen Magnetfeldes lässt sich hiermit einstellen, ob hauptsächlich die T_1 - oder T_2 -Zeit zum Spektrum beiträgt.

Anhand von Abbildung 2.20 wird verdeutlicht, wie diese Einstellung abläuft: Die Vektoraddition von einem zufälligen Kernmagnetfeld \vec{B}_N und einem externen longitudinalen oder transversalen Magnetfeld $\vec{B}_{\rm ext,z/y}$ führt zu einem Gesamtmagnetfeld $\vec{B}_{\rm eff}$. Die zufällig orientierte Spinpolarisation \vec{S} (grüner Pfeil) lässt sich nun in einen zum Gesamtmagnetfeld parallelen (roter Pfeil) und transversalen (blauer Pfeil) Anteil zerlegen. Die transversale Komponente präzidiert mit der Larmor-Frequenz ν_L . Als Beiträge im Rauschspektrum sind nur die Projektionen auf die z-Achse enthalten. Hierbei beschreibt



Abbildung 2.20: Schema der Projektion der unterschiedlichen Spinkomponenten auf die Beobachtungsrichtung (z) in Abhängigkeit der Richtung des äußeren Magnetfeldes.

die Projektion des longitudinalen Anteils auf die Beobachtungsrichtung (roter, gestrichelter Pfeil) die longitudinale Spinlebenszeit T_1 während die senkrechte Komponente zur Beobachtungsrichtung (blauer, gestrichelter Pfeil) die transversale Spinlebenszeit T_2 beinhaltet.

Es zeigt sich deutlich, dass mit einem longitudinalen Magnetfeld vorwiegend die zur T_1 -Zeit zugehörige Komponente zum Spektrum beiträgt. Im Falle eines transversalen Feldes hingegen ist im Wesentlichen die transversale T_2 -Komponente enthalten. Um das Spinrauschen von den weiteren Rauschbeiträgen wie dem optischen Schrotrauschen oder dem elektrischen Rauschen des Detektors zu isolieren, werden Differenzspektren gebildet. Spinrauschen ist die einzige Rauschquelle, die sensitiv auf ein äußeres Magnetfeld reagiert, wom
it sich andere Rauschquellen subtrahieren lassen. 7

⁷Es ist zu beachten, dass die hier verwendeten Magnetfelder gering sind und damit die Zeeman-Aufspaltung klein gegen die thermische Energie bleibt ($\mu_B B \ll k_B T$). Hierdurch erfolgt keine Spinpolarisation des Systems [29].

KAPITEL **3**

Versuchsaufbau

In diesem Kapitel wird der Messaufbau zum Spinrauschen in Quantenpunkten erläutert. Zur Charakterisierung der Quantenpunkte wird ein Photolumineszenz-Aufbau verwendet. Dieser lässt sich im Anschluss an die Charakterisierung in einen Spinrausch-Aufbau umwandeln. Beide Aufbauten sind in einem Tieftemperatur-Kannenmessplatz zusammengefasst. Ebenso wird in diesem Kapitel kurz auf die verwendeten Laser eingegangen. Zudem wird die verwendete Probe näher erläutert.

3.1 Kannenmessplatz

Sämtliche hier vorgestellte Messungen werden in einem selbstkonstruierten Tieftemperatur-Kannenmessplatz durchgeführt [51, 138]. Hierbei wird ein Probenstab in eine herkömmliche Heliumkanne mit einem Volumen von 100 Litern flüssigem Helium eingeführt. Den Probenstab umfasst ein evakuiertes, dünnwandiges Rohr, in das Helium-Austauschgas zur besseren thermischen Ankopplung eingebracht wird. Innerhalb des Rohres befindet sich eine Stangen-Konstruktion zur maximalen Steifigkeit, an deren unterem Ende die Probe auf Piezoaktoren aufgebracht ist, welche eine räumliche Positionierung in allen drei Dimensionen mit einem Verfahrweg von 5 mm und einer Schrittweite < 50 nm ermöglichen [139]. Insgesamt wird so eine Probentemperatur von 4,2 K erreicht. Die Probe befindet sich weiterhin in einem supraleitenden, zweidimensionalen Vektormagneten (B_y, B_z) mit einer Magnetfeldstärke von bis zu 30 mT in beiden Richtungen (vgl. Abb. 3.1).

Die Laser zur Photolumineszenz-Anregung und zur Spinrausch-Abfrage werden mittels optischer Fasern zum Aufsatz oberhalb des Probenstabes geführt und anschließend als Freistrahl durch ein Fenster auf die Probe gebracht. Der oben angebrachte Aufsatz mit den optischen Komponenten lässt sich mit Feingewindeschrauben verkippen um so ein mögliches Verziehen des Stabes bei tiefen Temperaturen auszugleichen. Zur präzisen Einstellung werden zwei Laser auf einer Kamera überlagert, die jeweils auf dem Anregungs- bzw. Detektionspfad verlaufen. Der gesamte Aufbau aus Heliumkanne und Probenstab wird zur Minimierung von Vibrationen auf einer Plattform am Labortisch befestigt und somit vom Boden entkoppelt.



Abbildung 3.1: Vektormagnet und Probenhalter auf Verschiebeeinheit im Probenstab.

3.2 Probensystem

Bei der untersuchten Probe in dieser Arbeit handelt es sich um selbstorganisierte InAs-Quantenpunkte auf (001)-orientiertem GaAs Substrat, die mittels Molekularstrahlepitaxie hergestellt wurden. Die Probe weist drei spezielle Aspekte auf: die nominell undotierte Probe verfügt über eine *p*-artige Hintergrunddotierung durch Kohlenstoffverunreinigung im Wachstumsprozess. Die Dichte dieser *p*-Dotierung wird mit 10^{14} cm⁻³ angenommen¹. Details zur Signatur einer positiven Dotierung finden sich im weiteren Verlauf dieser Arbeit. Weiterhin sind die Quantenpunkte mit einem Dichtegradienten aufgewachsen, was durch eine fehlende Rotation des Substratmaterials

 $^{^1\}mathrm{Die}$ typische Hintergrunddotierung einer MBE kann beispielsweise über Transportmessungen kalibriert werden.

in diesem Wachstumsschritt und der dadurch inhomogenen Bedeckung erreicht wurde. Dies führt zu einer Quantenpunkt-Dichte von etwa 0...100 μm^{-2} . Zusätzlich ist die Quantenpunkt-Schicht zwischen zwei Bragg-Spiegeln eingebettet. Diese Spiegel bestehen aus einer 13- bzw. 30-fachen Wiederholung von Aluminiumarsenid (AlAs) und GaAs (vgl. Abb. 3.2). Hierdurch entsteht ein Mikroresonator der zu einer Erhöhung der Feldstärke innerhalb dieser Schichten führt. Ebenso ergibt sich durch die Resonatormode ein Minimum der Stoppband-Reflektivität, welches den effektiven optischen Messbereich darstellt (vgl. hierzu Abb. A.1).



Abbildung 3.2: Struktur der Probe mit Bragg-Spiegeln und Quantenpunkt-Schicht.

Die Finesse des Resonators, die in erster Näherung in dem vorliegenden Fall für Mikroresonatoren dem Q-Faktor entspricht [140], lässt sich aus den Reflektivitäten der beiden Bragg-Spiegel berechnen. Die Reflektivität eines Bragg-Spiegels ergibt sich aus den verschiedenen Brechungsindizes n_i und der Anzahl der Schichtwiederholungen $N_{\rm dbr}$

gemäß [141]:

$$R = \left(\frac{n_{\rm air} \left(n_{\rm GaAs}\right)^{N_{\rm dbr}} - n_{\rm sub} \left(n_{\rm AlAs}\right)^{N_{\rm dbr}}}{n_{\rm air} \left(n_{\rm GaAs}\right)^{N_{\rm dbr}} + n_{\rm sub} \left(n_{\rm AlAs}\right)^{N_{\rm dbr}}}\right).$$
 (3.1)

Hieraus folgt für die Finesse [140]:

$$\mathcal{F} = \frac{\pi \sqrt{R_{\text{ges}}}}{1 - R_{\text{ges}}},\tag{3.2}$$

wobei sich die Gesamtreflektivität $R_{\rm ges}$ nach

$$R_{\rm ges} = 2 \cdot \left(R_{\rm top}^{-1} + R_{\rm bottom}^{-1} \right)^{-1} \tag{3.3}$$

berechnet. Für die verwendete Probe ergibt sich somit $Q \approx 110$. Die Struktur der Probe mit den Bragg-Spiegeln ermöglicht Spinrauschmessungen in Reflexionsgeometrie. Zudem erhöht der Mikroresonator die Felddichte im Quantenpunkt und verstärkt das Spinrausch-Signal: durch den mehrfachen Durchlauf der Quantenpunkt-Schicht wird weiterhin der Faraday-Winkel vergrößert (vgl. Abschnitt 2.3.1 und [142, 143]).

Zur Berechnung der Verteilung des elektromagnetischen Feldes innerhalb der Probenstruktur wird die Transfermatrix-Methode verwendet [144–146]. Hierbei wird der elektrische Feldvektor mit Matrizen multipliziert, welche die Übergänge an den jeweiligen Grenzschichten und das Phasenverhalten innerhalb einer Schicht beschreiben. Um mit dieser Methode auch die Verteilung des elektrischen Feldes innerhalb der unterschiedlichen Schichten wiederzugeben, müssen zusätzliche Transferschritte innerhalb der einzelnen Schichten eingefügt werden. Die allgemeine Transfermatrix \mathbf{M}_i setzt sich aus einer Grenzflächenmatrix $\mathbf{D}_{i\to i+1}$ und einer Phasenmatrix \mathbf{P}_{i+1} zusammen:

$$\mathbf{M}_i = \mathbf{D}_{i \to i+1} \cdot \mathbf{P}_{i+1}. \tag{3.4}$$

Die Grenzflächenmatrix ergibt sich aus den Randbedingungen eines elektromagnetischen Feldes an einer Grenzfläche von einem Medium mit Brechungsindex n_i in ein Medium mit Brechungsindex n_{i+1} :

$$\mathbf{D}_{i \to i+1} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 + \frac{n_{i+1}}{n_i} & 1 - \frac{n_{i+1}}{n_i} \\ 1 - \frac{n_{i+1}}{n_i} & 1 + \frac{n_{i+1}}{n_i} \end{pmatrix},$$
(3.5)

und die Phasenmatrix innerhalb der dann durchlaufenen Schicht n_{i+1} mit der Dicke *d* sowie der Wellenlänge λ lautet:

$$\mathbf{P}_{i+1} = \begin{pmatrix} e^{-2\pi i n_{i+1} d/\lambda} & 0\\ 0 & e^{2\pi i n_{i+1} d/\lambda} \end{pmatrix}.$$
 (3.6)

Die Randbedingung für den Feldvektor ergibt sich dadurch, dass hinter der Probenstruktur nur eine auslaufende (nach rechts) elektromagnetische Welle besteht. Damit ergibt sich als Wert für den Feldvektor vor der Probenstruktur über die Transfermatrix des gesamten Systems

$$\mathbf{M}_{\text{ges}} = \mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{M}_2 \cdot \ldots \cdot \mathbf{M}_i \cdot \mathbf{M}_{i+1} \cdot \ldots \cdot \mathbf{M}_{N-1} \cdot \mathbf{M}_N \qquad (3.7)$$

mit den elektrischen Feldern einer nach rechts (+) bzw. einer nach links (-) laufenden Welle:

$$\begin{pmatrix} E_{\rm in}^+\\ E_{\rm in}^- \end{pmatrix} = \mathbf{M}_{\rm ges} \cdot \begin{pmatrix} E_{\rm out}^+\\ 0 \end{pmatrix}, \qquad (3.8)$$

wobei $E_{\rm in}^+ = 1$ gesetzt wird. Die Berechnung der Feldverteilung verläuft von rechts nach links zur Vermeidung numerischer Fehler. Insgesamt ist eine deutliche Feldüberhöhung an der Position der Quantenpunkte im Resonator zu erkennen. Weiterhin zeigt sich vor der Probe die Interferenz aus der einlaufenden und reflektierten elektromagnetischen Welle (vgl. Abb. 3.3).



Abbildung 3.3: Absolutbetrag des elektrischen Feldes in der Probenstruktur mit Maximum in Quantenpunkt-Schicht.

3.3 Photolumineszenzaufbau

Die Quantenpunkte werden zunächst mit Photolumineszenzspektren charakterisiert. Hierbei kann sowohl die lokale Position im Laserfokus über die Verschiebeeinheit verändert als auch der Ladungszustand einzelner Quantenpunkte identifiziert werden (vgl. Abschnitt 2.1.3). Die Quantenpunkte werden mit einem höherenergetischen Laser in der Barriere angeregt. Dieser wird über eine Strahlteilerkonstruktion und eine optische Faser auf den eigentlichen Kannenmessplatz geführt. Als Laserquelle wird hier eine Laserdiode mit einer Laserwellenlänge von 780 nm verwendet. Der Anregungslaser wird über einer geführt und mit einer kurzbrennweitigen Asphäre auf die Probe fokussiert. Dies ermöglicht

 $^{^2\}mathrm{Hierzu}$ dient eine nicht-entspiegelte Glasplatte, deren zweiter Reflex ausgeblockt wird.

einen sehr kleinen Laserfokus mit einem Durchmesser $d_f \approx 1 \ \mu m$. Das Photolumineszenz-Signal der Quantenpunkte wird mithilfe derselben Linse eingesammelt und über den transmittiven Kanal des Strahlteilers in eine optische Einzelmoden-Glasfaser eingekoppelt. Diese Faser wird an ein Dreifach-Gitterspektrometer angeschlossen. Die maximale Auflösung des Spektrometers beträgt im Bereich der Quantenpunkt-Photolumineszenz (880 - 930 nm) 16 μ eV. Das Spektrometer verfügt über eine Stickstoff-gekühlte CCD zur Verringerung des Detektorrauschens. Weiterhin lässt sich die Strichzahl der Gitter variieren, sodass die Auflösung und der sichtbare Spektralausschnitt verändert werden können.

Zur Analyse der Feinstrukturaufspaltung der Photolumineszenz in Abwesenheit von einem externen Magnetfeld, sind Polarisationsoptiken vor der Glasfaser zum Spektrometer eingebracht (s. Abb. 3.4). Die Kombination aus einer Viertelwellenplatte und einem Flüssigkristallverzögerer (englisch: liquid crystal retarder, LCR) ermöglicht das Umschalten zwischen einer Verzögerung³ von $\lambda/2$ und λ . Es folgt ein Linearpolarisator als Analysator. Die optischen Achsen sind so gewählt, dass jeweils eine lineare Polarisation der Photolumineszenz durch den Analysator gelangt, je nachdem ob eine Verzögerung von $\lambda/2$ oder λ eingestellt ist (vgl. Abb. 3.4). Zur Untersuchung der Aufspaltung wird nun jeweils ein Spektrum jeder Polarisation aufgenommen und hieraus der Wert der Aufspaltung im Rahmen der Spektrometer-Genauigkeit bestimmt. Die Bestimmung der Achsen von den Polarisationsoptiken erfolgt über die Maximierung der Aufspaltung im Photolumineszenzspektrum im Falle eines ungeladenen Quantenpunktes. Die Achsen von π^x und π^y liegen entlang der Ellipsen-Hauptachsen der Quantenpunkt-Geometrie, deren Wachs-

³Die Viertelwellenplatte ist zusätzlich nötig, da der einstellbare Verzögerer einen nutzbaren Bereich hat, der oberhalb 0 und unterhalb λ liegt. Bei der Gleichheit der optischen Achsen beider Elemente kann die Retardierung aufsummiert werden.

tum sich grundsätzlich an den Kristallachsen ausrichtet (vgl. Abschnitt 2.1.3).



Abbildung 3.4: Schema der polarisationssensitiven Messung der Photolumineszenz zur Bestimmung des Ladungszustandes. Je nach Einstellung des Flüssigkristallverzögerers (LCR) ergibt sich eine Detektion der π^y -Polarisation (a) oder der π^x -Polarisation (b).

Abbildung 3.5 zeigt Schematisch den Photolumineszenz-Aufbau mit den wesentlichen Komponenten.

3 Versuchsaufbau



Abbildung 3.5: Schematische Darstellung des Photolumineszenz-Aufbaus: der Anregungslaser wird über den Strahlteiler (ST) auf die Probe gelenkt (LP₁ dient der Sicherstellung der Polarisation nach der Faser für die späteren Spinrauschmessungen). Die eingesammelte PL durchläuft die Polarisationsoptiken (QWP, LCR und LP₂) und geht über die Glasfaser in das Spektrometer.

3.4 Spinrauschaufbau

Die Messung der Spindynamik der Ladungsträger in den Quantenpunkten erfolgt über die Projektion der zeitlich fluktuierenden Spinpolarisation auf die lineare Polarisationsrichtung des Abfragelasers. Dies bedeutet eine Modulation der linearen Laserpolarisation durch die Spinfluktuation. Der Abfragelaser verläuft über denselben optischen Pfad wie der Anregungslaser der Photolumineszenzmessung zur Probe. Hinter der Auskopplung aus der Glasfaser befindet sich ein Linearpolarisator zur Sicherstellung der linearen Polarisation des Abfragelasers. Durch die Probenstruktur wird dieser nach Durchlaufen der Quantenpunkt-Schicht reflektiert und über einen einklappbaren Spiegel auf die Polarisationsbrücke gebracht. Diese Polarisationsbrücke besteht aus einer Linse zur Fokussierung auf die Photodetektoren, einer Halbwellenplatte zur Einstellung der mittleren Polarisation des Lasers und einem Wollaston-Prisma, welches die beiden senkrechten Komponenten der Polarisation auf den balancierten Photodetektor aufteilt. Mithilfe des balancierten Photodetektors wird die Polarisationsdrehung in ein Spannungssignal übertragen. Dieses Detektionsschema hat weiterhin den Vorteil, dass mögliche Intensitätsschwankungen des Lasers durch die Balancierung unterdrückt werden.

Die im Folgenden vorgestellten Messergebnisse werden mit verschiedenen balancierten Photodetektoren gemessen: ein Detektor mit fester Bandbreite⁴ von 80 MHz und einer Verstärkung von $2 \cdot 10^4$ V/W, sowie ein Detektor mit variabler Bandbreite⁵ von 180 MHz – 220 kHz und einer von der Bandbreite abhängigen Verstärkung von $6 \cdot 10^1 - 6 \cdot 10^7$ V/W. Durch die einstellbare Bandbreite und der damit verbundenen größeren Verstärkung für kleine Bandbreiten des zweiten Detektors wird das Messen der Fluktuation eines einzelnen Spins

⁴Modell 1807 von New Focus.

⁵Modell DHPCA-S von Femto Messtechnik.



Abbildung 3.6: Schematische Darstellung des Spinrausch-Aufbaus: der Abfragelaser wird über den Strahlteiler (ST) auf die Probe gelenkt (LP₁ dient der Sicherstellung der Polarisation nach der Faser). Anschließend gelangt der Laser über eine Klappspiegel (KS) auf die Polarisationsbrücke (WP und balancierter Detektor).

möglich. Die erhöhte Sensitivität bedingt aber eine Verringerung der detektierbaren Bandbreite, d.h. schnelle Prozesse können nicht mehr aufgelöst werden. Dementsprechend wird bei den Messungen zum einzelnen Spin in Abschnitt 5 der Fokus auf die langsameren T_1 -Prozesse gelegt. Das Differenz-Spannungssignal des balancierten Detektors wird gegebenenfalls zusätzlich verstärkt⁶, um die nachfolgende Digitalisiererkarte möglichst optimal auszusteuern [147]. Das analoge Spannungssignal wird dann schließlich mithilfe des A/D-

⁶Modell DHPVA-100 von Femto Messtechnik.
Wandlers der Karte⁷ digitalisiert. Die Karte verfügt über eine maximale Abtastrate von $180 \cdot 10^6$ /s. Hiermit lassen sich nach dem Nyquist-Shannon-Theorem Frequenzen bis zu 90 MHz auflösen [148]. Das Zeitsignal wird schließlich mit einer schnellen Fourier-Transformation in den Frequenzraum übertragen. Durch die parallele Aufnahme und Verarbeitung der Daten lässt sich eine vollständige Zeitabdeckung erreichen. Anschließend werden die Spektren gleicher Magnetfeld-Konfiguration gemittelt und das Differenzspektrum der gemittelten Spektren gebildet. Diese Differenz dient der Isolation des Spinrauschens von anderen Rauschquellen (vgl. Abschnitt 2.3.6). Abbildung 3.7 beschreibt anhand experimenteller Daten beispielhaft das methodische Vorgehen. Die in a) gezeigten Spektren mit unterschiedlichem externen Magnetfeld enthalten noch das gesamte detektierte Rauschen über die volle Detektorbandbreite (1,8 MHz Abschneidefrequenz). Die Differenz beider Spektren in b) liefert nun das isolierte Spinrauschen. In diesem Fall sichtbar in einer schmalen Ausprägung bei kleinen Frequenzen, während bei höheren Frequenzen das Rauschen um Null liegt. Auf die genaue spektrale Form wird in Abschnitt 5 eingegangen. Im späteren Verlauf dieser Arbeit wird eine weitere Methode der Datenaufnahme für die Korrelationsmessungen in Abschnitt 5.2.4 vorgestellt.

