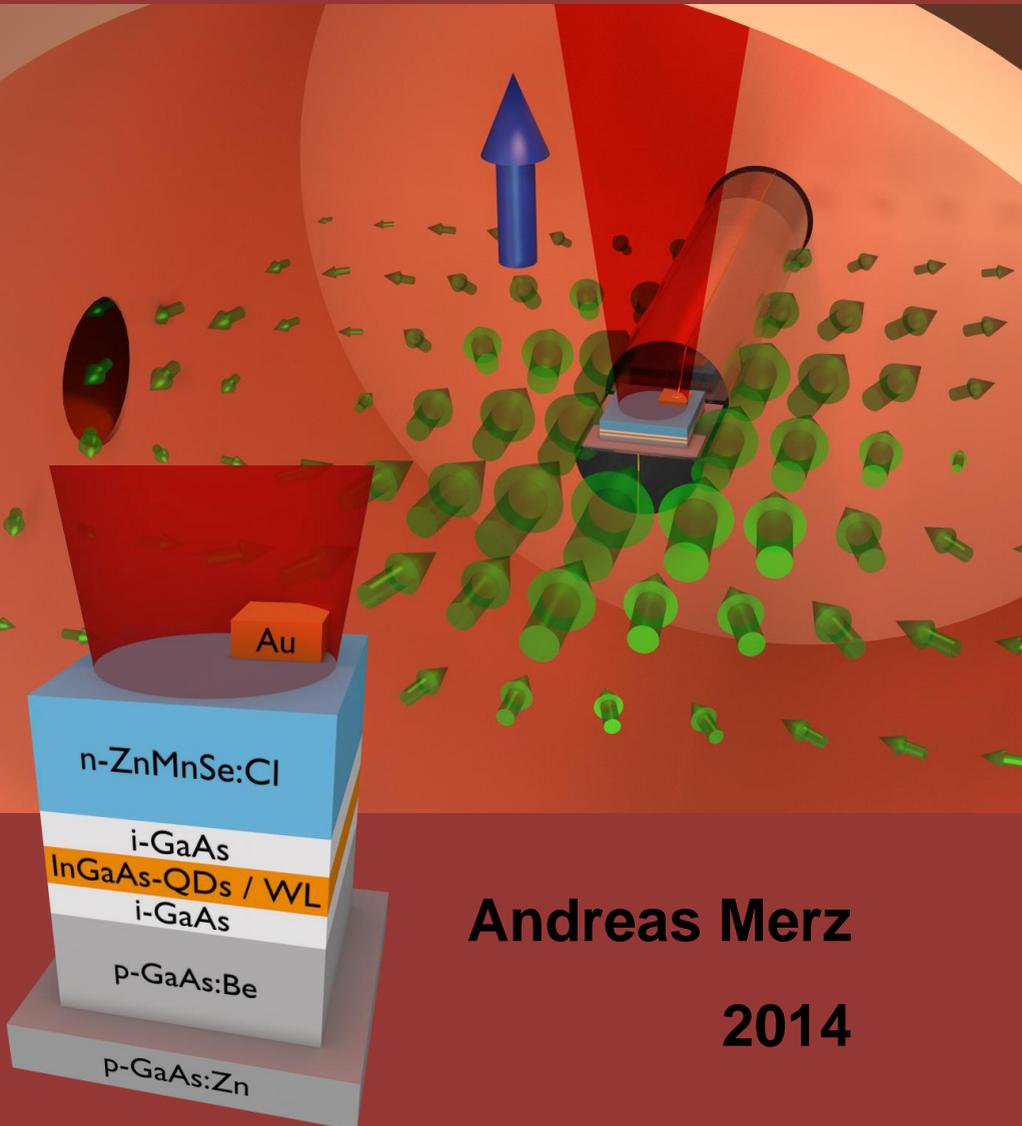


Mikrowellen-Spinmanipulation in Spin-LEDs



Andreas Merz

2014

Mikrowellen-Spinmanipulation in Spin-LEDs

Zur Erlangung des akademischen Grades eines
DOKTORS DER NATURWISSENSCHAFTEN
von der Fakultät für Physik
des Karlsruher Instituts für Technologie (KIT)

genehmigte

DISSERTATION

von

Dipl.-Phys. M.Sc. Andreas Merz
aus Backnang

Tag der mündlichen Prüfung : 18.07.2014

Referent : Prof. Dr. H. Kalt

Korreferent : Priv.-Doz. Dr. M. Hetterich

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung	1
1.1	Von der Zeemanaufspaltung zum Kernspintomographen: Die magnetische Resonanz	1
1.2	Spinmanipulation in der Spintronik	1
1.3	Zielsetzung und Struktur der Arbeit	2
2	Grundlagen	5
2.1	Stand der Forschung der Spinoptoelektronik	5
2.2	DiVincenzo-Kriterien	6
2.2.1	Mögliche Systeme für Qubits	6
2.2.2	InGaAs-Quantenpunkte	10
2.3	Bauteile für die Injektion, Speicherung und das Auslesen von Spinzuständen in InGaAs-Quantenpunkten	13
2.3.1	Charge-Tuning-Strukturen	13
2.3.2	Die Spininjektionsleuchtdiode (Spin-LED)	15
2.3.3	Die Spininjektions-Transistorstruktur	16
2.4	Spinmanipulation in spintronischen Bauteilen	17
2.4.1	Lebensdauer und Kohärenzzeit	17
2.4.2	Repräsentation eines Quantenbits mithilfe der Blochkugel	20
2.4.3	Elektronenspinresonanz (ESR)	21
2.4.4	Alternative Methode der Spinmanipulation	22
3	Experimenteller Aufbau	25
3.1	Magnetkryostat	26
3.2	Lasersysteme und Laseranregung	26
3.3	Auflösungsvermögen des optischen Aufbaus	27
4	Manipulation von elektronischen Zuständen in Charge-Tuning-Bauteilen	29
4.1	Aufbau der Charge-Tuning-Proben	29
4.2	Elektronische Zustände in Schottky-artigen Charge-Tuning-Bauteilen	30
4.2.1	Simulation der Bandstruktur in einer Dimension	30
4.2.2	Bindungsenergien von Mehrteilchenzuständen in InGaAs-Quantenpunkten	32

4.3	Spektroskopie an Quantenpunkten in den Charge-Tuning-Strukturen	35
4.3.1	Einzelquantenpunktspektroskopie	35
4.3.2	Identifikation der Emissionslinien	36
4.3.3	Zeitaufgelöste Messungen und Zerfallszeiten	40
4.3.4	Ladungsspeicherung und getriggertes Auslesen	40
4.4	Vergleichende Bewertung für die Möglichkeit, elektronische Zustände zu präparieren und zu speichern	42
5	Spin-LED	45
5.1	Probenaufbau von Spininjektionsleuchtdioden	45
5.2	Elektronische Zustände und Funktion einer Spin-LED	47
5.2.1	Simulation der Bandstruktur	47
5.2.2	Der Spinausrichter	48
5.3	Spektroskopie von Quantenpunkten in Spin-LEDs	50
5.3.1	Magneto-Optik an Einzelquantenpunkten	52
5.3.2	Bestimmung der exzitonischen Lebensdauer durch zeitaufgelöste Elektrolumineszenzmessungen	55
5.3.3	Die Spin-LED als spintronische Einzelphotonenquelle	56
5.4	Vergleichende Betrachtung der Möglichkeiten von elektrischer Spininjektion	58
6	Manipulation von Elektronenspins in Spin-LEDs	61
6.1	Wahl des ESR-Konzeptes	62
6.2	Aufbau des ESR-Experiments	65
6.2.1	Theorie von Hohlraumresonatoren	65
6.2.2	Mikrowellensimulationen	66
6.2.3	Realisierung des Resonators	67
6.2.4	Design der Probe und Wahl der Probengeometrie	70
6.2.5	Mikrowellenverstärker und gesamter Aufbau	71
6.3	Prinzip der Spinmanipulation über den Spinausrichter	72
6.3.1	Kopplung der Manganspins an das Mikrowellenfeld	72
6.3.2	Auswirkung des Spinheizens in Mn auf die Spin-LED	74
6.3.3	Auswirkung der Mangankonzentration auf Spinpolarisation und Spinrelaxation	76
6.4	Methodik zum Auslesen der Spinmanipulation	78
6.5	Nachweis der Spinmanipulation in Spin-LEDs	80
6.5.1	Optisch detektierte magnetische Resonanzen in $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$	80
6.5.2	Relaxationsmessungen an $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schichten	81
6.5.3	Mikrowellenspinmanipulation in einer Spin-LED	85

6.5.4	Nachweis Spinmanipulation durch Elektrolumineszenz- messung	86
6.5.5	Dynamik des CPDs bei Spinmanipulation in einer Spin- LED	93
6.6	Zusammenfassung der Ergebnisse	96
7	Zusammenfassung und Ausblick	99
7.1	Ladungsträger-Speicherung	99
7.2	Spin-Injektion	100
7.3	ESR-Spinmanipulation in Spin-LEDs	100
7.4	Ausblick	101
A	Verbesserung der Ausleseeffizienz mithilfe von Immersionslinsen	103
B	Probenverzeichnis	105
	Publikationen	107
	Literaturverzeichnis	113
	Danksagung	129

1 Einführung

1.1 Von der Zeemanaufspaltung zum Kernspintomographen: Die magnetische Resonanz

Bereits vor mehr als einem Jahrhundert entdeckte Pieter Zeeman die Aufspaltung von optischen Übergängen in Atomen in einem äußerem Magnetfeld und legte damit die Grundlage für weitere Forschungen an magnetischen Momenten von Atomen und Teilchen [1]. Für diese Entdeckung wurde er 1902 zusammen mit seinem Lehrer Hendrik Antoon Lorentz, der die theoretischen Beschreibungen dazu lieferte, mit dem Nobelpreis geehrt. Indirekt war dies auch der erste Nachweis für Elektronen, die in einem Atom gebunden sind. Erst 20 Jahre später gelang es Walther Gerlach und Otto Stern, die Richtungsquantelung des magnetischen Moments von Silberatomen im äußeren Magnetfeld nachzuweisen [2]. Diese (zum damaligen Zeitpunkt noch unbewusste) Entdeckung des quantisierten Spins von Elektronen war der Grundstein einer fast 100-jährigen Erforschung von physikalischen Spin-Phänomenen. Bereits 1936 konnte Isidor Rabi die Störung der Präzessionsbewegung des Spins durch elektromagnetische Felder zeigen und eröffnete damit das große Feld der Forschung hinsichtlich der Spinmanipulation [3–5]. Im Jahre 1944 konnte der russische Wissenschaftler Jewgeni Sawoiski erste Experimente zur Elektron-Spinresonanz (ESR) durchführen, mithilfe eines Radar-Klystrons eines erbeuteten Panzers aus dem Krieg¹ [6]. Kurz darauf wurde bereits von ersten Ergebnissen hinsichtlich der Kernspinresonanz berichtet [7]. Die Kontrolle dieser Technologie und die Weiterentwicklung bis hin zu bildgebenden Verfahren in der Medizin sind heutzutage aus dem Alltag nicht mehr wegzudenken. Jedoch findet das grundlegende physikalische Konzept der magnetischen Resonanz noch weitere Anwendungen, vor allem in der Spin-Elektronik (kurz Spintronik).

1.2 Spinmanipulation in der Spintronik

Das Interesse an dem Zwei-Niveau-Spinsystem eines Elektrons ist wegen der fundamentalen und einfachen quantenmechanischen Beschreibungsmöglichkeiten hinsichtlich Manipulierbarkeit, aber auch aufgrund der Möglichkeit

¹Aufgrund der Entwicklung der Radartechnik und der damit verbundenen preiswerten Bauteile arbeiten heutige ESR-Geräte immer noch in diesem Frequenzband (10 GHz).

der Integration in elektronische Bauteile bedeutend [8]. Nicht zuletzt durch die Entdeckung des Riesen-Magneto-Widerstands konnte das Auslesen und Schreiben von Informationen, gespeichert in der Magnetisierung (also einer Ansammlung von mehreren Spins) in einem ferromagnetischem Material, realisiert werden [9, 10]. Der weitere Fortgang der Miniaturisierung von Bauteilen und Informationsspeichern treibt die Entwicklung hin zum quantenmechanischen Limit, der Speicherung von Informationen in einzelnen Spins. Die dabei eröffneten Möglichkeiten für neuartige Rechenoperationen und Algorithmen vor allem von gekoppelten Spinsystemen sind mittlerweile Bestandteil aktueller Forschung. Erste experimentelle Ergebnisse konnten bereits veröffentlicht werden [11, 12]. Ebenso kann der Spintransistor zukünftig möglicherweise den klassischen Halbleitertransistor ersetzen [13]. Das Schalten von einzelnen Spins gilt jedoch bis heute als Herausforderung, obwohl es mit der Methodik von ESR elegant durchgeführt werden kann [14, 15]. Daher ist es notwendig, die Anwendung dieser Technik für spintronische Bauelemente zu untersuchen.

1.3 Zielsetzung und Struktur der Arbeit

Ziel dieser Arbeit war es, den Ansatz der ESR für die Anwendung in spintronischen Bauteilen zu ermöglichen und damit den Nachweis zu erbringen, dass ein schnelles Schalten von Elektronenspins durch die gezielte resonante Anregung von Übergängen zwischen Spinzuständen möglich ist.

In Kap. 2 wird zunächst auf die aktuelle Entwicklung der Forschung hinsichtlich spintronischer Bauteile und Quantenbits im besonderen eingegangen. Die theoretischen Voraussetzungen werden dabei ebenso präsentiert wie unterschiedliche experimentelle Umsetzungen der Fragestellung. Das Konzept von Halbleiterquantenpunkten wird beleuchtet, und auf zwei in dieser Arbeit verwendete Konzepte der Bauteilrealisierung eingegangen. Den Abschluss des Kapitels 2 bildet die theoretische Grundlage der ESR, bevor alternative Methoden zur Spinmanipulation diskutiert werden.

Das folgende kurze Kap. 3 präsentiert den vorhandenen experimentellen Aufbau und die verwendeten Lasersysteme. Es werden die durch den Aufbau vorgegebenen limitierenden Größen diskutiert.

Das erste große Kapitel mit experimentellen Ergebnissen stellt Kap. 4 dar. Hier wird zunächst die genaue Struktur sogenannter Charge-Tuning-Proben vorgestellt. Die Möglichkeit, elektronische Zustände zu beeinflussen, wird anhand von Simulationen für dieses Bauteil erklärt. Die Funktion der Charge-Tuning-Bauteile wird zunächst erläutert und, wenn nötig, mit Theorie untermauert, bevor die spektroskopischen Ergebnisse präsentiert werden. Vor allem die Untersuchung von einzelnen Quantenpunkten und deren exzitonen Lumineszenzübergängen bilden den Hauptteil dieses Kapitels. Des Weiteren

wird das Bauteil auf die Eignung für die Speicherung von Ladungsträgern überprüft, was final auch bewiesen wird. Abschließend werden die eigenen Ergebnisse mit weiteren publizierten Ergebnissen und Proben verglichen.

Kap. 5 beschäftigt sich mit einem Bauteil, das elektrische Spininjektion ermöglicht: die Spininjektions-Leuchtdiode (Spin-LED). Der Schichtaufbau dieses Bauteils wird zunächst ebenfalls wie die Funktion erklärt. Die Optimierung der Lichtausbeute wird diskutiert, ebenso wie die Möglichkeit, mit diesem Bauteil die Emission einzelner Quantenpunkte zu detektieren. Nachdem gezeigt wird, dass sehr hohe Spininjektionseffizienzen erreicht werden können, werden zeitaufgelöste Messungen diskutiert. Gepulste elektrische Anregung ermöglicht diese Messungen, und der Charakter des emittierten Lichts der Quantenpunkte durch eben jene gepulste Anregung wird mit Korrelationsmessungen untersucht. Dabei zeigt sich, dass das Bauteil eine Einzelphotonenquelle ist und aufgrund der Eigenschaft der Spinausrichtung zu spintronischen Zwecken genutzt werden kann. Das Kapitel endet mit einer vergleichenden Betrachtung mit Bezug auf andere Realisierungen zur elektrischen Spininjektion.

Das abschließende Kapitel 6 ist den Experimenten und dem Aufbau für die ESR gewidmet. Eine Argumentationskette für den gewählten Ansatz zur Spinmanipulation wird dargelegt. Es folgen Simulationen, die die weitere Optimierung des Aufbaus erlauben. Die experimentelle Umsetzung der theoretischen Grundlagen und die damit erzielten Ergebnisse bilden den Hauptteil dieser Arbeit. Zuerst wird die Funktion des neuen Aufbaus mit der Kompatibilität zu den bestehenden experimentellen Aufbauten erläutert und schließlich getestet. Die theoretischen Grundlagen für die Manipulationsexperimente mit Spin-LEDs eröffnen den Ergebnisteil des Kapitels. Hier wird zunächst gezeigt, dass Spinmanipulation im Spinausrichter des Bauteils erfolgreich durch Photolumineszenzmessungen detektiert werden kann. Zeitaufgelöste Messungen erlauben einen Einblick in die Spindynamik. Die experimentellen Bedingungen können an diesem System optimiert werden, so dass als Abschluss des Kapitels die erfolgreiche Spinmanipulation des Injektionsprozesses in die Quantenpunkte einer Spin-LED anhand von Elektrolumineszenzmessungen nachgewiesen werden kann.

2 Grundlagen

Bevor der Hauptteil dieser Arbeit vorgestellt wird, soll in diesem Kapitel eine kurze Einführung in das Thema gegeben und der wissenschaftliche Kontext dieser Arbeit aufgearbeitet werden. Dies bedeutet, dass Grundlagenwissen im Bereich der Halbleiterforschung vorausgesetzt wird und nur speziellere, für das Verständnis der vorliegenden Arbeit nötige Dinge erläutert werden. Hierbei wird zuerst auf die Bedeutung der Spintronik eingegangen (Elektronik in Kombination mit dem Eigendrehimpuls von Elektronen) und der aktuelle Stand der Forschung auf diesem Gebiet dargelegt. Des Weiteren werden unterschiedliche Umsetzungen für die Realisierung sogenannter Quantenbits (Qubits) vorgestellt, bevor die Bauteile präsentiert werden, welche zentral in dieser Arbeit untersucht wurden. Abschließend werden Mechanismen aufgezeigt, die mögliche Operationen (vergleichbar zum Schalten eines klassischen Bits) auf den zuvor genannten Systemen erlauben.

2.1 Stand der Forschung der Spinoptoelektronik

Das Feld der Forschung im Bereich der Quanteninformationsverarbeitung ist zu groß, um es im Rahmen dieser Arbeit vollständig wiedergeben zu können. Jedoch sollen dem Leser zu den bearbeiteten Themen im Hauptteil alternative und konkurrierende Ergebnisse vorgestellt werden. Dadurch sollen Einblicke in andere Forschungsprojekte weltweit gegeben werden, damit sich der Leser ein objektives Bild machen kann.

Die Nutzung des magnetischen Moments von einzelnen Elektronen als Informationsträger wurde schon in den 1990er Jahren in den Bell-Laboratories durch die Entwicklung des Spin-Transistors vorangetrieben [16]. Die Vorteile im Vergleich zum herkömmlichen Transistor liegen auf der Hand: Nicht nur die Energie, die zum Schalten des Transistors benötigt wird, kann dadurch verringert werden, auch die minimalen Schaltzeiten sind im Spin-Transistor schneller, da keine größere Ansammlung von Ladungen transportiert werden muss, sondern lediglich die vorhandene Ausrichtung des Spins in eine höhere (oder niedrigere) Anregungsstufe erfolgen muss [17]. Durch die Tatsache, dass der Elektronenspin zusätzlich noch quantisiert ist, ergibt sich zudem die Möglichkeit der Verwendung als Qubit [18]. Bevor nun aber Letzteres diskutiert und eine Übersicht über potenzielle Realisierungsmöglichkeiten für Qubits aufgezeigt wird, sollen Bedingungen erörtert werden, die mögliche theoreti-

sche Realisierungen erfüllen müssen. Anschließend folgt ein Vergleich mit anderen Qubit-Realisierungen, mit denen sich das in dieser Arbeit verwendete System vergleichen kann und muss.

2.2 DiVincenzo-Kriterien

Bereits vor mehr als 10 Jahren hat DiVincenzo mehrere Kriterien postuliert, die ein Quantenbit erfüllen muss [19]. Dieses Lastenheft (oder auch Checkliste) gilt es zu erfüllen, wenn man ein physikalisches System als Grundbaustein für einen Quantencomputer in Betracht ziehen will.

1. Skalierbarkeit

Um ein Gatter von mehreren Qubits herstellen zu können, muss das System skalierbar sein, das heißt, ausgehend von einzelnen Qubits auf ein System mehrerer Qubits erweiterbar sein. Einzelne Qubits müssen für Rechenoperationen miteinander wechselwirken können.

2. Initialisierbarkeit

Zu Beginn einer Rechenoperation muss das System in einen definierten Ausgangszustand gebracht werden können.

3. Speicherung und Dekohärenzzeiten

Um eine Operation durchzuführen, muss das System gewährleisten, dass es für die Zeit des Rechenschrittes nicht zerfällt und darüber hinaus noch in Phase (kohärent) bleibt.

4. Manipulation

Das Schalten zwischen Grundzustand und Anregungszustand muss möglich sein.

5. Auslesbarkeit

Nach einer durchgeführten Rechenoperation muss mindestens eines der Qubits ausgelesen werden können, das heißt, der Zustand in einem Qubit muss messbar sein.

Sind diese fünf Voraussetzungen erfüllt, ist es möglich, einen Quantencomputer zu entwickeln, der auf diesem System basiert. Aktuell wird an verschiedenen Realisierungen gearbeitet, um diese Kriterien zu erfüllen.

2.2.1 Mögliche Systeme für Qubits

Generell kann jedes quantenmechanische Zwei-Niveausystem für die Umsetzung eines Qubits genutzt werden. Im Folgenden werden nur die momentan erfolgreichsten Forschungsgebiete erwähnt:

Supraleitende Qubits

Supraleitende Materialien werden in sogenannten SQUIDS (engl. *Superconducting quantum interference devices*) zur Realisierung unterschiedlicher Qubits verwendet [20]. Die Möglichkeit der Kopplung an Mikrowellenfelder, Photonen oder Atome ist ein großer Vorteil und ermöglicht Schaltzeiten auf einer Nanosekunden-Zeitskala. Nachteile liegen in den ebenfalls schnellen Dekohärenzzeiten (1–10 μs). Basierend auf mesoskopischen Josephson-Schaltkreisen unterscheidet man generell drei Arten von Qubits:

1. Ladungs-Qubits (engl. *charge qubits*)

Bei dieser Art Qubit wird zwischen den Zuständen "Ladung vorhanden" und "Ladung nicht vorhanden" unterschieden. Dabei handelt es sich bei einem Supraleiter um durch den Josephson-Kontakt tunnelnde Cooper-Paare in eine kapazitiv gekoppelte Box [21]. Durch das Anlegen einer Spannung kann über den Kondensator zwischen den Zuständen geschaltet werden.

2. Phasen-Qubits (engl. *phase qubits*)

Phasen-Qubits basieren auf dem Josephson-Effekt und der Phasendifferenz der Wellenfunktionen bei potentialfreiem Zustand an einem Josephson-Kontakt [22, 23]. Dabei werden die beiden niedrigsten Energieniveaus eines Josephson-Kontaktes bei unterschiedlichen Strömen betrachtet. Da der Strom von der unterschiedlichen Phase der Wellenfunktionen der Cooper-Paare vor und nach dem Josephson-Kontakt abhängt, kann man hier verschiedene Zustände über die Josephson-Gleichungen definieren. Daher werden diese Art von Qubits Phasen-Qubits genannt.

3. Fluss-Qubits (engl. *flux qubits*)

In einer Leiterschleife mit einem oder mehreren Josephson-Kontakten kann der Strom entweder im oder gegen den Uhrzeigersinn fließen. Diese magnetischen Flüsse sind Vielfache der magnetischen Flussquantisierung und können ebenfalls als Zustände für Qubits genutzt werden [24–26].

Ein weiterer Nachteil bildet die technologische Umsetzung und Herstellung der benötigten Josephson-Kontakte und Schaltkreise. Im Konkreten ist der Herstellungsschritt für die einzelnen Josephson-Kontakte einer gewissen Statistik unterlegen, die die Reproduzierbarkeit dieser Bauteile limitiert. Dies ist der Grund, warum sich das Herstellen von hochskalierten Systemgattern von mehreren Qubits als nichttrivial gestaltet [20].