Im Folgenden soll kurz die Umrechnung der technischen Messgröße V²/Hz in die physikalische Größe rad²/Hz erläutert werden.⁸ Die Laserintensität auf dem Detektor wird gemäß den Detektor-Spezifikationen in einen Spannungswert umgewandelt. In allen weiteren Schritten wird jeweils die Spannung V_1 bzw. V_2 der beiden Photodioden angegeben und nicht die Laserintensität auf den Dioden. Der Differenzverstärker gibt zudem die Differenz der beiden Spannungen V_{Δ} aus. Die Gesamtspannung, die zur Gesamtintensität proportio-

⁷ATS9462 von AlazarTech.

 $^{^8\}mathrm{Bei}$ Messungen, die in V²/Hz angegeben sind, fehlen entsprechende Messparameter zur Umrechnung in Winkelfluktuationen.



Abbildung 3.7: Differenz (b) zweier Rauschspektren mit unterschiedlichem externen Magnetfeld (a) zeigt das isolierte Spinrauschen.

nal ist, ergibt sich als $V_0 = V_1 + V_2$. Die Differenzspannung ergibt sich in Abhängigkeit vom Drehwinkel θ zu

$$V_{\Delta}(\theta) = V_1 - V_2$$

= $V_0 \cos^2\left(\theta + \frac{\pi}{4}\right) - V_0 \sin^2\left(\theta + \frac{\pi}{4}\right) = V_0 \sin\left(2\theta\right).$ (3.9)

Im Anschluss wird das Differenzsignal zusätzlich mit einem Faktor $\widetilde{V}_{\Delta} = \gamma \cdot V_{\Delta}$ verstärkt, was ein maximales Aussteuern der Digitalisiererkarte bewirkt. Der Wert für γ kann mit dem Verstärker eingestellt werden und variiert in den Messungen abhängig von der verwendeten Abfrageintensität. Mögliche unbekannte Faktoren in der Verarbeitung auf der Karte werden in einem Faktor ξ für das quadrierte Signal berücksichtigt:

$$V_{\rm skala}^2[V^2/{\rm Hz}] = \xi \cdot \left(\widetilde{V}_{\Delta}\right)^2 = V_{\Delta}^2 \cdot \gamma^2 \cdot \xi.$$
(3.10)

Zur experimentellen Überprüfung des Faktors ξ wird ein Sinus-Signal mittels eines Funktionsgenerators an die Digitalisiererkarte angelegt und ausgewertet. Das Rauschspektrum zeigt nun ein Maximum bei der entsprechend eingestellten Sinus-Frequenz. Alle Abweichungen des Integrals dieses Spektrums von der theoretisch erwarteten Rauschleistung⁹ werden in ξ berücksichtigt. Für das hier vorgestellte System gilt $\xi = 1, 16$. Die neue Skalierung in rad²/Hz ergibt sich nun aus der gemessenen Photodioden-Spannung $V_1 = V_2 = \frac{1}{2}V_0$ zu:

$$\theta_{\rm skala}^2[\rm rad^2/Hz] = \left(\frac{1}{2}\arcsin\left(\sqrt{\frac{V_{\rm skala}^2}{\xi\gamma^2 4V_1^2}}\right)\right)^2.$$
 (3.11)

3.5 Lasersysteme

Es werden hier kurz die beiden Lasersysteme vorgestellt, die neben der Laserdiode zur Photolumineszenzmessung verwendet werden. Für die Spinrauschmessungen werden ein durchstimmbarer Diodenlaser¹⁰ und ein Ringlaser¹¹ verwendet. In beiden Fällen wird die Wellenlänge des Lasers über ein externes Fizeau-Interferometer¹² gemessen.

⁹Es wird eine Rauschleistung von $1/2 \cdot (\text{Sinus-Amplitude})^2$ erwartet.

¹⁰DL 100 pro von Toptica.

¹¹ Matisse TX light von Sirah.

 $^{^{12}}$ Wavemeter WS-U 2 von HighFinesse.

3.5.1 Diodenlaser

Eine halbseitig entspiegelte Laserdiode bildet zusammen mit einem Gitter einen externen Resonator in Littrow-Geometrie. Durch ein Drehen des Gitters über einen Motor lässt sich die Wellenlänge grob einstellen. Zudem ermöglicht ein Piezoaktor eine Feinjustage. Die Wellenlänge des Lasers kann über das Fizeau-Interferometer und eine PID-Steuerung zur Kontrolle und Stabilisierung der Laserenergie über den Piezoaktor eingestellt werden. Der Lasertreiber variiert mit einer Veränderung der Piezo-Spannung auch den Diodenstrom, um einen möglichst großen modensprungfreien Bereich zu erzeugen ("feed forward"). Hieraus resultiert aber eine leichte Leistungsänderung bei einer Verstimmung der Wellenlänge. Um dies in automatisierten Messungen auszugleichen wird eine Kombination aus einem Flüssigkristallverzögerer und einem Linearpolarisator verwendet, welche eine programmierbare Leistungseinstellung ermöglicht. Das Verstärkungsprofil der Laserdiode liegt um 920 nm. Demzufolge nimmt die gesamte optische Leistung im relevanten Bereich¹³ von 890 nm deutlich ab.

3.5.2 Ringlaser

Für Messungen mit höherer Leistung und für eine zuverlässigere Durchstimmbarkeit des Lasers mit kleiner Schrittweite wird in vielen Messungen ein Ti:Sa-Ringlaser verwendet. Hierbei befindet sich das aktive Lasermedium, welches mit einem Dioden-gepumpten und Frequenz-verdoppelten Festkörperlaser (Nd:YVO₄) gepumpt wird, in einem ringförmigen Resonator. Dieser ermöglicht einen über einen großen spektralen Bereich (680-1020 nm) durchstimmbaren Laser im

¹³In diesem Bereich liegt die Resonatormode und damit die im Photolumineszenzspektrum sichtbaren Quantenpunkte.

Dauerstrichbetrieb mit einer hohen Ausgangsleistung bis zu 3 W im verwendeten Energiebereich. Durch eine zugehörige Stabilisierung des Lasers wird eine optische Linienbreite von weniger als 60 kHz erreicht. Der Ringlaser verfügt über ein internes Stabilisierungsschema mithilfe eines externen Fizeau-Interferometers.

Diodenlaser DL 100 pro	
Spektralbereich	885-945 nm
Linienbreite	$<1 \text{ MHz} (5 \mu \text{s})$
max. Leistung	40 mW
Ringlaser Matisse TX light	
Spektralbereich	680-1010 nm
Linienbreite	$<\!60 \text{ kHz} (100 \text{ ms})$
max. Leistung	3 W (15 W Pumpleistung)

 Tabelle 3.1: Übersicht der Laserspezifikationen der beiden verwendeten Lasersysteme.

KAPITEL **4**

Messungen am Quantenpunkt-Ensemble

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse vorgestellt, die an einem Ensemble von lokalisierten Löchern in Quantenpunkten gemessen werden. Aufgrund des Dichtegradienten der in Abschnitt 3.2 vorgestellten Probe ist es möglich die Zahl der Quantenpunkte und somit die abgefragten Spins im Laserfokus zu variieren. Typischerweise skaliert das Signal in Spinrauschmessungen mit der Zahl der beteiligten Ladungsträger, wodurch das Abfragen eines Ensembles einfacher Ergebnisse zeigt. Zur Einordnung und zum besseren Verständnis der nachfolgenden Messungen werden ausgewählte Messungen aus [49, 51] sowie neue Messungen und Berechnungen zur Intensitätsabhängigkeit und zur spektralen Linienform im Quantenpunkt-Ensemble vorgestellt.

4.1 Polarisationsaufgelöste Photolumineszenz

Die polarisationsaufgelöste Photolumineszenzmessung dient der Charakterisierung und Auswahl der Quantenpunkte. In der Photolumineszenz der Quantenpunkte zeigt sich die Feinstrukturaufspaltung. Zum einen wird über die Feinstrukturaufspaltung sichergestellt, dass sich geladene Quantenpunkte im Abfragefokus befinden (vgl. Abschnitt 2.1.3). Zum anderen können die Übergangsenergien der Quantenpunkte in der Photolumineszenz aufgelöst werden, sodass der Abfragelaser entsprechend eingestellt werden kann. Für die Messungen am Ensemble sind im Bereich hoher Dichte Quantenpunkte mit Übergangsenergien über den gesamten transparenten Ausschnitt des Bragg-Resonators von ca. 2,4 meV vorhanden. Außerdem liegt eine gleichmäßige Hintergrund-Dotierung vor, was dazu führt, dass an jeder lokalen Position auch geladene Quantenpunkte vorhanden sind. Abbildung 4.1 zeigt ein beispielhaftes Photolumineszenz-Spektrum eines Quantenpunkt-Ensembles, an dessen Position Teile der folgenden Messungen durchgeführt werden. Wie in Abschnitt 2.1.3 erläutert, zeigt das Spektrum die beiden linearen und orthogonalen Polarisationen der Photolumineszenz π^x und π^y . Es ist deutlich eine Verteilung der Feinstrukturaufspaltung zu erkennen, die von keiner signifikanten bis hin zu einer deutlichen Aufspaltung im Bereich einiger 10 µeV reicht. An ähnlichen Systemen für ungeladene Zustände treten vergleichbare Aufspaltungen auf [76, 101, 149, 150]. Genaueres zur Verteilung und Statistik der Aufspaltung in dieser Probe findet sich in [51, 151]. Die typische experimen-



Abbildung 4.1: Photolumineszenz-Spektrum eines Quantenpunkt-Ensembles mit den beiden orthogonalen, linearen Polarisationen π^x und π^y zur Identifikation geladener Übergänge.

telle Linienbreite der Quantenpunkte von ca. 40 μ eV ist limitiert durch die Auflösung des verwendeten Spektrometers¹, während die homogene Linienbreite etwa 1 μ eV beträgt [3]. Weiterhin ist zu beachten, dass deutlich mehr als die sichtbaren Quantenpunkte zum Spinrauschen beitragen.² Deren Photolumineszenz ist nicht sichtbar in Wachstumsrichtung aufgrund der Stoppband-Eigenschaften des Resonators. Messungen von der Seite (vgl. Abb. A.2) zeigen eine deutlich breitere Quantenpunkt-Verteilung als durch die Resonator-Mode bedingt sichtbar ist.

¹Für die Messungen am Quantenpunkt-Ensemble wird ein anderes Spektrometer mit einer geringeren Auflösung verwendet als in Abschnitt 3.3 beschrieben.

 $^{^2\}mathrm{Die}$ Größenordnung liegt im Bereich von 50 Quantenpunkten im Laserfokus.

4.2 Spinrauschen

Die Charakteristik von Ensemble-Spinrauschmessungen [49,51] wird anhand eines beispielhaften Spektrums erläutert. Abbildung 4.2 zeigt ein solches typisches Spinrauschspektrum eines Quantenpunkt-Ensembles.



Abbildung 4.2: Typisches Spinrauschspektrum eines Quantenpunkt-Ensembles ($B_z = 12 \text{ mT}$ minus B = 0 mT) mit einer Anregungsintensität von 140 μ W/ μ m² mit Anpassung gemäß Formel 4.1 und den charakteristischen Zeiten T_1 und T_2^* .

Das Spektrum setzt sich aus der Differenz einer Messung mit $B_z = 12 \text{ mT}$ longitudinalem Magnetfeld und ohne Magnetfeld zusammen. Die z-Richtung bezeichnet im Weiteren die Wachstumsrichtung der Probe und die Laserrichtung. Der Abfragelaser ist hierbei um einige 10 µeV von der nächsten geladenen Quantenpunkt-Resonanz verstimmt ($E_L = 1, 3969$). Für die vorgestellten Ensemble-Messungen zeigt sich keine signifikante Abhängigkeit von der Energie des Abfragelasers. Dieser Zusammenhang bestätigt das Abfragen eines Systems aus energetisch verteilten Quantenpunkt-Resonanzen. Die rote Kurve stellt eine Anpassung aus einer Lorentz- (im Positiven) und Gauß-Kurve (im Negativen) mit den jeweiligen Breiten w_1 , w_2 und den Flächen A_1 , A_2 dar:

$$f(\nu) = \frac{2A_1}{\pi} \frac{w_1}{4\nu^2 + w_1^2} - A_2 \frac{\sqrt{\frac{2}{\pi}}}{w_2} \exp\left(-2\left(\frac{\nu}{w_2}\right)^2\right).$$
(4.1)

Beide Funktionen sind um Null zentriert.³ Die Lorentz-Kurve gibt den homogenen Zerfall der longitudinalen Spinkomponente T_1 an. Durch die Überlagerung der Kernmagnetfelder mit dem externen longitudinalen Magnetfeld wird die Spinlebenszeit verlängert. Die Gauß-Kurve beschreibt die inhomogene T_2^* -Dynamik. Die Flächen der beiden Anteile sind proportional zur Spinrauschleistung und in guter Näherung identisch. Die Spinrauschleistung bleibt dementsprechend erhalten und verändert nur die Dynamik. Anhand der Breiten der beiden Kurven ergeben sich die Spinlebenszeiten zu $T_1 = 215$ ns und $T_2^* = 27$ ns. Insgesamt ist das Spinrauschen von anderen Rauschquellen durch die Differenz-Bildung isoliert. Zudem wird über die Stärke und Richtung des externen Magnetfeldes die Gewichtung der Beiträge von T_1 - und T_2^* -Zeit eingestellt. Die T_1 -Zeit ist hier begrenzt durch die Leistung des Abfragelasers (vgl. Abschnitt 4.2.2). Die transversale Spinlebenszeit T_2^* stellt einen charakteristischen

³Die Anpassung der breiten Verteilung im negativen Bereich des Spektrums mit einer um Null zentrierten Gauß-Kurve stellt nur eine Näherung dar, die für die hier vorgestellten Auswertungen der T_2^* -Zeit ausreichend ist. Im Folgenden wird sich immer auf die T_1 -Zeit konzentriert. Tatsächlich verschiebt sich auch ohne externes Feld das Maximum der Spinrauschleistung durch das Kernmagnetfeld und hängt stark vom Loch-g-Faktor ab [152].

Wert dar, der im Wesentlichen durch die Stärke der Hyperfeinwechselwirkung der untersuchten Spins mit den Kernspins bestimmt wird. Hierbei liegt die gemessene Zeit von 27 ns in guter Übereinstimmung mit T_2^* -Zeiten für lokalisierte Löcher in ähnlichen Quantenpunkt-Systemen [33]. Die experimentell bestimmte T_2^* -Zeit bestätigt die bisherige Annahme der positiv geladenen Quantenpunkte. Aus der Abschätzung in Abschnitt 2.2.3 (Formel 2.21) ergibt sich mit dieser T_2^* -Zeit und einem Loch-g-Faktor von etwa $g_\perp^h = 0, 15 \text{ (z.B. [48,153])}$ ein effektives Kernmagnetfeld von $B_N^h \approx 3 \text{ mT.}^4$ Diese Werte zeigen, dass es sich um eine p-Dotierung handelt und die Spindynamik von Löchern gemessen wird. Für Elektronen führt die stärkere Hyperfeinwechselwirkung zu einer wesentlich kürzeren T_2^* -Spinlebenszeit in Abwesenheit von einem externen Magnetfeld. Auf die Eigenschaften der T_1 -Zeit wird in den weiteren Abschnitten noch detaillierter eingegangen. Hierfür wird die Abhängigkeit der T_1 -Zeit von dem longitudinalen Magnetfeld sowie von der Abfrageintensität untersucht.

4.2.1 Abhängigkeit vom longitudinalen Magnetfeld

Gemäß den Erläuterungen in Abschnitt 2.2.2 lässt sich der Einfluss der Hyperfeinwechselwirkung auf die Spinlebenszeit durch ein externes longitudinales Magnetfeld unterdrücken, wie es auch im Differenz-Spinrauschspektrum Abb. 4.2 genutzt wird. Bei Erhöhung des B_z -Magnetfeldes zeigt sich ein graduelles Verschieben der Spinrauschleistung in den Anteil der T_1 -Dynamik. Dies wird in Abb. 4.3 deutlich anhand der steigenden Flächen beider Kurven. In Abbildung 4.3 (Einfügung) ist beispielhaft das Verhalten der Spinrausch-

⁴Eine experimentelle Bestimmung des Loch-g-Faktors ist schwierig aufgrund der Breite der Kurve und damit der geringen Amplitude, was ein schlechtes Signal-zu-Rausch-Verhältnis zur Folge hat. Ein Hinweis auf einen gemessenen g-Faktor von ca. 0,112 findet sich in [51].



Abbildung 4.3: Spinrauschdifferenzspektren mit unterschiedlich starkem B_z -Magnetfeld abzüglich 0 mT. (Einfügung) Fläche der angepassten Lorentz-Kurve zur T_1 -Zeit in Abhängigkeit von B_z .

leistung in Abhängigkeit des externen Magnetfeldes für die Fläche A_{Lorentz} der Lorentz-Kurve zur T_1 -Dynamik gezeigt. Die dargestellten Messungen deuten auf eine Sättigung des Zuwachses der jeweiligen Spinrauschleistungen bei einem Magnetfeld $B_z \gg B_N^h$ hin. Zudem tritt eine Abschirmung der Hyperfeinwechselwirkung schon für externe Magnetfelder auf, die das Kernmagnetfeld übersteigen ($B_z > B_N^h$). Anhand dieser Messungen kann das Kernmagnetfeld zu $B_N^h < 5 \text{ mT}$ abgeschätzt werden. Weitere Details zur Abhängigkeit vom externen longitudinalen Magnetfeld im Quantenpunkt-Ensemble finden sich in [49,51] und werden an dieser Stelle nicht weiter behandelt.

4.2.2 Abhängigkeit von der Laserintensität

Die bisher ermittelte T_1 -Zeit weist eine starke Abhängigkeit von der verwendeten Abfragelaserintensität auf. Abbildung 4.4 zeigt die Breite der angepassten Lorentz-Funktion $\Gamma_{\rm FWHM}$ in Abhängigkeit von der Laserintensität. Die Breite der Funktion ist invers proportional zur Spinlebenszeit T_1 . Eine Restabsorption des Abfragelasers führt zu einer zusätzlichen Besetzung des Quantenpunktes mit einem Elektron-Loch-Paar. Die Absorptionsrate beeinflusst in Folge dessen die gemessene Spinlebenszeit (vgl. Abschnitt 2.3.5). Sämtliche Rauschspektren zur Intensitätsabhängigkeit (vgl. Abb. 4.4) sind aus der Differenz von $B_z = 30$ mT und 0 mT gebildet, wobei für die weiteren Analysen jeweils die Breite der Lorentz-Kurve verwendet wird, die mit der T_1 -Zeit korrespondiert.

Die Beiträge der einzelnen Quantenpunkte im Ensemble skalieren mit der Laserleistung und der jeweiligen Verstimmung, was durch einen einfachen linearen Zusammenhang nicht wiedergegeben wird. Die rote Kurve zeigt den Verlauf eines theoretischen Modells [49, 51]. Dieses Modell berücksichtigt den in Abschnitt 2.3.5 erläuterten Mechanismus der Verbreitung des Spinrauschspektrums. An dieser Stelle soll nur qualitativ die zugrundeliegende Idee erklärt werden. Es wird ein Spinrauschspektrum modelliert, das sich aus den Beiträgen unterschiedlicher Quantenpunkte zusammensetzt. Dabei wird für ein Ensemble eine Gauß-artige Verteilung der Quantenpunkt-Resonanzen G(E, I) mit einer Breite von 30 meV gewählt. I beschreibt die Abfragelaserintensität und E die spektrale Energie. Im berechneten Spektrum werden die Beiträge der einzelnen Resonanzen mit dem Quadrat des Brechungsindex $n^2(E)$ und ihrer Verstimmung zum Abfragelaser skaliert. Für jeden Quantenpunkt wird ein daraus resultierendes Lorentz-förmiges Spinrauschspektrum $L(\Gamma)$ mit der vollen Halbwertsbreite $\Gamma(E, I) = \Gamma_{I=0}^{s} + \alpha(E, I)/\pi$ angenommen. Hierbei gibt $\alpha(E, I)$ die Anzahl absorbierter Photonen pro



Abbildung 4.4: Experimentell bestimmte Spinlebenszeit in Abhängigkeit von der Abfragelaserleistung (schwarz) und das im Text beschriebene Modell für den theoretischen Verlauf der Intensitätsabhängigkeit (rot).

Sekunde an und es wird eine intrinsische Spindephasierungsrate der ungestörten Quantenpunkte von $\Gamma_{I=0}^{s} = 10^{5}$ Hz angenommen. Insgesamt integriert das Modell über alle Beitrage der Resonanzen:

$$\int_{0}^{\infty} G(E,I) \cdot n^{2}(E) \cdot R(E,I) \cdot L(\Gamma(E,I)) dE, \qquad (4.2)$$

wobei der Term $R(E, I) = 1 - \alpha_{\text{QD}}(E, I)\tau_{\text{rad}}$ die Blockade optisch angeregter Quantenpunkte mit einer strahlenden Lebenszeit τ_{rad} beschreibt. Hiermit lässt sich der Effekt des Ausbleichens resonanter Quantenpunkte und die Verbreiterung quasi-resonanter Quantenpunkte theoretisch berücksichtigen. Die extrahierte Linienbreite des Gesamt-Spinrauschspektrums ergibt sich als Frequenz, bei der die Intensität auf die Hälfte abgefallen ist. Insgesamt gibt das Modell mit dem freien Anpassungsparameter der Absorption eines einzelnen Quantenpunktes (hier: $\alpha_{\rm QD} = 1/6 \cdot 10^{-3}$) gut den Verlauf der Intensitätsabhängigkeit wieder. Das hier beschriebene Modell findet in angepasster Form auch Anwendung für die Messungen an einem einzelnen Quantenpunkt und wird dort genauer erläutert (vgl. Abschnitt 5.2.2).

Im Rahmen dieser Dissertation wird der gemessene Intensitätsbereich zu niedrigen und hohen Intensitäten und dadurch die untersuchte Abhängigkeit der Linienbreite erheblich erweitert. Dies ist möglich durch eine Rotation der Laserpolarisation um 90°, was eine verstärkte Reflexion des Lasers am Strahlteiler und damit eine erhöhte Intensität auf der Probe zur Folge hat. Andererseits wird in den nachfolgenden Messungen teilweise das Ringlaser-System mit einer deutlich höheren Ausgangsleistung verwendet. Abbildung 4.5 zeigt die experimentell bestimmten Linienbreiten in Abhängigkeit der Abfrageintensität. Auch über den erweiterten Intensitätsbereich von vier Größenordnungen zeigt sich eine gute Übereinstimmung mit dem Modell bis in den Plateau-Bereich für mittlere Abfrageintensitäten. Mit den experimentellen Werten über einen größeren Intensitätsbereich werden die freien Anpassungsparameter zu $\alpha_{\text{QD}} = 5 \cdot 10^{-4} \text{ und } \Gamma_{I=0}^s = 2 \cdot 10^5 \text{ Hz bestimmt.}$



Abbildung 4.5: Intensitätsabhängigkeit der Spinlebenszeit über einen erweiterten Bereich in guter Übereinstimmung mit dem Modell (siehe Text für veränderte Anpassungsparameter).

4.2.3 Linienform des Spinrauschspektrums

Die Methode der Spinrauschspektroskopie hat den Vorteil, neben der reinen Spinlebenszeit auch die Dynamik des Zerfalls wiederzugeben [50]. Diese Eigenschaft kann zu einem besseren Verständnis des Zentral-Spin-Problems führen. In diesem Fall liefert die Form der Spinrauschspektren Rückschlüsse auf die Dynamik lokalisierter Löcher im Einfluss des Kernspinbades. Theoretische Berechnungen zur genauen Dynamik im Zentral-Spin-Problem sind schwierig und existieren überwiegend für Elektronen in Quantenpunkten. Einige experimentelle Arbeiten setzten sich auch mit der Linienform im Spinrauschen für Löcher in Quantenpunkten auseinander [50]. Hierbei wird aber ein störender Einfluss des Abfragelasers ausgeschlossen. Als Begründung dafür wird die Konstanz der Linienbreite in Abhängigkeit der Abfrageintensität angeführt, was aber gemäß dem in dieser Arbeit vorgestellten Modell lediglich den mittleren Intensitätsbereich darstellt (vgl. Abb. 4.5). Demnach liegt auch in diesen Messungen ein nicht zu vernachlässigender Einfluss der Abfrageintensität vor [55]. Zudem zeigt sich mit dem Modell, dass die integrierte Spinrauschleistung unter Berücksichtigung der Restabsorption eine andere Steigung als eins haben kann. In [50] wird argumentiert, dass eine Absorption zu einer erhöhten Dichte messbarer Ladungsträger führt und damit eine superlineare Abhängigkeit von der Abfrageintensität bedeuten würde. Es ist allerdings zu berücksichtigen, dass das Ausbleichen und die Blockade resonanter Quantenpunkte durchaus eine geringere Steigung der integrierten Spinrauschleistung mit der Intensität des Abfragelasers bedeuten kann (vgl. Abb. 4.6). In den hier vorgestellten Messungen wird die Linienform des Rauschspektrums zur T_1 -Zeit gut durch eine Lorentz-Form wiedergegeben. Dies gilt sowohl für den untersuchten Bereich der Abfrageintensität als auch für die verwendeten Magnetfelder. Ein Lorentz-förmiges Spektrum, welches sich im Wesentlichen durch einen Verlauf proportional zu $1/\nu^2$ auszeichnet, resultiert aus einem exponentiellen Zeitverhalten des zentralen Spins. Zur theoretischen Beschreibung der longitudinalen Spindynamik wird in [152] ebenfalls dieser Zusammenhang verwendet.

Theoretische Beschreibungen für lokalisierte Elektronen erwarten einen langsamen zeitlichen Zusammenhang gemäß $1/\log(t)$ [154– 156]. Diese Modelle sind explizit auf die Dynamik von Elektronen ausgerichtet und berücksichtigen die Fermi-Kontakt-Kopplung mit den Kernspins und sind somit nicht direkt anwendbar auf lokalisierte Löcher. Die experimentellen Ergebnisse in [50] zeigen für lokalisierte Löcher ebenfalls, dass die Linienform über weite Bereiche einer Lorentz-Kurve folgt [85]. Es wird allerdings ein Übergang zu einer $1/\nu$ -Abhängigkeit für starke longitudinale Magnetfelder beob-



Abbildung 4.6: Die Abhängigkeit der berechneten Spinrauschleistung eines Quantenpunkt-Ensembles von der Abfrageintensität in doppellogarithmischer Darstellung zeigt eine Abweichung von einer Steigung von 1 für höhere Intensitäten durch die vermehrte Blockade der Quantenpunkte.

achtet. Anhand des hier vorgestellten Modells zeigt sich, dass dieser Übergang der Linienform empfindlich mit der Abfrageintensität zusammenhängt. Es liegt dem extrahierten Rauschspektrum immer die Annahme einer Lorentz-förmigen Linienform des Rauschspektrums eines einzelnen Quantenpunktes zugrunde. Für hohe Abfrageintensitäten I_L oder geringe intrinsische Linienbreiten Γ_i stellt Abb. 4.7 den Übergang im Modell zu einer Form gemäß $1/\nu$ dar. Eine geringere intrinsische Linienbreite lässt sich beispielsweise mit einem stärkeren longitudinalen Magnetfeld B_z realisieren. Durch die Messungen an einem Quantenpunkt-Ensemble kann es weiter-



Abbildung 4.7: Modellierte Linienform des Spinrauschspektrums eines Quantenpunkt-Ensembles in Abhängigkeit der intrinsischen Spinrelaxationsrate Γ_i , welche mit B_z variiert, bei konstanter Abfrageintensität (links) und in Abhängigkeit der Abfrageintensität I_L bei konstanter Spinrelaxationsrate (rechts).

hin dazu kommen, dass eine eigentlich exponentielle Dynamik durch Überlagerung in einer anderen funktionalen Form im Gesamtspektrum aufgeht. Insgesamt kann der in [50] beschriebene Übergang zur $1/\nu$ -Abhängigkeit im Bereich der untersuchten Magnetfelder in dieser Arbeit nicht bestätigt und vielmehr auf den störenden Einfluss der Abfrageintensität zurückgeführt werden. Weiterhin zeigt sich für die hier untersuchten lokalisierten Löcher keine Übereinstimmung mit der theoretisch beschriebenen $1/\log(t)$ -Dynamik. Eine Berücksichtigung der Quadrupolwechselwirkung der Kernspins kann bei einer entsprechenden Größe im Vergleich zur Hyperfeinwechselwirkung des zentralen Spins mit den Kernspins relevant werden. Eine theoretische Beschreibung dieses Effektes für lokalisierte Ladungsträger führt ebenfalls zu einem exponentiellen zeitlichen Verhalten [85]. Insgesamt zeigen die hier vorgestellten Messungen durchgehend eine exponentielle Dynamik, die sich aus der Lorentz-Form der Spinrauschspektren ergibt. Ein experimentelles Abweichen von dieser Form kann auf eine erhöhte Abfrageintensität zurückgeführt werden. Der Wert der kritischen Abfrageintensität, oberhalb dessen das Spektrum signifikant von einer Lorentz-Form abweicht, hängt zudem von der Linienbreite des Spektrums ab und skaliert damit mit dem externen Magnetfeld (vgl. Abb. 4.7).

KAPITEL 5

Messungen am Einzel-Quantenpunkt

Das absolute Limit für die Spinrauschspektroskopie lokalisierter Ladungsträger ist die Messung eines einzelnen Elektron- oder Lochspins in einem individuellen Quantenpunkt. In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der Messungen an einem Einzel-Lochspin in einem Quantenpunkt vorgestellt. Der hierfür nötige positiv geladene Quantenpunkt wird über die Feinstrukturaufspaltung der Photolumineszenz identifiziert, was im folgenden Abschnitt näher erläutert wird.

5.1 Photolumineszenz und Feinstrukturaufspaltung

Die Feinstrukturaufspaltung wird für die Charakterisierung des Ladungszustandes des einzelnen Quantenpunktes genutzt. Abbildung 5.1 zeigt ein beispielhaftes Photolumineszenz-Spektrum zweier Quantenpunkt-Resonanzen (im Folgenden A und B genannt), an denen ein Großteil der folgenden Messungen durchgeführt werden.



Abbildung 5.1: Polarisationsaufgelöste Photolumineszenz zeigt die Resonanz eines geladenen (Resonanz A, keine Aufspaltung von π^x und π^y) und eines ungeladenen Quantenpunktes (Resonanz B, signifikante Aufspaltung von π^x und π^y).

Die energetisch niedrigere Resonanz A zeigt keine signifikante Aufspaltung, während die energetisch höhere Resonanz eine deutliche Feinstrukturaufspaltung aufweist. Diese Charakteristik der zusätz-

lichen Ladung von Resonanz A, welche in unserem Fall aufgrund des Probenwachstums und der Messergebnisse am Quantenpunkt-Ensemble als positiv definiert ist, wird im Weiteren in Abschnitt 5.2.1 durch zusätzliche Messungen bestätigt.

5.2 Spinrauschen

Die in Abschnitt 2.2.2 dargestellten Überlegungen zur Abhängigkeit der Spinlebenszeit vom externen Magnetfeld liefern die Möglichkeit zur Isolation des Spinrausch-Signals über die Differenzbildung zweier verschiedener Magnetfeld-Konfigurationen. Für die Unterdrückung der Hyperfeinwechselwirkung mit den Kernspins und der daraus folgenden langen Spinlebenszeit, welche mit einer Lorentz-Funktion angepasst werden kann [157], wird soweit nicht anders angegeben ein starkes longitudinales Magnetfeld ($B_z = 31 \text{ mT}$) angelegt. Zur Bildung des Differenzspektrums dient ein starkes transversales Magnetfeld $(B_y = 27 \text{ mT})$, welches eine sehr kurze Spinlebenszeit beobachten lässt. Hieraus ergibt sich ein sehr breites Spektrum mit einer geringen Amplitude, welches zudem von Null verschoben ist aufgrund der Modulation mit dem transversalen Magnetfeld. Abbildung 5.2 zeigt ein typisches Spinrausch-Differenzspektrum eines einzelnen Lochspins. Hierbei ist zu beachten, dass die longitudinale T_1 -Komponente gut sichtbar ist, während die transversale T_2^* -Zeit aufgrund des geringen Signals bei der Einzelspin-Messung im Weiteren nicht betrachtet wird. Zudem wird die Bandbreite des Detektors in der Regel so gewählt, dass die Kurve zur untersuchten T_1 -Zeit gut aufgelöst wird, wohingegen der Beitrag im Differenzspektrum zur T_2^* -Zeit außerhalb der Detektionsbandbreite liegt. Der gezeigte Frequenzausschnitt ist hierbei deutlich geringer als im Fall der Quantenpunkt-Ensemble-Messungen, d.h. die beobachteten



Abbildung 5.2: Typisches Spinrausch-Differenzspektrum eines einzelnen Lochspins mit einer Lorentz-Funktion (rot) angepasst zur Analyse der T_1 -Zeit ($B_z = 31$ mT, Abfragelaserintensität von $1,2 \ \mu W/\mu m^2$). Der Anteil der T_2^* wird durch ein transversales Magnetfeld $B_y = 27$ mT aus der Detektionsbandbreite geschoben.

Spinlebenszeiten sind deutlich länger. Eine genauere Analyse der gemessenen Spinlebenszeiten und der Abhängigkeit von der Abfragelaserenergie, dem äußerem Magnetfeld und der Abfragelaserintensität folgt im weiteren Verlauf.

5.2.1 Abhängigkeit von der Laserenergie

Zur Unterstützung der Annahme, dass es sich bei Resonanz A im Photolumineszenz-Spektrum (Abb. 5.1) um einen geladenen Quantenpunkt handelt, wird die Photonenenergie des Abfragelasers über einen weiten Bereich im Energiespektrum verändert. Gemäß den Erläuterungen in Abschnitt 2.3.4 folgt die Spinrauschleistung einer einzelnen Resonanz dem Quadrat des Brechungsindex in der sogenannten Schmetterlingsform (vgl. Abb. 2.17). Die experimentell bestimmte integrierte Spinrauschleistung $P_{\rm SR}$ zeigt eine explizite Abhängigkeit von der Energie des Abfragelasers. In Abbildung 5.3 ist die polarisationsaufgelöste Photolumineszenz der beiden Quantenpunkt-Resonanzen zusammen mit der integrierten Spinrauschleistung in Abhängigkeit von der Energie des Abfragelasers gezeigt. Die



Abbildung 5.3: Die integrierte Spinrauschleistung (blau) zeigt eine signifikante Abhängigkeit von der Energie des Abfragelasers in Übereinstimmung mit der Photolumineszenz von Resonanz A (bei einer Abfragelaserintensität von 1,2 μ W/ μ m²).

integrierte Spinrauschleistung der T_1 -Zeit weist ein deutliches Maximum auf, welches mit der Resonanz A des geladenen Quantenpunk-

tes im Photolumineszenz-Spektrum korreliert. Das zeigt eindeutig, dass das Spinrauschsignal von einem einzelnen Quantenpunkt resultiert. Die Linienbreite der gemessenen Photolumineszenz ist limitiert durch die Auflösung des Spektrometers. Die spektrale Verteilung der integrierten Spinrauschleistung weist eine Breite von etwa 19 µeV auf. Die über die Spinrauschleistung abgefragte Linienform ist nur begrenzt durch die Schrittweite und die Linienbreite des Lasers, die aber mehr als drei Größenordnungen schmaler ist als alle anderen Breiten. Eine Breite von 19 µeV weicht deutlich von dem theoretisch erwarteten Verlauf der spektralen Form ab. Dieser würde die Schmetterlingsform mit der natürlichen Linienbreite eines Quantenpunktes im Bereich von 1 µeV zeigen. Eine weitere Betrachtung der gemessenen spektralen Verteilung der integrierten Spinrauschleistung und die Ursachen für die Abweichung von der theoretisch erwarteten Form folgen im Anschluss an die Betrachtung der Intensitätsabhängigkeit.

5.2.2 Abhängigkeit von der Laserintensität

Wie beim Quantenpunkt-Ensemble liegt auch im Fall eines einzelnen Quantenpunktes eine erhebliche Abhängigkeit der longitudinalen Spinlebenszeit von der Intensität des Abfragelasers vor. Abbildung 5.4 zeigt beispielhaft drei Spektren mit stark unterschiedlicher Intensität des Abfragelasers. Alle Spektren zeigen den Anteil zur T_1 -Spinlebenszeit durch ein angelegtes starkes longitudinales Magnetfeld B_z . Über den gesamten Bereich der Intensitätsabhängigkeit lassen sich die experimentellen Daten gut mit einer Lorentz-Funktion (rote Kurve) anpassen. Es ist zu beachten, dass die Breite der Spinrauschspektren erheblich von der Intensität abhängt und entsprechend die Bandbreite des Detektors an die Spektren angepasst wird. Abbildung 5.5 stellt eine systematische Untersuchung der T_1 -Spin-



Abbildung 5.4: Spinrauschspektrum bei hoher (a), mittlerer (b) und niedriger (c) Abfrageintensität (links). Alle Spektren zeigen den Beitrag der T_1 -Zeit bei starkem longitudinalen Magnetfeld $B_z = 31$ mT. Die Detektorbandbreite ist jeweils an die Breite der Spektren angepasst. Das Signal-zu-Rausch-Verhältnis hängt von der optischen Leistung am Detektor (optisches Rauschen) und der Bandbreite des Detektors (elektrisches Rauschen) ab.

lebenszeit in Abhängigkeit der Abfrage
intensität mit starkem externen Magnetfeld ($B_z = 31 \text{ mT}$) dar. Der Bereich der untersuchten Intensitätsabhängigkeit erstreckt sich über sechs Größenordnungen.

Hierbei ändert sich die Spinrelaxationsrate Γ_1 um etwa vier Größenordnungen. Insgesamt nimmt die Spinrelaxationsrate Γ_1 mit der Intensität des Abfragelaser zu. Dieser Zusammenhang resultiert aus der Photogeneration von Elektron-Loch-Paaren, die zu einer Blockade des abfragbaren Loch-Spinrauschens und zu einer Verbreiterung der experimentell bestimmten Rate führen (vgl. Abschnitt 2.3.5). Bei der geringsten Abfrageintensität kann eine Lochspinlebenszeit von $T_1 = 180 \ \mu s$ durch die Abschirmung der Hyperfeinwechselwirkung erreicht werden.



Abbildung 5.5: Experimentelle Daten der Spinrelaxationsrate Γ_1 im einzelnen Quantenpunkt in Abhängigkeit der Intensität des Abfragelasers (schwarz) und Anpassung mit dem im Text beschriebenen Modell (rot).