Ionen in Ionenfallen

An der Universität Innsbruck wird in der *Quantum-Optics-and-Spectroscopy*-Gruppe um Prof. Dr. Rainer Blatt an der Realisierung von mehreren Qubits mit verschränkten Zuständen geforscht. Hierbei wurde 2001 nachgewiesen, dass elektronische Zustände in 14 Kalziumatomen als Qubits verwendet werden können und deren kohärente Manipulation mithilfe von Laserlicht möglich ist [27–29].

Stickstoff-Fehlstellen in Diamant

Diamant ist ein weiteres interessantes Material, bei dem vor allem Farbzentren wie z.B. Fehlstellen in Verbindung mit einzelnen Stickstoffatomen (NV-Zentren) eine bedeutende Rolle spielen (engl. nitrogen-vacancy centers (NV-centers)) [30]. Da deren Eignung für Einzelphotonenquellen auch bei Raumtemperatur nachgewiesen ist, ist dieses Material von besonderer Bedeutung [31]. Hier kann entweder der Spin von negativ geladenen NV-Zentren oder der Spin eines einzelnen Kohlenstoff-Isotops (^{13}C) als quantenmechanisches System genutzt werden. Elektronenspin-Kohärenzzeiten von über 2 ms konnten bereits gemessen werden [32]. Die Reproduzierbarkeit der Proben und damit eine mögliche Skalierung des Systems war lange Zeit eine der größten Herausforderungen, jedoch gibt es seit kurzem auch hierzu Publikationen die belegen, dass auch Fehlstellen im Diamantgitter gezielt orientiert werden können [33].

Photonen

Die Polarisationszustände von Photonen können ebenfalls als Quanteninformationsträger verwendet werden. Da diese Zustände über mehrere Kilometer durch Glasfasern übertragen werden können, eignen sie sich besonders für die Quantenkommunikation und Quantenkryptographie. Die Gruppe um Anton Zeilinger aus Wien hat 2012 gezeigt, dass Quantenteleportation über 143 km möglich ist [34].

Der Eigendrehimpuls von Elektronen, Atomkernen und Molekülen

Die Eigendrehimpulszustände (Spinzustände) eines Teilchens können auf quantenmechanischer Ebene auch für ein Qubit in Frage kommen. Dafür werden Teilchen benötigt, die mindestens ein ungepaartes Elektron besitzen oder deren Kernspin sich in Summe nicht zu Null addiert. Im einfachsten Falle betrachtet man ein einzelnes Elektron, bestenfalls lokalisiert an einem bestimmten Ort. Auf die Lebens- und Kohärenzzeiten wird in Kapitel 2.4.1 genauer eingegangen.

Die Möglichkeit, an diese Zustände mittels Photonen zu koppeln und damit Initialisierung, Manipulation und Auslesen dieser Zustände direkt zu ermöglichen, bilden den großen Vorteil dieser Realisierung eines Qubits. Auch die weitere Verwendung der generierten Photonen erweist sich vor allem für Quantenkryptographieanwendungen als sehr nützlich. Bekannte und erprobte Effekte wie Elektronenspinresonanz oder die Kernspinresonanz können hier direkt angewendet werden. Bei Kernspinresonanz-Experimenten an einzelnen Molekülen konnte bereits erstmals Shor's Algorithmus zur Faktorisierung der Zahl 15 mit sieben qubits realisiert werden [35]. Die Lokalisierung einzelner Elektronen in Halbleiterbauteilen bietet dagegen den Vorteil, dass gut entwickelte Halbleitertechnologien direkt übernommen werden können und eine Integration in vorhandene elektronische Strukturen und Bauteile problemlos erfolgen kann. Da der Kernspin an Atomrümpfen lokalisiert ist, genügt es oft, das entscheidende Atom geschickt zu platzieren. Für einzelne Elektronen gibt es unterschiedliche Herangehensweisen, die im Folgenden kurz genannt werden.

Das Implementieren eines einzelnen Phosphoratoms in einem Silizium-Transistor kann dazu führen, dass die Information des Spins des äußersten Elektrons in der Phosphoratomhülle in Form von Transistorschaltspannungen gemessen werden kann [36, 37]. Ebenfalls kann der Kernspin von einzelnen Phosphoratomen genutzt werden [38]. Dafür ist jedoch eine hochreine, einkristalline Siliziumprobe nötig, worunter die Reproduzierbarkeit des Systems stark leidet. Im Rahmen des Avogadro-Projektes¹ wurden hochreine Siliziumproben realisiert, deren minimale Unreinheit (Phosphor) geschickt genutzt werden kann.

Um das zufällige Vorfinden einzelner Atome oder Verunreinigungen in einem Volumenmaterial zu umgehen, können einzelne Elektronen durch andere Methoden mit Potentialwällen lokalisiert werden. Einzelne Elektronen in einem zweidimensionalen Elektronengas (2DEG) werden dabei mit lithographisch erzeugten, über dem 2DEG platzierten Elektroden eingefangen [39, 40]. Durch die aufgebracht Metallisierungen lassen sich bei geeigneter Geometrie und Spannung einzelne Elektronen aufgrund der vorliegenden Potentialbarrieren lokalisieren. Ist die Bewegungsfreiheit des Elektrons nun in allen drei Raumrichtungen eingeschränkt, so spricht man von einem (elektrostatischen) Quantenpunkt (engl. *quantum dot*, (*QD*)). Auch theoretische Betrachtungen von Quantenpunkten als mögliche Qubits wurden veröffentlicht [41].

Eine weitere, auch in dieser Arbeit verfolgte Herangehensweise, um Quantenpunkte herzustellen, nutzt die unterschiedliche Bandlücke verschiedener

¹Zur Neudefinition der Einheit kg wird an einer Möglichkeit geforscht, einzelne Atome in einer hochreinen Siliziumkugel zu zählen. Damit könnte das Ur-Kilogramm, das bis heute noch in der Metrologie verwendet wird, durch die Masse einer Anzahl (z. B. Avogadrozahl) von Atomen (Si) ersetzt werden.

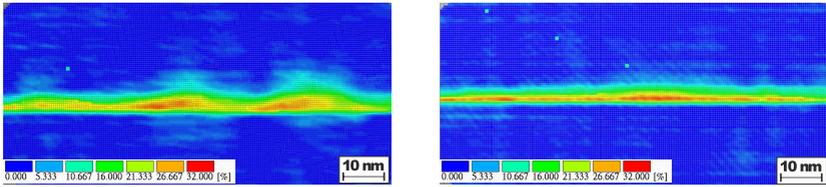


Abbildung 2.1: CELFA (engl. *Composition Evaluation of Lattice Fringe Analysis*)) Analyse eines hochaufgelösten Transmissionselektronenmikroskopbildes (TEM) einer Schichtfolge mit InGaAs-Quantenpunkten: Die nanometergroßen Quantenpunkte mit erhöhter Indiumkonzentration (Farbkodierung) sind gut zu erkennen [43]. Gezeigt sind zwei unterschiedliche Arten von Quantenpunkten: links große und rechts kleinere InGaAs-Quantenpunkte mit größerer bzw. kleinerer Emissionswellenlänge in der Photo- bzw. Elektrolumineszenz.

Halbleitermaterialien. So bildet eine Ansammlung von Indiumgalliumarsenid (InGaAs) mit geringerer Bandlücke in einem Galliumarsenid-(GaAs)-Gitter von größerer Bandlücke einen nur wenige Nanometer großen Potentialtopf (siehe Abb. 2.1). Da die Ausdehnung des Potentialtopfs so gering ist, dass quantenmechanische Effekte eine wichtige Rolle spielen, spricht man von null-dimensionalen Strukturen. Hiermit können einzelne Elektronen oder Löcher eingefangen werden und nehmen wohldefinierte quantenmechanische diskrete Zustände an [42]. Da diese Systeme beliebig skaliert werden können, weil sie durch die Herstellungsbedingung per se in großer Anzahl (annähernd) äquivalent erzeugt werden können, erfüllen diese Quantenpunkte zum Teil schon das erste von DiVincenzo aufgestellte Kriterium. Darüber hinaus benutzt dieser Ansatz im Wesentlichen nur Halbleitertechnologien und Herstellungsverfahren, die für die heutige Schaltungsherstellung alltäglich geworden sind. Man verspricht sich dadurch eine einfache Implementierung der neuen Bauteile in etablierte Schaltkreise.

Im nächsten Punkt wird näher auf die verwendeten Quantenpunkte eingegangen.

2.2.2 InGaAs-Quantenpunkte

Bei einkristallinem Wachstum von GaAs mit Molekularstrahlepitaxie (engl. *molecular-beam epitaxy*, (MBE)) kann während des schichtweise erfolgenden Abscheidens die Zusammensetzung des Quellmaterials zu InAs gewechselt werden [45]. Aufgrund der unterschiedlichen Gitterkonstanten der beiden Materialien kommt es zuerst zu einem verspannten Wachstum der sogenannten Benetzungsschicht (engl. *wetting layer*, (WL)). Schließlich kommt es dann bei weiterem Aufbringen von InAs zur Inselbildung von InGaAs auf dem GaAs-

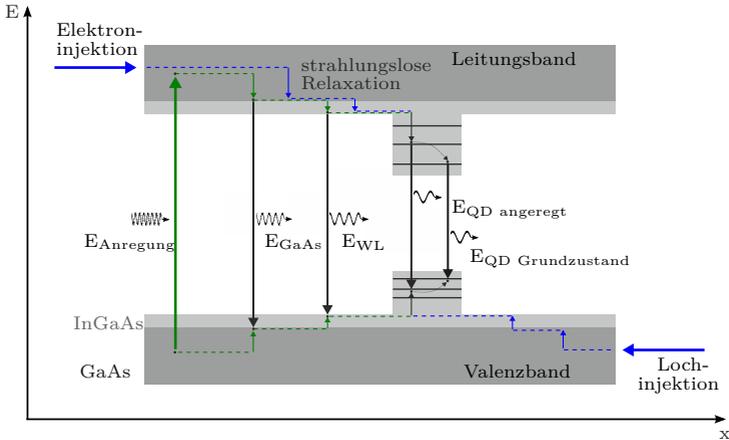


Abbildung 2.2: Bandstrukturschema eines InGaAs-Quantenpunkts mit Benetzungsschicht (WL) in einer GaAs-Matrix (vgl. [44]) zur Erklärung des Messprinzips der Photolumineszenz (PL) und Elektrolumineszenz (EL). Erfolgt eine optische Anregung über das GaAs, so relaxieren Elektronen und Löcher zu den für sie jeweils energetisch günstigeren Zuständen bis in den Quantenpunkt. Dabei kann es zu strahlender Rekombination (GaAs, WL und Quantenpunkten) kommen. Desweiteren können Elektronen und Löcher auch elektrisch injiziert werden, zum Beispiel in einem p-i-n-Übergang (siehe 5).

Substrat (Stranski-Krastanov-Wachstum).

Die Limitierung der Bewegungsfreiheit der Ladungsträger durch das Potenzial führt zur Diskretisierung der Zustände wie in einem Atom. Daher werden diese Quantenpunkte auch künstliche Atome genannt. Die Besetzung der Zustände kann optisch und elektrisch kontrolliert werden, und die schematische Bandstruktur und mögliche Rekombinationswege sind in Abb. 2.2 graphisch dargestellt [44]. Für die elektrische Injektion von Ladungsträgern sei an dieser Stelle auf Kapitel 5 verwiesen. Befinden sich Elektronen und Löcher gleichzeitig in einem Quantenpunkt, so bilden sich gebundene Mehrteilchenzustände, die Exzitonen genannt werden und nach einer gewissen Lebensdauer durch Rekombination zerfallen (siehe dazu Kap. 2.4.1).

Durch die Quantisierung der Zustände sowie die Gitterspannung und die damit verbundene Reduktion der Symmetrie im Quantenpunkt kommt es zu einer Aufhebung der Entartung der sogenannten Leicht- und Schwerloch-Zustände (engl. *light hole (lh)/heavy hole (hh)*). Diese Aufspaltung und die weitere Aufhebung der Entartung der Spinzustände $|+1/2\rangle$ und $|-1/2\rangle$ bei angelegtem externen Magnetfeld für das Leitungsband und äquivalent für das

Valenzband ist in Abb. 2.3 skizziert.

Eingezeichnet sind ebenfalls die optisch erlaubten Übergänge nach den optischen Dipolübergangs-Auswahlregeln [43]. Da die Rekombination zu den für die Löcher energetisch günstiger gelegenen Schwerlochzuständen am wahrscheinlichsten sind, beobachtet man ausschließlich diese Übergänge. Je nach Größe des Quantenpunktes und der damit verbundenen Tiefe des Potentialtopfes kann es auch gar nicht zur Besetzung der Leichtloch-Zustände kommen, da sie ggf. schon im Kontinuum der Zustände des Matrixmaterials GaAs liegen.

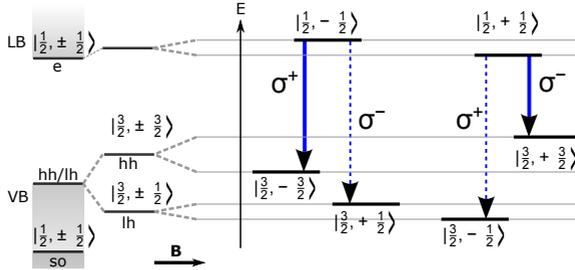


Abbildung 2.3: Elektronenübergänge in InGaAs-Quantenpunkten [46]. Da Elektron und Loch im Quantenpunkt am selben Ort lokalisiert sind, ist der Überlapp der Wellenfunktionen im Vergleich zum Volumenhalbleiter besonders groß und damit die Quantenpunktlumineszenz in den Spektren besonders prominent vertreten.

Die Polarisationen der emittierten Photonen der entsprechenden Übergänge sind nur dann zirkular polarisierte Eigenzustände (σ^+/σ^-), wenn keine Aufspaltung (zum Beispiel Spin-Bahn-Wechselwirkung) vorliegt oder ein äußeres Magnetfeld in entsprechender Geometrie ausreichend hoch angelegt ist (siehe auch Kapitel 4.3.2).

In dieser Arbeit werden alle Experimente so durchgeführt, dass das angelegte Magnetfeld in Probenwachstumsrichtung verläuft. Dies hat zur Folge, dass bei den Übergängen ausschließlich rein zirkular polarisierte Photonen in Magnetfeldrichtung emittiert werden, die direkt auf den Spinzustand des im Quantenpunkt gespeicherten Elektrons schließen lassen.

Der sogenannte zirkulare Polarisationsgrad (engl. *circular polarization degree (CPD)*) ist ein Maß für das Besetzungsverhältnis der Spinzustände im Leitungsband.

$$CPD = \frac{I_{\sigma^+} - I_{\sigma^-}}{I_{\sigma^+} + I_{\sigma^-}} \quad (2.1)$$

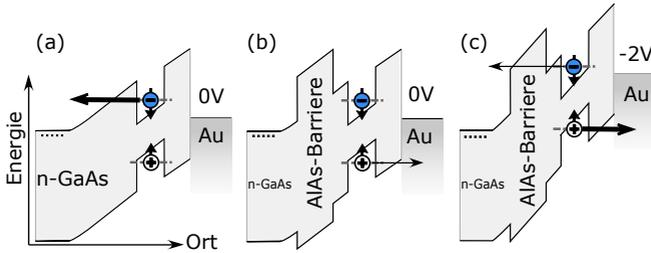


Abbildung 2.4: Verschiedene n-Schottkykontakte mit Tunnelwahrscheinlichkeiten (Stärke der Pfeile) in Abhängigkeit von Barrieren und angelegter Spannung für Elektron und Loch in einem Quantenpunkt. (a) kleine Barriere für Elektron ohne angelegte Spannung. (b) große AlAs-Barriere für Elektron, ohne angelegte Spannung. Hier kann nur das Loch tunneln. (c) Trotz großer Barriere ist bei angelegter Spannung ein Tunnelprozess möglich, um den Quantenpunkt zu leeren.

Dieser Wert wird genau $+1$ oder -1 , wenn alle Elektronenspins im Quantenpunkt komplett zu 100% $|up\rangle/|\uparrow\rangle$ oder $|down\rangle/|\downarrow\rangle$ polarisiert sind. Er ist Null, wenn das Besetzungsverhältnis $50\%/50\%$, also gleichverteilt ist.

Die in den folgenden Abschnitten beschriebenen Bauteile beinhalten alle InGaAs-Quantenpunkte und wurden mittels MBE gewachsen. Es werden kurz die Unterschiede in Struktur und Funktion erläutert.

2.3 Bauteile für die Injektion, Speicherung und das Auslesen von Spinzuständen in InGaAs-Quantenpunkten

Die in dieser Arbeit verwendeten Bauteile wurden in verschiedenen MBE-Anlagen gewachsen. Die im Abschnitt 4 erwähnten Charge-Tuning-Strukturen stammen aus der Gruppe von Prof. Dr. Andreas Wieck und wurden von Dr. Arne Ludwig aus Bochum gewachsen, sonstige Strukturen wurden am KIT von Dr. Daniel Rülke an der MBE des Centrums für Funktionelle Nanostrukturen (CFN) hergestellt. Alle Bauteile besitzen elektrische Kontakte.

2.3.1 Charge-Tuning-Strukturen

Bei einem Metall-Halbleiter-Kontakt (Schottky-Kontakt) bildet sich bei entsprechender Dotierung und Materialbeschaffenheit eine Bandverbiegung aus. Durch das Anlegen einer Spannung ist es möglich, diese Bandverbiegung im Halbleitermaterial durch elektrische Felder zu modifizieren. Platziert man obige Quantenpunkte in diesem elektrischen Feld F , so verschiebt sich die Übergangsenergie der Zustände $E_{\text{QD-Grundzustand}}$ aufgrund des *quantum-confined*

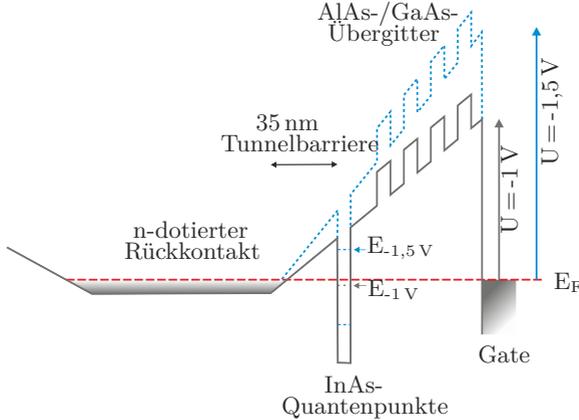


Abbildung 2.5: Bandstrukturschema einer Charge-Tuning-Struktur [44]. Durch die Variation der Gate-Spannung wird die Bandverbiegung des Schottky-Kontaktes modifiziert und damit die Wahrscheinlichkeit für die Besetzung elektronischer Zustände in den Quantenpunkten verändert. Bei stark negativen Spannungen (blau) liegt das Grundzustandsniveau des Quantenpunktes über dem Fermi-niveau, und Elektronen können aus dem Quantenpunkt in den elektronenreichen Bereich des n-dotierten GaAs Rückkontakt tunneln.

Stark effect um $\Delta E_{\text{QD-Grundzustand}}$ [47–50]. Es gilt folgender Zusammenhang [45]:

$$\Delta E_{\text{QD Grundzustand}}(F) = \mu_{\text{el}} F + \alpha F^2 \quad (2.2)$$

μ_{el} ist das permanente elektrische Dipolmoment und α die Polarisierbarkeit des exzitonen Dipols in Richtung des angelegten Feldes. Dabei kommt es zu einer Verschiebung der Wellenfunktion von Elektronen und Löchern. Dadurch ändert sich die Dipolstärke des Übergangs, und je nach Breite und Höhe der Barriere und nach Stärke des elektrischen Feldes F können die Ladungsträger sogar ganz voneinander getrennt werden. Es kommt dann zum Tunneln von Elektronen und Löchern aus den Quantenpunkten (siehe Abb. 2.4).

In dieser Arbeit wird eine n-GaAs-Schottkydiode mit optisch aktiven InGaAs-Quantenpunkten verwendet [51]. Dieses Bauteil ist ein reines III-V-Halbleiterbauteil mit einem transparenten Titan/Gold-Kontaktfeld (Gate) auf der Probenoberfläche. Zwischen den Quantenpunkten in einer intrinsischen GaAs-Schicht und dem Gate befindet sich eine ladungsträger-blockierende Schicht aus AlAs/GaAs. Es können daher keine Ladungsträger durch das Kontaktfeld in die Quantenpunkte injiziert, sondern nur elektrische Felder über den stark

n-dotierten Rückkontakt erzeugt werden (siehe Skizze der Leitungsbandstruktur in Abb. 2.5). Optisch erzeugte Ladungsträger können die Zustände in den Quantenpunkten wie in Abb. 2.2 dargestellt besetzen, und die Feldeffektstruktur ermöglicht das Auftrennen von Elektron–Loch-Paaren [52, 53]. Nach diesem Prinzip kann das Besetzungsverhältnis von Elektronen und Löchern durch die äußere angelegte Spannung eingestellt werden, was die Bezeichnung als Charge-Tuning-Struktur rechtfertigt. Dadurch wird die Detektion unterschiedlicher exzitonicer Komplexe in einem Quantenpunkt ermöglicht.

Weitere theoretische Details und Ergebnisse hierzu werden in Kapitel 4 diskutiert.

2.3.2 Die Spininjektionsleuchtdiode (Spin-LED)

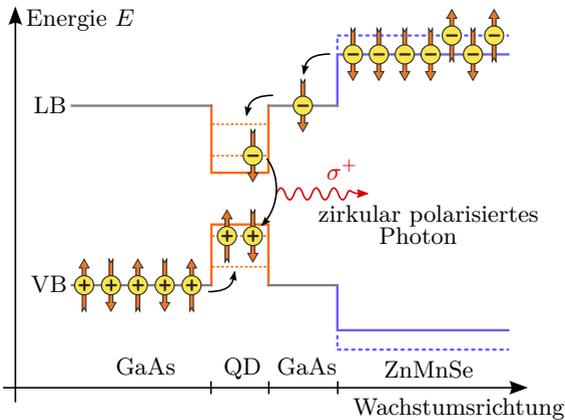


Abbildung 2.6: Bandstrukturschema einer Spin-LED [54]. Hier werden Löcher über eine p-dotierte GaAs-Schicht und Elektronen über eine n-dotierte $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schicht rein elektrisch in die Quantenpunkte injiziert. Durch die Wechselwirkung mit den Manganspins im Spinausrichter können die Elektronen bei angelegtem Magnetfeld spinpolarisiert werden. Man erhält zirkular polarisierte Emission bei der Rekombination von Elektronen und Löchern im Quantenpunkt.

Ein weiteres wichtiges Halbleiterbauteil, welches in dieser Arbeit behandelt wird, ist die sogenannte Spininjektionsleuchtdiode (Spin-LED). Sie besteht aus einem p–i–n-Übergang mit InGaAs-Quantenpunkten in der intrinsischen GaAs-Schicht. Hier wird ein p-dotiertes Substrat genutzt, über welches auch der Rückkontakt hergestellt wird. Als n-dotierte Schicht wird in diesem Fall ein semimagnetischer II–VI-Halbleiter verwendet, der gleichzeitig als Spinausrichter dient.

Durch ein Gold-Kontaktfeld können über eine Zuleitung Elektronen in die Struktur transportiert werden. Diese werden im Spinausrichter spinpolarisiert und in die Quantenpunkte injiziert. Hier rekombinieren die Elektronen mit den Löchern aus dem p-dotierten Rückkontakt, und Quantenpunkt-Elektrolumineszenz (EL) im infraroten Wellenlängenbereich kann detektiert werden (siehe schematische Bandstruktur mit Elektronen- und Löcherstrom in Abb. 2.6).

Als semimagnetischer Halbleiter wird $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ verwendet, wobei der Anteil an Mn in der Struktur eine entscheidende Rolle spielt [55]. Theoretische Betrachtungen hierzu und weitere Erklärungen finden sich in Kapitel 5 und Kapitel 6.

Vorab soll nur erwähnt sein, dass die direkte Rekombination von Elektronen und Löchern in dieser Struktur die Speicherzeit der Zustände im Quantenpunkt limitiert, da nicht, wie bei der Charge-Tuning-Struktur, die Ladungsträger räumlich voneinander getrennt werden können.