Zur Anpassung der Messwerte wird das in Abschnitt 4.2.2 eingeführte Modell in einer angepassten Form verwendet. Zudem wird zur Beschreibung der experimentellen Befunde in den Messungen

zum einzelnen Quantenpunkt die in Abschnitt 2.2.4 erläuterte Thematik der Ladungsfluktuationen mit einbezogen. Die Berechnungen sind eine Erweiterung aus [49]. Für einen einzelnen Quantenpunkt geht die Gauß-Verteilung des Quantenpunkt-Ensembles in eine einzelne Resonanz über. Im Folgenden werden für diese einzelne Resonanz Ladungskonfigurationen der Quantenpunkt-Umgebung im Modell berücksichtigt. Diese Konfigurationen resultieren in einer jeweils verschobenen Resonanzenergie des Quantenpunktes über die Stark-Verschiebung in einem elektrischen Feld. Im Modell werden drei diskrete Quantenpunkt-Konfigurationen berücksichtigt.¹ Die entsprechende Abhängigkeit der Spinrauschleistung von der Laserintensität resultiert aus der Summe dieser drei Beiträge, die jeweils mit einem Faktor G_i gewichtet werden. Die Gewichtung gibt die zeitliche Verteilung der vorliegenden Konfiguration wieder. Die genauen energetischen Positionen der einzelnen Resonanzen sowie die Gewichtungsfaktoren folgen aus einer Anpassung an die Messdaten. Insgesamt ergibt sich das intensitätsabhängige Spinrauschspektrum zu

$$P_{\rm SR}(\nu) = \sum_{i} G_i \times (n \left(\Delta E_i\right))^2$$

$$\times R^2 \left(\Delta E_i, I\right) \times L \left(\Gamma \left(\Delta E_i, I\right), \nu\right).$$
(5.1)

Hier beschreibt n den dispersiven Anteil des Brechungsindex, I die Laserintensität, L ein Lorentz-förmiges Spinrauschspektrum um Null mit der Linienbreite Γ . ΔE_i bezeichnet die relative energetische Verschiebung der entsprechenden Resonanz der Quantenpunkt-Konfiguration i zur Energie des Abfragelasers. Aus der Anpassung an die experimentellen Daten in Abb. 5.5 ergeben sich die Gewichtungsfaktoren G_i , die alle nur wenig von 1 abweichen. Diese gleichmäßige

 $^{^1 \}text{Die}$ Anzahl der berücksichtigten Konfigurationen ergibt sich aus den zwei Sprüngen in der Intensitätsabhängigkeit in Abb. 5.5 bei etwa 10^{-2} und $10^2 \ \mu\text{W}/\mu\text{m}^2.$

zeitliche Verteilung der Ladungskonfigurationen ist in guter Übereinstimmung mit [113]. Die Reduzierung der Spinrauschleistung Rdurch die anregungsinduzierte Pauli-Blockade wird folgendermaßen berücksichtigt:

$$R(\Delta E_i, I) = 1/\left(1 + \tau_{\rm rad}/\tau_{\rm frei}\left(\Delta E_i, I\right)\right),\tag{5.2}$$

mit $\tau_{\rm rad}$ als strahlende Lebenszeit des Quantenpunktes und

$$\tau_{\rm frei}(\Delta E_i, I) = 1/\left(\Gamma_{\rm laser}(I)\alpha_0(\Delta E_i)\right) \tag{5.3}$$

als Zeit zwischen zwei Blockadezuständen (vgl. Abb. 2.18). Hierbei bezeichnet Γ_{laser} die Zahl der Photonen des Lasers pro Sekunde und α_0 die Lorentz-förmige Absorption eines Quantenpunktes pro Sekunde. Zur Herleitung von τ_{frei} gilt gemäß [158] für die Sättigungsverbreiterung

$$\alpha = \frac{\alpha_0}{1+S}.\tag{5.4}$$

Mit der Anregungsrate des Quantenpunktes

$$\Gamma_{\rm abs} = \alpha \cdot \Gamma_{\rm laser},\tag{5.5}$$

wobei Γ_{laser} die Photonenzahl pro Sekunde des Lasers bezeichnet, folgt für den Sättigungsparameter S:

$$S = \frac{\Gamma_{\text{laser}} \cdot \alpha_0}{\Gamma_{\text{rad}}},\tag{5.6}$$

mit $\Gamma_{\rm rad}$ als inverse strahlende Lebensdauer. Als mittlere freie, unangeregte Zeit der Quantenpunkte, die zugleich die maximal messbare Spinlebenszeit ergibt und somit das Limit für höhere Intensitäten darstellt, gilt

$$\tau_{\rm frei} = \frac{1 - (\Gamma_{\rm abs} \cdot \tau_{\rm rad})}{\Gamma_{\rm abs}}.$$
 (5.7)

Vereinfacht ergibt sich hieraus

$$\tau_{\rm frei} = \frac{1}{\Gamma_{\rm laser} \cdot \alpha_0},\tag{5.8}$$

was dem oben eingeführten Zusammenhang entspricht und sowohl die direkte Proportionalität zur Laserintensität als auch die Abhängigkeit von der Verstimmung von Quantenpunkt-Resonanz und Abfrageenergie beschreibt.

Wie in Abb. 5.4 beispielhaft gezeigt, kann in erster Näherung das Spinrauschspektrum bei jeder Abfrageintensität gut mit einer um Null zentrierten Lorentz-Kurve genähert werden. Im Wesentlichen dominiert eine Konfiguration das Spektrum unter verschiedenen Abfrageintensitäten.² Damit wird die Spinrelaxationsrate $\Gamma_1 = \pi \nu_{\rm FWHM}$ über die modellierte Linienbreite $\nu_{\rm FWHM}$ beschrieben. Das Modell gibt zum einen die Verbreiterung des Spinrauschspektrums mit Erhöhung der Abfrageintensität wieder, was eine Verkürzung der Spinlebenszeit bedeutet. Bei ausreichend geringen Intensitäten ist die Absorptionsrate geringer als die Relaxationsrate Γ_1 und die gemessene Linienbreite wird nur noch über die intrinsische Spinlebenszeit bestimmt. Weiterhin zeigt das Modell, dass die erste Quantenpunkt-Konfiguration eine signifikante Verbreiterung zeigt bei steigender, aber geringer, Abfrageintensität. Bei einer weiteren Erhöhung der Abfrageintensität bleicht diese Konfiguration zunehmend aus. Insgesamt bedeutet dies für die Resonanz, die dem Abfragelaser am nächsten ist, dass das Spektrum erheblich verbreitert und die Rauschleistung durch das Ausbleichen deutlich verringert wird. Dadurch trägt für höhere Intensitäten die energetisch nächstgelegene Konfiguration dominant zum Spektrum bei und zeigt denselben Verlauf bis hin zum Übergang zur dritten Konfiguration.

Abbildung 5.6 zeigt schematisch das Spinrauschen zwei verschiedener Resonanzen QD1 und QD2. Die Resonanz von QD1 liegt näher

 $^{^2\}mathrm{Vgl.}$ hierzu Abb. 5.6.

an der Abfrageenergie. Bei moderater Intensität zeigt QD1 ein leicht verbreitertes Spektrum $\Gamma_{\rm QD1}$ im Vergleich zu QD2 ($\Gamma_{\rm QD2}$). Zudem ist die messbare Spinrauschleistung von QD1 größer durch die geringere Verstimmung. Die Summe beider Beiträge zeigt ein Spektrum, dessen Breite $\Gamma_{\rm gesamt}$ im Wesentlichen der Breite $\Gamma_{\rm QD1}$ entspricht. Bei steigender Abfrageintensität nimmt die Verbreiterung durch Absorption der näheren Resonanz stärker zu und zusätzlich nimmt die Rauschleistung von QD1 durch Ausbleichen ab. Beide Prozesse bedeuten eine stark verringerte Rauschamplitude, wodurch die energetisch nächstgelegene Resonanz von QD2 in diesem Regime deutlich den Beitrag von QD1 übersteigt und die Gesamtbreite $\Gamma_{\rm gesamt}$ spiegelt etwa $\Gamma_{\rm QD2}$ wider. Für die hier vorgestellten Ergebnisse des



Abbildung 5.6: Schematischer Ubergang der dominan-Quantenpunkt-Konfiguration für den Fall ten von zwei Quantenpunkt-Konfigurationen. Bei niedriger Intensität entspricht die Breite des Gesamtspektrums (grün) Γ_{gesamt} der Breite der näheren Resonanz (schwarz) Γ_{QD1} . Für steigende Intensität wird Γ_{QD1} stark verbreitert und das zusätzliche Ausbleichen führt zu einer Abfrage der Breite der energetisch nächstgelegenen Resonanz (blau) Γ_{QD2} im Gesamtspektrum.

Modells und die Anpassung an die experimentellen Daten werden folgende Parameter verwendet: die Absorptionswahrscheinlichkeit des einzelnen Quantenpunktes in Resonanz $\alpha_0 = 5 \times 10^{-6}$. Die intrinsische Spinrelaxationsrate bei $B_z = 31$ mT und verschwindender Intensität als $\Gamma_{I=0} = 100$ Hz, wobei jeder Wert deutlich unter 2 kHz die gezeigten Berechnungen nicht wesentlich ändert. Die strahlende Lebenszeit wird als $\tau_{\rm rad} = 1$ ns angenommen. Schließlich ergibt die Anpassung an die experimentellen Daten mit der Vorgabe von drei Konfigurationen für die energetische Verschiebung zur Abfragelaserenergie in Einheiten der natürlichen Quantenpunkt-Linienbreite für ΔE_i die Werte 2,6, 11,9 und 55,3 sowie für die entsprechenden Gewichtungsfaktoren G_i die Werte 1,08, 0,89 und 1,12. Das Ergebnis dieses Modells mit den Anpassungsparametern ist als rote Kurve in Abb. 5.5 gezeigt.



Abbildung 5.7: Intensitätsabhängigkeit der Spinrelaxationsrate im Experiment und die Gesamtanpassung des Modells sowie die drei einzelnen Quantenpunkt-Konfigurationen.

Abbildung 5.7 zeigt die einzelnen Beiträge der drei Ladungskonfigu-

rationen (gestrichelte Linien). Die Gesamtanpassung nach dem Modell gibt sehr gut den experimentellen Verlauf und die Übergänge zwischen den Konfigurationen wieder. Es zeigt die jeweilige Verbreiterung des Spinrauschspektrums der entsprechenden Quantenpunkt-Konfiguration. Die Verbreiterung setzt bei unterschiedlicher Intensität ein, bedingt durch die unterschiedliche energetische Verstimmung zwischen Resonanz und Abfragelaser. Weiterhin gibt das Modell den Übergang von einer dominierenden Konfiguration zu einer anderen mit steigender Intensität wieder. In unterschiedlichen Regimen tragen die jeweiligen Konfigurationen dominant zum Gesamt-Spinrauschspektrum bei. Hierdurch wird im Wesentlichen eine bestimmende Linienbreite experimentell abgefragt.

Im Folgenden soll mithilfe des vorgestellten Modells die Energieabhängigkeit der integrierten Spinrauschleistung aus Abschnitt 5.2.1 untersucht werden. Die spektrale Form der Spinrauschleistung in Abhängigkeit der Energie des Abfragelasers lässt sich aus dem Modell ableiten. Abbildung 5.8 zeigt schematisch die Vorgehensweise. Auf der linken Seite in Abb. 5.8 ist die integrierte und normierte Spinrauschleistung in Abhängigkeit der Photonenenergie dargestellt, wie sie das Modell ergibt. Rechts erläutert eine Skizze den betrachteten Fall in Hinblick auf berücksichtigte lokale Störstellen und die Abfrageintensität. Fall a) zeigt die Form bei einer einzelnen Quantenpunkt-Resonanz mit der tatsächlich im Experiment verwendeten Abfrageintensität. Die spektrale Linienform entspricht der theoretisch erwarteten Schmetterlingsform. Die energetische Position des Abfragelasers definiert in allen Szenarien die Null. Die Position der Quantenpunkt-Resonanz(en) entspricht den Werten der Verstimmung zum Laser, wie sie sich aus der Anpassung des Modells an die experimentellen Daten ergeben. In b) wird die Ladungsfluktuation berücksichtigt und die Kurve beschreibt die Energieabhängigkeit mit den Parametern aus der Anpassung an die Intensitätsabhängigkeit. Szenario c) zeigt denselben Fall unter Annahme


Abbildung 5.8: Modellierte Energieabhängigkeit der Spinrauschleistung in verschiedenen Szenarien: (a) ohne verschiedene Ladungskonfigurationen, (b) mit drei Ladungskonfigurationen, (c) mit erhöhter Abfrageintensität im Vergleich zu b) und (d) mit zusätzlichen lokalen Störstellen in der weiteren Quantenpunkt-Umgebung.

einer um den Faktor 10 größeren Abfrageintensität. Die leistungsabhängige Verbreiterung entspricht etwa der experimentell ermittelten spektralen Form. Einen anderen Erklärungsansatz liefert in d) die Berücksichtigung zusätzlicher lokaler Störstellen in der weiteren Umgebung des Quantenpunktes. Eine Anpassung mit einem Modell, das um diese Störstellen erweitert ist, ist aufgrund der Vielzahl freier Parameter kaum möglich. Daher werden für eine erste qualitative Beschreibung dieses Effektes die drei ursprünglichen Resonanzen jeweils mit einer Verteilung angenommen. Diese Verteilung ergibt sich aus der schwachen Verschiebung der drei Resonanzen durch weiter entfernte Ladungsträger [113]. Sie wird im Modell mit jeweils zehn Gauß-verteilten Seitenbändern der Resonanzen berücksichtigt. Es ist zu beachten, dass Anzahl und Breite der Verteilung hier willkürlich gewählt sind. Eine solche Verteilung von Ladungskonfigurationen würde für die modellierte Intensitätsabhängigkeit zu einem Verblassen der wesentlichen Übergänge der dominanten Resonanzen führen. Insgesamt zeigt diese einfache Überlegung zusätzlicher Verbreiterungsmechanismen der Quantenpunkt-Resonanzen eine gute Übereinstimmung mit der tatsächlichen spektralen Form aus Abb. 5.3.

Eine detailliertere Auflösung der spektralen Linienform ist dadurch limitiert, dass eine kleine Schrittweite eine erhöhte Abfrageintensität benötigt, denn durch die Abhängigkeit der Spinrauschleistung mit der Abfragelaserleistung skaliert ebenso die Integrationszeit eines einzelnen Spektrums mit der Intensität. Diese minimal nötige Intensität verursacht schon ein Ausbleichen der Resonanzen. Eine weitere Messung der Abhängigkeit der Spinrauschleistung von der Energie des Abfragelasers mit einer kleineren Schrittweite liefert Hinweise für eine spektrale Form, die sich aus mehreren Resonanzen zusammensetzt. Abbildung 5.9 zeigt zwei Messreihen der integrierten Spinrauschleistung an einem anderen geladenen Quantenpunkt über einen kleinen Bereich der Quantenpunkt-Photolumineszenz mit unterschiedlicher Schrittweite. Die Intensität des Abfragelasers ist bei diesen Messungen knapp zwei Größenordnungen geringer im Vergleich zu der Messung in Abb. 5.3. Beide Messungen zeigen eine qualitativ ähnliche spektrale Form. Für eine exakte Auflösung der einzelnen Schmetterlingsformen reicht diese Schrittweite und Abfrageintensität aber noch nicht aus. Mögliche Ansätze zur verbesserten Detektion des Spinrauschens finden sich in Abschnitt 6.



Abbildung 5.9: Zwei weitere Messreihen zur Energieabhängigkeit der integrierten Spinrauschleistung (blau, grün) an einem einzelnen geladenen Quantenpunkt mit kleiner Schrittweite und einer Abfrageintensität von 0,02 μ W/ μ m². Diese Messungen liefern einen Hinweis auf die Zusammensetzung der spektralen Form aus mehreren Resonanzen.

5.2.3 Abhängigkeit vom longitudinalen Magnetfeld

In diesem Abschnitt wird der Einfluss des externen longitudinalen Feldes auf den untersuchten einzelnen Lochspin im Kernspinbad untersucht. Gemäß der Theorie in Abschnitt 2.2.2 erwartet man einen erheblichen Einfluss auf die T_1 -Spinlebenszeit. Abbildung 5.10 zeigt beispielhaft drei Spektren mit unterschiedlich starkem longitudinalen Magnetfeld. Zur Differenzbildung wird wiederum ein starkes transversales Magnetfeld $B_u = 27$ mT genutzt. Die Spektren in a) und b) sind bei einer Abfrageintensität von 0,7 $\mu W/\mu m^2$ und einer Detektorbandbreite von 1,8 MHz gemessen. Das Spektrum ohne externes Magnetfeld (vgl. Abb. 5.10 c)) ist mit einer anderen Messmethode aufgenommen. Details zu dieser Verarbeitungsform folgen in Abschnitt 5.2.4. Die Detektorbandbreite beträgt hier 25 MHz und die Abfrageintensität 25 μ W/ μ m². Insgesamt zeigt sich, dass in guter Näherung eine Lorentz-Anpassung die experimentellen Daten wiedergibt und somit im Weiteren für die Auswertung der T_1 -Spinlebenszeit verwendet wird.

Der Zusammenhang der Relaxationsrate Γ_1 bzw. der Spinlebenszeit T_1 mit dem externen longitudinalen Magnetfeld B_z ist in Abb. 5.11 zusammengefasst. Die untersuchte Magnetfeldabhängigkeit erstreckt sich über einen Bereich kleiner externer Magnetfelder von 0 bis 31 mT. Abbildung 5.11 zeigt die direkten Messdaten (schwarz). Aus dem vorangegangenen Abschnitt ist der Einfluss der Abfrageintensität auf die gemessene T_1 -Spinlebenszeit bekannt. Die Verbreiterung der Messungen bei nicht-verschwindender Laserintensität muss in der Auswertung der Magnetfeldabhängigkeit berücksichtigt werden. Hierzu ist das experimentell bestimmte Γ_1 beim höchsten Magnetfeld $B_z = 31$ mT zusätzlich mit der niedrigsten Laserintensität dargestellt (blau). Anhand der in Abschnitt 5.2.2 erläuterten Ergebnisse wird klar, dass dieser Wert ebenfalls nur eine obere Grenze der Relaxationsrate bzw. ein unteres Limit der Spinlebenszeit darstellt.



Abbildung 5.10: Spinrauschspektrum bei hohem (a), mittlerem (b) und niedrigem (c) externen longitudinalen Magnetfeld B_z (links). Alle Spektren zeigen den Beitrag der T_1 -Zeit. Das Spektrum in a) und b) ist mit einer Detektorbandbreite von 1,8 MHz und einer Abfrageintensität von 0,7 μ W/ μ m² gemessen. Spektrum c) ist mit einer anderen Methode (vgl. Abschnitt 5.2.4), einer Detektorbandbreite von 25 MHz und einer Abfrageintensität von 25 μ W/ μ m² gemessen.

Alle weiteren Messwerte bei kleinerem Magnetfeld sind mit der Differenz dieser beiden Messpunkte bei $B_z = 31$ mT korrigiert (rote Punkte). Der Verlauf zeigt eine starke Zunahme ohne Sättigung der



Abbildung 5.11: Spinrelaxationsrate Γ_1 bzw. Spinlebenszeit T_1 in Abhängigkeit vom externen longitudinalen Magnetfeld B_z . Die experimentellen Daten (schwarz) sind mit der Messung bei niedriger Intensität und hohem Magnetfeld (blau) unter Berücksichtigung des Intensitätseinflusses korrigiert (rote Punkte). Eine Anpassung (rote Kurve) der Werte < 31 mT ergibt eine gute Übereinstimmung mit einem Zusammenhang $B^{-3/2}$.

Spinlebenszeit um vier Größenordnungen im untersuchten Magnetfeldbereich bis 31 mT. Der Wert bei $B_z = 0$ mT ist mit höherer Leistung gemessen, um das schlechte Signal-zu-Rausch-Verhältnisse durch das stark verbreiterte Spektrum zu kompensieren. Die beschriebene Korrektur zu niedriger Leistung wirkt sich aber insbesondere bei den niedrigen Magnetfeldern deutlich geringer aus, da in diesem Fall die Rauschspektren wesentlich durch die Hyperfeinwechselwirkung verbreitert sind.

Eine Anpassung der Werte < 31 mT mit einem Potenz-Gesetz $\Gamma_1 \propto B_z^{-\alpha}$ spiegelt gut den Verlauf der Abhängigkeit vom externen Magnetfeld wider. Der Exponent ergibt sich zu $\alpha = 3/2^{+0.08}_{-0.04}$. Die Ursache für diesen Zusammenhang bei niedrigen Magnetfeldern ist bisher ungeklärt. Bei starken Magnetfeldern B_z im Bereich einiger Tesla nimmt die Spinlebenszeit wieder ab. Durch die steigende Phononen-Zustandsdichte wird die Rate der Phononen-assistierten Streuung zwischen Zeeman-Niveaus effizienter [39]. Über den genauen Zusammenhang im Bereich kleiner Magnetfelder, wie sie in dieser Arbeit verwendet werden, herrscht noch Uneinigkeit. So sagen Berechnungen zum einen eine vernachlässigbare Abhängigkeit vorher, sofern nur Phononen-Prozesse für Löcher berücksichtigt werden [87]. Experimentelle Arbeiten, die diese Annahme zu bestätigen scheinen [1] nutzen Quantenpunkte mit einer deutlich geringeren Leichtloch-Beimischung als in dem hier vorgestellten Fall. Andere Berechnungen erwarten eine besonders starke Abhängigkeit der Lochspinlebenszeit vom Magnetfeld unter Hinzunahme der Quadrupol-Kopplung mit $\Gamma_1 \propto e^{-B}$ [85]. Weitere Experimente zeigen eine Zunahme der T_1 -Spinlebenszeit mit steigendem Magnetfeld um einen Faktor 2,5 [41]. Wiederum andere experimentelle Arbeiten sehen einen Anstieg der Spinlebenszeit um eine Größenordnung mit einer anschließenden Sättigung [50]. Der hier gezeigte Verlauf mit $\Gamma_1 \propto B^{-3/2}$ liefert einen Beitrag zum Verständnis des Zentral-Spin-Problems auf experimenteller Seite und erfordert weitere theoretische Untersuchungen.