2.3.3 Die Spininjektions-Transistorstruktur

Eine Weiterentwicklung der Spin-LED bildet der Spininjektionstransistor. Die prinzipielle Idee dahinter ist das Hinzufügen weiterer funktioneller Schichten, um den Lochstrom zu kontrollieren und damit die direkte Rekombination von Elektronen und Löchern zu verhindern. Dafür wurden unterschiedliche Strukturen zuerst simuliert und schließlich realisiert [56–58]. Am erfolgreichsten war dabei die Realisierung mittels eines bipolaren Transistors [59]. Hierbei wurde auf das Substrat eine p–n–p-Transistorstruktur gewachsen, bevor das Wachstum der intrinsischen Schicht mit den Quantenpunkten und der n-dotierten ZnMnSe-Spinausrichterschicht wie bei einer Spin-LED erfolgte (siehe Abb. 2.7). Zusätzlich zum Rückkontakt über das Substrat und dem Spininjektionskontakt wird die Basis, die n-dotierte GaAs-Schicht lithographisch freigelegt und zur Kontaktierung mit Indium/Gold-Schichten präpariert. Eine fertig

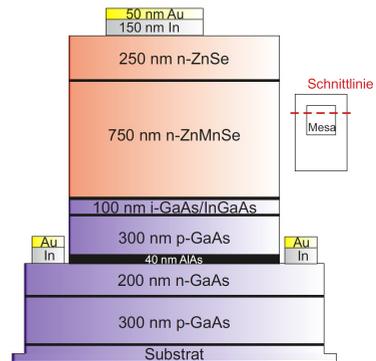


Abbildung 2.7: Wachstumsstruktur eines Spininjektionstransistors. Die Spininjektion findet wie bei einer Spin-LED durch die semimagnetische ZnMnSe-Schicht statt. Den Unterbau bildet ein bipolarer p–n–p-Transistor zum Schalten des Lochinjektionsstroms in die Quantenpunkte.

kontaktierte Probe ist in Abb. 2.8 zu sehen.

Das Schalten der Lumineszenz war dabei das vorrangige Ziel bei gleichzeitigem Erhalt der Funktion der Spininjektion. Es konnte gezeigt werden, dass die gezielte Injektion von Elektronenspins über die Spinausrichterschicht auch zeitverzögert wieder ausgelesen werden kann. Dies geschieht mittels einer gepulsten Spannung am Basiskontakt des Bauteils. Nach vorgegebenem Triggersignal kann dabei die Lumineszenz dieses Bauteils zum gewünschten Zeitpunkt ausgelöst werden. Die dabei erreichten Polarisationsgrade des Quantenpunktensembles waren vergleichbar hoch wie in Spin-LEDs ($CPD \approx 50\%$ [60, 61]). Ebenso konnte bei den Transistorbauteilen bei gepulstem Betrieb dieselbe Spininjektionsdynamik festgestellt werden, wie sie für Spin-LEDs publiziert wurde [59, 60].

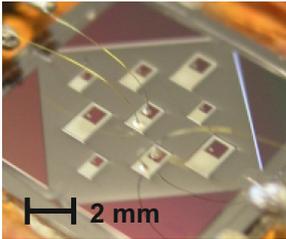


Abbildung 2.8: Kontaktierte Transistorbauteile: Die beiden elektrischen Zuleitungen für Basiskontakt und Spininjektion sind für zwei kontaktierte Bauteile zu erkennen.

Jedoch stößt man bei der hergestellten Dimensionierung des Bauteils schnell auf elektronischen Grenzen. Ein Betrieb im ns-Zeitregime ist aufgrund der Impedanz des Bauteils nicht mehr möglich. Die Komplexität in der Herstellung und der Empfindlichkeit auf externe Spannungspulse schränken die Funktion des Bauteils weiter ein. Dazu kommt, dass es mit drei elektrischen Kontakten einen erhöhten Präparationsaufwand aufweist, was vor allem für die Spinmanipulationsexperimente (siehe Kap. 6) eine Herausforderung ist.

2.4 Spinmanipulation in spintronischen Bauteilen

Da mit den bisher genannten Strukturen die Möglichkeiten der Skalierung des Systems, Initialisierung, Speicherung und Auslese bereits angedeutet wurde, soll im nun folgenden Abschnitt auf die unterschiedlichen Möglichkeiten der Spinmanipulation eingegangen werden.

Vor allem entscheidende limitierende Phänomene sollen dabei beleuchtet werden.

2.4.1 Lebensdauer und Kohärenzzeit

Lebensdauer von Ladungsträgern

Die δ -förmige Resonanz in der Zustandsdichte wird durch die Lebensdauer τ eines Zustandes im Quantenpunkt verbreitert. Da bei endlich hohe Barrieren nicht nur strahlende, sondern auch nicht-strahlende Rekombinationskanäle

vorliegen, zeigen diese Übergänge eine endliche Breite $\Delta\omega$ in der Energie-dispersion. Die Lebensdauer der Zustände im Quantenpunkt verkürzt sich antiproportional entsprechend der Breite der Lorentz-förmigen Peaks in der Zustandsdichte.

Für die Charge-Tuning-Strukturen können, wie oben beschrieben, aufgrund der Dissoziation von Elektron und Loch sehr lange Lebensdauern der Ladungsträger in den Quantenpunkten erreicht werden. Ladungsspeicherzeiten größer als 1 s sind hier publiziert [62]. Hier ist also eine direkte Spinmanipulation von Elektronen in den Quantenpunkten möglich.

Für die Spin-LED dagegen ist die Lebenszeit der Ladungsträger in den Quantenpunkten alleine durch die exzitonische Lebensdauer von ca. 1 ns begrenzt. Elektronen und Löcher werden zwar statistisch zeitversetzt injiziert, jedoch kann dies experimentell nicht erfasst werden. Bezüglich einer Spinmanipulation besteht dennoch die Möglichkeit, über die Elektronenspins des Mn wechsellzuwirken, da diese an den Mn-Ionen lokalisiert sind und nicht mit Löchern rekombinieren können. Die Manipulation der Spinzustände der Mn-Elektronen ist daher ein Mechanismus, den Spin der Elektronen, welche in die Quantenpunkte injiziert werden, indirekt zu manipulieren. Die Auswirkung auf den Spin der in die Quantenpunkt injizierten Elektronen wird in Abb. 2.9 verdeutlicht.

Durch eine Manipulation der 3d-Elektronen der Manganionen ändert sich die Wechselwirkung mit den Leitungsbandelektronen, und Löchern und die Riesen-Zeeman-Aufspaltung sinkt. Dies hat zur Folge, dass der Spinpolarisationsgrad im Spinausrichter und schließlich in den Quantenpunkten beeinflusst wird.

Die Lebensdauern der Elektronen in den Spininjektions-Transistorstrukturen konnte bisher nicht eindeutig bestimmt werden, da nicht absolut nachgewiesen werden kann, zu welchem Zeitpunkt das Elektron in den Quantenpunkt injiziert wird. Bei den Transistorstrukturen ist zudem bisher noch keine Betrachtung von einzelnen Quantenpunkten möglich.

Elektronenspinlebensdauer und -kohärenzzeit: Die charakteristischen Zeiten T_1 , T_2 und T_2^*

Die Lebensdauer eines definierten Spinzustands im Quantenpunkt hängt von mehreren Parametern ab und limitiert damit ebenfalls die Speicherzeit, in der eine mögliche Rechenoperation mit dem Zustand durchgeführt werden kann. Der Spin wechselwirkt mit anderen magnetischen Momenten, welche an dieser Stelle kurz erwähnt werden sollen, da sie mitunter eine entscheidende Rolle bei Spinmanipulationsexperimenten spielen.

Die Relaxation eines Spins durch Wechselwirkung mit dem Kristallgitter (phononenassistierte Spinrelaxation) des Halbleitermaterials ist ein möglicher

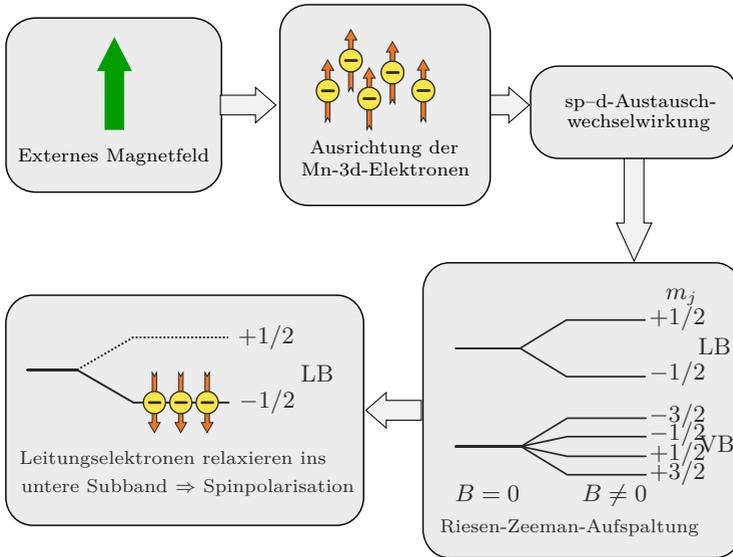


Abbildung 2.9: Funktionsweise der Spinausrichterschicht: Ein externes Magnetfeld richtet die fünf 3d-Elektronen der Mn-Ionen aus. Diese wechselwirken mit dem Leitungsband der ZnMnSe-Schicht, wobei es zur Riesen-Zeeman-Aufspaltung des Leitungsbandes kommt. Letzte ist bei hohen magnetischen Feldern und tiefen Temperaturen groß genug, so dass nur der energetisch tiefere Spinzustand besetzt wird. Die Möglichkeit, die Spins der Mn-3d-Elektronen zu manipulieren, kann daher Auswirkungen auf die Spinpolarisation der Elektronen im Leitungsband haben welche anschließend in die Quantenpunkte injiziert werden.

Zerfallskanal. Dabei wird der Spin an das Gitter (meist Fehlstellen oder das gesamte Kristallgitter) abgegeben. Die charakteristische Zeitkonstante wird als T_1 bezeichnet.

Die Spin-Spin-Wechselwirkung oder Spin-Spin-Relaxation ist eine weitere Möglichkeit für das Elektron, seinen definierten Spinzustand und damit die Kohärenz zu verlieren. Dabei können Flip-Flop-Prozesse eine Rolle spielen, weswegen die zugehörige charakteristische Zeit T_2 meistens noch kürzer ist als die Zeit T_1 .

Betrachtet man des Weiteren, dass die Wechselwirkung mit den magnetischen Momenten der Kerne von Atomen im Quantenpunkt, dargestellt durch ein effektives magnetisches Moment der Kerne, dem sogenannten Overhauserfeld, eine Rolle spielt, so kann dies ebenfalls eine Auswirkung bei der Messung des Spinzustands haben [63–65]. Das Overhauserfeld fluktuiert und führt, ge-

mittelt über mehrere Messungen, zu einer Dephasierung des Spins mit der charakteristischen Zeit T_2^* [66, 67]. Es gilt folgender Zusammenhang [68]:

$$2T_1 \geq T_2 \geq T_2^* \quad (2.3)$$

Der Spin eines einzelnen Elektrons in einem InGaAs-Quantenpunkt ist von der Umgebung der freien Elektronen ausreichend entkoppelt [69, 70]. Bei tiefen Temperaturen kann dieser sogar über Millisekunden im Quantenpunkt gespeichert werden [71]. Die Wechselwirkung mit den Kernspins jedoch zerstört die Kohärenz schon nach wenigen Nanosekunden [72]. Hier erweisen sich andere Qubit-Systeme als vorteilhafter. Ein Beispiel ist die Nutzung von p-artigen Lochzuständen, deren Wellenfunktion eine vernachlässigbare Aufenthaltswahrscheinlichkeit an den Kernen besitzt, wodurch keine Hyperfeinwechselwirkung messbar ist [73–75].

2.4.2 Repräsentation eines Quantenbits mithilfe der Blochkugel

Eine einfache geometrische Darstellung eines quantenmechanischen Zweiniveausystems oder Qubits ist mithilfe der Blochkugeldarstellung möglich, wie es für Zwei-Niveausysteme üblicherweise gemacht wird. Ausgehend von den beiden Basiszuständen

$$|\downarrow\rangle \equiv |0\rangle \quad \text{und} \quad |\uparrow\rangle \equiv |1\rangle,$$

welche auch Basisvektoren eines zweidimensionalen Hilbertraums bilden, werden durch Linearkombinationen mit den komplexen Zahlen α und β weitere mögliche Zustände wie folgt definiert:

$$|\Psi\rangle = \alpha |0\rangle + \beta |1\rangle. \quad (2.4)$$

Für die Normierung gilt:

$$1 = |\alpha|^2 + |\beta|^2 \quad (2.5)$$

α kann nun reell und positiv gewählt werden, da eine globale Phase φ für den physikalischen Zustand frei gewählt werden kann und nicht von Bedeutung ist. Damit ergibt sich folgende Gleichung

$$|\Psi\rangle = \cos \frac{\theta}{2} |0\rangle + e^{i\varphi} \sin \frac{\theta}{2} |1\rangle \quad (2.6)$$

mit $0 \leq \theta \leq \pi$ und $0 \leq \phi \leq 2\pi$. Alle Zustände lassen sich nun mit den Variablen θ und ϕ angeben. Da dies exakt der Beschreibung von Punkten auf der Einheitskugel entspricht, wird diese Kugel Blochkugel genannt. Ausgehend von beiden Basiszuständen an den Polen kann jede weitere Superposition als Punkt auf der Kugel angegeben werden. Abb. 2.10 zeigt einen beliebigen Zustand $|\psi\rangle$ auf der Blochkugel (aus [54]).

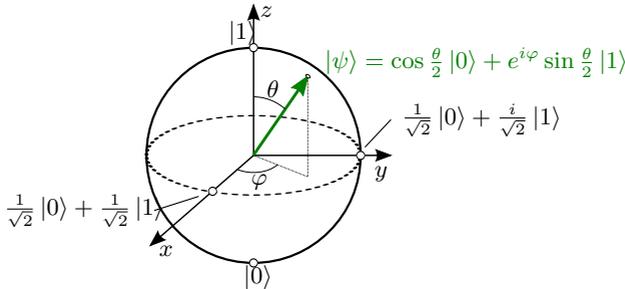


Abbildung 2.10: Elektronenspin-Zustände auf der Blochkugel. Durch eine Variablentransformation kann jeder beliebige Zustand eines quantenmechanischen Zwei-Niveausystems als Punkt auf der Blochkugel repräsentiert werden.

2.4.3 Elektronenspinresonanz (ESR)

Das allgemeine Phänomen der Spinresonanz ist ein physikalischer Mechanismus, der in der chemischen Analyse oder in den bildgebenden Verfahren der Medizin (Kernspintomographie) bereits seit Jahren technisch genutzt wird. Zugehörige technologische Komponenten weisen demnach einen hohen Entwicklungsstatus auf. Das Grundprinzip beruht darauf, dass die Entartung von Spinzuständen in einem externen Magnetfeld aufgehoben wird und eine elektromagnetische Welle mit richtiger (resonanter) Photonenenergie an das System koppeln kann. Dadurch werden Übergänge zwischen den Spinzuständen getrieben. In Abb. 2.11 ist dies für ein Spin-1/2-Teilchen (z. B. ein Elektron) skizziert. Die ESR bietet daher eine Möglichkeit, das Manipulationskriterium nach DiVincenzo zu erfüllen. Für die Photonenenergie muss für eine Resonanz gelten:

$$\hbar\omega = \Delta E = g_L \mu_B B_{\text{res}}. \quad (2.7)$$

Dabei sind g_L der Landésche g-Faktor, μ_B das Bohrsche Magneton und B_{res} die angelegte magnetische Feldstärke für den resonanten Fall.

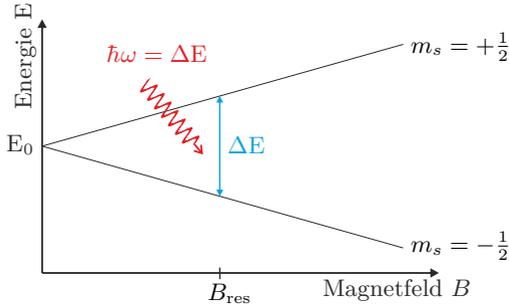


Abbildung 2.11: Zeeman-Aufspaltung eines Spin-1/2-Teilchens im Magnetfeld B . Das Phänomen der ESR tritt auf, wenn eine eingestrahlte elektromagnetische Welle mit Photonenenergie $E = \hbar\omega$ resonant zur Aufspaltung $\Delta E = g_L \mu_B B_{\text{res}}$ ist. In der Regel wird die Energie der eingestrahlten Welle konstant gehalten und das Magnetfeld variiert. Beim sehr feinen Verfahren des Magnetfelds wird dabei entweder die Absorption der eingestrahlten elektromagnetischen Welle als negativer Ausschlag oder das Besetzungsverhältnis der beiden Zustände direkt beobachtet.

Wenn dieser Übergang kontinuierlich getrieben wird, finden sogenannte Rabi-Oszillationen statt. Dies bedeutet eine Besetzungsozillation zwischen den beiden Zuständen $|\downarrow\rangle \equiv |0\rangle$ und $|\uparrow\rangle \equiv |1\rangle$. Der Spin rotiert dann spiralarartig auf der Blochkugel wie in Abb. 2.12 zu sehen. Stoppt man jedoch die Einwirkung der resonanten elektromagnetischen Welle nach genau einer Drehung des Spins um π , so hat man das Besetzungsverhältnis invertiert, und man spricht von einer π -Puls-Spinmanipulation.

2.4.4 Alternative Methode der Spinmanipulation

Optische Spinmanipulation mittels ps-Laserpulsen ist eine etablierte Alternative für kohärente Spinmanipulation [76–78]. Dabei werden meist Trionen-Übergänge in negativ geladenen Quantenpunkten genutzt; das äußere Magnetfeld ist im Gegensatz zu den Experimenten, die in dieser Arbeit beschrieben werden jedoch nicht parallel zur Wachstumsrichtung der Quantenpunkte (Faraday-Geometrie), sondern senkrecht dazu (Voigt-Geometrie) orientiert [79]. Da durch eine zirkuläre Anregung bei einem angelegten externen Magnetfeld nun Übergänge zwischen drei Energieniveaus stattfinden können, spricht man von einem Lambdasystem (Λ -System, siehe Abb. 2.13).

Eine komplexe Abfolge von Laserpulsen ermöglicht zuerst das Präparieren eines Spinzustandes (engl. *pump*), gefolgt von der Manipulation (engl. *control*) und schließlich dem Auslesen (engl. *probe*). Der Vorteil, eine schnelle Manipulation in wenigen Pikosekunden zu ermöglichen, bringt die Last der komplizierten Lasertechnologie mit sich [80]. Hinzu kommt, dass eine Mi-

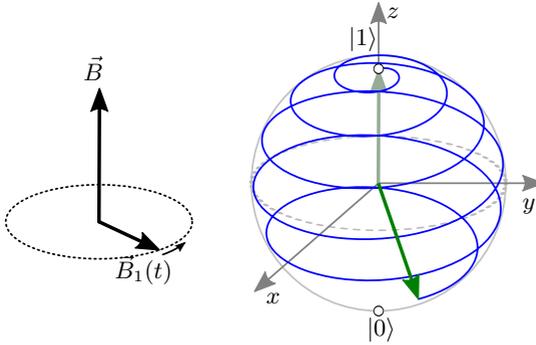


Abbildung 2.12: Spinflipvorgang auf der Blochkugel: Links das statische Magnetfeld \vec{B} für die Zeemanaufspaltung mit der oszillierenden Magnetfeldkomponente $B_1(t)$ der einfallenden resonanten elektromagnetischen Welle. Rechts ist die Rotation des Spins auf der Blochkugel für den resonanten Fall dargestellt. Der Übergang oder das Schalten zwischen den beiden Zuständen $|1\rangle$ und $|0\rangle$ wird dadurch ermöglicht.

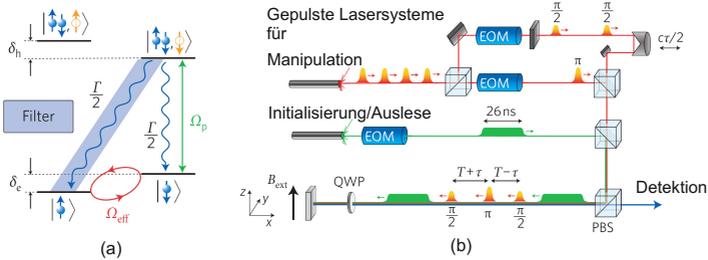


Abbildung 2.13: (a) Lambdasystem für das optische Spinpumpen und die optische Spinmanipulation. Durch mehrfaches Anregen des Übergangs Ω_p wird das System in den Zustand $|\uparrow\rangle$ gebracht. Anschließend kann eine Spinmanipulation Ω_{eff} zwischen den effektiven Zuständen $|\uparrow\rangle$ und $|\downarrow\rangle$ durchgeführt werden, bevor das Auslesen ebenfalls über den Übergang Ω_p durchgeführt wird. (b) Komplexes Laser-/Pulsystem für die experimentelle Umsetzung rein optischer Spininitialisierung, -manipulation und -auslese. Dabei können zur Spinmanipulation mehrere Pulse ($\pi/2$ - und π -Pulse) für Spinecho-Experimente verwendet werden, um die Kohärenz des Systems zu erhalten [79].

niaturisierung des Systems erschwert oder gar nicht möglich ist. Auch die Initialisierung ist hier ein nur wenig effizienter Prozess gegenüber z. B. der elektrischen Spininjektion in einer Spin-LED, da dieser Pumpprozess mehrfach wiederholt werden muss.

3 Experimenteller Aufbau

Bevor auf die Bauteile und die erzielten Ergebnisse im Detail eingegangen werden soll, wird in diesem Kapitel kurz der für alle weiteren Kapitel verwendete experimentelle Aufbau erläutert. Details bezüglich nötiger Umbauten vor allem hinsichtlich der Mikrowellen-Spinmanipulation werden im entsprechenden Kapitel genauer betrachtet. Alle Messungen wurden in einem magneto-optischen Kryostat durchgeführt, wie er mit dem optischen Aufbau in Abb. 3.1 zu sehen ist (eine ausführliche Beschreibung ist in [81] zu finden).

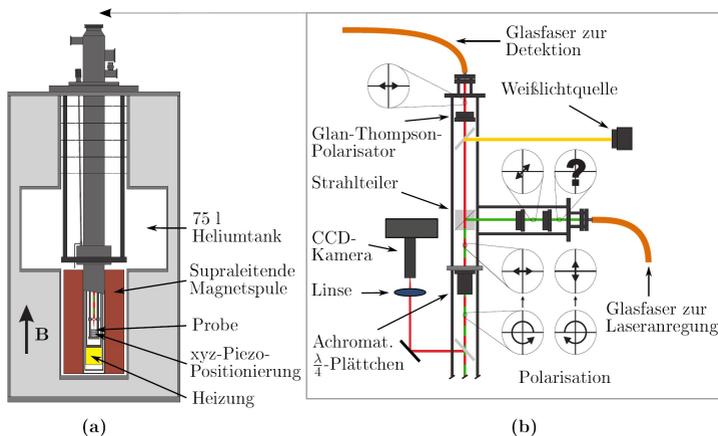


Abbildung 3.1: (a) Helium-Magnetskryostat mit Probeneinsatz für räumlich hochaufgelöste konfokale Lumineszenzmessungen zwischen 1,6 K und 315 K. Die Probenkammer (Durchmesser 50 mm) wird von der supraleitenden Spule umhüllt, die Magnetfelder von bis zu 14 T erzeugen kann. (b) Optische Analyse des Lichts: Detektion und Anregung linearer/zirkularer Polarisationsgrade ist variabel möglich. Zusätzlich kann durch eine Weißlichtquelle die Probe beleuchtet und mittels einer Kamera beobachtet werden. Glasfasern leiten das Licht zum Kryostat (Anregungslaser) und vom Kryostat zu einem Spektrometer für die Detektion und weitere spektrale Analyse des Lichts.

3.1 Magnetkryostat

Zur Messung der Proben bei kalten Temperaturen wird im Magnetkryostat flüssiges Helium verwendet, das aus einem Vorratstank (75l) durch eine die Probenkammer umspülende Austauschammer gepumpt wird. Durch ein Kontaktgas in der Probenkammer (meist Helium mit einem Druck von 300 mbar) wird die Probentemperatur über die Temperatur der Austauschammer, also den Helium-Durchfluss, eingestellt (Details siehe [81]). Es lassen sich Temperaturen zwischen 1,6 und 315 K in Abhängigkeit von zusätzlichen externen Wärmequellen (elektrisch deponierte Energie, hohe Laserlicht-Leistungen, Mikrowellen/Wellenleiter siehe Kapitel 6) einstellen.