Eine weitere Messung zur Abhängigkeit der T_1 -Zeit vom longitudinalen Magnetfeld ist in Abbildung 5.12 gezeigt. Hierbei wird keine Korrektur der Laserintensität vorgenommen, da es hier primär um eine Abschätzung der Stärke des Kernmagnetfeldes geht und nicht um die exakten Werte der Spinlebenszeit. Durch die fehlende Korrektur deuten die experimentelle Daten im Vergleich zur vorangegangen Messung (vgl. Abb. 5.11) auf eine Sättigung für höhere Magnetfelder hin. Dieser Trend entspricht dem Verlauf der Rohdaten in Abb. 5.11. Dies bestätigt erneut die Notwendigkeit einer Einberechnung des Einflusses durch die Abfrageleistung zur Extraktion des tatsächlichen Magnetfeld-Verhaltens. Damit stellt die Abschätzung des effektiven Kernmagnetfeldes hier nur eine untere Grenze dar. Wie in [33] wird



Abbildung 5.12: T_1 -Spinlebenszeit in Abhängigkeit von B_z (ohne Korrektur der Restabsorption) zur experimentellen Abschätzung einer unteren Grenze des Kernmagnetfeldes B_N^h gemäß [33].

zur Anpassung der Breite der Verteilung eine Lorentz-Kurve (rot) verwendet. Diese ergibt eine volle Halbwertsbreite von etwa 5 mT. Dieser Wert ist in sehr guter Übereinstimmung mit dem gemessenen und berechneten Wert aus [33]. Weiterhin zeigt sich eine Konsistenz mit der T_2^* -Zeit der Messung am Quantenpunkt-Ensemble sowie deren Magnetfeldabhängigkeit und bestätigt die Abfrage eines lokalisierten Lochspins unter dem Einfluss der Hyperfeinwechselwirkung im Quantenpunkt.

5.2.4 Korrelation höherer Ordnung

In diesem Abschnitt wird eine Methode zur näheren Auswertung der Theorie der verschiedenen Ladungskonfigurationen vorgestellt. Diese wird anhand von Simulationen diskutiert. Bei dieser Methode wird zunächst auf die Fourier-Transformation und das Mitteln der Daten verzichtet. Die Zeitdaten der Digitalisiererkarte werden direkt mit einer entsprechenden Abtastrate (hier: $25 \cdot 10^6$ /s) auf die Festplatten eines RAID-Systems geschrieben.³ Durch diese Methode fallen erhebliche Mengen von Daten an.⁴ Sie ermöglicht aber eine Korrelationsauswertung einzelner Pakete von Fourier-Transformationen. Mithilfe eines sogenannten Bispektrums (C4-Korrelation) lässt sich die Korrelation verschiedener Frequenzen im Spinrauschspektrum auswerten [159, 160]. Die bisher beschriebene Methode der Spinrauschspektroskopie verarbeitet die Korrelation zweiter Ordnung (C2). Es ergibt sich eine negative C4-Korrelation, sofern die entsprechenden Frequenzen nicht in denselben Zeitpaketen auftreten, während die C4-Korrelation positiv ist, falls die Frequenzen in denselben Paketen auftreten. Für unkorrelierte Signale und dementsprechend auch für das Hintergrundrauschen wird das C4-Spektrum Null. Mathematisch lässt sich das Bispektrum beschreiben gemäß [159]:

$$C_4(\nu_1, \nu_2) = \left\langle |a(\nu_1)|^2 \left| a(\nu_2)^2 \right| \right\rangle - \left\langle |a(\nu_1)|^2 \right\rangle \left\langle \left| a(\nu_2)^2 \right| \right\rangle, \\ \nu_1 \neq \nu_2.$$
(5.9)

³Das in Abschnitt 5.2.3 gezeigte Spektrum bei $B_z = 0$ wird aus diesen Zeitdaten über eine nachträgliche Fourier-Transformation und einen Mittelungsprozess ausgewertet.

⁴Etwa 50 MB/s, d.h. bei einer Messzeit von 20 Stunden ca. 4 TB.

Hierbei bezeichnet $a(\nu)$ die Rauschamplitude zur entsprechenden Frequenz ν .

Spinrauschmessungen, die bei fester Laserenergie mehrere Ladungskonfigurationen abfragen, sollten im zeitlichen Mittel eine Zusammensetzung mehrerer Lorentz-Kurven zeigen. Je nach energetischer Position und Abfrageintensität kann die Ausprägung der einzelnen Konfigurationen unterschiedlich sein. Die Messungen in den vorangegangenen Abschnitten, die zu der Überlegung unterschiedlicher Ladungskonfigurationen führten, zeigen in ihrer spektralen Form keinen Hinweis auf verschiedene Lorentz-Beiträge. Dies ist darauf zurückzuführen, dass jeweils eine Konfiguration das Spektrum über weite Intensitäts-Bereiche dominiert (vgl. Abschnitt 5.2.2). Andere Messungen an einzelnen Quantenpunkten zeigen aber deutlich, dass sich das Spektrum aus mindestens zwei relevanten Lorentz-Kurven zusammensetzt. Abbildung 5.13 zeigt beispielhaft so ein Spektrum mit einer Anpassung aus zwei Lorentz-Funktionen.⁵ Hieraus ergeben sich zwei unterschiedliche Spinlebenszeiten, die einer energetisch näheren und damit kürzeren (weil stärker gestörten) und einer weiter entfernten und damit längeren Spinlebenszeit zugeordnet werden können.

Anhand dieser Befunde wird eine Simulation entwickelt, welche die Spinorientierung mit zwei charakteristischen Zeiten ($T_1^a = 1 \ \mu s$ und $T_1^b = 500 \ ns$), die zu den jeweiligen zufälligen Ladungskonfigurationen gehören, beschreibt. Weiterhin bestimmt eine dritte Zeitkonstante den Wechsel des Ladungszustandes mit einer exponentiellen Statistik, die mit 1 ms wesentlich länger ist als die angenommenen Spinlebenszeiten. Die Simulation liefert nun die zeitliche Entwicklung des Spinzustandes. In Abbildung 5.14 zeigt die Einfügung schematisch, wie der zeitliche Verlauf der vorliegenden Spinlebenszeit ist.

⁵Die Gesamtanpassung enthält weiterhin eine Gauß-Funktion im negativen Bereich für das Differenzspektrum. Diese reicht aufgrund des geringen Signalzu-Rausch-Verhältnisses nicht für eine systematische Analyse.



Abbildung 5.13: Spinrauschspektrum eines Einzelspins zeigt eine gute Anpassung mit zwei Lorentz-Funktionen⁵ (rot) als Hinweis auf zwei Ladungskonfigurationszustände (grün, blau).

Hieraus ergibt sich als gewöhnliches Spinrauschspektrum eine Form, wie schon in Abb. 5.13 experimentell gemessen, die sich aus zwei Lorentz-Beiträgen mit den jeweiligen Spinlebenszeiten zusammensetzt.

Ein kritischer Parameter in der Auswertung der C4-Korrelation ist die Länge der FFT, d.h. die Anzahl der Stützpunkte einer Fourier-Transformation. Die gewählte Anzahl der FFT-Punkte bestimmt neben der Auflösung des Spektrums auch das Zeitfenster, in welchem korrelierte oder antikorrelierte Prozesse auftreten können. So ist ein genügend kleines FFT-Fenster nötig (vgl. Einfügung in Abb. 5.14), um nur genau eine Ladungskonfiguration im Spektrum zu enthalten. Hiermit ist es dann möglich die Korrelation der unterschiedlichen Konfigurationen, die dann jeweils ausschließlich in einem FFT-



Abbildung 5.14: Simuliertes Spinrauschspektrum mit zwei charakteristischen Spinlebenszeiten T_1^a und T_1^b . (Einfügung) Schema des zeitlichen Verlaufes der vorliegenden Spinlebenszeit.

Fenster vorhanden sind, zu messen. Wählt man hingegen ein FFT-Fenster von der Größe, dass beide Konfigurationen enthalten sind, so zeigt sich kein Befund in der Korrelation. Für die Auswertung der Simulation ergibt sich die Wahl der FFT-Größe aus der simulierten Abtastrate $(5 \cdot 10^6/\text{s})$ und der gewählten charakteristischen Zeit der Konfigurationswechsel. Unter Berücksichtigung dieser Parameter ergibt sich ein C4-Korrelations-Spektrum mit einer FFT-Größe von 512 wie in Abb. 5.15 gezeigt. In Abbildung 5.15 lässt sich ein korrelierter Bereich (rot) und ein deutlich antikorrelierter Bereich (blau) erkennen. Frequenzen unterhalb von etwa 100 kHz, die etwa der Breite der schmaleren Kurve entsprechen (318/2 = 159 kHz), sind in beiden Spektren vorhanden. Die Amplitude im Bereich dieser Frequenzen unterscheidet sich für das breite und das schmale



Abbildung 5.15: C4-Korrelationsspektrum der Simulationsdaten zeigt Korrelation (rot) für niedrige Frequenzen und Antikorrelation (blau) für hohe Frequenzen mit niedrigen Frequenzen. Eine verschwindende Korrelation ist grau dargestellt.

Spektrum, aber beide Spektren weisen einen Wert größer Null in diesem Bereich auf. Frequenzen, die deutlich oberhalb dieses Wertes liegen, sind hingegen im Wesentlichen in der breiteren Kurve enthalten. Demzufolge sind diese höheren Frequenzen mit den ausschließlich niedrigeren Frequenzen der schmalen Kurve antikorreliert. Im C4-Spektrum der gemessenen experimentellen Daten⁶ (Abb. 5.16) kann bisher keine eindeutige Signatur von Korrelationen und Antikorrelationen den beiden Lorentz-Kurven im Spinrauschspektrum (vgl. Abb. 5.13), wie für die Simulationen gezeigt, zugeordnet wer-

 $^{^6 \}rm Die$ Abfrage
intensität ist hier verringert gegenüber der Messung in Abb. 5.13 und der Detektor auf eine kleinere Bandbreite eingestellt.

den. Die Strukturen im C4-Spektrum, die für eine Auswertung der experimentellen Differenzspektren vorhanden sind, zeigen sich so auch für die reinen Hintergrundspektren und beschreiben demnach keine Spindynamik lokalisierter Löcher. In Anhang B findet sich eine



Abbildung 5.16: C4-Korrelationsspektrum der Messdaten.

Abschätzung der nötigen Integrationszeit für C4-Messungen anhand der Simulationen. Hierbei zeigt sich die Notwendigkeit einer verbesserten Detektion des Spinsignals zur Minimierung der erforderlichen Messdauer. Einige mögliche Methoden werden in Abschnitt 6 erläutert. Sofern die charakteristische Zeit der Ladungsfluktuationen schneller ist als die erwartete Zeit, sind die entsprechenden Korrelationen nicht im C4-Spektrum enthalten. Zusätzlich kann das Bilden der Differenzspektren eine Ursache dafür sein, dass die C4-Spektren der experimentellen Daten keine Korrelationen zeigen. Bisher wird ein zeitliches Mittel der Hintergrundspektren verwendet, welches für alle FFT-Pakete als Differenzspektrum genutzt wird. Eine langsame Änderung des Abfragelasers zeigt sich besonders ausgeprägt in der Korrelation höherer Ordnung [159] und kann so das C4-Spektrum signifikant verfälschen.

kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wird die Spindynamik lokalisierter Löcher in Quantenpunkten mit der Methode der Spinrauschspektroskopie untersucht. Als dominierender Mechanismus, der die Spinlebenszeit bestimmt, wird die Hyperfeinwechselwirkung mit dem Kernspinbad identifiziert. Die im Vergleich zu Elektronen verringerte Wechselwirkung spielt durch eine Mischung von Schwer- und Leichtlochzuständen durch Verspannungen im InAs-Quantenpunkt auch für Löcher eine dominante Rolle. Insbesondere im Bereich kleiner Magnetfelder, in dem Wechselwirkungen mit Phononen verschwinden, zeigt die Magnetfeldabhängigkeit der T_1 -Zeit, dass die Wechselwir-

kung mit den Kernspins durch ein externes longitudinales Magnetfeld abgeschirmt werden kann. Die Größenordnung des effektiven Kernmagnetfeldes liegt in der untersuchten Probe im Bereich 3...5 mT. Für das Ensemble wird eine typische transversale Spinlebenszeit T_2^* von 27 ns gemessen. Die T_1 -Zeit steigt für einzelne Löcher durch ein externes Feld von 150 ns auf 180 µs. Die Abhängigkeit dieser Zeit vom niedrigen Magnetfeld B_z im Kontext des Zentral-Spin-Problems wird zu $T_1 \propto B^{3/2}$ unter Berücksichtigung störender Restabsorption des Abfragelasers bestimmt.

Trotz des im Prinzip störungsfreien Charakters der Spinrauschspektroskopie, welche die intrinsischen Spinfluktuationen im thermodynamischen Gleichgewicht über die Faraday-Rotation auf den nichtresonanten Abfragelaser überträgt, kann ein verbleibender Einfluss durch Restabsorption gezeigt werden. Dies gilt sowohl für die Messungen an einem Ensemble von etwa 50 Quantenpunkten als auch für die Messungen am absoluten Limit einer Einzelspin-Detektion. Sowohl für das Ensemble als auch die Einzelspin-Messung wird ein numerisches Modell vorgestellt, das die Blockade und Verbreiterung durch Absorption sowie die Ladungsfluktuationen beschreibt und die Intensitätsabhängigkeit der T_1 -Zeit sehr gut wiedergibt. Es zeigt sich im Wesentlichen eine Dynamik mit exponentiellem Verlauf für einzelne Löcher. Dadurch werden die Ergebnisse aus [50] falsifiziert und eine Abweichung von dieser Dynamik kann auf den störenden Einfluss des Abfragelasers zurückgeführt werden. Mit diesem Befund kann die zukünftige experimentelle und theoretische Beschreibung des Zentral-Spin-Problems weiter vorangetrieben werden.

Schließlich wird eine weitere Messmethode der intrinsischen Spinfluktuationen zur Auswertung der Korrelationen höherer Ordnung beschrieben. Simulationen der Spindynamik unter Berücksichtigung von Ladungsfluktuationen in der Umgebung des Quantenpunktes zeigen signifikante Korrelationen und Antikorrelationen im C4-Spektrum. Im Experiment ergeben sich die Ladungsfluktuationen anhand der spektralen Form der Spinrauschmessungen sowie durch den Verlauf der Abhängigkeit von der Abfrageintensität. Für eine systematische Auswertung der experimentellen Daten zur Korrelation höherer Ordnung sind jedoch verbesserte Detektionsschemata zur Verringerung der nötigen Integrationszeiten erforderlich.

Insgesamt zeigen die hier vorgestellten Messungen, dass zur Bestimmung der intrinsischen Spinlebenszeit eine sehr geringe Abfrageintensität nötig ist. Die Signalstärke des Spinrauschens skaliert mit der Intensität des Abfragelasers, wodurch sich die Integrationszeit empfindlich mit einer verringerten Leistung verändert. Zukünftig kann zur Verbesserung des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses das Schema der interferometrischen Verstärkung angewendet werden [161]. Erste Messungen zur Funktionsweise an einem einfachen Beispielsvstem mit Rubidiumgas belegen die Verbesserung des Signals mit einer Homodyn-Detektion [162]. So ist es möglich, die geringe Intensität des Abfragelasers mit einem starken Lokaloszillator phasenstabilisiert zu überlagern und damit die detektierbare optische Leistung, welche Polarisationsänderungen durch Spinfluktuationen enthält, zu verstärken. Eine weitere Möglichkeit zur effizienteren Detektion geringer Abfrageintensitäten ist die Spinrauschspektroskopie auf dem Level einzelner Photonen. Hierzu kann ein Hanbury Brown-Twiss-Aufbau, der gewöhnlich zum Nachweis von Einzelphotonenquellen genutzt wird, mit einem polarisierenden Strahlteiler angepasst werden. Ein weiterer zukünftiger Schritt zur Verbesserung der Qualität schwacher Signale von einzelnen Quantenpunkten ist die Kombination des Prinzips der Spinrauschspektroskopie mit gequetschtem Licht. So kann die Verwendung von gequetschtem Licht für den Abfragelaser das Signal-zu-Rausch-Verhältnis verbessern [163].

In Zukunft soll die gezeigte B_z -Abhängigkeit der T_1 -Zeit eines einzelnen lokalisierten Loches weiter untersucht werden. Mit der Integration eines stärkeren Magnetfeldes in den Versuchsaufbau kann hiermit dann der Verlauf im externen Magnetfeld bis in den Bereich, in dem die Phononen-assistierten Streuungen dominieren, untersucht werden. Insbesondere liegt dabei der Übergangsbereich vor dem Sättigen und Abfall der longitudinalen Spinlebenszeit im Fokus.

Die Spinlebenszeit lokalisierter Ladungsträger kann ohne den Einfluss der Ladungsträgerfluktuationen gemessen werden, sofern Quantenpunkte mit einer Schottky-Diodenstruktur verwendet werden (vgl. Abb. 6.1). Hierbei lässt sich sich die genaue Resonanz über ein



Abbildung 6.1: Aufbau einer Probe mit Quantenpunkten in einer Schottky-Diode. Eine externe Spannung führt über ein Verbiegen der Bandstruktur zu einem deterministischen Laden des Quantenpunktes.

äußeres elektrisches Feld verschieben. Zusätzlich kann so auch der Ladungszustand und die Anzahl der Ladungsträger kontrolliert werden. Durch das elektrische Feld ist insbesondere ein Abfließen freier Ladungsträger und damit eine erhebliche Unterdrückung und eine Einstellbarkeit der Ladungsfluktuationen zu erwarten. Erste Messungen an einem solchen Probentyp zeigen das spannungsabhängige Verhalten der Photolumineszenz mit den Plateaus der Ladungszustände des Quantenpunktes und der Stark-Verschiebung der Resonanzen in Abb. 6.2.



Abbildung 6.2: Photolumineszenz-Karte eines Quantenpunktes in Abhängigkeit der externen Spannung. Hierbei zeigen sich die verschiedenen Ladungszustände als Plateaus mit einer Steigung, die durch die Stark-Verschiebung hervorgerufen wird.

In Zukunft soll weiterhin eine genauere Analyse zur Verteilung und Dynamik der effektiven Kernmagnetfelder folgen. Die breite Verteilung der T_2^* -Zeit, wie sie für das Quantenpunkt-Ensemble gemessen wird, setzt sich aus einzelnen Beiträgen des langsam fluktuierenden Kernmagnetfeldes zusammen. Für die Messung am einzelnen Quantenpunkt ist dies darin begründet, dass die Integrationszeit der Messung erheblich größer ist als die Zeit, in der das Kernmagnetfeld als statisch angenommen werden kann. Mit der Aufnahme der reinen Zeitdaten ohne Mittelungsprozesse kann es nun möglich werden, jedem Kernmagnetfeld eine einzelne schmale Kurve zuzuordnen. Diese Kurve verschiebt sich bei Einzel-Quantenpunkten mit der Zeit spektral entsprechend des effektiven Kernmagnetfeldes. Hiermit sollte direkt die Zeitdynamik und Verteilung des Kernmagnetfeldes aufgelöst werden können.

anhang A

Probe

Die untersuchten Quantenpunkte sind in einem Bragg-Resonator eingebettet. Die Charakteristik des Stoppbandes ist zusammen mit der Photolumineszenz in Abb. A.1 gezeigt. Anhand der Seiten-Photolumineszenz (vgl. Abb. A.2) lässt sich der Gradient der Quantenpunkte und die Breite der Quantenpunkt-Verteilung im Hochdichte-Bereich, die deutlich über die Resonatormode hinausgeht, erkennen.



Abbildung A.1: Photolumineszenzspektrum entlang des Resonators und Reflektivitätsmessung (aus [164]).





anhang B

Abschätzung zur Integrationszeit höherer Korrelationen

Wie in Abschnitt 5.2.4 erläutert, erfordert die Messung höherer Korrelationen eine deutlich längere Integrationszeit. Insbesondere hierfür gewinnen Detektionsmethoden wie die interferometrische Verstärkung an Bedeutung [161,162]. Ein besseres Signal-zu-Rausch-Verhältnis (SRV) kann die benötigte Integrationszeit erheblich verkürzen. Im Folgenden wird eine Abschätzung gezeigt, die das SRV vom Quadrat der Fourier-Transformierten mit dem SRV der C4-Korrelation vergleicht. Als Grundlage hierfür dienen die in Abschnitt 5.2.4 eingeführten Simulationen. Zusätzlich wird ein weißes, frequenzunabhängiges Rauschen in unterschiedlicher Stärke zum Spinsignal addiert. Ein verstärkter Rauschuntergrund bewirkt ein Ausbleichen der C4-Signaturen (vgl. Abb. 5.15) bis schließlich die Charakteristik bei konstanter Messdauer nicht mehr aufgelöst werden kann (vgl. Abb. B.1). Das SRV im C4-Spektrum ergibt sich aus der Amplitude bei



Abbildung B.1: C4-Korrelation von Simulationsdaten mit steigendem Rauschuntergrund (v.l.n.r.).

einem Schnitt niedrigster Frequenz im Verhältnis zur Rauschamplitude im Bereich ohne Signatur (große Frequenzen). Sowohl für das SRV der Fourier-Transformierten als auch der C4-Korrelation ergibt sich ein Zusammenhang proportional zur Wurzel der Integrationszeit. Die Integrationszeit wird bei dieser Abschätzung in Form der Anzahl der Simulationsdateien berücksichtigt. Die Verläufe für die Fourier-Transformierte und die C4-Korrelation ergeben einen Skalenfaktor von etwa 25 im SRV (vgl. Abb. B.2). Dementsprechend steigert sich die nötige Integrationsdauer etwa um das Quadrat dieses Wertes für ein vergleichbares SRV der C4-Korrelation zu den gewöhnlichen Spinrauschspektren.



Abbildung B.2: Signal-zu-Rausch-Verhältnis von FFT² und C4-Korrelation mit wurzelförmiger Anpassung in Abhängigkeit der Integrationszeit.

Literaturverzeichnis

- GERARDOT, B. D.; BRUNNER, D.; DALGARNO, P. A.; OH-BERG, P.; SEIDL, S.; KRONER, M.; KARRAI, K.; STOLTZ, N.; PETROFF, P. M.; WARBURTON, R. J.: Optical pumping of a single hole spin in a quantum dot. In: *Nature* 451 (2008), Nr. 7177, S. 441
- [2] KROUTVAR, M.; DUCOMMUN, Y.; HEISS, D.; BICHLER, M. ; SCHUH, D.; ABSTREITER, G.; FINLEY, J. J.: Optically programmable electron spin memory using semiconductor quantum dots. In: *Nature* 432 (2004), Nr. 7013, S. 81–84
- [3] WARBURTON, R. J.: Single spins in self-assembled quantum dots. In: *Nature Materials* 12 (2013), Nr. 6, S. 483–493
- [4] ATKINSON, P.; KIRAVITTAYA, S.; BENYOUCEF, M.; RASTEL-

LI, A. ; SCHMIDT, O. G.: Site-controlled growth and luminescence of InAs quantum dots using in situ Ga-assisted deoxidation of patterned substrates. In: *Applied Physics Letters* 93 (2008), Nr. 10, S. 101908

- [5] SCHAIBLEY, J. R. ; BURGERS, A. P. ; MCCRACKEN, G. A. ; DUAN, L.-M. ; BERMAN, P. R. ; STEEL, D. G. ; BRACKER, A. S. ; GAMMON, D. ; SHAM, L. J.: Demonstration of Quantum Entanglement between a Single Electron Spin Confined to an InAs Quantum Dot and a Photon. In: *Physical Review Letters* 110 (2013), Nr. 16, S. 167401
- [6] ZWILLER, V. ; BLOM, H. ; JONSSON, P. ; PANEV, N. ; JEP-PESEN, S. ; TSEGAYE, T. ; GOOBAR, E. ; PISTOL, M.-E. ; SAMUELSON, L. ; BJÖRK, G.: Single quantum dots emit single photons at a time: Antibunching experiments. In: Applied Physics Letters 78 (2001), Nr. 17, S. 2476
- [7] SHIELDS, A. J.: Semiconductor quantum light sources. In: *Nature Photonics* 1 (2007), Nr. 4, S. 215–223
- [8] HU, C. ; YOUNG, A. ; O'BRIEN, J. ; MUNRO, W. ; RARITY, J.: Giant optical Faraday rotation induced by a single-electron spin in a quantum dot: Applications to entangling remote spins via a single photon. In: *Physical Review B* 78 (2008), Nr. 8, S. 85307
- [9] GAO, W. B. ; FALLAHI, P. ; TOGAN, E. ; MIGUEL-SANCHEZ, J. ; IMAMOGLU, A.: Observation of entanglement between a quantum dot spin and a single photon. In: *Nature* 491 (2012), Nr. 7424, S. 426–430
- [10] YOKOSHI, N. ; IMAMURA, H. ; KOSAKA, H.: Creation of entangled spin qubits between distant quantum dots. In: *Physical Review B* 88 (2013), Nr. 15, S. 155321

- [11] DELTEIL, A.; ZHE, S.; GAO, W. B.; TOGAN, E.; FAELT, S.; IMAMOGLU, A.: Generation of heralded entanglement between distant hole spins. (2015). – arXiv:1507.00465
- BENSON, O. ; SANTORI, C. ; PELTON, M. ; YAMAMOTO, Y.: Regulated and Entangled Photons from a Single Quantum Dot. In: *Physical Review Letters* 84 (2000), Nr. 11, S. 2513– 2516
- [13] DIVINCENZO, D. P.: The Physical Implementation of Quantum Computation. In: Fortschritte der Physik 48 (2000), Nr. 9-11, S. 771-783
- [14] DIVINCENZO, D. P.; LOSS, D.: Quantum information is physical. In: Superlattices and Microstructures 23 (1998), Nr. 3–4, S. 419–432
- [15] GODDEN, T.; QUILTER, J.; RAMSAY, A. J.; WU, Y.; BRERE-TON, P.; LUXMOORE, I.; PUEBLA, J.; FOX, A.; SKOLNICK, M. S.: Fast preparation of a single-hole spin in an InAs/GaAs quantum dot in a Voigt-geometry magnetic field. In: *Physical Review B* 85 (2012), Nr. 15, S. 155310
- [16] ATATÜRE, M. ; DREISER, J. ; BADOLATO, A. ; HÖGELE, A. ; KARRAI, K. ; IMAMOGLU, A.: Quantum-dot spin-state preparation with near-unity fidelity. In: *Science* 312 (2006), Nr. 5773, S. 551
- XU, X.; WU, Y.; SUN, B.; HUANG, Q.; CHENG, J.; STEEL,
 D. G.; BRACKER, A. S.; GAMMON, D.; EMARY, C.; SHAM,
 L. J.: Fast Spin State Initialization in a Singly Charged InAs-GaAs Quantum Dot by Optical Cooling. In: *Physical Review Letters* 99 (2007), Nr. 9, S. 097401
- [18] BRUNNER, D.; GERARDOT, B. D.; DALGARNO, P. A.; WÜST, G.; KARRAI, K.; STOLTZ, N. G.; PETROFF, P. M.; WAR-

BURTON, R. J.: A coherent single-hole spin in a semiconductor. In: *Science* 325 (2009), Nr. 5936, S. 70–2

- [19] GODDEN, T. ; QUILTER, J. ; RAMSAY, A. J. ; WU, Y. ; BRE-RETON, P. ; BOYLE, S. ; LUXMOORE, I. ; PUEBLA-NUNEZ, J. ; FOX, A. ; SKOLNICK, M. S.: Coherent Optical Control of the Spin of a Single Hole in an InAs/GaAs Quantum Dot. In: *Physical Review Letters* 108 (2012), Nr. 1, S. 17402
- [20] DE GREVE, K. ; MCMAHON, P. L. ; PRESS, D. ; LADD, T. D. ; BISPING, D. ; SCHNEIDER, C. ; KAMP, M. ; WORSCHECH, L. ; HÖFLING, S. ; FORCHEL, A. ; YAMAMOTO, Y.: Ultrafast coherent control and suppressed nuclear feedback of a single quantum dot hole qubit. In: *Nature Physics* 7 (2011), Nr. 11, S. 872–878
- [21] PRESS, D. ; LADD, T. D. ; ZHANG, B. ; YAMAMOTO, Y.: Complete quantum control of a single quantum dot spin using ultrafast optical pulses. In: *Nature* 456 (2008), Nr. 7219, S. 218–221
- [22] GREILICH, A.; ECONOMOU, S. E.; SPATZEK, S.; YAKOVLEV, D. R.; REUTER, D.; WIECK, A. D.; REINECKE, T. L.; BAYER, M.: Ultrafast optical rotations of electron spins in quantum dots. In: *Nature Physics* 5 (2009), Nr. 4, S. 262–266
- [23] GREILICH, A. ; CARTER, S. G. ; KIM, D. ; BRACKER, A. S. ; GAMMON, D.: Optical control of one and two hole spins in interacting quantum dots. In: *Nature Photonics* 5 (2011), Nr. 11, S. 702–708
- [24] IMAMOGLU, A.; AWSCHALOM, D. D.; BURKARD, G.; DIVIN-CENZO, D. P.; LOSS, D.; SHERWIN, M.; SMALL, A.: Quantum Information Processing Using Quantum Dot Spins and Cavity QED. In: *Phys. Rev. Lett.* 83 (1999), Nr. 20, S. 4204–4207

- [25] ATATÜRE, M. ; DREISER, J. ; BADOLATO, A. ; IMAMOGLU, A.: Observation of Faraday rotation form a single confined spin. In: *Nature Phys.* 3 (2007), Nr. 101
- [26] BEREZOVSKY, J.; GYWAT, O.; MEIER, F.; BATTAGLIA, D.; PENG, X.; AWSCHALOM, D. D.: Initialization and read-out of spins in coupled core-shell quantum dots. In: *Nature Physics* 2 (2006), Nr. 12, S. 831–834
- [27] BAYER, M.: Quantum-dot spins: Happier for longer. In: Nature Physics 7 (2011), Nr. 2, S. 103–104
- [28] TESTELIN, C. ; BERNARDOT, F. ; EBLE, B. ; CHAMARRO, M.: Hole-spin dephasing time associated with hyperfine interaction in quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 79 (2009), S. 195440
- [29] URBASZEK, B.; MARIE, X.; AMAND, T.; KREBS, O.; VOISIN, P.; MALETINSKY, P.; HÖGELE, A.; IMAMOGLU, A.: Nuclear spin physics in quantum dots: An optical investigation. In: *Reviews of Modern Physics* 85 (2013), Nr. 1, S. 79–133
- [30] LATTA, C. ; SRIVASTAVA, A. ; IMAMOGLU, A.: Hyperfine Interaction-Dominated Dynamics of Nuclear Spins in Self-Assembled InGaAs Quantum Dots. In: *Physical Review Letters* 107 (2011), Nr. 16, S. 167401
- [31] MERKULOV, I. A.; EFROS, A. L.; ROSEN, M.: Electron spin relaxation by nuclei in semiconductor quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 65 (2002), Nr. 20, S. 205309
- [32] WITZEL, W. M. ; YOUNG, K. ; DAS SARMA, S.: Converting a real quantum spin bath to an effective classical noise acting on a central spin. In: *Physical Review B* 90 (2014), Nr. 11, S. 115431
- [33] EBLE, B.; TESTELIN, C.; DESFONDS, P.; BERNARDOT, F.

; BALOCCHI, A. ; AMAND, T. ; MIARD, A. ; LEMAÎTRE, A. ; MARIE, X. ; CHAMARRO, M.: Hole–Nuclear Spin Interaction in Quantum Dots. In: *Phys. Rev. Lett.* 102 (2009), Nr. 14, S. 146601

- [34] CHEKHOVICH, E. A.; GLAZOV, M. M.; KRYSA, A. B.; HOP-KINSON, M.; SENELLART, P.; LEMAÎTRE, A.; SKOLNICK, M. S.; TARTAKOVSKII, A. I.: Element-sensitive measurement of the hole-nuclear spin interaction in quantum dots. In: *Nature Physics* 9 (2012), Nr. 2, S. 74–78
- [35] KLAUSER, D. ; COISH, W. ; LOSS, D.: Nuclear spin dynamics and Zeno effect in quantum dots and defect centers. In: *Physical Review B* 78 (2008), Nr. 20, S. 205301
- [36] SCHREIBER, L. R.; BLUHM, H.: Quantum computation: Silicon comes back. In: *Nature Nanotechnology* 9 (2014), Nr. 12, S. 966–968
- [37] REILLY, D. J.; TAYLOR, J. M.; PETTA, J. R.; MARCUS, C. M.; HANSON, M. P.; GOSSARD, A. C.: Suppressing Spin Qubit Dephasing by Nuclear State Preparation. In: *Science* 321 (2008), Nr. 5890, S. 817–821
- [38] BRAUN, P.-F. ; MARIE, X. ; LOMBEZ, L. ; URBASZEK, B. ; AMAND, T. ; RENUCCI, P. ; KALEVICH, V. K. ; KAVOKIN, K. V. ; KREBS, O. ; VOISIN, P. ; MASUMOTO, Y.: Direct Observation of the Electron Spin Relaxation Induced by Nuclei in Quantum Dots. In: *Phys. Rev. Lett.* 94 (2005), S. 116601
- [39] HEISS, D. ; SCHAECK, S. ; HUEBL, H. ; BICHLER, M. ; AB-STREITER, G. ; FINLEY, J. J. ; BULAEV, D. ; LOSS, D.: Observation of extremely slow hole spin relaxation in self-assembled quantum dots. In: *Physical Review B* 76 (2007), Nr. 24, S. 241306
- BULAEV, D. ; LOSS, D.: Spin Relaxation and Decoherence of Holes in Quantum Dots. In: *Physical Review Letters* 95 (2005), Nr. 7, S. 76805
- [41] FRAS, F. ; EBLE, B. ; DESFONDS, P. ; BERNARDOT, F. ; TES-TELIN, C. ; CHAMARRO, M. ; MIARD, A. ; LEMAÎTRE, A.: Two-phonon process and hyperfine interaction limiting slow hole-spin relaxation time in InAs/GaAs quantum dots. In: *Physical Review B* 86 (2012), Nr. 4, S. 045306
- [42] WOODS, L.; REINECKE, T.; LYANDA-GELLER, Y.: Spin relaxation in quantum dots. In: *Physical Review B* 66 (2002), Nr. 16, S. 161318
- [43] WEI, H. ; GONG, M. ; GUO, G.-C. ; HE, L.: Atomistic pseudopotential theory of spin relaxation in self-assembled $In_{1-x}Ga_xAs/GaAs$ quantum dots at zero magnetic field. In: *Physical Review B* 85 (2012), Nr. 4, S. 45317
- [44] ZAPASSKII, V. S.: Spin-noise spectroscopy: from proof of principle to applications. In: Advances in Optics and Photonics 5 (2013), Nr. 2, S. 131
- [45] TAKAHASHI, Y. ; HONDA, K. ; TANAKA, N. ; TOYODA, K. ; ISHIKAWA, K. ; YABUZAKI, T.: Quantum nondemolition measurement of spin via the paramagnetic Faraday rotation. In: *Physical Review A* 60 (1999), Nr. 6, S. 4974–4979
- [46] JULSGAARD, B.; KOZHEKIN, A.; POLZIK, E. S.: Experimental long-lived entanglement of two macroscopic objects. In: *Nature* 413 (2001), Nr. 6854, S. 400–403
- [47] CHRISTENSEN, S. L.; BÉGUIN, J.-B.; BOOKJANS, E.; SØ REN-SEN, H. L.; MÜLLER, J. H.; APPEL, J.; POLZIK, E. S.: Quantum interference of a single spin excitation with a macroscopic

atomic ensemble. In: Physical Review A 89 (2014), Nr. 3, S. 033801

- [48] CROOKER, S. A.; BRANDT, J.; SANDFORT, C.; GREILICH, A. ; YAKOVLEV, D. R.; REUTER, D.; WIECK, A. D.; BAYER, M.: Spin Noise of Electrons and Holes in Self-Assembled Quantum Dots. In: *Phys. Rev. Lett.* 104 (2010), S. 036601
- [49] DAHBASHI, R. ; HÜBNER, J. ; BERSKI, F. ; WIEGAND, J. ; MARIE, X. ; PIERZ, K. ; SCHUMACHER, H. W. ; OESTREICH, M.: Measurement of heavy-hole spin dephasing in (InGa)As quantum dots. In: *Applied Physics Letters* 100 (2012), Nr. 3, S. 31906
- [50] LI, Y.; SINITSYN, N.; SMITH, D. L.; REUTER, D.; WIECK, A. D.; YAKOVLEV, D. R.; BAYER, M.; CROOKER, S.: Intrinsic Spin Fluctuations Reveal the Dynamical Response Function of Holes Coupled to Nuclear Spin Baths in (In,Ga)As Quantum Dots. In: *Physical Review Letters* 108 (2012), Nr. 18, S. 186603
- [51] DAHBASHI, R.: Spinrauschspektroskopie an Halbleiter-Quantenpunkten, Leibniz Universität Hannover, Masterarbeit, 2011
- [52] DAHBASHI, R. ; HÜBNER, J. ; BERSKI, F. ; PIERZ, K. ; OE-STREICH, M.: Optical Spin Noise of a Single Hole Spin Localized in an (InGa)As Quantum Dot. In: *Physical Review Letters* 112 (2014), Nr. 15, S. 156601
- [53] HÜBNER, J. ; BERSKI, F. ; DAHBASHI, R. ; OESTREICH, M.: The rise of spin noise spectroscopy in semiconductors: From acoustic to GHz frequencies. In: *physica status solidi* (b) 251 (2014), Nr. 9, S. 1824–1838
- [54] HÜBNER, J. ; DAHBASHI, R. ; BERSKI, F. ; WIEGAND, J. ; KUHN, H. ; LONNEMANN, J. ; OESTREICH, M.: Spin noise

spectroscopy in semiconductors: from a billion down to single spins. In: DROUHIN, Henri-Jean (Hrsg.); WEGROWE, Jean-Eric (Hrsg.); RAZEGHI, Manijeh (Hrsg.): *Spintronics VII, SPIE*, 2014, S. 91672R

- [55] OESTREICH, M. ; DAHBASHI, R. ; BERSKI, F. ; HÜBNER, J.: Spin noise spectroscopy: hole spin dynamics in semiconductor quantum dots. In: DROUHIN, Henri-Jean (Hrsg.) ; WEGROWE, Jean-Eric (Hrsg.) ; RAZEGHI, Manijeh (Hrsg.): Spintronics V, SPIE Bd. 8461, 2012, S. 846105
- [56] RASTELLI, A. ; KIRAVITTAYA, S. ; SCHMIDT, O. G.: Growth and Control of Optically Active Quantum Dots. In: MICHLER, P. (Hrsg.): Single Semiconductor Quantum Dots. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2009
- [57] O. GYWAT, H.J. KRENNER, J. B.: Spins in Optically Active Quantum Dots. WILEY-VCH Verlag, 2011
- [58] KITTEL, C.: *Einführung in die Festkörperphysik.* 13. Auflage. Oldenbourg Wissenschaftsverlag GmbH, 2002
- [59] KLINGSHIRN, C.: Semiconductor Optics. 3rd Edition. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2007
- [60] IMAMOGLU, A. ; MICHLER, P. ; MASON, M. D. ; CARSON, P. J. ; STROUSE, G. F. ; BURATTO, S. K.: Quantum correlation among photons from a single quantum dot at room temperature. In: *Nature* 406 (2000), Nr. 6799, S. 968–970
- [61] VURGAFTMAN, I.; MEYER, J. R.; RAM-MOHAN, L. R.: Band parameters for III–V compound semiconductors and their alloys. In: *Journal of Applied Physics* 89 (2001), Nr. 11, S. 5815– 5875
- [62] LEONARD, D.; KRISHNAMURTHY, M.; REAVES, C. M.; DEN-

BAARS, S. P. ; PETROFF, P. M.: Direct formation of quantumsized dots from uniform coherent islands of InGaAs on GaAs surfaces. In: *Applied Physics Letters* 63 (1993), Nr. 23, S. 3203