Die Probe selbst ist unter einer kollimierenden Optik (einfache Linsen oder Mikroskopobjektive) auf einer xyz-Piezoverfahreinheit montiert. Dies erlaubt Fokussierung und Spektroskopie mit einer lateralen räumlichen Auflösung der Proben von 50–100 nm (bei Verwendung eines 60× vergrößernden Mikroskopobjektivs, $NA = 0,89$ [44]), selbst bei kalten Temperaturen. Hinsichtlich der Untersuchung von einzelnen Quantenpunkten ist dies neben der spektralen Auflösung, die durch den verwendeten Monochromator und das eingesetzte Gitter vorgegeben ist, ein essentieller Punkt.

3.2 Lasersysteme und Laseranregung

Für die optische Anregung von Halbleitersystemen für Photolumineszenzmessungen (PL) werden in dieser Arbeit unterschiedliche Lasersysteme verwendet. Die wichtigsten werden in diesem Abschnitt vorgestellt.

- **Ti:Sa-Lasersystem**
Das mit einem 532 nm frequenzverdoppelten Nd:YVO₄ Laser angeregte Titan-Saphir-Lasersystem kann zwischen kontinuierlicher Anregung, ps- und fs-Anregungspulsen umgebaut werden. Für die zeitlich aufgelösten PL-Messungen kamen Laserpulse von 3–4 ps zum Einsatz. Die Repetitionsrate des Lasers kann durch einen Pulpicker verringert werden, wenn keine hochfrequente Anregung möglich ist.
- **UV-Dioden-Laser**
Für PL-Messungen am Zn_{1-x}Mn_xSe-System der Spin-LED kam eine 405-nm-Laserdiode zum Einsatz. Ein selbstgebauter elektrischer Treiber ermöglicht das Pulsen dieser Diode und damit eine gepulste Anregung im ns-Bereich.

Beide Anregungslaser werden in optische Fasern gekoppelt und schließlich zum optischen Aufsatz des Kryostaten geführt. Hier wird das Licht nach der Auskopplung aus der Faser kollimiert und zur Probe im Kryostaten geleitet.

3.3 Auflösungsvermögen des optischen Aufbaus

Nach dem Verlassen des kollimierten Lichtes durch ein verkipptes Fenster am Kryostaten (Vermeidung von direkter Reflexion von Anregungslaser und Verhinderung von Fabry–Perot-Moden im Detektionsspektrum) werden alle nötigen Polarisations Transformationen durchgeführt. Eine $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte, die wenn nötig eingebaut werden kann, transformiert zirkulares in linear polarisiertes Licht. Ein linearer Nanopartikel-Polarisationsfilter selektiert die zu detektierende Polarisationsrichtung auf einem ansteuerbaren Rotationsaktor. Im Anschluss wird das Licht in eine Faser fokussiert. Zur spektralen Analyse wird das Licht der Detektionsfaser in einen Doppelmonochromator (1 m Brennweite, 2×1200 Linien/mm Gitter) eingekoppelt. Mithilfe einer CCD-Kamera (engl. *charge-coupled device*) können dann Spektren aufgenommen werden. Die höchstmögliche Auflösung ist dabei $20 \mu\text{eV}$ pro Pixel [82].

4 Manipulation von elektronischen Zuständen in Charge-Tuning-Bauteilen

Das folgende Kapitel beinhaltet die Ergebnisse an den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Charge-Tuning-Strukturen. Zuerst wird der Aufbau der Probe sowie die Simulation der Bandstruktur diskutiert, bevor im letzten Abschnitt auf die Ergebnisse der Einzelquantenpunktspektroskopie, Ladungsspeicherung und Auslese eingegangen wird. Diese Ergebnisse werden daraufhin mit anderen Ergebnissen von führenden Gruppen auf diesem Gebiet verglichen, sodass der Leser sich ein Bild über die Qualität der erreichten Erfolge machen kann.

4.1 Aufbau der Charge-Tuning-Proben

Der Herstellungsprozess von den in Kapitel 2 beschriebenen Charge-Tuning-Strukturen ist eine Weiterentwicklung von Bauteilen, die über Jahre hinweg bis zum heutigen Tag optimiert wurde. Am KIT hergestellte und in den Diplomarbeiten von Christoph Krämmer [83], Johannes Zeller [59] und Benjamin Wolter [84] untersuchte Strukturen lieferten erste Einblicke über die Funktion und Möglichkeiten Schottky-artiger Bauteile in der Spin-Optoelektronik, da zuvor nur Leuchtdioden untersucht worden waren. Da die Verwendung der Charge-Tuning-Strukturen für Spinmanipulationsexperimente in dieser Arbeit im Vordergrund steht, wurde in Zusammenarbeit mit anderen Universitäten auf bereits etablierte Proben und Probenherstellung zurückgegriffen. Die untersuchten Proben stammen von der MBE-Anlage aus Bochum unter der Betreuung von Dr. Arne Ludwig (Ruhr-Universität Bochum, Lehrstuhl für Angewandte Festkörperphysik, Prof. Dr. Andreas D. Wieck). Eine dieser Proben wurde an der Universität Basel von Gunter Wüst (Departement Physik, Prof. Dr. Richard J. Warburton) vorab untersucht und mit metallischen Kontakten versehen. Im Rahmen dieser Kooperationen wurden Proben zur Verfügung gestellt, die das Identifizieren verschiedener exzitonicer Komplexe ermöglichten. Im folgenden wird der genaue Aufbau der Probe erklärt.

Wachstum/Schichtfolge

Die Probe wurde auf einem undotierten GaAs-Wafer gewachsen, welcher zuerst mit einer 50 nm dicken Schicht intrinsischem GaAs überwachsen wurde,

gefolgt von einer glättenden 120 nm dicken Schicht aus AlAs/GaAs, einem Übergitter bestehend aus 30 mal 2 nm AlAs und 2 nm GaAs. Dies hat jedoch nur herstellungstechnische Gründe und ist von keinerlei Funktion, was auch von Simulationen (siehe Abschnitt 4.2.1) bestätigt wird. Nach einer weiteren 50 nm dicken aufgewachsenen intrinsischen GaAs-Schicht folgt das als Rückkontakt fungierende, hochdotierte, 50 nm dicke n-GaAs. Nach einer 35 nm dicken Barriere aus intrinsischem GaAs folgt das Wachstum der InGaAs-Quantenpunkte, die ebenfalls noch einmal mit 10 nm intrinsischem GaAs überwachsen werden. Dieser Schicht folgt das epitaktische Aufbringen eines weiteren 450 nm dicken Übergitters, bestehend aus 114 Wiederholungen von 3 nm AlAs und 1 nm GaAs. Nach einer letzten, 10 nm dicken intrinsischen Schicht GaAs wird das semitransparente Gate, bestehend aus 3 nm Ti (als Haftschicht) und 7 nm Gold, aufgebracht. Zuvor werden jedoch für die Kontaktierung der hochdotierten Rückkontaktschicht zwei Indium-Kontaktpads in die Strukturen eingelassen. Dabei werden zwei auf der Oberfläche aufgebraute Kontaktfelder aus Indium durch thermische Diffusion in ohmschen Kontakt mit der dotierten GaAs-Schicht noch unterhalb der Quantenpunkte gebracht.

Sowohl diese Indiumkontakte als auch das Gold-Gate können nun mit elektrischen Zuleitungen versehen werden, wodurch eine elektrische Kontaktierung ermöglicht wird. Das komplette Bauteil ist in Abb. 4.1 dargestellt.

Zwischen den zwei aufgebrauchten, eingelassenen Rückkontakten aus Indium kann die Kontaktierung der n-dotierten Schicht überprüft werden. Hier liegt bei korrekter Funktion ein sehr niederohmiger Kontakt vor. Durch die dicke Barriere zwischen den Kontakten Gate und Rückkontakt wird ein Stromfluss durch das Bauteil verhindert, und es können Spannungen zwischen -3 V und +1 V angelegt werden. Bei tiefen Temperaturen um 4,3 K fließt dabei kein bedeutender Strom (im nA-Bereich), erst bei 7 V zeigt die Diode Durchlassverhalten mit signifikant messbaren Strömen im mA Bereich.

Das Anlegen einer Spannung im oben genannten Spannungsbereich resultiert demnach nur in der Ausbildung eines elektrischen Feldes und hat zur Folge, dass sich die Bandstruktur wie in Abb. 4.2 verhält. Zur genaueren Betrachtung wurden Simulationen der Bandstruktur durchgeführt.

4.2 Elektronische Zustände in Schottky-artigen Charge-Tuning-Bauteilen

4.2.1 Simulation der Bandstruktur in einer Dimension

Ein von Tan *et al.* vorgeschlagener Ansatz für die selbstkonsistente Lösung von Schrödinger- und Poissongleichung wurde verwendet, um die obige Struktur

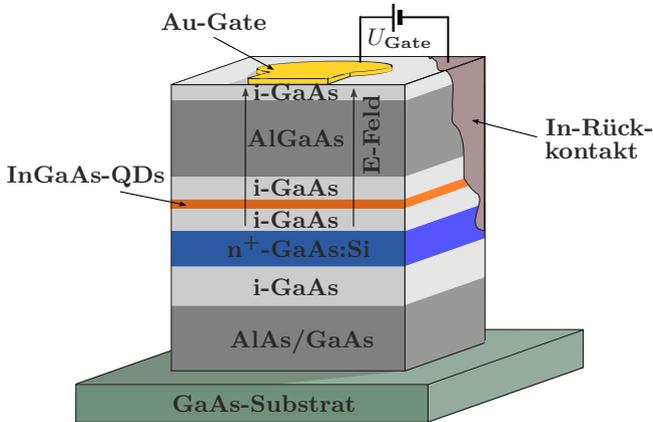


Abbildung 4.1: Aufbau der Charge-Tuning-Struktur. Mittels eingelassenem Indium wird eine Kontaktierung des n-dotierten Rückkontakts durch alle Schichten hindurch ermöglicht. Das transparente Gold-Gate bildet den zweiten Kontakt auf der Probenoberfläche. Die InGaAs-Quantenpunktschicht und eine stromblockierende AlAs/GaAs-Barriere befinden sich zwischen den beiden Kontakten.

in einer Dimension (1D) zu simulieren¹ [86]. Die Ergebnisse sind in Abb. 4.3 dargestellt.

Für stark negative Spannungen wird die Besetzung der Leitungsbandzustände in den Quantenpunkten immer unwahrscheinlicher, und Elektronen können den Quantenpunkt durch die dreiecksförmige GaAs-Barriere verlassen. Aufgrund der großen AlGaAs-Barriere sind die Löcher dagegen im Quantenpunkt lokalisiert, und eventuelle Tunnelprozesse treten erst bei noch höheren negativen Spannungen auf (siehe Abb. 2.4 und 4.2).

Es ist zu beachten, dass Quantenpunkte in dieser 1D-Simulation nicht absolut real dargestellt sind. Ein nicht unwichtiges Detail, das *Confinement* und die exakte Position des Grundzustandes im Quantenpunkt ist nicht berücksichtigt. Nichtsdestotrotz ermöglichen die Simulationen einen Einblick in die elektronischen Zustände der Strukturen und erlauben eine Abschätzung, bei welchen Spannungen die Besetzung der Zustände in den Quantenpunkten wahrscheinlich wird und wann Lumineszenz zu erwarten ist.

¹1D Poisson Solver, von G. Snider, zum freien Herunterladen auf <http://www3.nd.edu/~gsnider/> (2014)

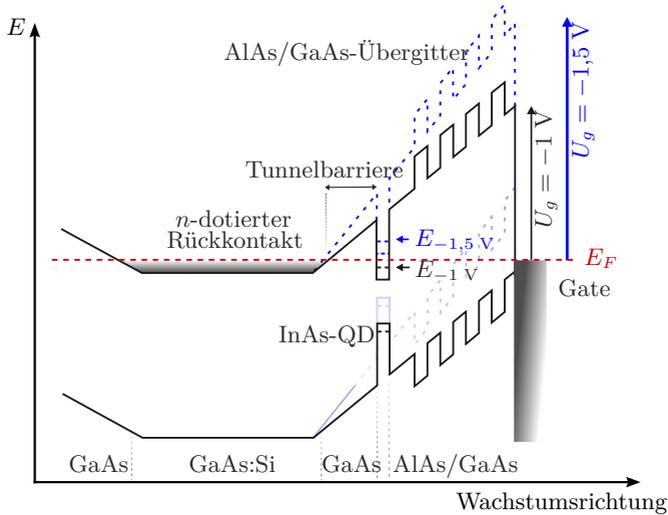


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung von Leitungs- und Valenzbandkantenverlauf [85]. Die Quantenpunkte befinden sich nahe des elektronenreichen Rückkontaktes und sind nur durch eine Tunnelbarriere davon getrennt. Die Besetzung der Zustände in den Quantenpunkten kann durch das Anlegen einer Spannung und damit einhergehendes Verkippen der Bandstruktur verändert werden.

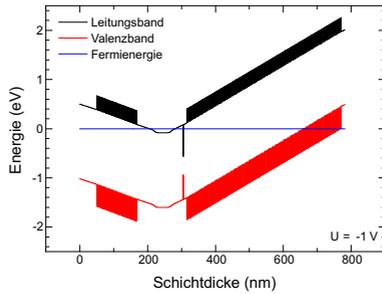
4.2.2 Bindungsenergien von Mehrteilchenzuständen in InGaAs-Quantenpunkten

Da sich mehrere Ladungsträger gleichzeitig in einem Quantenpunkt befinden können, wird die Rekombination von Elektronen und Löchern zu einem physikalischen Problem von Mehrteilchenzuständen. Den größten Einfluss auf die jeweilige Übergangsenergie hat dabei die Coulombwechselwirkung. Ausgehend vom neutralen Exziton X^0 werden die weiteren Übergänge von negativ/positiv geladenen Trionen (X^-/X^+) und dem neutralen Biexziton $2X^0$ anhand der vorliegenden Bindungsenergien diskutiert (siehe Abb. 4.4a).

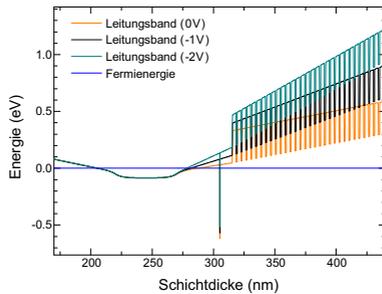
Der nun folgende Absatz orientiert sich an [44, 87, 88] und ist hier auf das Wesentliche zusammengefasst wiedergegeben.

Für die Coulombwechselwirkungsenergie C_{ij} zwischen zwei Ladungsträgern i und j der Ladungen $q_{i,j}$ und der Wellenfunktionen $\Psi_{i,j}$ in einem Quantenpunkt gilt nach [89]

$$C_{ij} = \int \int \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon\epsilon_0} \frac{|\Psi_i(\mathbf{r}_1)|^2 |\Psi_j(\mathbf{r}_2)|^2}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \quad (4.1)$$

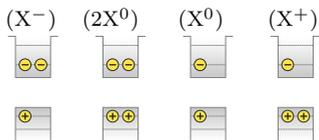


(a) Simulation der Charge-Tuning-Struktur: Zu erkennen sind Leitungs- und Valenzband sowie die Fermienergie für eine angelegte Spannung von -1 V .

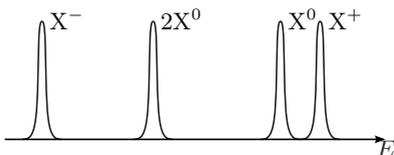


(b) Leitungsband in Abhängigkeit der Gate-Spannung. Zu erkennen ist die relative energetische Position der Quantenpunkte in Bezug auf das Fermienergielevel.

Abbildung 4.3: Simulationen der Bandstruktur zeigen die spannungsabhängige Verkipfung von Valenz- und Leitungsband. Die Besetzung der Zustände in den Quantenpunkten kann wie erwartet durch unterschiedlich hohe angelegte Spannungen kontrolliert werden.



(a) Besetzungsmöglichkeiten im niedrigsten Grundzustand eines Quantenpunktes. Nach Pauliverbot sind maximal zwei Ladungsträger der gleichen Sorte pro Energieniveau möglich.



(b) Aufgrund der Coulombwechselwirkung kommt es zu Energieverschiebungen für die Rekombination von Elektron und Loch in Abhängigkeit der im Quantenpunkt vorhandenen Ladungen.

Abbildung 4.4: Unterschiedliche exzitonsche Komplexe und deren relative Emissionsenergie aufgrund von unterschiedlichen Bindungsenergien in InGaAs Quantenpunkten.

Die Energie des Exzitons X^0 ergibt sich demnach aus der Summe der Grundzustandsenergien von Elektron $E(e_0)$ und Loch $E(h_0)$ unter Berücksichtigung der Coulombwechselwirkung der beiden Teilchen:

$$E(X^0) = E(e_0) + E(h_0) + C_{eh} \quad (4.2)$$

Äquivalent kann z. B. für ein positiv geladenes Trion errechnet werden:

$$E(X^+) = E(e_0) + 2E(h_0) + 2C_{eh} + C_{hh} \quad (4.3)$$

Mit den weiteren Zuständen im Quantenpunkt kann genauso verfahren werden. Je nach Stärke der anziehenden und abstoßenden Wechselwirkungen (aufgrund der materialabhängigen Vorzeichen und Stärken von C_{ij}) verschiebt sich somit die Emissionsenergie der einzelnen Übergänge, und sie sind wie in Abb. 4.4b dargestellt spektral aufgespalten detektierbar. Die Verschiebung der Emissionslinien für X^- , $2X^0$, X^0 und X^+ sind hier exemplarisch für das System der InGaAs-Quantenpunkte dargestellt.

4.3 Spektroskopie an Quantenpunkten in den Charge-Tuning-Strukturen

Die nun folgenden Ergebnisse sind mit dem in Kapitel 2 beschriebenem Photolumineszenzaufbau unter Verwendung eines 60-fach-Mikroskopobjektivs ($NA = 0,89$) erzielt worden. Zur Anregung der Probe kommt ein ps-Titan-Saphir(Ti:Sa)-Lasersystem zum Einsatz. Das gepulste Lasersystem wird vor allem in Unterkapitel 4.3.3 für die zeitaufgelösten Messungen von großer Wichtigkeit sein. Das Laserlicht wird in einer monomodigen Glasfaser zum optischen Aufbau geleitet. Die Anregungswellenlänge beträgt $\lambda = 736,8$ nm. Damit liegt die Anregungsenergie von $E_{\text{Laser}} = 1,68$ eV deutlich über der Bandlücke von GaAs. Neben der Volumenhalbleiteremission von GaAs (die auch durch unterschiedliche Dotierung beeinflusst ist) sind die Benetzungsschicht und vor allem die Lumineszenz von Quantenpunkten im Spektrum detektierbar. Da jedoch nur die Übergänge im Quantenpunkt von Interesse sind, werden ausschließlich die Ergebnisse von Einzelquantenpunktmessungen diskutiert.

4.3.1 Einzelquantenpunktspektroskopie

Da die Probe während des Wachstumsprozesses der Quantenpunkte nicht rotiert wurde, sind diese nicht homogen auf der Probe verteilt, sondern weisen einen Gradienten in ihrer Dichte auf [90]. Die verwendete Probe AC0002 entstammt dem Bereich der Probe mit geringer Quantenpunktdichte, der es ermöglicht, einzelne Quantenpunkte räumlich separiert zu spektroskopieren. Die gute räumliche Auflösung des Aufbaus sowie die spektrale Dispersion der Emissionswellenlängen aufgrund von statistisch unterschiedlich großen Quantenpunkten ermöglicht es bei Verwendung eines hochauflösenden Monochromators, einzelne Quantenpunkte zu untersuchen.

In Abb. 4.5 sind die Spektren eines einzelnen Quantenpunktes für unterschiedliche angelegte Spannungen zu sehen. Für verschiedene Spannungsregime sind dabei unterschiedliche Übergänge im Spektrum präsent. Räumlich aufgelöste Messungen beweisen, dass alle Linien vom selben Ort auf der Probe stammen und erlauben damit die Schlussfolgerung, dass es Übergänge eines einzelnen Quantenpunktes sind [44]. Da auch ein einzelner Quantenpunkt noch mehrere Übergänge aufgrund der Mehrteilchenzustände aus Abschnitt 4.2.2 aufzeigt, kann entweder auf vergleichende Messungen ähnlicher Proben zurückgegriffen werden (siehe [51]) oder, wie hier geschehen und im nächsten Abschnitt gezeigt, die Polarisation der Emission genauer analysiert werden, um den Ursprung der optischen Übergänge herauszufinden.

Eine Betrachtung der Bandstruktur kann jedoch auch schon Aufschluss über die unterschiedlichen Peaks geben. Wie oben erwähnt, steigt mit zuneh-

ment negativer Spannung die Wahrscheinlichkeit für den Tunnelprozess des Elektrons aus dem Quantenpunkt in den Rückkontakt, und die Zustände im Quantenpunkt verlieren an negativen Ladungsträgern. Sind bei 0 V bis -0,8 V noch mindestens zwei oder gar drei Elektronen im Quantenpunkt vorhanden, so reduziert sich die Anzahl auf ein einzelnes Elektron ab -1,1 V, und nur noch das neutrale Exziton X^0 kann detektiert werden. Für noch negativere Spannung erhöht sich die Wahrscheinlichkeit, mehr Löcher als Elektronen in den Quantenpunkten vorzufinden, und das positiv geladene Trion wird detektiert. Für die bei dieser Messung verwendete Anregungsleistung von $P = 1,5 \mu\text{W}$ tritt die Emission der biexzitonischen Linie nur schwach aber signifikant in Erscheinung. Die Leistung ist dabei nicht pro Puls sondern als kontinuierlich detektierte Leistung am Detektor erfasst. Dabei ist zu beachten, dass die hier angegebenen Leistungswerte der Anregung außerhalb des Kryostaten gemessen sind und sich um mehr als eine Größenordnung von der Leistung, die am Ort der Probe ankommt, unterscheiden (Faktor bis zu 3,8%, siehe [82]). Der Laserspot der Anregung besitzt dabei einen Durchmesser D im μm -Bereich.

4.3.2 Identifikation der Emissionslinien

Um die unterschiedlichen Regime für die Exzitonen genauer zu betrachten, ist es üblich, die Spektren zu einem sogenannten Konturplot zu akkumulieren. Dabei werden Spektren für feine Spannungsschritte ($\Delta U = 0,02 \text{ V}$) aufgenommen und deren Intensität in einem 2D-Graphen als Farbkodierung wiedergegeben. Ein solcher Konturplot ist in Abb. 4.6 zu sehen. Die unterschiedlichen Spannungsbereiche sind deutlich zu erkennen. Zudem sieht man, dass die Intensitäten der unterschiedlichen Übergänge untereinander konkurrieren, sodass die Emission der X^+ -Linie deutlich an Signal verliert, sobald der Spannungswert erreicht ist, bei dem die Intensität neutraler Exzitonen ansteigt. Die Befüllung der Quantenpunkte unterliegt dabei immer noch einer gewissen Messstatistik und ist nicht komplett vom Untergrund anderer Quantenpunktemissionslinien oder höheren Anregungszuständen desselben Quantenpunktes befreit. Dominant und für die weiteren Betrachtungen relevant sind jedoch die in Kap. 4.2.2 beschriebenen Übergänge.

Um die Emissionslinien weiter zu charakterisieren, wurde an den unterschiedlichen Übergängen die Feinstrukturaufspaltung gemessen. Aufgrund der Symmetriebrechung durch räumliche Anisotropie der Quantenpunkte spalten die unterschiedlichen Spinzustände weiter auf. Diese Feinstrukturaufspaltung in Richtung der beiden Hauptachsen der ellipsoidalen Quantenpunkte weist eine sehr geringe Amplitude ΔE_{FSS} auf, sie kann jedoch mithilfe eines Linearpolarisators durch die unterschiedlichen Polarisationskomponenten bei $B = 0 \text{ T}$ aufgelöst werden (siehe Abb. 4.7a). Daher ist es mit hochaufgelöster Spektroskopie möglich, bei kontinuierlichem Rotieren eines Linearpolarisators

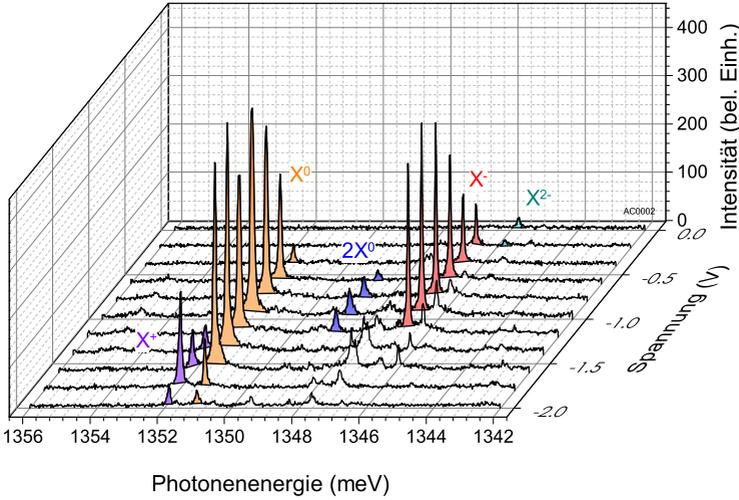


Abbildung 4.5: PL-Spektren eines einzelnen Quantenpunktes in Abhängigkeit der angelegten Gate-Spannung (Anregungsenergie $E_{\text{Laser}} = 1,68 \text{ eV}$ mit $P = 1,5 \mu\text{W}$) [44]. Je nach angelegter Spannung können verschiedene Übergänge beobachtet werden. Ausgehend von den Bandstruktursimulationen ist die Verkipfung des Leitungsbandes verantwortlich für das Tunneln von Elektronen aus den Quantenpunkten, und man beobachtet positiv geladene Zustände für stark negative Spannungen. Im Gegensatz dazu wird der Quantenpunkt bei nur schwach negativen Spannungen mit Elektronen geflutet, und die negativ geladenen Zustände werden bestetzt.

an einer neutralen Exzitonlinie (X^0) Oszillationen in der Photonenergie zu messen, wie in Abb. 4.8. Das negativ geladene Trion X^- besteht aus zwei Elektronen mit entgegengesetztem Spin und einem Loch mit 2 möglichen Spinausrichtungen. Es werden daher zirkular-polarisierte Emissionen und keine Feinstrukturaufspaltung erwartet. Analog wird für das positiv geladene Trion X^+ argumentiert. Beim biexzitonischen Zerfall muss zusätzlich der Endzustand betrachtet werden (siehe Abb. 4.7b). Da dieser Zerfall kaskadisch über die Rekombination eines Elektrons mit einem Loch vonstatten geht, ist der Endzustand das durch die Feinstruktur aufgespaltene neutrale Exziton, weswegen der erste Zerfall eine inverse Aufspaltung aufgrund des umgekehrten Spins aufzeigt (siehe Abb. 4.8).

Für die Messungen wurde jeweils die Spannung angelegt, für die die jeweilige Emission der entsprechenden exzitonischen Spezies die höchste Intensität aufwies. Für diskrete Positionen (in $3,6^\circ$ Schritten) des Linearpolarisators wurden Spektren aufgenommen, bis eine Rotation um 360° vollendet war.

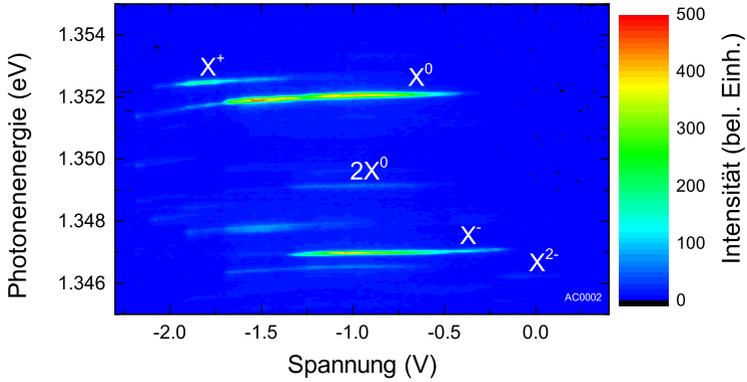
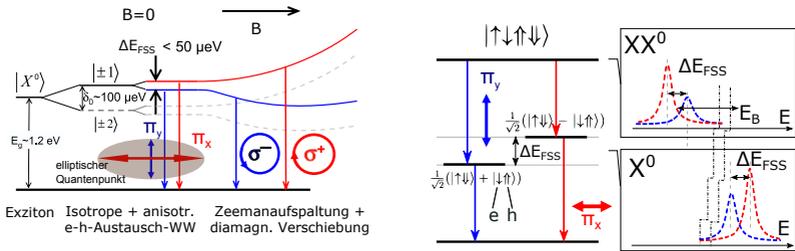


Abbildung 4.6: Ergebnis der Charge-Tuning-Messung im Konturplot: Die unterschiedlichen Spannungen, die nötig sind, um Lumineszenz der entsprechenden Emissionslinien der verschiedenen Exzitonen zu generieren, können hierbei direkt abgelesen werden.



(a) Aufspaltung der Zustände des neutralen Exzitons X^0 . Aufgrund der Anisotropie des Quantenpunkts spalten die Übergänge bei $B = 0$ T mit $\Delta E_{\text{FSS}} \approx 50 \mu\text{eV}$ auf.

(b) Biexzitonicer Zerfall als Kaskade über den exzitonicem Zerfall. Exziton und Biexziton-Aufspaltung besitzen daher unterschiedliche Vorzeichen.

Abbildung 4.7: Aufspaltung der Emissionslinien bis hin zur Feinstruktur für das Exziton X^0 und das Biexziton $2X^0$ [51, 91–93]. Die dunklen Zustände $|\pm 2\rangle$ können optisch nicht detektiert werden. Die Aufspaltung im äußeren Magnetfeld ist ebenfalls dargestellt.

Die dabei entstandenen Konturplots sind in Abb. 4.8 dargestellt.

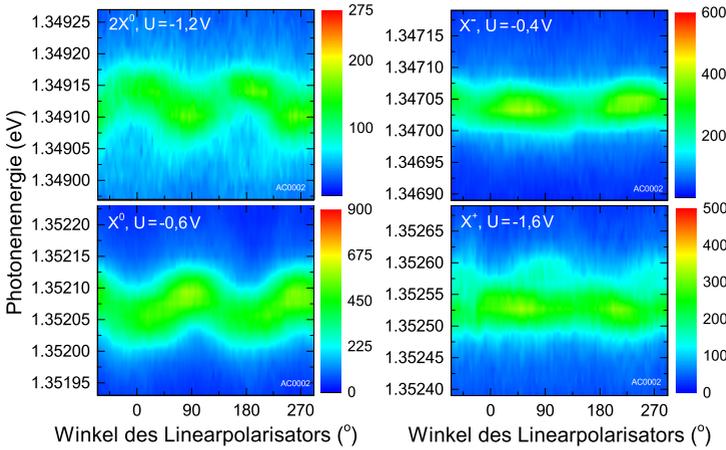


Abbildung 4.8: Feinstrukturmessungen eines einzelnen Quantenpunkts. Die Messungen wurden für die ladungsneutralen X^0 - und $2X^0$ -Emissionen durchgeführt, wobei sich eine Aufspaltung von ca. $35\text{ }\mu\text{eV}$ messen ließ. Die einfach geladenen triionischen Übergänge X^+ und X^- sind unabhängig von ihrer Polarisation und nicht aufgespalten.

Deutlich zu erkennen sind die korrespondierenden gegenläufigen Aufspaltungen der neutralen Emissionen (X^0 und $2X^0$) und die ausbleibende Aufspaltung der geladenen exzitonischen Spezies (X^+ und X^-). Die Oszillation der Emissionsenergie hat dabei eine Periode von 180° , wie es für einen ellipsoidalen Quantenpunkt zu erwarten ist.

Diese Messungen konnten bei mehreren Quantenpunkten und mehreren Spannungen mit demselben Ergebnis wiederholt werden, so dass beim alleinigen Betrachten der Struktur des Konturplots wie in Abb. 4.6 schon auf die entsprechenden Zustände geschlossen werden konnte. Um weitere Erkenntnisse der Zustände und deren Eignung als mögliches Qubit zu erforschen, muss zunächst geklärt werden, inwieweit sich diese Zustände in den Quantenpunkten speichern und wieder auslesen lassen. Im weiteren kommt die gepulste Anregung zum Tragen, und zeitaufgelöste Messungen erlauben die im nächsten Abschnitt folgenden Erkenntnisse.

4.3.3 Zeitaufgelöste Messungen und Zerfallszeiten

Um einzelne Übergänge zeitaufgelöst spektroskopisch zu untersuchen, wird ein Si-Einzelphotonenzähler (engl. *Single Photon Counting Module*, *SPCM*) verwendet. Er wird an dem Ausgang des nun als Monochromator verwendeten Spektrometers platziert und erlaubt die zeitaufgelöste Messung eines Signals mit einer Auflösung im Bereich von 0,8 ns. Die Repetitionsrate des Lasers von 75,75 MHz wurde mit einem Pulspicker auf nur jeden 40. Laserpuls und damit auf ca. 1,9 MHz reduziert. Dies ermöglicht eine erneute Initialisierung des Systems mit einer Periode von etwa $T = 565$ ns.

Es wurde zuerst der Zerfall der neutralen Exzitonlinie untersucht. Dazu wurden Gate-Spannungen gewählt, die charakteristisch für diese Emissionslinie sind. Für jeden Spannungswert wurde das Intensitätsmaximum durch Variation der detektierten Photonenenergie durch den Monochromator gesucht. Diese Positionen in Spannung und Photonenenergie sind im Einsatz von Abb. 4.9 als schwarze Kreuze markiert.

Dabei zeigt sich in Abb. 4.9, dass der Zerfall für negativere Gate-Spannungen deutlich langsamer ist als für die höchsten positiven Spannungen, bei denen noch Lumineszenz messbar ist. Für die letzteren konnten Zerfallszeiten von 1–2 ns gemessen werden [44], was der Lebenszeit von Exzitonen im betrachteten InGaAs-System ohne angelegte Felder entspricht. Man spricht daher von einer flachen Bandstruktur (engl. *flat band*). Für die negativen Spannungen ist die Wahrscheinlichkeit des Tunnelvorgangs schon so erhöht, dass sogar nur eine verzögerte Rekombination zu detektieren ist. So lässt sich mehrere 100 ns nach der optischen Initialisierung durch den Laser noch Rekombination von Elektronen mit Löchern beobachten, was die Eignung der Struktur als möglichen Speicher bestätigt.

Für weitere Linien (unterschiedliche Exzitonenzustände aber auch weitere andere untersuchte Quantenpunkte) konnte dieses Verhalten bestätigt werden (siehe dazu [44, 85]).

4.3.4 Ladungsspeicherung und getriggertes Auslesen

Um die Funktion als Speicherbauteil zu testen, wurde die angelegte Spannung moduliert. Dabei schaltet ein vom Laser getriggertem Funktionsgenerator die angelegte Gate-Spannung mit derselben Periode wie den Laser. Zum Einsatz kommen Rechteckpulse mit einer negativen Speicherspannung U_{speicher} von bis zu -2 V zum Zeitpunkt der Laserinitialisierung und Peakspannungen von $U_{\text{auslese}} \approx -1$ V zu einem späteren, frei wählbaren Zeitpunkt (grün in Abb. 4.10 skizziert). Dies verhindert die direkte Rekombination von Elektron und Loch zum Zeitpunkt der Ladungsträgerinitialisierung durch das Heraustunneln des Elektrons aus dem Quantenpunkt und ermöglicht die gezielte Injektion zum

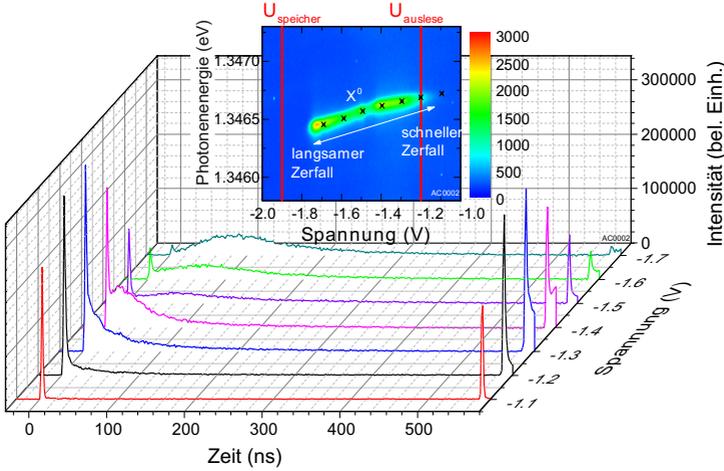


Abbildung 4.9: Zeitaufgelöstes Verhalten der Photolumineszenz bei unterschiedlichen konstanten Gate-Spannungen. Negativere Spannungen führen zu einem langsameren Zerfall. Die schnellste Zerfallszeit, die bei einer Gate-Spannung von 1,1 V gemessen werden konnte, beträgt 1,2 ns und entspricht der Lebenszeit eines Exzitons im InGaAs-Quantenpunkt ohne angelegte Felder. Für das in Kap. 4.3.4 behandelte Ladungsspeicher-Experiment kann die Spannung auch zwischen zwei Werten hin- und hergeschaltet werden (U_{speicher} und U_{auslese}).

späteren Zeitpunkt. Für die Auslesedauer von 100 ns ist die Bandstruktur durch die positivere Spannung wieder zum flachen Band gekippt, die Elektronen gelangen zurück in den Quantenpunkt, und die strahlende Rekombination ist zu beobachten (siehe Abb. 4.10).

Um die maximal mögliche Speicherzeit zu messen, wurde diese Messung für verschiedene Verzögerungen τ nach der jeweiligen Laserinitialisierung am Bauteil durchgeführt. Beim gepulsten Schalten von Spannungen kann es zu Impedanzeffekten während den ansteigenden und abfallenden Flanken der elektrischen Anregung kommen. Um auszuschließen, dass ansteigende (oder abfallende) Spannungen die Emissionslinie verschieben wie bei gewöhnlichen Charge-Tuning-Messungen, wurden mittels SPCM und Monochromator zeitaufgelöste Spektren aufgenommen. Diese sind in Abb. 4.11 zu sehen. Dabei wurde spektral über die Emissionslinie von 1,3444 bis 1,3453 eV gescannt und jeweils das SPCM-Signal in einem separaten Konturplot dargestellt (ähnlich dem Ergebnis einer Streackamera). Dies ist für jeweils 10 weitere Verzögerungszeiten mit $\Delta\tau_{\text{del}} = 10$ ns durchgeführt und zusammenhängend dargestellt. Man

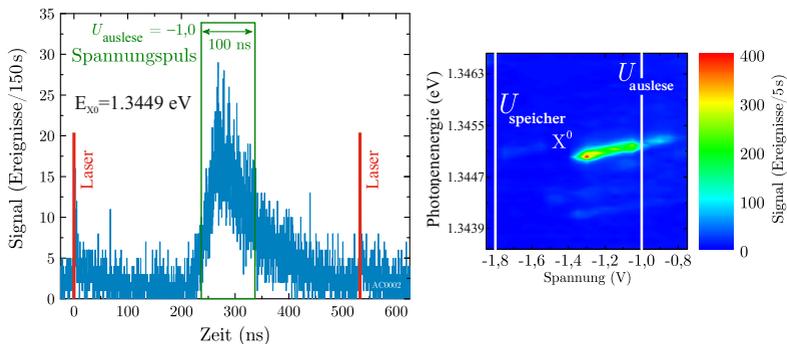


Abbildung 4.10: Zeitverzögerte PL in Abhängigkeit des Spannungspulses (grün). Die Rekombination setzt mit dem Umschalten der Spannung von U_{speicher} auf U_{auslese} ein.

kann erkennen, dass sich der Auslesevorgang auf einer Zeitskala von mehreren 100 ns nicht verändert und bei dieser Messung nur durch die darauffolgende erneute Laserinitialisierung begrenzt wird.

Dies bedeutet, dass man Ladungsträger, in diesem Fall Löcher, mehr als eine halbe Mikrosekunde in einem Quantenpunkt speichern kann.

Dieses Konzept soll nun im folgenden Abschnitt mit weiteren Proben und Ergebnissen, auch anderer Gruppen, verglichen werden, um abzusehen, ob diese Technologie für die Benutzung von Spinzuständen in Halbleiterquantenpunkten in Frage kommt.

4.4 Vergleichende Bewertung für die Möglichkeit, elektronische Zustände zu präparieren und zu speichern

In diesem Kapitel wurden Halbleiterstrukturen vorgestellt, die es ermöglichen, einzelne Ladungsträger in InGaAs-Quantenpunkten zu kontrollieren und zu speichern.

Die vorgestellte Probe, eine n-dotierte Schottky-Struktur, enthält Quantenpunkte im Bereich der (durch eine extern angelegte Spannung veränderlichen) Bandverbiegung des Schottky-Kontaktes. Simulationen der Bandstruktur zeigen, dass für unterschiedliche Spannungen die Besetzungswahrscheinlichkeit der Zustände in den Quantenpunkten variiert werden kann.

Mit Hilfe von Einzelquantenpunktspektroskopie ist es möglich, unterschiedliche exzitronische Komplexe in den Quantenpunkten zu detektieren und sie durch eine Kontrolle des elektrischen Feldes in der Probe gezielt zu adressie-

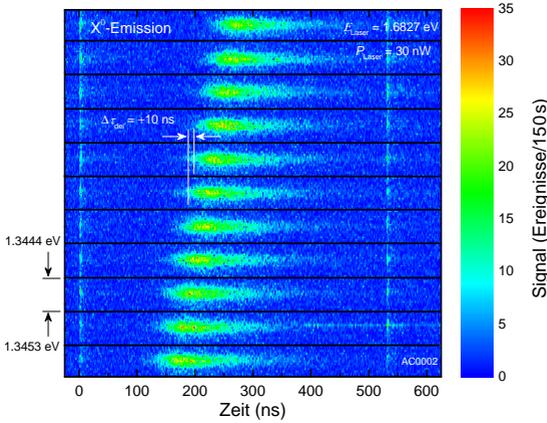


Abbildung 4.11: Spektral und zeitaufgelöster PL-Zerfall einer X^0 -Linie für um in Schritten von 10 ns versetzte Auslesepulse. Limitierend ist einzig die erneute Initialisierung nach mehr als 500 ns.

ren, d.h. deren Rekombination gezielt hervorzurufen. Die Identifikation der Übergänge von X^0 , X^+ , X^- und $2X^0$ konnten anhand der Feinstrukturaufspaltung der entsprechenden Übergänge eindeutig identifiziert werden.

Die angelegte Spannung an dem Bauteil bewirkt eine Bandverbiegung, so dass auftretende Tunneleffekte untersucht werden können. Dabei zeigt sich eine stark gate-spannungsabhängige Zerfallszeit der Lumineszenz bei zeitaufgelösten Messungen. Desweiteren konnten Exzitonen nach einer optischen Initialisierung mittels Laserpulsen, durch das geschickte Verkippen der Bandstruktur dissoziiert und die einzelnen Lochzustände im Quantenpunkt gespeichert werden. Die verzögerte Injektion eines Elektrons zu einem späteren Zeitpunkt ermöglicht die Rekombination der beiden Ladungsträger und damit das gezielte Auslesen der Lochzustände. Speicherzeiten von bis zu $0,5 \mu\text{s}$ konnten erreicht werden.

Abschließend werden die gewonnenen Ergebnisse mit weiteren extern untersuchten Proben verglichen.

Dieselbe Probenstruktur wie hier verwendet wurde auch in der Dissertation von Dr. Aashish Kumar Rai [94] von der Ruhr-Universität Bochum untersucht, wobei gezeigt wurde, dass ein Quantenpunkt mit dem oben beschrie-

benen Mechanismus als Einzelphotonenquelle nutzbar ist. Der Speicher- und Auslese-Mechanismus wurde dabei jeweils ebenso über die angelegte Spannung getriggert. Speicherzeiten von über $1\ \mu\text{s}$ konnten dabei erreicht werden.

Jedoch zeigen die oben verwendeten Proben nur die Möglichkeit einer Lochspeicherprobe auf, weswegen nach einer anderen Charge-Tuning-Struktur gesucht wird. Analog zu einem n-Schottky-Kontakt für Löcher kann eine p-Schottky-Struktur für Elektronen als Speicher fungieren, wie von Heiss *et al.* 2005 vorgeschlagen [92]. Hierbei konnten bei $T = 10\ \text{K}$ Elektronenspeicherzeiten von bis zu $1\ \text{ms}$ gemessen werden. Um von einem Ladungsspeicher zu einem Spinspeicher zu gelangen, wurde schon mehrfach gezeigt, dass dies mit optischer Spininjektion möglich ist [95, 96]. Dabei wird der Anregungslaser zirkular polarisiert, um eine definierte Spinausrichtung im Halbleiter zu erzeugen. Dies kann idealerweise direkt resonant im Quantenpunkt selbst oder aber auch mit größerer Anregungsenergie geschehen, sodass das Elektron möglichst ohne Spinverlust in den Quantenpunkt relaxieren kann. Auch bei Heiss *et al.* wird die Möglichkeit der optischen Initialisierung von Elektronenspins in Quantenpunkten aufgezeigt. T_1 -Zeiten (in Abhängigkeit eines äußeren Magnetfeldes) von der Größenordnung $1\ \text{ms}$ konnten gemessen werden.

2008 konnte die Forschergruppe um D. Heiss weitere Ergebnisse publizieren, bei der eine n-Schottky-Diode mit zusätzlicher Barriere zwischen Quantenpunkten und elektronenreichem Rückkontakt versehen war [97]. Dabei konnte gezeigt werden, dass die Barriere den Tunnelvorgang für das Elektron unterbindet und das Elektron dadurch gespeichert werden kann. Darüber hinaus konnte gezeigt werden, dass Spinspeicherzeiten auf einer Millisekunden-Zeitskala das Manipulieren einzelner Elektronenspins in diesen Strukturen theoretisch ermöglicht. In Zusammenarbeit mit der TU München werden nun diese Strukturen für die Mikrowellenmanipulation am KIT hergestellt. Erste Ergebnisse zeigten bereits, dass die Experimente mit dem Aufbau in Karlsruhe möglich sind und sich Elektronen in den Strukturen speichern lassen.

Die gewonnenen Erkenntnisse sind also vergleichbar, jedoch eignen sich andere Bauteile für die Speicherung von Spinzuständen besser als die bisher in Karlsruhe untersuchten Strukturen. Daher muss zukünftig an einer anderen Probe für Spinmanipulationsexperimente gearbeitet werden.

5 Spin-LED

Das folgende Kapitel befasst sich mit der Spininjektionsleuchtdiode, kurz Spin-LED. Dieses Bauteil wurde in der Arbeitsgruppe um Prof. Dr. H. Kalt und Priv.-Doz. Dr. M. Hetterich in den letzten 10 Jahren entwickelt und optimiert [98, 99]. Ziel war und ist es, ein Bauteil für elektrische Spininjektion in InGaAs-Quantenpunkte herzustellen. Dabei sollen die Vorteile von den in Kapitel 2.2.2 vorgestellten optischen Eigenschaften der Quantenpunkte ausgenutzt und mit der eleganten Art der Erzeugung von spinpolarisierten Strömen in verdünnten magnetischen Halbleitern kombiniert werden. Verdünnte magnetische Halbleiter erwiesen sich in vorausgegangenen Arbeiten als mögliche Materialien für die Herstellung spintronischer Bauteile [42, 99]. Im Folgenden wird zuerst der Schichtaufbau von Spin-LEDs, deren Funktion und Variationen erklärt, bevor die erzielten Ergebnisse diskutiert und schließlich mit weiteren Ergebnissen aus dem Bereich der Spin-Optoelektronik verglichen werden.

5.1 Probenaufbau von Spininjektionsleuchtdioden

Spin-LEDs unterscheiden sich im Wesentlichen in zwei Punkten von den bisher beschriebenen Strukturen. Zum einen ist ein p-i-n-Übergang anstatt des bisher verwendeten Schottky-Kontaktes realisiert, zum anderen wird mit $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ ein II-VI-Halbleiter verwendet, der in einer anderen MBE als die Quantenpunkte und das GaAs gewachsen wird. Dies kompliziert die Herstellung der Heterostrukturen, durch einen geschickten Umgang mit den Proben kann dies jedoch gemeistert werden.