- YU, P. Y.; CARDONA, M.: Fundamentals of Semiconductors.
 4th Edition. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2010
- [64] LEONARD, D. ; POND, K. ; PETROFF, P. M.: Critical layer thickness for self-assembled InAs islands on GaAs. In: *Physical Review B* 50 (1994), Nr. 16, S. 11687–11692
- [65] SPENCER, B. J.; TERSOFF, J.: Stresses and first-order dislocation energetics in equilibrium Stranski-Krastanow islands. In: *Phys. Rev. B* 63 (2001), Nr. 20, S. 205424
- [66] HELFRICH, M. ; HU, D. Z. ; HENDRICKSON, J. ; GEHL, M. ; RÜLKE, D. ; GRÖGER, R. ; LITVINOV, D. ; LINDEN, S. ; WEGENER, M. ; GERTHSEN, D. ; SCHIMMEL, T. ; HETTERICH, M. ; KALT, H. ; KHITROVA, G. ; GIBBS, H. M. ; SCHAADT, D. M.: Growth and annealing of InAs quantum dots on prestructured GaAs substrates. In: Journal of Crystal Growth 323 (2011), Nr. 1, S. 187–190
- [67] SALLEN, G. ; KUNZ, S. ; AMAND, T. ; BOUET, L. ; KURO-DA, T. ; MANO, T. ; PAGET, D. ; KREBS, O. ; MARIE, X. ; SAKODA, K. ; URBASZEK, B.: Nuclear magnetization in gallium arsenide quantum dots at zero magnetic field. In: *Nature Communications* 5 (2014)
- [68] COHEN, E. ; YOCHELIS, S. ; WESTREICH, O. ; SHUSTERMAN, S. ; KUMAH, D. P. ; CLARKE, R. ; YACOBY, Y. ; PALTIEL, Y.: Structure of droplet-epitaxy-grown InAs/GaAs quantum dots. In: Applied Physics Letters 98 (2011), Nr. 24, S. 243115
- [69] Petta, J. R.; Johnson, A. C.; Taylor, J. M.; Laird, E. A. ; Yacoby, A.; Lukin, M. D.; Marcus, C. M.; Hanson,

M. P. ; GOSSARD, A. C.: Coherent Manipulation of Coupled Electron Spins in Semiconductor Quantum Dots. In: *Science* 309 (2005), Nr. 5744, S. 2180–2184

- [70] GUYOT-SIONNEST, P.: Colloidal quantum dots. In: Comptes Rendus Physique 9 (2008), Nr. 8, S. 777–787
- [71] TANAKA, S. ; IWAI, S. ; AOYAGI, Y.: Self-assembling GaN quantum dots on $Al_xGa_{1-x}N$ surfaces using a surfactant. In: *Applied Physics Letters* 69 (1996), Nr. 26, S. 4096
- [72] LIU, X.; AKAHANE, K.; JAHAN, N. A.; KOBAYASHI, N.; SA-SAKI, M.; KUMANO, H.; SUEMUNE, I.: Single-photon emission in telecommunication band from an InAs quantum dot grown on InP with molecular-beam epitaxy. In: *Applied Physics Letters* 103 (2013), Nr. 6, S. 061114
- [73] FOX, M.: Optical Properties of Solids. 2nd Edition. Oxford University Press, 2010
- [74] GARCÍA, J. M.; MEDEIROS-RIBEIRO, G.; SCHMIDT, K.; NGO, T.; FENG, J. L.; LORKE, A.; KOTTHAUS, J.; PETROFF, P. M.: Intermixing and shape changes during the formation of InAs self-assembled quantum dots. In: *Applied Physics Letters* 71 (1997), Nr. 14, S. 2014
- [75] GARCÍA, J. M. ; MANKAD, T. ; HOLTZ, P. O. ; WELLMAN, P. J. ; PETROFF, P. M.: Electronic states tuning of InAs self-assembled quantum dots. In: *Applied Physics Letters* 72 (1998), Nr. 24, S. 3172
- [76] BAYER, M.; ORTNER, G.; STERN, O.; KUTHER, A.; GOR-BUNOV, A. A.; FORCHEL, A.; HAWRYLAK, P.; FAFARD, S.; HINZER, K.; REINECKE, T. L.; WALCK, S. N.; REITHMAIER, J. P.; KLOPF, F.; SCHÄFER, F.: Fine structure of neutral and

charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 65 (2002), Nr. 19, S. 195315

- [77] ZUTIĆ, I.; DAS SARMA, S.: Spintronics: Fundamentals and applications. In: *Reviews of Modern Physics* 76 (2004), Nr. 2, S. 323–410
- [78] BLOCH, F.: Nuclear Induction. In: Phys. Rev. 70 (1946), S. 460–474
- [79] SLICHTER, C. P.: Principles of Magnetic Resonance. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1990
- [80] MÜLLER, G. M.; OESTREICH, M.; RÖMER, M.; HÜBNER, J.: Semiconductor spin noise spectroscopy: Fundamentals, accomplishments, and challenges. In: *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures* 43 (2010), Nr. 2, S. 569 – 587
- [81] DYAKONOV, M. I.: Basics of Semiconductor and Spin Physics. In: DYAKONOV, M. I. (Hrsg.): Spin Physics in Semiconductors. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2008
- [82] MEIER, F. (Hrsg.); ZAKHARCHENYA, B. P. (Hrsg.): Optical Orientation. North Holland, 1984
- [83] KHAETSKII, A. ; NAZAROV, Y.: Spin relaxation in semiconductor quantum dots. In: *Physical Review B* 61 (2000), Nr. 19, S. 12639–12642
- [84] BURKARD, G.; LOSS, D.; DIVINCENZO, D. P.: Coupled quantum dots as quantum gates. In: *Physical Review B* 59 (1999), Nr. 3, S. 2070–2078
- [85] SINITSYN, N.; LI, Y.; CROOKER, S.; SAXENA, A.; SMITH, D. L.: Role of Nuclear Quadrupole Coupling on Decoherence and Relaxation of Central Spins in Quantum Dots. In: *Physical Review Letters* 109 (2012), Nr. 16, S. 166605

- [86] KHAETSKII, A. ; NAZAROV, Y.: Spin-flip transitions between Zeeman sublevels in semiconductor quantum dots. In: *Physical Review B* 64 (2001), Nr. 12, S. 125316
- [87] TRIF, M.; SIMON, P.; LOSS, D.: Relaxation of Hole Spins in Quantum Dots via Two-Phonon Processes. In: *Physical Review Letters* 103 (2009), Nr. 10, S. 106601
- [88] FISCHER, J. ; COISH, W. A. ; BULAEV, D. V. ; LOSS, D.: Spin decoherence of a heavy hole coupled to nuclear spins in a quantum dot. In: *Phys. Rev. B* 78 (2008), S. 155329
- [89] BERNIEN, H.: Spinrauschspektroskopie an Donatoren in GaAs. Diplomarbeit, Leibniz Universität Hannover, Institut für Festkörperphysik, Abteilung Nanostrukturen, 2009
- [90] KALEVICH, V. K.; KAVOKIN, K. V.; MERKULOV, I. A.: Dynamic Nuclear Polarization and Nuclear Fields. In: DYAKONOV, M. I. (Hrsg.): Spin Physics in Semiconductors. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2008
- [91] MERKULOV, I. A. ; YAKOVLEV, D. R. ; SCHULTHESS, T. C.: Long-term dynamics of the electron-nuclear spin system of a semiconductor quantum dot. In: *Physical Review B* 81 (2010), Nr. 11, S. 115107
- [92] PAL, B. ; VERBIN, S. Y. ; IGNATIEV, I. V. ; IKEZAWA, M. ; MASUMOTO, Y.: Nuclear-spin effects in singly negatively charged InP quantum dots. In: *Physical Review B* 75 (2007), Nr. 12, S. 125322
- [93] DYAKONOV, M. I.; PEREL, V. I.: Theory of Optical Spin Orientation of Electrons and Nuclei in Semiconductor. In: MEIER, F. (Hrsg.); ZAKHARCHENYA, B. P. (Hrsg.): Optical Orientation. North Holland, 1984

- [94] EBLE, B.; DESFONDS, P.; FRAS, F.; BERNARDOT, F.; TES-TELIN, C.; CHAMARRO, M.: Hole and trion spin dynamics in quantum dots under excitation by a train of circularly polarized pulses. In: *Physical Review B* 81 (2010), Nr. 4, S. 45322
- [95] FALLAHI, P. ; YILMAZ, S. ; IMAMOGLU, A.: Measurement of a Heavy-Hole Hyperfine Interaction in InGaAs Quantum Dots Using Resonance Fluorescence. In: *Physical Review Letters* 105 (2010), Nr. 25, S. 257402
- [96] PAGET, D.; BERKOVITS, V. L.: Optical Investigation of Hyperfine Coupling between Electronic and Nuclear Spins. In: MEIER, F. (Hrsg.); ZAKHARCHENYA, B. P. (Hrsg.): Optical Orientation. North Holland, 1984
- [97] KREBS, O. ; EBLE, B. ; LEMAÎTRE, A. ; VOISIN, P. ; URBAS-ZEK, B. ; AMAND, T. ; MARIE, X.: Hyperfine interaction in InAs/GaAs self-assembled quantum dots: dynamical nuclear polarization versus spin relaxation. In: Comptes Rendus Physique 9 (2008), Nr. 8, S. 874–884
- [98] DESFONDS, P. ; EBLE, B. ; FRAS, F. ; TESTELIN, C. ; BER-NARDOT, F. ; CHAMARRO, M. ; URBASZEK, B. ; AMAND, T. ; MARIE, X. ; GÉRARD, J. M. ; THIERRY-MIEG, V. ; MIARD, A. ; LEMAÎTRE, A.: Electron and hole spin cooling efficiency in InAs quantum dots: The role of nuclear field. In: *Appl. Phys. Lett.* 96 (2010), Nr. 17, S. 172108
- [99] ABRAGAM, A.: The Principles of Nuclear Magnetism. Oxford University Press, 2006
- [100] TRONCALE, V. ; KARLSSON, K. F. ; OBERLI, D. Y. ; BYSZEW-SKI, M. ; MALKO, A. ; PELUCCHI, E. ; RUDRA, A. ; KAPON, E.: Excited excitonic states observed in semiconductor quan-

tum dots using polarization resolved optical spectroscopy. In: Journal of Applied Physics 101 (2007), Nr. 8, S. 081703

- [101] KRIZHANOVSKII, D. N. ; EBBENS, A. ; TARTAKOVSKII, A. I. ; PULIZZI, F. ; WRIGHT, T. ; SKOLNICK, M. S. ; HOPKINSON, M.: Individual neutral and charged $In_xGa_{1-x}As - GaAs$ quantum dots with strong in-plane optical anisotropy. In: *Phys. Rev. B* 72 (2005), Nr. 16, S. 161312
- [102] LÉGER, Y. ; BESOMBES, L. ; MAINGAULT, L. ; MARIETTE, H.: Valence-band mixing in neutral, charged, and Mn-doped selfassembled quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 76 (2007), Nr. 4, S. 045331
- [103] SUNDFORS, R. K.: Experimental gradient-elastic tensors and chemical bonding in III-V semiconductors. In: *Phys. Rev. B* 10 (1974), Nr. 10, S. 4244–4252
- [104] RAYMOND, S. ; REYNOLDS, J. P. ; MERZ, J. L. ; FAFARD, S. ; FENG, Y. ; CHARBONNEAU, S.: Asymmetric Stark shift Al_xIn_{1-x}As/Al_yGa_{1-y}As in self-assembled dots. In: *Physical Review B* 58 (1998), Nr. 20, S. R13415–R13418
- [105] ROBINSON, J. W. ; RICE, J. H. ; LEE, K. H. ; NA, J. H. ; TAYLOR, R. A. ; HASKO, D. G. ; OLIVER, R. A. ; KAPPERS, M. J. ; HUMPHREYS, C. J. ; BRIGGS, G. Andrew D.: Quantumconfined Stark effect in a single InGaN quantum dot under a lateral electric field. In: *Applied Physics Letters* 86 (2005), Nr. 21, S. 213103
- [106] BESOMBES, L. ; KHENG, K. ; MARSAL, L. ; MARIETTE, H.: Few-particle effects in single CdTe quantum dots. In: *Physical Review B* 65 (2002), Nr. 12, S. 121314
- [107] RICE, J. H.; ROBINSON, J. W.; JARJOUR, A.; TAYLOR, R. A. ; OLIVER, R. A.; BRIGGS, G. A. D.; KAPPERS, M. J.; HUM-

PHREYS, C. J.: Temporal variation in photoluminescence from single InGaN quantum dots. In: *Applied Physics Letters* 84 (2004), Nr. 20, S. 4110

- [108] BAK, W. ; NOH, H. ; STAMBAUGH, C. ; ARAKAWA, Y. ; JHE, W.: Spectral fluctuations of excitonic transitions of InGaAs single quantum dots. In: *Applied Physics Letters* 100 (2012), Nr. 2, S. 22105
- [109] EMPEDOCLES, S. A.; NORRIS, D. J.; BAWENDI, M. G.: Photoluminescence Spectroscopy of Single CdSe Nanocrystallite Quantum Dots. In: *Physical Review Letters* 77 (1996), Nr. 18, S. 3873–3876
- [110] BERTHELOT, A. ; FAVERO, I. ; CASSABOIS, G. ; VOISIN, C. ; DELALANDE, C. ; ROUSSIGNOL, P. ; FERREIRA, R. ; GÉRARD, J. M.: Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantum dot. In: *Nature Physics* 2 (2006), Nr. 11, S. 759–764
- [111] ROBINSON, H. D. ; GOLDBERG, B. B.: Light-induced spectral diffusion in single self-assembled quantum dots. In: *Physical Review B* 61 (2000), Nr. 8, S. R5086–R5089
- [112] STANLEY, M. J.; MATTHIESEN, C.; HANSOM, J.; LE GALL, C.; SCHULTE, C. H. H.; CLARKE, E.; ATATÜRE, M.: Dynamics of a mesoscopic nuclear spin ensemble interacting with an optically driven electron spin. In: *Physical Review B* 90 (2014), Nr. 19, S. 195305
- [113] HOUEL, J.; KUHLMANN, A.; GREUTER, L.; XUE, F.; POG-GIO, M.; GERARDOT, B. D.; DALGARNO, P.; BADOLATO, A.; PETROFF, P. M.; LUDWIG, A.; REUTER, D.; WIECK, A. D.; WARBURTON, R. J.: Probing Single-Charge Fluctuations at a GaAs/AlAs Interface Using Laser Spectroscopy on a Nearby

InGaAs Quantum Dot. In: *Physical Review Letters* 108 (2012), Nr. 10, S. 107401

- [114] KUHLMANN, A. V. ; HOUEL, J. ; LUDWIG, A. ; GREUTER, L. ; REUTER, D. ; WIECK, A. D. ; POGGIO, M. ; WARBURTON, R. J.: Charge noise and spin noise in a semiconductor quantum device. In: *Nature Physics* (2013)
- [115] ALEKSANDROV, E. B. ; ZAPASSKY, V. S.: Magnetic resonance in the Faraday-rotation noise spectrum. In: Sov. Phys. JETP 54 (1981), S. 64
- [116] CROOKER, S. A.; RICKEL, D. G.; BALATSKY, A. V.; SMITH, D. L.: Spectroscopy of spontaneous spin noise as a probe of spin dynamics and magnetic resonance. In: *Nature* 431 (2004)
- [117] OESTREICH, M.; RÖMER, M.; HAUG, R. J.; HÄGELE, D.: Spin Noise Spectroscopy in GaAs. In: *Phys. Rev. Lett.* 95 (2005), S. 216603
- [118] MÜLLER, G. M.; RÖMER, M.; SCHUH, D.; WEGSCHEIDER, W.; HÜBNER, J.; OESTREICH, M.: Spin Noise Spectroscopy in GaAs (110) Quantum Wells: Access to Intrinsic Spin Lifetimes and Equilibrium Electron Dynamics. In: *Physical Review Letters* 101 (2008), Nr. 20, S. 206601
- [119] RÖMER, M.; HÜBNER, J.; OESTREICH, M.: Spatially resolved doping concentration measurement in semiconductors via spin noise spectroscopy. In: *Applied Physics Letters* 94 (2009), Nr. 11, S. 112105
- [120] RÖMER, M. ; BERNIEN, H. ; MÜLLER, G. M. ; SCHUH, D. ; HÜBNER, J. ; OESTREICH, M.: Electron-spin relaxation in bulk GaAs for doping densities close to the metal-to-insulator transition. In: *Physical Review B* 81 (2010), Nr. 7, S. 75216

- [121] HORN, H.; BALOCCHI, A.; MARIE, X.; BAKIN, A.; WAAG, A.; OESTREICH, M.; HÜBNER, J.: Spin noise spectroscopy of donor-bound electrons in ZnO. In: *Physical Review B* 87 (2013), Nr. 4, S. 45312
- [122] HÜBNER, J.; LONNEMANN, J. G.; ZELL, P.; KUHN, H.; BERSKI, F.; OESTREICH, M.: Rapid scanning of spin noise with two free running ultrafast oscillators. In: *Optics Express* 21 (2013), Nr. 5, S. 5872
- [123] POLTAVTSEV, S. V. ; RYZHOV, I. I. ; ZAPASSKII, V. S. ; KOZ-LOV, G. G.: Noise spectroscopy of the optical microcavity: nonlinear amplification of the spin noise signal and giant noise. (2014). – arXiv:1406.1011
- [124] POLTAVTSEV, S. V. ; RYZHOV, I. I. ; GLAZOV, M. M. ; KOZLOV, G. G. ; ZAPASSKII, V. S. ; KAVOKIN, A. V. ; LAGOUDAKIS, P. G. ; SMIRNOV, D. S. ; IVCHENKO, E. L.: Spin noise spectroscopy of a single quantum well microcavity. In: *Physical Review B* 89 (2014), Nr. 8, S. 081304
- [125] ROY, D.; LI, Y.; GREILICH, A.; PERSHIN, Y. V.; SAXENA, A.; SINITSYN, N. A.: Spin noise spectroscopy of quantum dot molecules. In: *Physical Review B* 88 (2013), Nr. 4, S. 045320
- [126] MÜLLER, G. M.; RÖMER, M.; HÜBNER, J.; OESTREICH, M.: Gigahertz spin noise spectroscopy in n -doped bulk GaAs. In: *Physical Review B* 81 (2010), Nr. 12, S. 121202
- [127] BERSKI, F. ; KUHN, H. ; LONNEMANN, J. G. ; HÜBNER, J. ; OESTREICH, M.: Ultrahigh Bandwidth Spin Noise Spectroscopy: Detection of Large g-Factor Fluctuations in Highly-n-Doped GaAs. In: *Physical Review Letters* 111 (2013), Nr. 18, S. 186602
- [128] YANG, L.; GLASENAPP, P.; GREILICH, A.; REUTER, D.;

WIECK, A. D. ; YAKOVLEV, D. R. ; BAYER, M. ; CROOKER, S. A.: Two-colour spin noise spectroscopy and fluctuation correlations reveal homogeneous linewidths within quantum-dot ensembles. In: *Nature Communications* 5 (2014), S. 4949

- [129] KUBO, R.: The fluctuation-dissipation theorem. In: Rep. Prog. Phys. 29 (1966), Nr. 255
- [130] FARADAY, M.: On the Magnetic Affection of Light, and on the Distinction between the Ferromagnetic and Diamagnetic Conditions of Matter. In: *Philosophical Magazin and Journal* of Science 29 (1846)
- [131] LI, Y. Q.; STEUERMAN, D. W.; BEREZOVSKY, J.; SEFEROS, D. S.; BAZAN, G. C.; AWSCHALOM, D. D.: Cavity enhanced Faraday rotation of semiconductor quantum dots. In: *Applied Physics Letters* 88 (2006), Nr. 19, S. 193126
- [132] WIKIPEDIA: Faraday-Effekt. http://de.wikipedia.org/ wiki/Faraday-Effekt, Juli 2015
- [133] RÖMER, M.: Spinrauschspektroskopie in Halbleitern, Leibniz Universität Hannover, Institut für Festkörperphysik, Abteilung Nanostrukturen, Diss., 2010
- [134] KHINTCHINE, A.: Korrelationstheorie der stationären stochastischen Prozesse. In: Mathematische Annalen 109 (1934), S. 604
- [135] HÖGELE, A.; SEIDL, S.; KRONER, M.; KARRAI, K.; WAR-BURTON, R. J.; GERARDOT, B. D.; PETROFF, P. M.: Voltage-Controlled Optics of a Quantum Dot. In: *Physical Review Letters* 93 (2004), Nr. 21, S. 217401
- [136] ZAPASSKII, V. S. ; GREILICH, A. ; CROOKER, S. A. ; LI, YAN ; KOZLOV, G. G. ; YAKOVLEV, D. R. ; REUTER, D. ; WIECK,