Wachstum/Schichtfolge

Die Herstellung der Spin-LED erfolgt in zwei Abschnitten und wird, wie schon erwähnt, in zwei verschiedenen MBE-Anlagen durchgeführt. Dabei beginnt man mit dem Wachstum der III-V-Halbleiterschichten mit den InGaAs-Quantenpunkten. Es wird ein p-dotierter GaAs-Wafer verwendet, da dieser den Rückkontakt der Probe darstellt. Auf eine weitere p-dotierte GaAs-Glättungsschicht wird eine 100 nm dicke Schicht intrinsisches GaAs gewachsen, um die darauffolgenden optisch aktiven InGaAs-Quantenpunkte räumlich

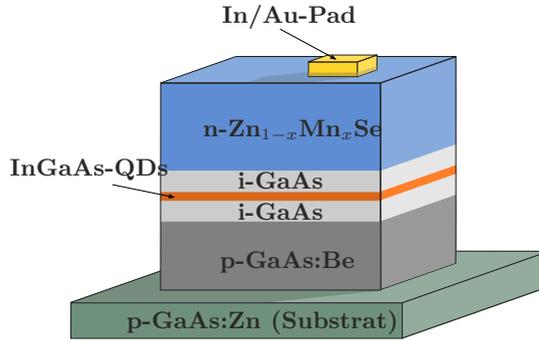


Abbildung 5.1: Aufbau einer Spin-LED: Auf einem p-dotierten GaAs-Substrat werden die InGaAs-Quantenpunkte in eine intrinsische Pufferschicht aus GaAs eingebettet. Die n-dotierte Schicht bildet der verdünnte magnetische Halbleiter $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se:Cl}$ [85].

von der stark dotierten Schicht zu trennen. Die Dicke der darauffolgenden intrinsischen GaAs-Pufferschicht ist mit 25 nm optimal für die Spininjektion, da die Quantenpunkte somit einen ausreichend großen Abstand zur semimagnetischen $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schicht besitzen. Der Abstand wurde auch hinsichtlich möglicher Spinstreuungsprozesse optimiert, um z. B. den im nicht zentrosymmetrischen GaAs auftretenden D'yakonov-Perel'-Mechanismus zu minimieren [43, 100].

Nun muss die III-V-Schicht mit einer Arsen-Deckschicht überwachsen werden, damit sie ohne Oxidation der obersten GaAs-Schicht in die nächste Epitaxieanlage in einem anderen Raum transferiert werden kann. Diese Schutzschicht kann in der II-VI-MBE Anlage auch nach monatelanger Zwischenlagerung in einem gut evakuierten Exsikkator wieder abgedampft und das kristalline Wachstum fortgesetzt werden. Beachtlich ist dabei, dass an dieser Grenzschicht die Spinstreuung sich durch mögliche Oxidationsprozesse oder kristallographische Fehlstellen nicht messbar erhöht, sofern Arsen als Schutzschicht aufgebracht wurde.

Ist das As abgedampft, so kann mit dem Wachstum der semimagnetischen $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se:Cl}$ -Schicht begonnen werden. Die Mangankonzentration kann dabei durch die Temperatur der Mn-Effusionszelle eingestellt werden, und ihre Rolle wird in Kap. 6.3.3 genauer erläutert. Für eine maximale Spinpolarisation zeigt sich, dass eine minimale Schichtdicke von 750 nm nötig ist [43, 58]. Die fertige Schichtstruktur der Spin-LED ist in Abb. 5.1 dargestellt.

Um eine elektrische Kontaktierung der Probe an der n-dotierten Schicht zu ermöglichen, wurde bei manchen Proben vor dem Aufbringen der metal-

lischen Kontakte eine weitere, ebenfalls n-dotierte ZnSe-Schicht gewachsen (meist 250 nm). Auch das Fräsen von Nahfeldoptiken für bessere Lichtauskopplung aus dem Bauteil kann in eine ZnSe-Schicht erfolgen, sofern diese mit ausreichender Dicke hergestellt wird (siehe dazu Unterkapitel A).

Für die elektrische Kontaktierung wird ein In/Au-Kontaktfeld auf die ZnSe-Schicht aufgebracht und gegebenenfalls thermisch eingelassen, sodass ein ohmscher Kontakt erreicht wird.

Um nun einzelne Bauteile separat kontaktieren zu können und um Bauteile unterschiedlicher Größe untersuchen zu können, werden quadratische *Mesas* mittels optischer Lithographie strukturiert und die einzelnen Dioden durch Ätzen bis auf die p-dotierte GaAs-Schicht hindurch freigelegt [57]. Die nun voneinander isolierten Bauteile können mit einem Leitkleber und Gold-Kontaktdrähten kontaktiert und auf ihre elektrische Funktion als Diode hin geprüft werden.

5.2 Elektronische Zustände und Funktion einer Spin-LED

Die fertig hergestellten Strukturen werden zunächst elektrisch überprüft. Dies geschieht mittels einer Messung der Strom–Spannungs-Kennlinie, welche im erfolgreichen Fall der Kontaktierung und Probenherstellung eine Dioden-Kennlinie ist. Typischerweise ist in Sperrichtung der Diode nur ein geringer Strom zu messen, in Durchlassrichtung dagegen setzt ein Stromfluss im mA-Bereich zwischen einer angelegten Spannung von 1 V und 3 V ein.

5.2.1 Simulation der Bandstruktur

Eine Simulation der Bandstruktur durchgeführt mit *nextnano*¹ ist in Abb. 5.2 für verschiedene Spannungen gezeigt. Für $U = 0$ V ist der typische Verlauf eines p–n-Übergangs zu sehen, bei dem jedoch schon erkennbar ist, dass die ZnMnSe-Schicht durch die größere Bandlückenenergie von $E_g \approx 2,8$ eV zu weiteren Effekten führt. Zum einen ergibt sich für das Leitungsband eine Bandverbiegung aufgrund des Heteroübergangs und unterschiedlicher Dotierung, und zum anderen bildet sich für die Löcher eine sehr hohe Barriere aus. Letzteres ist weniger störend, da über die ZnMnSe-Schicht nur die Elektroneninjektion erfolgt. Der Bandverbiegung im Leitungsband am Übergang von ZnMnSe zu GaAs gebührt daher größere Aufmerksamkeit, da es hier zu lokalisierten Zuständen in einem 2DEG kommen kann und auch Tunneleffekte bei der Spininjektion eine Rolle spielen können. Je nach Stärke der Dotierung kann vermieden werden, dass diese Zustände besetzt sind [43].

¹Numerische Software von S. Birner *Nextnano3* <http://www.nextnano.de/nextnano3/>

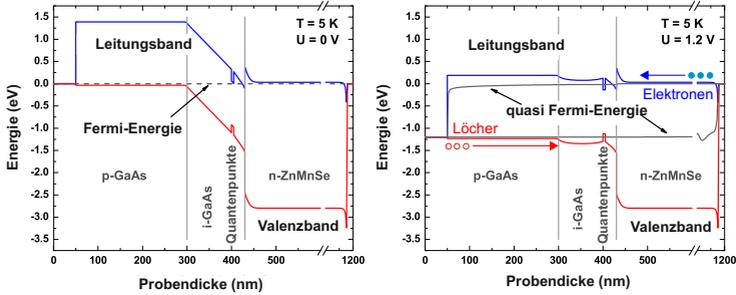


Abbildung 5.2: Simulationen der Bandstruktur für unterschiedliche Spannungen. Links: Ohne angelegte Spannung bildet sich der p-i-n-Übergang mit breiter Raumladungszone aus. Rechts: Ab etwa 1,2 V Spannung schaltet die Diode in Durchlassrichtung. Elektronen werden über den Spinausrichter, Löcher aus dem p-dotierten Rückkontakt in die Quantenpunkte injiziert.

Wird nun eine Spannung an das Bauteil angelegt, so kann es ab einer Spannung von $U = 1,2 \text{ V}$ zu einem Stromfluss kommen, und Elektronen werden über die ZnMnSe-Schicht in die Quantenpunkte injiziert. Die Löcher können über das GaAs ebenfalls die Quantenpunkte erreichen, und man beobachtet strahlende Rekombination (wie in Abb. 5.3 zu sehen). Diese Lumineszenz wird im weiteren Verlauf des Kapitels untersucht. Zuvor soll jedoch kurz auf ein Verfahren eingegangen werden, das es ermöglicht, die Detektion jener Lumineszenz zu verbessern. Die Effizienz der gesammelten Photonen ist für eine spätere Verwendung mitunter entscheidend, da vor allem quantenmechanische Effekte wie die von Einzelphotonenquellen nur dann zum Tragen kommen, wenn tatsächlich jedes generierte Photon in einem Bauteil dieses auch verlassen und detektiert werden kann. Hierfür gibt es unterschiedliche Ansätze. Einer davon wurde in dieser Arbeit verfolgt und verhindert Totalreflexion in einem Bauteil bei geschickter Geometriewahl der Probenoberfläche (siehe Anhang A). Im Folgenden wird die Notwendigkeit und die Funktion des ZnMnSe-Spinausrichters erläutert, da diese Schicht für die Injektion der spinpolarisierten Elektronen und die Quantenpunkte von zentraler Bedeutung dieser Arbeit ist.

5.2.2 Der Spinausrichter

In diesem Unterkapitel wird die Erzeugung von spinpolarisierten Strömen für das Verständnis der Funktion einer Spin-LED erläutert. Kapitel 6 befasst sich detaillierter mit der Konzentration x und den auftretenden Wechselwirkungen

in dieser $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schicht hinsichtlich der Spinmanipulationsexperimente.

Ersetzt man in einer Zinkblende Struktur von ZnSe wenige Atome mit dem zu Zink isoelektrischen Mangan, so entsteht der verdünnte magnetische Halbleiter $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$. Die magnetischen Eigenschaften rühren von der Tatsache her, dass Mn nur 5 Elektronen in der 3d Schale besitzt (Elektronenkonfiguration $[\text{Ar}]3d^5 4s^2$), im Vergleich zu 10 für Zn. Im Kristallgitter des ZnSe liegt Mn^{2+} ionisiert vor, d.h. die 4s-Elektronen werden abgegeben. Im Gegensatz zu den sich zu Null addierenden magnetischen Momenten der 10 Zn-d-Schalenelektronen ($(\downarrow\uparrow, \downarrow\uparrow, \downarrow\uparrow, \downarrow\uparrow, \downarrow\uparrow)$) kann Mn^{2+} einen großen Gesamtspin ($(\uparrow, \uparrow, \uparrow, \uparrow, \uparrow)$) aufgrund der halb gefüllten d-Schale annehmen. Durch das Anlegen eines externen Magnetfeldes werden die fünf 3d-Elektronen der Manganionen bei tiefen Temperaturen ausgerichtet [101, 102]. Der große Gesamtspin von $S = 5/2$ des paramagnetischen Mangans ist entscheidend für die Funktion der Schicht als Spinausrichter. Durch die Austauschwechselwirkung zwischen den d-artigen Elektronen der Mn^{2+} -Ionen und den s-artigen Leitungsbandelektronen (oder p-artigen Lochzuständen im Valenzband) der ZnMnSe-Schicht werden die unterschiedlichen Spinsubbänder im äußeren Magnetfeld stärker aufgespalten, als durch die Zeeman-Aufspaltung erwartet. Es kommt bei genügend großer Aufspaltung zur Relaxation der Ladungsträger in das jeweils energetisch günstigere Subband, und damit zu Spinpolarisation. Eine kritische Größe ist dabei der Mangananteil x in der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schicht, da bei zu starker Konzentration der Mn^{2+} -Ionen eine antiferromagnetische Kopplung der Mn^{2+} -Ionen untereinander die effektive Magnetisierung wieder senkt. Man führt daher eine effektive Mangankonzentration x_{eff} und die Temperatur $T_{\text{eff}} = T + T_0$ anstatt der realen Temperatur T ein, um diese Effekte zu berücksichtigen. Im verdünnten magnetischen Halbleiter spielen diese Effekte jedoch bis zu einem Mangangehalt von ca. $x = 0,05$ kaum eine Rolle. Die effektive Magnetisierung M kann durch eine Brillouinfunktion² beschrieben werden [103, Kap. 10.2], [104, Kap. 8] oder [105, Kap. 1.2].

$$M = x_{\text{eff}} N_0 g_{\text{Mn}} \mu_B J \mathcal{B}_J \left(\frac{g_{\text{Mn}} \mu_B J}{k_B T_{\text{eff}}} B_z \right) \quad (5.1)$$

In Abhängigkeit von der effektiven Mangankonzentration x_{eff} , der Anzahl der Manganionen pro Einheitszelle N_0 , dem Landéschen g -Faktor von Mn g_{Mn} , dem Bohrschen Magneton μ_B , dem Gesamtspin $J = S = -\frac{5}{2}$ konvergiert die Brioullfunktion³ für steigende Magnetfelder B_z für verschiedene Temperaturen T_{eff} .

² $\mathcal{B}_J(\xi) = \frac{2J+1}{2J} \coth\left(\frac{2J+1}{2J}\xi\right) - \frac{1}{2J} \coth\left(\frac{1}{2J}\xi\right)$, mit J Gesamtdrehimpuls des Systems

³ $\lim_{\xi \rightarrow \infty} \mathcal{B}_J(\xi) = 1$

In der Molekularfeldnäherung kann mit Hilfe der Parameter für die Austauschwechselwirkung mit den Elektronen des Leitungsbands α und Löchern des Valenzbandes β die Energieverschiebung für angelegte Magnetfelder wie folgt beschrieben werden [43]:

$$\delta E_{\uparrow,\downarrow} = \pm \frac{1}{2} x_{\text{eff}} N_0 S (\alpha - \beta) \mathcal{B}_S \left(\frac{g_{\text{Mn}} \mu_B S}{k_B T_{\text{eff}}} B_z \right). \quad (5.2)$$

Da diese Verschiebung die normale Zeeman-Verschiebung um mindestens eine Größenordnung übersteigt, spricht man hier von einem Riesen-Zeeman-Effekt. Vergleicht man diese Aufspaltung mit derjenigen von Zeeman-aufgespaltenen Zuständen in InGaAs-Quantenpunkten, so ist nicht nur die Differenz der Energien durch den Betrag des g -Faktors ca. zwei Größenordnungen unterschiedlich⁴, sondern auch deren Vorzeichen des g -Faktors umgekehrt. Dieser Sachverhalt wird bei der späteren Diskussion bezüglich der Spininjektion in die Quantenpunkte noch einmal aufgegriffen und analysiert.

Die Aufspaltung bei hohen Magnetfeldern ist so groß, dass bei tiefen Temperaturen eine vollständige Relaxation der Spinzustände in das jeweilige unterste Energieniveau stattfindet.

Im n -dotierten $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ relaxieren daher alle Elektronen in das energetisch begünstigte Spinsubband mit Spin $|\downarrow\rangle$, sofern diese Schicht dick genug gewählt ist. Oben genannte 750 nm sind dafür ausreichend.

5.3 Spektroskopie von Quantenpunkten in Spin-LEDs

An dieser Stelle sollen die Ergebnisse vorgestellt werden, die an Spin-LEDs im Rahmen dieser Arbeit gewonnen werden konnten. Sie sind gleichzeitig fundamentale Vorexperimente für das darauffolgende Kapitel 6 zur Spinmanipulation.

Wird eine Spin-LED bei tiefen Temperaturen um $T = 5$ K unter Spannung gesetzt, so detektiert man wie in Abb. 5.3 gezeigte Spektren. Bei einer Wellenlänge von 840 nm (Photonenenergie $E = 1,5$ eV) ist eine Bande der Lumineszenz zu erkennen. Dies entspricht der Rekombination von Ladungsträgern im GaAs-Volumenmaterial. Viel prominenter im Spektrum der EL vertreten ist jedoch ein breiterer Peak zwischen 900 nm und 1000 nm (1,25 eV bis 1,35 eV). Dies entspricht Lumineszenz vom Quantenpunktensemble. Da die Größe der Quantenpunkte einer gewissen Statistik unterliegt, erkennt man diese an der spektralen Breite der Emission im Spektrum direkt wieder. Bei genauerer Betrachtung fällt auf, dass auf dem gaussförmigen Ensemblepeak eine Substruktur zu erkennen ist. Je nach Quantenpunktdichte und Anregungsleistung

⁴Zeeman-Aufspaltung $\sim 0,1$ meV, Riesen-Zeeman-Aufspaltung ~ 10 meV

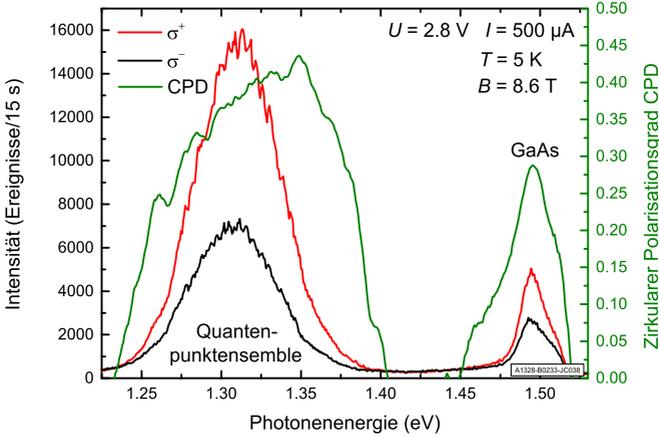


Abbildung 5.3: Elektrolumineszenzspektrum einer Spin-LED mit zugehörigem spektral aufgelöstem CPD bei $B = 8,6$ T. Die beiden zirkular polarisierten Komponenten σ^+ und σ^- der EL von GaAs aber vorrangig von Quantenpunkten ist zu erkennen. Dabei kommt es bei starken Magnetfeldern zu einer erhöhten Intensität der σ^+ -polarisierten Photonen aufgrund des Spinausrichters. Die spektrale Abhängigkeit des CPDs gibt Auskunft über die Spinstreuungsprozesse in einer Spin-LED.

(Strom I) kann bei optisch räumlicher Selektion von Licht (Mikroskopobjektiv mit starker Vergrößerung, kleines Sichtfeld) und photonenergetischer Selektion (Monochromator mit hoher Auflösung) das Lumineszenzverhalten einzelnen Quantenpunkte beobachtet werden (siehe dazu Abschnitt 5.3.1).

Das Licht wird jedoch nicht nur spektral, sondern auch hinsichtlich der Polarisation untersucht. Isotrope Quantenpunkte emittieren aufgrund der optischen Auswahlregeln zirkular polarisierte Photonen, in Abhängigkeit der Spinbesetzung der Zustände. Die Polarisationsselektion wird dabei vor der spektralen Analyse durchgeführt. Dazu wird bei der Detektion ein achromatisches $\lambda/4$ -Verzögerungsplättchen verwendet, und ein beweglicher Linearpolarisator kann jeweils 45° zur optischen Achse der Verzögerungsplatte ausgerichtet, also in zwei zueinander 90° stehenden Positionen rotiert werden. Dadurch wird das zirkular polarisierte Licht in linear polarisiertes Licht transformiert und anschließend durch den Polarisationsfilter selektiert. Dies erlaubt die getrennte Detektion der beiden Emissionsspolarisationen σ^+ und σ^- . Dies wird ohne Magnetfeld als Referenzmessung und anschließend mit verschiedenen Feldstärken wiederholt. Dabei wird für hohe Feldstärken typischerweise das in Abb. 5.3 dargestellte Verhalten der Verhältnisse von σ^+ -

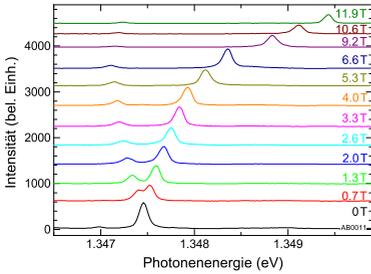
und σ^- -polarisierter Intensitäten beobachtet. Durch die auftretende Riesen-Zeemann-Aufspaltung relaxieren die Elektronen mehr und mehr in den energetisch tieferliegenden Spinzustand im Spinausrichter $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ und werden mit diesem Spin auch in die Quantenpunkte injiziert. Der in Gleichung 2.1 beschriebene zirkuläre Polarisationsgrad CPD kann errechnet werden und ist ebenfalls zur rechten y -Achse gehörig in grün dargestellt. Dabei ist zu bemerken, dass auch die Emission der Lumineszenz des GaAs eine zirkuläre Polarisation der emittierten Photonen von 25-30% aufweist. Dagegen erreicht der CPD der Quantenpunkte jedoch fast 45%, was darauf zurückzuführen ist, dass Spin-Streuprozesse im GaAs-Volumenmaterial verstärkt ablaufen und in den 0-dimensionalen Quantenpunkten unterdrückt sind. Der Polarisationsgrad ist, wie unschwer zu erkennen, nicht homogen für alle Emissionsenergien der Quantenpunkte. Beim Relaxieren in die energetisch günstiger liegenden diskreten Zustände der Quantenpunkte kann es erneut zu Spinstreuungseffekten kommen. Dabei spielen vor allem Tunnelprozesse und damit verbundener Verlust der Spinpolarisation auch in der 2-dimensionalen Benetzungsschicht, eine wichtige Rolle. Elektronen, die in größere Quantenpunkte mit niedrigeren Grundzustandsenergien injiziert werden (Emissionsenergien im Bereich von 1,25 eV) verlieren vor der Injektion doppelt so wahrscheinlich die Spinpolarisation als Elektronen, die einen kleineren Quantenpunkt besetzen (Emissionsenergien von ca. 1,35 eV).

In Bereichen mit wenig bis keinem Signal divergiert die Berechnung des CPD aufgrund des Rauschens bzw. er ist nicht mehr definiert und daher nicht dargestellt.

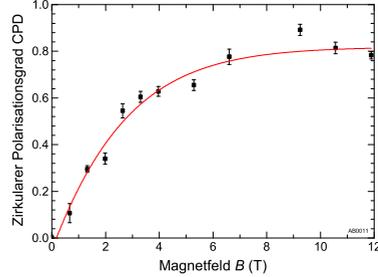
Es kann also auch die Ensemblemessung einer Spin-LED Aufschluss über die Funktion der Leuchtdiode geben. Ensemble-EL ist aufgrund der stärkeren Intensität wegen der großen Anzahl von Emittlern ein probates Mittel, um die Spinpolarisation einer Probe festzustellen. Wird diese Messung an einzelnen Quantenpunkten durchgeführt, so ergeben sich jedoch andere Vorteile, welche im Anschluss an diesen Abschnitt diskutiert werden. Da schließlich einzelne Elektronenspins in einzelnen Quantenpunkten als Qubits verwendet werden sollen, ist die Betrachtung einzelner Quantenpunkte notwendig.

5.3.1 Magneto-Optik an Einzelquantenpunkten

Wird die Anregungsleistung, also der Strom I , mit der die Spin-LED betrieben wird, sukzessive reduziert, so wird die oben beschriebene Substruktur der gaußförmigen EL immer präsenter. Bei Proben mit ausreichend geringer Quantenpunktdichte können hierbei einzelne scharfe Peaks im Spektrum beobachtet werden. Wählt man nun eine stark vergrößernde Optik für das Auffammeln der Lumineszenz (Mikroskopobjektiv) und betrachtet man gleichzeitig nur eine sehr schmale Bandbreite der emittierten Photonenenergie, so



(a) EL-Zeemanaufspaltung und diamagnetische Verschiebung eines Exziton-Grundzustandes in einem einzelnen Quantenpunkt.



(b) Zirkularer Polarisationsgrad CPD in Abhängigkeit des angelegten magnetischen Feldes B . Diese Linie erreicht im Rahmen der Messgenauigkeit einen sehr hohen Wert von über 80%.

Abbildung 5.4: EL-Messung an einem einzelnen InGaAs Quantenpunkt. Die Aufspaltung der Spinzustände im Magnetfeld und die dabei erreichte Spinpolarisation ermöglichen das Initialisieren eines definierten Spinzustands in einem Quantenpunkt mittels rein elektrischer Spininjektion.

kann man einzelnen Quantenpunkte spektroskopisch analysieren. Hierbei ist es wichtig, die Diode mit Nanometer-Präzision unter dem Objektiv zu justieren, um die Lumineszenz des Quantenpunktes bestmöglich zu erfassen. Eine auf diese Art und Weise durchgeführte Messung an einem einzelnen Quantenpunkt ist in Abb. 5.4 dargestellt. Zu sehen ist die Lumineszenz einer einzelnen Quantenpunkt-Emissionslinie für unterschiedliche Magnetfelder. Die Zeemanaufspaltung des Grundzustands ist in Abb. 5.4a für nach oben hin steigende Magnetfelder dargestellt.

Die Messung wurde ohne die oben beschriebenen Polarisationskomponenten aufgenommen, da speziell stark vergrößernde Objektive (wie hier verwendet: $60\times$, N.A. = 0,89) verkittete Linsensysteme verwenden, die bei tiefen Temperaturen zu doppelbrechenden Effekten aufgrund von Materialverspannungen führen. Daher kann es zu Umwandlung von σ^+ -Intensität zu σ^- -Intensität kommen, was die Messung verfälscht.

Der beobachtete exzitonische Übergang im Grundzustand des Quantenpunkts spaltet im B -Feld in seine beiden Spinzustände auf. Dabei ist in Abb. 5.4a auch die quadratisch abhängige diamagnetische Verschiebung der Emission zu größeren Energien zu erkennen. Die Peakpositionen können allgemein mit folgender Gleichung beschrieben werden:

$$E_{\pm\frac{1}{2}} = \underbrace{\mp \frac{1}{2} g_{\text{Exziton}} \mu_B B}_{\text{Zeeman-Aufspaltungsterm}} + \underbrace{\gamma B^2}_{\text{Diamagnetische Verschiebung}} \quad (5.3)$$

Dabei ist $\gamma \approx 6 \frac{\mu\text{eV}}{\text{T}}$ die Proportionalitätskonstante für die diamagnetische Verschiebung, welche sich unter der Annahme des *starken Confinements* berechnen lässt [61].

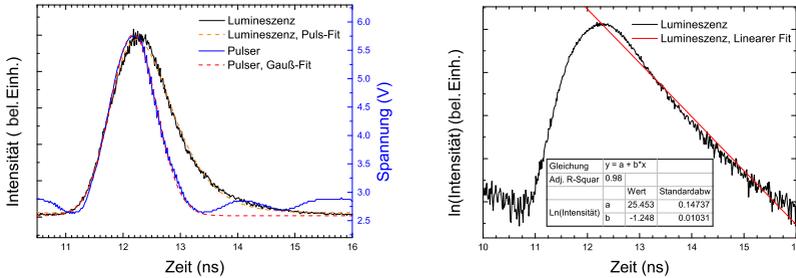
Es fällt vor allem aber auf, dass sich die Intensitäten beider Komponenten unterschiedlich mit dem steigenden Magnetfeld verhalten. Während die σ^+ -Komponente mit Spin $-1/2$ stetig zunimmt, verliert die σ^- -Komponente mit Spin $+1/2$ kontinuierlich an Intensität. Erst bei sehr hohen magnetischen Feldern ist auch ein Einbrechen der σ^+ -Komponente zu beobachten, was jedoch auf Dejustageeffekte bei extrem hohen Magnetfeldern zurückzuführen ist.

Die Entwicklung der Intensitäten beider Polarisationsrichtungen lässt sich alleine auf die Funktion des Spinausrichters zurückführen. Je nach magnetischer Feldstärke werden mehr und mehr Elektronen spinpolarisiert in den Quantenpunkt injiziert. Beachtlich dabei ist, dass der besetzte Zustand im Quantenpunkt eigentlich der energetisch ungünstigere Zustand für das Elektron ist, da das Vorzeichen des g -Faktors in $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ ein anderes Vorzeichen besitzt als in den InGaAs-Quantenpunkten. Aufgrund der jedoch wesentlich geringeren Aufspaltung der Zustände im Quantenpunkt findet bei kalten Temperaturen kein weiterer Relaxationsprozess im Quantenpunkt mehr statt.

Um die Messungen weiter auszuwerten, wurden Anpassungen an die Peaks für die unterschiedlichen Magnetfelder durchgeführt. Stellt man nun, wie in Abb. 5.4b gezeigt, den *CPD* als Ergebnis der integrierten Intensitäten der einzelnen Peakanpassungen dar, so sieht man, dass der Wert sich asymptotisch fast 80% annähert. Dies bedeutet, dass eine fast vollständige Spinpolarisation der Elektronen im Quantenpunkt vorherrscht, denn es kann bei hohen B -Feldern im Wesentlichen nur einer der beiden Zeeman-aufgespaltenen Übergänge detektiert werden.

Es ist also möglich, einzelne Spins mit ausreichend starker Wahrscheinlichkeit in einem wohldefinierten Zustand rein elektrisch zu initialisieren.

Die vorgestellten Ergebnisse im Rahmen der Ensemblemessungen zeigen jedoch auch, dass sich nicht alle Quantenpunkte gleich verhalten. So findet man auch immer Quantenpunkte, deren Spininjektionseffizienz nicht perfekt oder gar nicht messbar ist. Hierzu tragen lokale Effekte bei, da der Strom aber vor allem auch der Spintransport lokal anisotrop in der Probe stattfindet. Vor allem aber Störstellen wie Fehlstellen an der Grenzschicht spielen eine entscheidende Rolle und erklären den Spinverlust. Abschließend lässt sich jedoch feststellen, dass die erreichte Spinpolarisation meist sehr hohe Werte



(a) Vergleich von Spannungs- und Lumineszenzsignalen. Der gemessene Spannungspuls ist dabei etwas kürzer als das detektierte Lumineszenzsignal.

(b) Logarithmische Darstellung des Lumineszenzsignals mit linearer Anpassung. Die Zerfallszeit wurde zu $\tau \approx 1,2$ ns bestimmt.

Abbildung 5.5: Zeitaufgelöste EL-Messung an einer einzelnen Quantenpunktlinie in einer Spin-LED. Dabei wurde ein Pikosekunden Spannungspuls und ein Einzelphotonenzähler verwendet.

annimmt, wie hier stellvertretend gezeigt wurde. Es ist jedoch auch möglich, perfekte Spininitialisierung in einzelnen Quantenpunkten zu finden. Dies ist im folgendem Abschnitt im zweiten Teil gezeigt.

5.3.2 Bestimmung der exzitonischen Lebensdauer durch zeitaufgelöste Elektrolumineszenzmessungen

Um genauere Informationen über die Lebensdauer der (Spin-)Zustände zu erhalten, werden in diesem Kapitel die Ergebnisse der zeitaufgelösten EL-Spektroskopie an Spin-LEDs vorgestellt. Der verwendete Aufbau entspricht exakt dem von Kapitel 4.3.3, nur dass hier auf die Verwendung eines Lasers verzichtet wird. Die Spin-LED wird stattdessen mit kurzen Spannungspulsen angeregt, welche ebenfalls den Einzelphotonenzähler triggern. Die Spannungspulse müssen dabei kürzer als die exzitonische Lebenszeit der Zustände und im besten Falle auch kürzer als die zeitliche Auflösung des Aufbaus sein. Da exzitonische Lebenszeiten von ca. 1 ns erwartet werden, wurde ein Puls ausgewählt, der Spannungspulse im Bereich von einigen 100 ps erzeugen kann. Die Ergebnisse sind in Abb. 5.5 dargestellt.

Da die zeitliche Auflösung des Aufbaus zu 0,8 ns bestimmt wurde und damit unter einer Nanosekunde liegt, konnte aus der linearen Anpassung der Messergebnisse eine Zerfallszeit von etwa $\tau = 1,2$ ns abgeschätzt werden. Sobald sich Elektron und Loch im Quantenpunkt befinden kommt es sehr schnell zur Rekombination, sodass die Lebenszeit damit stark beschränkt ist.

5.3.3 Die Spin-LED als spintronische Einzelphotonenquelle

Einzelphotonenquellen können die Grundlage für abhörsichere Kommunikation darstellen [111, 112]. Da ein unerwünschtes Abhören immer einem Messvorgang einer quantenmechanischen Observablen gleicht, ist es unmöglich, diesen Vorgang durchzuführen, ohne dass Sender und Empfänger dies bemerken [113]. Dies beruht auf der Tatsache, dass ein quantenmechanischer Messprozess das gemessene System selbst beeinflusst und damit verändert, was durch einen weiteren Messprozess herausgefunden werden kann. Das klassische Beispiel hierfür ist die Messung der linearen Polarisation von elliptisch polarisiertem Licht. Die Messung projiziert das Licht in den Zustand der linearen Polarisation und belässt es nicht unangetastet.

Man spricht von Quantenkryptographie, wenn der quantenmechanische Informationsträger, meist Polarisationszustände von Photonen, kohärent übertragen wird und dabei gleichzeitig über einen klassischen Kommunikationsweg Informationen über den genauen Messvorgang ausgetauscht werden [114]. Um dies zu realisieren, werden jedoch Einzelphotonenquellen benötigt, deren Polarisationszustände mit sehr hoher Genauigkeit eine Vorzugsrichtung annehmen. Ideal wäre hierzu eine elektrisch getriggerte Einzelphotonenquelle mit gerichteter Emission und sehr hoher Wiederholrate [115].

Vor allem durch die außergewöhnlich hohen Polarisationsgrade erweisen sich Spin-LEDs als sehr geeignet, da dadurch die Fehlerrate drastisch gesenkt werden kann. Einzelne Quantenpunkte und der schnelle exzitonische Zerfall erlauben einen Betrieb mit Wiederholraten von 100 MHz bis 1 GHz. Im folgenden werden die theoretischen Grundlagen von Einzelphotonenquellen und der Nachweis erbracht, dass Spin-LEDs attraktive Bauteile hierfür sind.

Zum Nachweis von Einzelphotonenquellen betrachtet man die zeitliche Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ [116]:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}^\dagger(t+\tau) \hat{a}(t+\tau) \hat{a}(t) \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}(t) \rangle^2} \quad (5.4)$$

Dabei sind \hat{a} und \hat{a}^\dagger die Operatoren für die Vernichtung und die Erzeugung von Photonen. Die Gleichung ermöglicht es, zwischen Lichtquellen unterschiedlicher Natur zu unterscheiden: Thermische Lichtquellen ($g^{(2)}(0) = 2$), Laseremission ($g^{(2)}(0) = 1$) und Einzelphotonenquellen ($g^{(2)}(0) = 0$) unterscheiden sich jeweils im Wert der Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung für $\tau = 0$. Letztere Zustände für Einzelphotonenquellen werden auch Fockzustände genannt, und es gilt in Abhängigkeit der Anzahl n der emittierten Photonen zu einem Zeitpunkt:

$$g^{(2)}(0) = 1 - \frac{1}{n} \quad (5.5)$$

Es genügt also, eine Messung mit $g^{(2)}(0) < 0,5$ als Nachweis für den Beitrag von mindestens einer Einzelphotonenquelle, da für $n = 2$ Photonen $g^{(2)}(0) \geq 0,5$ gilt [45].

Da Quantenpunkte per se Quantenemitter sind, lässt sich diese Einzelphotonenquelle mit obigem Aufbau direkt nachweisen. Man nutzt dabei die Tatsache, dass Elektronen einer Spinpolarisation nur einzeln zu einem gewissen Zeitpunkt den Grundzustand im Quantenpunkt besetzen können. Daher kann zu einem definierten Zeitpunkt immer nur ein Photon der Grundzustandsenergie erzeugt werden. Die Photonen verlassen also einzeln nacheinander den Quantenpunkt im Gegensatz zu Lasersystemen oder thermischen Lichtquellen. Man spricht von Antibunching und nutzt zum Nachweis die Tatsache, dass ein Photon Teilchencharakter besitzt [90, 117]. Trifft es auf einen Strahlteiler kann es entweder reflektiert oder transmittiert werden, aber nicht beides gleichzeitig. Um dies im Experiment zu realisieren, muss jedoch ein zweiter Einzelphotonenzähler in einem sogenannten *Hanbury-Brown & Twiss*-Aufbau mitbenutzt werden. Beide Einzelphotonenzähler werden dabei derart hinter einem Strahlteiler (oder hier äquivalent Faserstrahlteiler) platziert, dass einer der beiden in Reflektion, der zweite in Transmission Photonen detektiert. Einer der Einzelphotonenzähler startet eine Messung sobald dieser ein Photon detektiert, der zweite Einzelphotonenzähler stoppt die Zeit, sobald dieser ebenfalls ein Photon registriert. Bei einer Einzelphotonenquelle können niemals beide Detektoren gleichzeitig ein Signal messen, weswegen die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ bei einer Verzögerung von $\tau = 0$ zwischen den Signalen theoretisch den Wert Null annimmt.

Die im Folgenden Abschnitt präsentierten Ergebnisse wurden gemeinsam mit dem Vorgängerdoktoranden Pablo Asshoff erzielt und sind dort bereits veröffentlicht [18]. Der Nachweis wurde in diesem Fall an einem einzelnen Quantenpunkt mit perfekter Spininitialisierung durchgeführt. So erreicht die Spinpolarisation im Quantenpunkt schon bei einem Magnetfeld von $B = 3$ T einen Wert von fast 100%. Das Magnetfeld wurde für diese Messung sogar zusätzlich noch in beide Ausrichtungsmöglichkeiten geschaltet, so dass in Abb. 5.6 der *CPD* von -6 T bis $+6$ T gezeigt werden kann.

Die Spin-LED wurde dabei mit dem ps-Pulser mit einer Repetitionsrate von 106,5 MHz betrieben so dass ca. alle 9 ns eine elektrische Anregung der Diode von 500 ps Pulslänge stattfindet und somit alle 9 ns ein Photon generiert wird. Dies zeigt die rechte Abbildung in Abb. 5.6. Die oben beschriebene Start-Stopp-Messung an der aufgespaltenen Quantenpunktemission zeigt deutlich, dass für die Verzögerung von $\tau = 0$ ns das Signal im Vergleich zu den vorherigen und nachkommenden Pulsen stark unterdrückt ist. Damit ist der beobachtete Übergang eindeutig als Einzelphotonenquelle identifiziert.

Da zudem die Polarisation der einzelnen Photonen zu 100% vorliegt, kann diese Einzelphotonenquelle für spintronische Anwendungen genutzt werden.

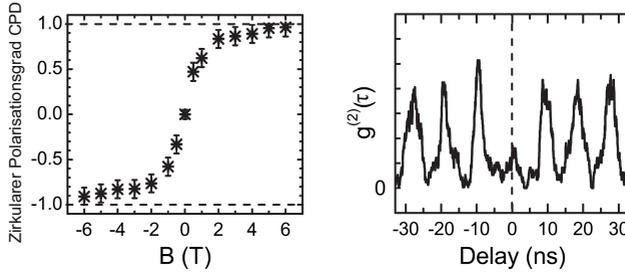


Abbildung 5.6: Messungen zum Nachweis einer Einzelphotonenquelle [118]: Der ausgewählte Quantenpunkt erreicht eine vollständige Spinpolarisation ab ca. 3 T, wie die Messung des zirkularen Polarisationsgrades für Magnetfelder zwischen -6 T und +6 T zeigt (links). Bei gepulster Anregung zeigt die Messung der Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung $g^{(2)}(\tau)$ eine starke Unterdrückung des Pulses bei einer Verzögerung von $\tau = 0$ (rechts), was als Beweis für die Einzelphotonenquelle ausreicht.

5.4 Vergleichende Betrachtung der Möglichkeiten von elektrischer Spininjektion

Die Herstellung von Quantenpunkt-Leuchtdioden ist ein weltweit bearbeitetes Thema, auf welchem mehrere Forschergruppen seit ca. 20 Jahren arbeiten [119]. Besonders die Verwendung von InGaAs Quantenpunkten ermöglichte dabei Zugang zu einem quantenmechanischem System mit optischen Mitteln [60]. Die Fortschritte, die erzielt werden konnten, indem die Lumineszenz eines einzelnen Quantenpunktes untersucht wurde, sind dabei herausragend.

Das in diesem Kapitel vorgestellte spintronische Bauteil ermöglicht es, spinpolarisierte Elektronen in InGaAs-Quantenpunkte zu injizieren. Dazu wurde eine Leuchtdiode mit Quantenpunkten und Spinausrichter, die Spin-LED, verwendet. Der Spinausrichter $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ wurde benutzt, um bei äußerem angelegtem Magnetfeld die Spinsubbänder im Leitungsband dermaßen aufzuspalten, dass eine Relaxation in die niederenergetischen Zustände stattfindet und alle Elektronenspins nach der Passage durch die Spinausrichterschicht vollständig spinpolarisiert vorliegen. Diese spinpolarisierten Elektronen werden nun in Quantenpunkte injiziert und deren Spinzustand über die Rekombination mit Löchern als zirkular polarisierte Photonen ausgelesen.

Quantenpunktensemble-Messungen zeigen dabei einen zirkularen Polarisationsgrad von bis zu 50%. Des Weiteren wurden Nahfeldoptiken für Spin-LEDs in die oberste Schicht gefräst, um die Auskoppelleffizienz des Lichts zu optimieren. Bei ausreichend großer Quantenpunktdichte konnte dies erfolg-

reich gezeigt werden, jedoch erwies sich die genaue Platzierung von Linsen direkt über Quantenpunkten als nicht realisierbar, wenn keine strukturierte Anordnung der Quantenpunkte verwendet wird.

Die Messung an einzelnen Quantenpunkten ermöglicht den exakten Einblick in die quantenmechanischen Zustände einzelner Quantenpunkte. Dabei stellt sich heraus, dass einzelne Quantenpunkte eine sehr hohe, teils 100%-ige Spinpolarisation aufweisen. Andere Quantenpunkte dagegen zeigen Effekte von hoher Spinrelaxation, was die mittlere Ensemblepolarisation von nur 50% erklärt.

Zeitaufgelöste Messungen erlauben schließlich die Messung des Zerfalls der exzitonischen Zustände in Quantenpunkten in einer Spin-LED. Die Lebensdauer dieser Zustände wurde zu $\tau = 1, 2$ ns abgeschätzt.

Zuletzt wurde gezeigt, dass die Struktur als spintronische Einzelphotonenquelle genutzt werden kann. Die Autokorrelationsmessung zweiter Ordnung zeigt deutlich, dass eine Einzelphotonen-Emission auf Abruf möglich ist, wenn kurze elektrische ps-Pulse zur Anregung verwendet werden. Da der untersuchte Quantenpunkt zudem noch eine Initialisierung mit 100%-iger Spinpolarisation aufweist, ist dieses System für spintronische Anwendungen in der Quantenkryptographie geeignet.

Die Erzeugung eines definierten Spinzustandes mit optischen Initialisierungsmethoden ist bereits in Kapitel 4 diskutiert worden und stellt eine Möglichkeit dar, definierte Spinzustände in Quantenpunkten zu initialisieren [120]. Der elegantere Ansatz, die Spinpolarisation elektrisch zu erzeugen, wurde in diesem Kapitel vorgestellt und stellt mit der perfekten, 100%-igen Initialisierung von Spinzuständen im Quantenpunkt den Weltrekord dar. Andere Lösungen für dieses Problem, jedoch ebenfalls unter der Verwendung von Mn in einer Spinausrichterschicht, erreichen dabei geringere Effizienzen [121, 122].

Ein weiterer Ansatz für die Erzeugung von spinpolarisierten Strömen beruht auf der Verwendung von metallischen ferromagnetischen Schichten, z. B. Fe [123]. Diese Strukturen können zwar bei Raumtemperatur noch ihre Funktion erfüllen, erreichen aber insgesamt nur Polarisationsgrade im einstelligen Prozentbereich.

Die Verwendung von Quantenpunkten als Einzelphotonenquellen kann dagegen noch weiter optimiert werden [124, 125]. Da ein gerichtetes Abstrahlverhalten die Effizienz weiter steigern kann, kommen hierbei vor allem Kavitäten zum Einsatz [90, 126–129]. Quantenpunkte ohne Feinstrukturaufspaltung werden des Weiteren genutzt, um ununterscheidbare polarisationsverschränkte Photonenpaare zu erzeugen [130].

Für fast alle Einzelphotonenquellen, muss jedoch ein Polarisationsfilter verwendet werden, um de facto eine polarisierte Einzelphotonenquelle vorliegen zu haben [131]. Es wird also nicht mit jeder Anregung exakt ein gewünscht polarisiertes Photon generiert, und es liegt daher eine probabilistische Ein-

zelphotonenquelle vor.

Spin-LEDs als spintronische Einzelphotonenquellen dagegen emittieren pro Anregungspuls exakt ein Photon mit gewünschtem Polarisationszustand und sind in der Literatur bisher nur vereinzelt zu finden [132].

6 Manipulation von Elektronenspins in Spin-LEDs

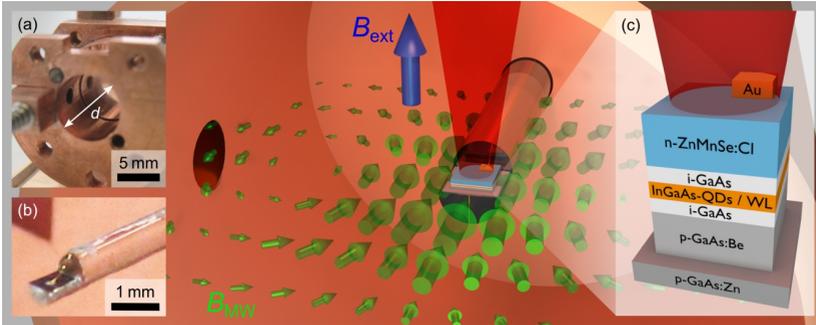


Abbildung 6.1: Übersicht über den Versuch für die Mikrowellenmanipulation mit simuliertem Feldlinienverlauf und der Probenposition in einem Mikrowellenresonator. (a) Bild des Hohlraumresonators mit Durchmesser d , (b) elektrisch kontaktierte Probe auf einem Quarzstab montiert, (c) Schichtstruktur der verwendeten Spin-LED [133].

Das folgende Kapitel behandelt die Manipulation von Spinzuständen in Spin-LEDs. Wie zu Beginn der Arbeit bereits erwähnt, soll das Phänomen der ESR genutzt werden, um Elektronenspins in Halbleiterbauteilen gezielt zu beeinflussen. Finales Ziel ist es, direkt einzelne Spins (in Quantenpunkten) kohärent zu kontrollieren und damit das vierte DiVincenzo-Kriterium zu erfüllen.

Zunächst werden die theoretischen Rahmenbedingungen abgesteckt, bevor Simulationen die Funktions- und Leistungsfähigkeit des gewählten Aufbaus demonstrieren. Im Anschluss wird die experimentelle Umsetzung aufgezeigt und die Funktion des Aufbaus anhand der Spinmanipulationsergebnisse belegt.

ESR mit spintronischen Bauteilen ist ein relativ junges und herausforderndes Feld der Forschung, so dass hier nur über wenige erste Versuche anderer

Tabelle 6.1: Auflistung der verschiedenen Hohlleiterbänder mit Wellenlängen und Frequenzen mit den zugehörigen Magnetfeldern für Resonanzen mit einem g -Faktor von $g_L = 2,0$ und $g_L = 0,5$.

Frequenzband	S	X	K	Q	U	V	E	W
λ (mm)	100	30	12,5	8,5	6	4,6	4	3,2
f (GHz)	3	10	24	35	50	65	75	95
B_{res} (T) ($g_L = 2,0$)	0,11	0,33	0,86	1,25	1,8	2,3	2,7	3,5
B_{res} (T) ($g_L = 0,5$)	0,44	0,56	3,44	5,00	7,2	9,2	10,8	14,0

Gruppen berichtet werden kann. Generell gilt es dabei, das bekannte und erprobte Konzept der ESR auf die in der Spintronik notwendigen äußeren Bedingungen anzupassen. Geläufige und zum Teil kommerziell erhältliche ESR-Geräte sind dafür meist ungeeignet, da für die Spintronik oft tiefe Temperaturen im einstelligen Kelvinbereich und hohe magnetische Felder benötigt werden.

Die hohen magnetischen Felder verlangen für die Erfüllung der Resonanzbedingung in Gleichung 2.7 den Einsatz von elektromagnetischen Wellen im GHz-Bereich und höher. Für eine ausreichende Spinpolarisation in einer Spin-LED sind zum Beispiel magnetische Felder von 6–8 Tesla notwendig. Betrachtet man dazu den Landéfaktor von Elektronen in InGaAs-Quantenpunkten von $g_L \approx 0,5$ [134], so errechnet sich die Resonanzfrequenz nach $\hbar\omega = g_L\mu_B B_{\text{res}}$ zu

$$f = \frac{\omega}{2\pi} \approx 53 \text{ GHz} \quad (6.1)$$

und man spricht von Mikrowellen- oder auch Millimeterwellen-ESR (Wellenlänge $\lambda \approx 5 \text{ mm}$). Eine tabellarische Übersicht über die verfügbaren Hohlleiter bei den jeweiligen Frequenzen und die korrespondierenden resonanten Magnetfelder ist in Tab. 6.1 dargestellt.