A. D.; BAYER, M.: Optical Spectroscopy of Spin Noise. In: *Physical Review Letters* 110 (2013), Nr. 17, S. 176601

- [137] PAILLARD, M.; MARIE, X.; VANELLE, E.; AMAND, T.; KALEVICH, V. K.; KOVSH, A. R.; ZHUKOV, A. E.; USTINOV, V. M.: Time-resolved photoluminescence in self-assembled In-As/GaAs quantum dots under strictly resonant excitation. In: *Applied Physics Letters* 76 (2000), Nr. 1, S. 76
- [138] DAHBASHI, R.: Konstruktion eines Tieftemperaturmessplatzes und Aufbau eines Diodenlasers zur Vermessung von Halbleiternanostrukturen. Bachelorarbeit, Leibniz Universität Hannover, Institut für Festkörperphysik, Abteilung Nanostrukturen, 2009
- [139] MEYER, C. ; SQALLI, O. ; LORENZ, H. ; KARRAI, K.: Slipstick step-scanner for scanning probe microscopy. In: *Review* of Scientific Instruments 76 (2005), Nr. 6, S. 63706
- [140] KAVOKIN, A. V.; BAUMBERG, J. J.; MALPUECH, G.; LAUSSY, F. P.: *Microcavities*. Oxford University Press, 2011
- [141] SHEPPARD, C. J. R.: Approximate calculation of the reflection coefficient from a stratified medium. In: *Pure and Applied Optics: Journal of the European Optical Society Part A* 4 (1995), Nr. 5, S. 665–669
- [142] ROSENBERG, R. ; RUBINSTEIN, C. B. ; HERRIOTT, D. R.: Resonant Optical Faraday Rotator. In: Applied Optics 3 (1964), Nr. 9, S. 1079
- [143] LING, H. Y.: Theoretical investigation of transmission through a Faraday-active Fabry-Perot étalon. In: *Journal of the Optical Society of America A* 11 (1994), Nr. 2, S. 754
- [144] PEUMANS, P.; YAKIMOV, A.; FORREST, S. R.: Small mole-

cular weight organic thin-film photodetectors and solar cells. In: Journal of Applied Physics 93 (2003), Nr. 7, S. 3693

- [145] HONG, J.; HUANG, W.; MAKINO, T.: On the transfer matrix method for distributed-feedback waveguide devices. In: *Jour*nal of Lightwave Technology 10 (1992), Nr. 12, S. 1860–1868
- [146] KATSIDIS, C. C. ; SIAPKAS, D. I.: General Transfer-Matrix Method for Optical Multilayer Systems with Coherent, Partially Coherent, and Incoherent Interference. In: *Applied Optics* 41 (2002), Nr. 19, S. 3978
- [147] MÜLLER, G. M. ; RÖMER, M. ; HÜBNER, J. ; OESTREICH, M.: Efficient data averaging for spin noise spectroscopy in semiconductors. In: *Applied Physics Letters* 97 (2010), Nr. 19, S. 192109
- [148] SEIBT, P.: Algorithmic Information Theory. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2006
- [149] FINLEY, J. J.; MOWBRAY, D. J.; SKOLNICK, M. S.; ASH-MORE, A. D.; BAKER, C.; MONTE, A. F. G.; HOPKINSON, M.: Fine structure of charged and neutral excitons in InAs-Al_{0.6}Ga_{0.4}As quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 66 (2002), S. 153316
- [150] BELHADJ, T. ; SIMON, C.-M. ; AMAND, T. ; RENUCCI, P. ; CHATEL, B. ; KREBS, O. ; LEMAÎTRE, A. ; VOISIN, P. ; MARIE, X. ; URBASZEK, B.: Controlling the Polarization Eigenstate of a Quantum Dot Exciton with Light. In: *Phys. Rev. Lett.* 103 (2009), S. 086601
- [151] WIEGAND, J.: Photolumineszenz und Spinrauschspektroskopie an selbstorganisierten InAs Quantenpunkten. Bachelorarbeit, Leibniz Universität Hannover, Institut für Festkörperphysik, Abteilung Nanostrukturen, 2011

- [152] GLAZOV, M.; IVCHENKO, E.: Spin noise in quantum dot ensembles. In: *Physical Review B* 86 (2012), Nr. 11, S. 115308
- [153] YUGOVA, I. A.; GREILICH, A.; ZHUKOV, E. A.; YAKOVLEV, D. R.; BAYER, M.; REUTER, D.; WIECK, A. D.: Exciton fine structure in InGaAs/GaAs quantum dots revisited by pumpprobe Faraday rotation. In: *Phys. Rev. B* 75 (2007), S. 195325
- [154] COISH, W. A.; LOSS, D.: Hyperfine interaction in a quantum dot: Non-Markovian electron spin dynamics. In: *Physical Review B* 70 (2004), Nr. 19, S. 195340
- [155] ERLINGSSON, S. I.; NAZAROV, Y. V.: Evolution of localized electron spin in a nuclear spin environment. In: *Physical Re*view B 70 (2004), Nr. 20, S. 205327
- [156] AL-HASSANIEH, K. A. ; DOBROVITSKI, V. V. ; DAGOTTO, E.
 ; HARMON, B. N.: Numerical Modeling of the Central Spin Problem Using the Spin-Coherent-State P Representation. In: *Physical Review Letters* 97 (2006), Nr. 3, S. 037204
- [157] HACKMANN, J.; ANDERS, F. B.: Spin noise in the anisotropic central spin model. 89 (2014), Nr. 4, S. 045317
- [158] DEMTRÖDER, W: Laserspektroskopie. 5. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2007
- [159] LI, F. ; SAXENA, A. ; SMITH, D. ; SINITSYN, N. A.: Higherorder spin noise statistics. In: New Journal of Physics 15 (2013), Nr. 11, S. 113038
- [160] STAROSIELEC, S. ; FAINBLAT, R. ; RUDOLPH, J. ; HÄGELE, D.: Two-dimensional higher order noise spectroscopy up to radio frequencies. In: *The Review of scientific instruments* 81 (2010), Nr. 12, S. 125101

- [161] LAFORGE, J. M.; STEEVES, G. M.: Noninvasive optical amplification and detection of Faraday rotation. In: *Applied Physics Letters* 91 (2007), Nr. 12, S. 121115
- [162] HAACK, J.: Spinrauschspektroskopie an Rubidium mittels Homodyn-Detektion, Leibniz Universität Hannover, Masterarbeit, 2015
- [163] SØ RENSEN, J. L.; HALD, J.; POLZIK, E. S.: Quantum Noise of an Atomic Spin Polarization Measurement. In: *Physical Review Letters* 80 (1998), Nr. 16, S. 3487–3490
- [164] PIERZ, K.: Informationen zu Probe P911. August 2010. PTB Braunschweig

Symbol- und Abkürzungsverzeichnis

Es folgt eine Liste der wichtigsten Symbole und Abkürzungen in der Reihenfolge der Nennung in der Arbeit. Einige Größen werden ohne Indizes genannt. Bei Mehrfachbenennung erschließt sich die spezielle Bedeutung aus dem Zusammenhang im Text.

QD	Quantenpunkt
PL	Photolumineszenz
SRS	Spinrauschspektroskopie
TEM	Transmissionselektronenmikroskop
LH / HH	Leicht- / Schwerloch
SO	Split-Off-Band
$E_{\mathbf{g}}$	Bandlücke
Δ_{LH}	Aufspaltung von Leicht- und Schwerloch-
	band

Х	Exziton						
MBE	Molekularstrahlepitaxie						
UV	Ultraviolett						
m	Masse						
λ	Wellenlänge						
k	Wellenvektor						
L	Räumliche Ausdehnung						
E	Energie						
\hbar,h	(Reduziertes) Plancksches Wirkungsquan-						
,	tum						
n	Hauptquantenzahl						
Ψ	Wellenfunktion						
$ec{r} \;/\; ec{R} \;/\; ec{ ho}$	(Relative) Ortskoordinate						
J_h	Lochspin						
S_e / \vec{s}	Elektronenspin						
a, b	Spin-Spin-Kopplungskonstanten						
M	Magnetische Quantenzahl						
$\delta_0, \delta_1, \Delta_0, \Delta_1$	Feinstrukturaufspaltungs-Parameter						
T_1	Longitudinale Spinlebenszeit						
T_2/T_2^*	Transversale Spinlebenszeit						
\vec{S}	Gesamtspin / Spinpolarisation						
\vec{b}	Normiertes (externes) Magnetfeld						
В	Magnetfeld						
ν_L, ω_L	Larmor-Frequenz						
t	Zeit						
q	g-Faktor						
μ_B	Bohrsches Magneton						
B_N	Kernmagnetfeld						
Ι	Kernspin						
ν_0	Volumen der primitiven Einheitszelle						
Ă	Kopplungsstärke der Hyperfeinwechselwir-						
	kung						

T_{Δ}	Ensemble-Dephasierungszeit
$\Delta_B / \Delta_{\parallel} / \Delta_{\perp}$	Breite der Gauß-verteilten Kernmagnetfel-
, ,, ,,	der
N_L	Anzahl der Kerne
$R_{\parallel} / R_{\perp}^{0,1}$	Longitudinaler und transversale Anteile der
п, т	Spinpolarisation
β	Magnetfeld-Verhältnis
μ_I	Kernmagneton
\vec{l}	Bahndrehimpuls
φ	Lochzustand
α	Beimischungsfaktor von Leicht- und Schwer-
	loch
C	Dipol-Dipol-Hyperfein-Konstante
θ	Drehwinkel der Faraday-Rotation
V	Verdet-Konstante
n	Brechungsindex
ω, ν	(Kreis-)Frequenz
c	Lichtgeschwindigkeit
$\sigma^{+/-}$	Zirkulare Lichtpolarisation
N	Anzahl
σ	Standardabweichung
Γ_s	Spinrelaxationsrate
$ au_s$	Spinlebenszeit
$\nu_{\rm FWHM}$ / Δ_f	Volle Halbwertsbreite einer Kurve
k_B	Boltzmann-Konstante
T	Temperatur
R	Reflektivität
${\cal F}$	Finesse
Μ	Transfermatrix
D	Grenzflächenmatrix
Р	Phasenmatrix

$E^{+,-}$	Elektrisches Feld einer nach rechts / links
1	laufenden Welle
$\pi^{x/y}$	Lineare Lichtpolarisation
A	Fläche
Γ	Rate
au	Lebenszeit
d_f	Fokusdurchmesser
FFT	Schnelle Fourier-Transformation
V	Spannung
γ, ξ	Verstärkungsfaktoren
w	Breite der Anpassungsfunktion
A	Fläche der Anpassungsfunktion
Ι	Intensität
α	Absorptionskoeffizient
L	Lorentz-Funktion
G	Gauß-Verteilung
R	Blockadefunktion
P	Leistung
G_i	Gewichtungsfaktor
S	Sättigungsparameter
a	Rauschamplitude
SRV	Signal-zu-Rausch-Verhältnis

Abbildungen und Tabellen

Abbildungsverzeichnis

2.1	TEM-Aufnahme eines Halbleiter-Quantenpunktes	22
2.2	Zustandsdichte von Halbleitersystemen verschiedener	
	Dimension	23
2.3	Energiedispersion im Halbleiter	24
2.4	Bandlücken verschiedener Halbleiter	25
2.5	Stranski-Krastanov-Wachstum von Quantenpunkten	26
2.6	Verschiedene Exzitonen-Komplexe im Quantenpunkt	29
2.7	Feinstruktur neutraler Exzitonen	32
2.8	Schema der Spindephasierung durch Hyperfeinwech-	
	selwirkung	35

2.9	Zeitentwicklung des Elektronspins unter Hyperfein- wechselwirkung
2.10	Schema der Spindephasierung unter Berücksichtigung des Knight-Feldes
2.11	Zeitentwicklung des Elektronspins unter Hyperfein- wechselwirkung in einem externem Magnetfeld 40
2.12	Qualitative Unterschiede von Elektronen und Löchern im Quantenpunkt 42
2.13	Ladungsfluktuationen in differentieller Reflexionsmessung sung 47
2.14	Schema der Faraday-Rotation
2.15	Optische Auswahlregeln im Quantenpunkt 51
2.16	Typisches Spinrauschspektrum
2.17	Entwicklung der Linienform beim Spinrauschen 54
2.18	Zeitlicher Verlauf der Blockade vom Spinrauschen 55
2.19	Schema zur Blockade und Ausbleichen von Quanten- punkten
2.20	Schema der Projektion der Spinlebenszeiten 58
3.1	Vektormagnet im Probenstab
3.2	Probenstruktur
3.3	Elektrisches Feld in Probenstruktur
3.4	Schema der Polarisationsdetektion in der Photolumi- neszenz
3.5	Photolumineszenz-Aufbau
3.6	Spinrausch-Aufbau
3.7	Prinzip zur Bildung von Differenzspektren 74
4.1	Photolumineszenz eines Quantenpunkt-Ensembles 81
4.2	Typisches Spinrauschspektrum eines Quantenpunkt- Ensembles

4.3	Abhängigkeit des Ensemble-Spinrauschspektrums vom longitudinalen Magnetfeld	85
4.4	Abhängigkeit der Ensemble- T_1 -Zeit von der Abfra- geintensität	87
4.5	Erweiterter Bereich der Intensitätsabhängigkeit der Ensemble- T_1 -Zeit	89
4.6	Berechnete Intensitätsabhängigkeit der gesamte Spin- rauschleistung im Quantenpunkt-Ensemble	91
4.7	Linienform des Ensemble-Spinrauschspektrums in Abhängigkeit von Spinlebenszeit und Laserintensität	92
5.1	Photolumineszenz eines einzelnen Quantenpunktes .	96
5.2	Typisches Spinrauschspektrum eines einzelnen Loch- spins	98
5.3	Photolumineszenz und integrierte Spinrauschleistung eines einzelnen Quantenpunktes	99
5.4	Spinrauschspektren eines einzelnen Quantenpunktes bei unterschiedlicher Abfrageintensität	101
5.5	Intensitätsabhängigkeit der Spinrelaxationsrate im ein- zelnen Quantenpunkt	102
5.6	Schema zum Übergang der dominanten Quantenpunkt- Konfiguration	106
5.7	Intensitätsabhängigkeit der Spinrelaxationsrate im ein- zelnen Quantenpunkt mit einzelnen Ladungskonfigu-	
	rationen	107
5.8	Modellierte Abhängigkeit der Spinrauschleistung von der Abfrageenergie	109
5.9	Integrierte Spinrauschleistung in Abhängigkeit der Ab- frageenergie	111
5.10	Spinrauschspektren eines einzelnen Quantenpunktes	
	bei unterschiedlichen longitudinalen Magnetfeldern .	113

5.11	T_1 -Zeit in einem einzelnen Quantenpunkt in Abhän-	
	gigkeit vom longitudinalen Magnetfeld	114
5.12	Experimentelle Abschätzung des effektiven Kernma-	
	gnetfeldes	116
5.13	Rauschspektrum mit zwei Beiträgen von Ladungskon-	
	figurationen	119
5.14	Schema zum zeitlichen Verlauf der Ladungsfluktuati-	
	on und C4-Korrelation	120
5.15	C4-Spektrum von Simulationsdaten	121
5.16	C4-Spektrum von Messdaten	122
6.1	Aufbau und Prinzip von Quantenpunkten in einer	
	Schottky-Diode	128
6.2	Photolumineszenz der Schottky-Quantenpunkte in Ab-	
	hängigkeit der Spannung	129
A 1	Normal Dhatalumin aggan gan altinum	199
A.I	Contrar Photolumineszenzspektrum	102
A.Z	Seiten-Photofummeszenzspektrum	199
B 1	C4-Korrelation von Simulationsdaten mit weißem Bau-	
D.1	schen	136
B 2	Signal-zu-Bausch-Verhältnis von FFT ² und C4 in Ab-	100
1.2	hängigkeit der Integrationszeit	137
		101

Tabellenverzeichnis

3.1 Laserspezifikationen																				7'	7
--------------------------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----	---

Lebenslauf

Ramin Dahbashi, geboren am 03.04.1987 in Kiel.

06/1993 - 06/2006	Schulausbildung mit Abitur in Oldenburg in
	Holstein
10/2006 - 10/2009	Bachelorstudium Physik an der Leibniz
	Universität Hannover
10/2009	Bachelorarbeit "Konstruktion eines
	Tieftemperaturmessplatzes und Aufbau eines
	Diodenlasers zur Vermessung von
	Halbleiternanostrukturen" unter Anleitung
	von Prof. Dr. M. Oestreich
10/2009 - 10/2011	Masterstudium Physik (mit Auszeichnung)
	an der Leibniz Universität Hannover
10/2011	Masterarbeit "Spinrauschspektroskopie an
	Halbleiter-Quantenpunkten" unter Anleitung
	von Prof. Dr. M. Oestreich
12/2011 - 11/2015	Wissenschaftlicher Mitarbeiter und
	Vorbereitung der Dissertation am Institut für
	Festkörperphysik, Abteilung Nanostrukturen,
	Leibniz Universität Hannover
11/2015	Promotion (Dr. rer. nat.) "Spinrauschen in
	nulldimensionalen Strukturen"

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich Prof. Dr. Michael Oestreich für die Möglichkeit zur Anfertigung meiner Dissertation und für die Betreuung und Unterstützung in dieser Zeit danken. Ich danke für das Vertrauen in meine Arbeit und die Geduld, die manchmal nötig ist, bis schließlich ein Durchbruch gelingt.

Ebenso möchte ich mich bei Prof. Dr. Rolf J. Haug für die Übernahme des Korreferats bedanken sowie bei Prof. Dr. Eric Jeckelmann für die Übernahme des Promotionsvorsitzes.

Ein ganz besonderer Dank gilt PD Dr. Jens Hübner, der mich stets in fachlichen und technischen Fragen unterstützt und somit einen großen Beitrag zum Gelingen geleistet hat. Und natürlich für seinen kollegialen und motivierenden Umgang.

Ich danke den Mitarbeitern der Werkstatt für die gute und schnelle Bearbeitung aller Aufträge. Insbesondere seien hier Manfred Marquardt, Hartmut Lehmann und Uwe Grothof genannt. Weiterhin danke ich Ronny Hüther für seine Unterstützung in allen technischen Fragen und die Mitarbeit insbesondere in der Anfangsphase des experimentellen Aufbaus.

Mein Dank gilt außerdem Yvonne Griep und den Auszubildenden und Mitarbeitern im Sekretariat dafür, dass sie immer ein offenes Ohr hatten und geduldig alle Formalitäten bearbeitet haben.

Ich danke Klara Wernecke für die gute Büro-Nachbarschaft und das fröhliche "Guten Morgen" am Anfang des Tages.

Ich bedanke mich bei Dr. Fritz Schulze-Wischeler, Oliver Kerker, Ernst Exter und Christine Sabisch für die gute und produktive Zusammenarbeit im LNQE.

Ganz besonders danke ich allen Femtos, die mich während meiner Promotion begleitet haben, für die gute und fröhliche Arbeitsatmosphäre: Agnes Beichert, André Grieger, Arthur Varkentin, Dr. Dave English, Fabian Berski, Dr. Georg Müller, Dr. Hauke Horn, Hendrik Kuhn. Jan Gerrit Lonnemann, Jan-Moritz Bischoff. Jennifer Haack, Julia Wiegand, Katharina Isleif, Kim Niewerth, Magnus Neumann, Martin Kohse, Michi Beck, Pavel Sterin, Petrissa Zell und Dr. Stefan Oertel. Ein ganz spezieller Dank an alle meine aktuellen und früheren Bürokollegen André, Hendrik, Jennifer, Julia, Martin, Michi, Pavel und Toffa für die gute Zusammenarbeit, Unterstützung und die hervorragende Stimmung. Speziell natürlich Hendrik für die langjährige Aussicht am Schreibtisch. Hauke, Julia und Martin danke ich für die gute gemeinsame Zeit im Labor. Ein besonderer Dank an Fabian für die Unterstützung und Zusammenarbeit von Anfang an. Besten Dank an Dr. Peter Eldridge für die schöne Auszeit von der Arbeit auf Kreta. Pavel für die ein oder andere Hilfe am Computer. Dr. Lina Bockhorn danke ich für die last minute Tipps. Natürlich auch allen anderen Nanos sowie allen, die in irgendeiner Form zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Ein dicker Dank an Dr. Carsten Schulte und Sascha Kulas für den gemeinsamen Start in der Arbeitsgruppe und Carsten für die vielen gemeinsamen Tage auf Konferenzen. Natürlich gilt mein Dank auch meinen anderen Kommilitonen für die Unterstützung im Studium und die Zeit abseits der Physik.

Ich danke ebenso meinen Eltern und meiner Schwester für die ganze Unterstützung in meinem Leben bis zum heutigen Tag.

Und schließlich gilt meiner größter Dank Kristina dafür, dass sie an meiner Seite steht und mich immer unterstützt und wir zusammen mit unserem Kind einer gemeinsamen Zukunft entgegen gehen werden.