Abb. 6.2 zeigt die Resonanzfrequenzen in Abhängigkeit des Magnetfeldes für unterschiedliche g_L -Faktoren. Für g_L -Faktoren von $g_L \approx 2$ (für freie Elektronen oder auch Elektronen der Mn-(II)-Ionen [135, 136]) ergibt sich damit für eine Mikrowellenquelle bei 53 GHz ein resonantes Magnetfeld von $B \approx 2 \text{ T}$.

6.1 Wahl des ESR-Konzeptes

ESR in elektrostatischen Quantenpunkten (siehe Kap. 2.2.1) erlaubt bereits die kohärente Kontrolle von einzelnen Spins, da hier über die aufgebrachten

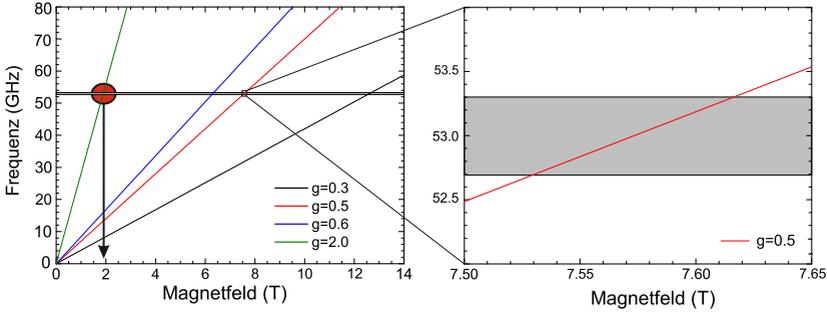


Abbildung 6.2: Graphische Darstellung der Erfüllung der Resonanzbedingung für die ESR: $\hbar\omega = \Delta E = g_L \mu_B B_{\text{res}}$. Für die Manipulation von Spinzuständen in Quantenpunkten ($g_L \approx 0,5$) mit magnetischen Feldern zwischen 6 und 8 T wurde eine Mikrowellenquelle mit Ausgangsfrequenz 53 GHz gewählt. Diese ermöglicht desweiteren die Manipulation von Elektronenspins mit $g_L \approx 2,0$ für freie Elektronen oder Elektronen in Mn-Atomen bei etwa 2 T Magnetfeldstärke.

metallischen Kontakte direkt eine elektromagnetische Welle generiert werden kann [137]. Jedoch ist dies nur mit elektromagnetischen Wellen im Hochfrequenz-(HF-)Bereich möglich und nicht im Mikrowellenfrequenzband.

Bei einem ersten Versuch der ESR an einem spintronischen Bauteil mit selbstorganisierten InGaAs-Quantenpunkten wird in [138] berichtet, dass mittels einer Leiterschleifenantenne die Mikrowellenstrahlung an Quantenpunkten deponiert werden kann. Dabei spielt nicht nur die Orientierung der magnetischen Feldkomponente \vec{B}_1 eine entscheidende Rolle (siehe Kapitel 2.4.3 und Abb. 2.12), sondern auch deren Amplitude. So erfolgt der Übergang vom Ausgangszustand $|1\rangle$ zum Endzustand $|0\rangle$, also genau eine Rotation um $\Theta = \pi$ auf der Blochkugel, nach der Zeit

$$\tau_\pi = \frac{\pi}{\omega_{\text{Rabi}}} = \frac{\hbar\pi}{g\mu_B B_1}.$$

Die Feldstärke B_1 am Ort des zu manipulierenden Spins muss daher ausreichend hoch sein, um den Spinflip schnell genug durchzuführen, bevor das Spinsystem die Kohärenz nach der Zeit T_2^* verliert. Daher sollte gelten:

$$\tau_\pi < T_2^*.$$

Simulationen der Feldstärken, die mittels einer angenäherten (wenige mm entfernten), einfachen Leiterschleifenantenne erreicht werden können (siehe Tabelle 6.2), zeigen, dass dieser Ansatz nicht für die kohärente Manipulation

Tabelle 6.2: H - und B_1 -Feldstärken und damit errechnete Spinflipzeiten für $g_L = 0,5$ und $g_L = 2,0$. Diese Werte gilt es in Abschnitt 6.2.2 mit den Simulationen der erreichten H -Felder zu vergleichen, um die Zeitskalen für kohärente Manipulationspulse abschätzen zu können.

H ($\frac{\text{A}}{\text{m}}$)	B_1 (μT)	$t_{\pi\text{-Puls}}$ (ns)		Realisierungsmöglichkeit der Magnetfelder
		$[g_L = 0,5]$	$[g_L = 2,0]$	
1	1,25	≈ 57000	≈ 14000	Leiterschleifenantenne
50	62,83	1137,12	284,28	Gerichtete Antennen
100	125,66	568,56	142,14	
150	188,50	379,04	94,76	
200	251,33	284,28	71,07	
250	314,16	227,42	56,86	
300	376,99	189,52	47,38	
350	439,82	162,45	40,61	↑
400	502,65	142,14	35,54	Resonator-Geometrie
450	565,49	126,35	31,59	↓
500	628,32	113,71	28,43	
550	691,15	103,37	25,84	
600	753,98	94,76	23,69	
650	816,81	87,47	21,87	
700	879,65	81,22	20,31	
800	1005,31	71,07	17,77	

einzelner Spins geeignet ist [96, 139]. Hierbei werden nur Feldstärken von 1–5 A/m erreicht. Die Möglichkeit, die Antenne direkt auf die zu untersuchende Struktur zu präparieren, ist hier ein möglicher Verbesserungsvorschlag [140]. Da aber bei dieser Geometrie der Energiefluss der elektromagnetischen Welle nicht gebündelt wird, sind andere Ansätze sinnvoller.

Gerichtete Antennen können dazu in Frage kommen oder aber der Ansatz, der bei herkömmlichen ESR-Geräten ebenfalls oft verwendet wird: Die Konstruktion eines Hohlraumresonators. Der dafür nötige Aufbau und vor allem die Geometrie des Resonators wurde im Rahmen dieser Arbeit geplant, simuliert und schließlich experimentell realisiert.

6.2 Aufbau des ESR-Experiments

Um das Konzept eines Hohlraumresonators umzusetzen, muss zunächst die Wahl der Zuführung der Mikrowelle zum Resonator diskutiert werden. Bei gewöhnlicher kommerzieller ESR kommen Rechteckhohlleiter im 10-GHz-Frequenzband zum Einsatz. Diese sind aufgrund ihrer Größe (Durchmesser des rechteckigen Profils ca. 5–10 cm) und der damit verbundenen thermischen Leitfähigkeit jedoch nicht in den in Kap. 3 beschriebenen Kryostaten implementierbar. Bei den höheren Frequenzen für die spintronischen Anwendungen können die Rechteckhohlleiter klein genug dimensioniert werden, sodass dies möglich wird. Im Folgenden wird die genaue Geometrie des Hohlraumresonators diskutiert, und die Simulationsergebnisse werden vorgestellt.

6.2.1 Theorie von Hohlraumresonatoren

In einem zylindrischen abgeschlossenen Hohlraum kommt es zur Ausbildung stehender Wellen, wenn eine elektromagnetische Welle an das System gekoppelt ist. Die ersten 5 Grundmoden eines zylindrischen Resonators sind in Abb. 6.3 als Querschnitt dargestellt (transversal elektrisch: H-Mode, transversal magnetisch: E-Mode). Dabei erkennt man den Verlauf der Feldlinien für E- und H-Felder. Da für ESR nur die magnetische Feldkomponente von Bedeutung ist, kann eine Mode ausgewählt werden, die bei zentraler Position einer Probe im Resonator ideal für ESR-Experimente ist.

Theoretisch lassen sich die Resonanzfrequenzen anhand der Formel

$$f_0 = c \cdot \sqrt{\left(\frac{j_{lm}}{\pi d}\right)^2 + \left(\frac{n}{2l}\right)^2} \quad (6.2)$$

berechnen. Dabei ist c die Lichtgeschwindigkeit, j_{lm} die Konstante, die abgeleitet von der Besselfunktion für die entsprechende Mode ausgewählt wird. d ist der Durchmesser der Kavität, n die Ordnung der Resonanz und l die Länge des Resonators [96, 141].

Gewöhnlicherweise wird für ESR-Experimente die H_{01} -Mode ausgewählt, da diese zudem noch ein Minimum der elektrischen Feldstärke im Symmetriezentrum des Resonators besitzt. Somit können unerwünschte Effekte wie die Erwärmung von elektrisch leitenden Proben vermieden werden, wenn die Probe mittig auf der Symmetrieachse des Resonators platziert wird. Die richtige Dimensionierung des Resonators wurde im Vorfeld theoretisch berechnet und simuliert, wobei ebenfalls die Kopplung an den entsprechenden Hohlleiter und der Einfluss der Probe berücksichtigt wurde [141].

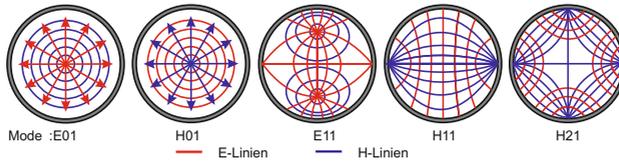


Abbildung 6.3: Feldverteilung der ersten 5 Grundmoden in zylindrischen Resonatoren. Bei der Wahl der H_{01} -Mode akkumulieren sich die magnetischen Feldlinien im Zentrum, wohingegen die elektrischen Feldlinien ein Minimum an diesem Ort besitzen. Die Probe wird somit zentral positioniert.

6.2.2 Mikrowellensimulationen

Die prinzipielle Geometrie des Resonators und seiner Kopplung an einen Rechteckhohlleiter im V-Band (50–75 GHz) entstammt einem Vorschlag von E.-H. Porteau vom Ferdinand-Braun-Institut Berlin [142]. Erste Simulationen mittels *COMSOL Multiphysics* ermöglichten das Überprüfen der Modenstruktur und der Feldlinienverteilung. Die exakte Kopplung und Probengeometrie wurde jedoch mithilfe der ebenfalls auf Finite-Element-Methoden (FEM) basierten Software *CST Microwave Studio* durchgeführt.

Dabei wurden die Geometrie des Resonators und die entsprechenden Randbedingungen wie z. B. die Mikrowellenquelle implementiert und das System für verschiedene Dimensionierungen von Resonator Durchmesser und -länge sowie dem Einfluss des Kopplungsloches zwischen Resonator und Hohlleiter untersucht. Die den Simulationen zugrunde gelegte dreidimensionale Zeichnung des Resonators ist in Abb. 6.4 dargestellt. Neben der perspektivischen Ansicht des Resonators mit abgehendem Hohlleiter ist ein Schnitt durch die Symmetrieebene gezeigt. Über den sogenannten Plunger lässt sich die Resonanzfrequenz der Kavität variieren. Die Probe sitzt auf einem Quarzstab, der weitestgehend transparent für die Mikrowellen ist. Über das Kopplungsloch wird die Mikrowelle vom Hohlleiter in den Resonator eingekoppelt. Die Kopplung der elektromagnetischen Welle vom Hohlleiter in den Resonator, erkennbar an den magnetischen Feldlinien, ist dabei schon durch die Geometrie des Kopplungsloches für die nötige H_{01} -Mode optimiert, wie in Abb. 6.6 zu erkennen ist [141]. Dabei kann der oszillierende H-Feldwirbel im Hohlleiter durch das Kopplungsloch in den Resonatorhohlraum gelangen und ideal die H_{01} -Mode anregen. Weitere Details der Kopplung sind in [96] zu finden.

Die vollständige Geometrie wurde so geplant, dass ein Einsetzen des Resonators in den Kryostaten möglich ist. Das System wurde auf eine Quelle von 53 GHz optimiert. Die Simulationen zeigen, dass zylindrische Hohlraumresonatoren bei der Verwendung in ESR-Experimenten wesentliche Vorteile

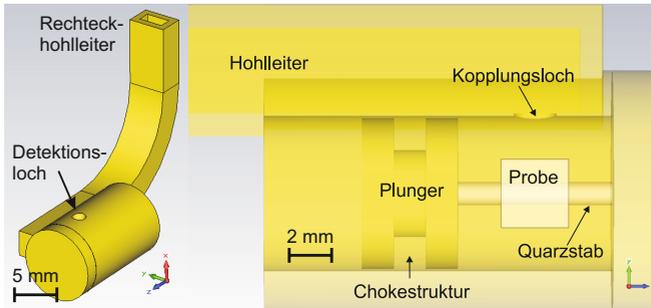


Abbildung 6.4: Links: Perspektivische Außenansicht der simulierten Geometrie mit Hohlleiteranschluss nach oben. Zu erkennen ist ebenfalls ein Detektionsloch, durch das Licht von der Probe zu kollimierenden Optiken gelangen kann. Rechts: Schnitt durch die Ebene, in der die Probe platziert wird, mit einem Quarzstab als Probenhalter im Resonator. Im Vergleich zur hier dargestellten Probengröße konnten in der späteren Realisierung jedoch noch weitaus kleinere Proben hergestellt werden (siehe Abschnitt 6.2.4). Der bewegliche Plunger erlaubt ein Verstimmen des Resonators für verschiedene Eingangsfrequenzen.

aufzeigen (siehe Feldlinienverteilung in Abb. 6.5). Dabei können starke H-Feldamplituden von über 450 A/m erreicht werden (siehe Abb. 6.6). Nicht nur die definierte Feldverteilung, sondern auch die Feldüberhöhung der Kavität ermöglicht es, an einem definierten Ort starke oszillierende Magnetfelder zu deponieren. Desweiteren ist die Implementierung des Resonators in einem optischen Kryostaten möglich. Daher wurde diese Realisierung für die ESR-Experimente gewählt.

6.2.3 Realisierung des Resonators

Die tatsächliche Herstellung der Resonatoren erfolgte über mehrere Generationen von Resonatoren mit weiteren Optimierungen. Die Struktur wurde in mehrere Abschnitte unterteilt, vor allem, um einen variablen Probenhalter benutzen zu können. Als Material wurde Kupfer gewählt, zum einen wegen der Verarbeitungsmöglichkeiten, aber auch wegen der hohen elektrischen Leitfähigkeit. Abb. 6.7 zeigt den zerlegten Resonator in 4. Generation. Von links nach rechts sind die Abstimmerschraube für die Hohlleiterkopplung, der L-förmige Halter mit der Resonatorabstimmerschraube (Plunger mit Feingewinde) und der Resonatorhauptteil mit Hohlleitersystem zu erkennen. Das rechte Endstück stellt den Probenhalter dar, auf welchem eine Probe fest montiert wird.

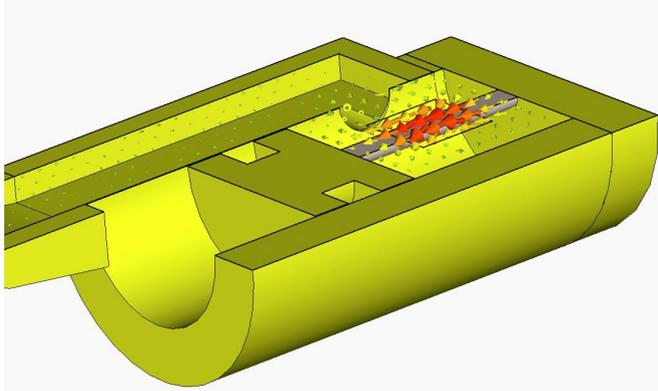


Abbildung 6.5: H-Feldverteilung in der Schnittebene für eine Resonanz bei 53 GHz. Die Mikrowelle koppelt wie erwartet durch das Loch zwischen Hohlleiter und Resonator und besitzt wie von der Theorie erwartet an der Probenposition ein Maximum.

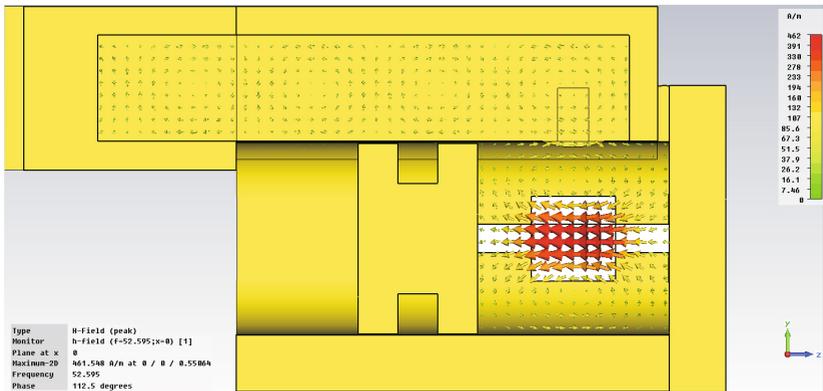


Abbildung 6.6: Die H-Feldverteilung in Draufsicht bei einer Resonanz der H_{01} -Mode optimiert auf 52,6 GHz. Am Ort der Probe werden Feldstärken von über 450 A/m erreicht. Zu erkennen ist ebenfalls die H-Feldverteilung im Hohlleiter mit wesentlich geringerer Amplitude und das entsprechende Koppelverhalten durch das Kopplungsloch. Der Durchmesser d und die Länge l des Resonators der hier gezeigten Simulation betragen $d = l = 6,84$ mm.

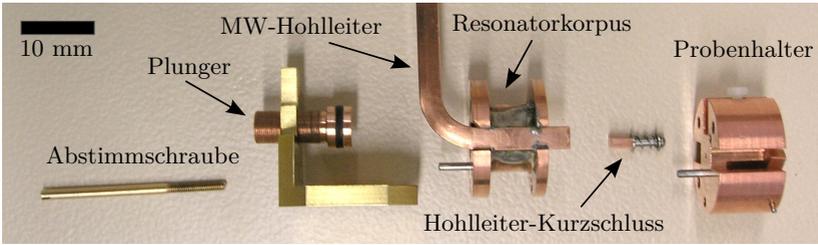


Abbildung 6.7: Resonator 4. Generation in seine Einzelteile zerlegt. Links die Abstimmerschrauben für Kopplung und Resonanzfrequenz, mittig der Resonator корпус mit Hohlleitersystem und rechts der Probenhalter. Die einzelnen Komponenten können fest miteinander verschraubt werden.



(a) Probenhalter mit Probe auf einem Quarzstab und elektrischem Kopplungsloch (vgl. Abb. 6.1(a)). **(b)** Blick in den zylindrischen Resonatorhohlraum mit optischem Zugang und elektrischem Kopplungsloch. **(c)** Fertig montierter Resonator mit Plunger und Abstimmerschraube. Das Detektionsloch, worunter die Probe platziert ist.

Abbildung 6.8: Resonator 5. Generation in verschiedenen Ansichten

Ist der Resonator wie in Abb. 6.8c montiert, so kann durch Drehen am Plunger die Resonanzfrequenz der unterschiedlichen Moden abgestimmt werden. Führt man eine Mikrowellen-Reflexionsmessung bei unterschiedlichen Frequenzen durch, so koppelt genau dann eine Welle und damit Energie in den Resonator, wenn eine der Moden getroffen wird und die Energie dissipiert. Diese Dips können dann für unterschiedliche Resonatorlängen gemessen werden und eine Modenkarte kann erstellt werden. Für den Resonator 5. Generation (siehe Abb. 6.8) ist dies in Abb. 6.9 dargestellt.

Der Resonator zeigt dabei unterschiedliche Absorption von Mikrowellenstrahlung, jedoch ist im Bereich von 53 GHz das feine Abstimmen der gewünschten H_{01} -Mode möglich. Höhere Moden (nicht durchgezogene Linien) werden nur sehr gedämpft eingekoppelt und können daher vernachlässigt werden.

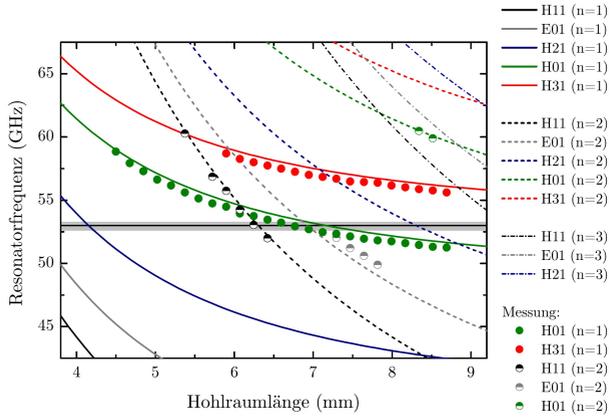


Abbildung 6.9: Absorption der unterschiedlichen Moden beim Verstimmen des Resonators über den Plunger (entspricht verschiedenen Resonatorlängen l). Die Linien sind analytische Berechnungen der Resonanzfrequenzen der ersten fünf Grundmoden ($n = 1$) und höherer Ordnungen ($n = 2$ und zum Teil $n = 3$). Der Resonator wurde so optimiert, dass die H_{01} -Mode im Bereich von 53 GHz fein abgestimmt werden kann. Die Punkte geben die Messwerte wieder und stimmen sehr gut mit der Theorie überein.

6.2.4 Design der Probe und Wahl der Probengeometrie

Um die Auswirkung der Mikrowellen auf hochdotierte Materialien in den spintronischen Bauteilen zu minimieren, wurde jeweils nur ein einzelnes Bauteil auf einem Quarzstab präpariert (siehe auch Abb. 6.1). Desweiteren erfolgte das Polieren der oft unnötig dicken und hoch dotierten Substrate bis auf wenige μm ($10\ \mu\text{m}$ – $60\ \mu\text{m}$). So kann vermieden werden, dass viele freie Ladungsträger Mikrowellenleistung absorbieren und damit die Güte des Resonators senken. Daher kommen für die Mikrowellenmanipulation auch nur Proben in Frage, deren Kantenlänge kleiner als 1 mm ist. Für diesen Zweck wurden spezielle Masken für die Probendimensionierung entwickelt und die Bauteile damit speziell für die Verwendung in Mikrowellenresonatoren hergestellt [44].

Ein fertig präparierter Quarzstab mit Probe ist schematisch in Abb. 6.10 dargestellt und wird anschließend in den Probenhalter, das Resonatorendstück, geschoben. Dabei führen $15\ \mu\text{m}$ dicke Golddrähte die elektrischen Kontakte von außen zur Probe, wo sie mit elektrisch leitendem Kleber angebracht sind. Außerhalb des Resonators werden die Kontakte über Kupferlackdrähte angeschlossen (siehe Abb. 6.10).

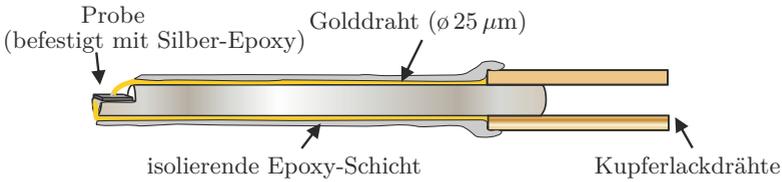


Abbildung 6.10: Schematische Darstellung eines Quarzstabes mit kontaktierter Probe. Die geschliffene/polierierte Probe wird über elektrische Zuleitungen von rechts kontaktiert. Zur Isolation gegenüber dem Probenhalter wird der dünne Kontaktdraht mit einem Epoxydharz überzogen.

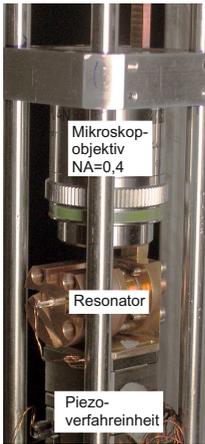


Abbildung 6.11: Resonator im Kryoeinsatz mit montierter Probe.

Wird das Endstück an den Resonator montiert, so muss vor dem Einbau des Resonators die Resonanzfrequenz der H_{01} -Mode auf eine feste Frequenz eingestellt werden. Da der Resonator beim Abkühlen seine Resonanz aufgrund des Temperatureinflusses zu höheren Frequenzen verschiebt, muss darauf zu diesem Zeitpunkt schon geachtet werden [143]. Da die verwendete Quelle auf 53 GHz ausgelegt ist, muss die oben genannte Mode nach dem Abkühlen des Systems ebenfalls bei 53 GHz liegen. Der Resonator wird dann auf einer xyz-Piezoverschiebeneinheit montiert, um späteres Justieren für die optischen Experimente zu ermöglichen.

Für den optischen Zugang zur Probe wird eine Linse oder ein Mikroskopobjektiv mit langem Arbeitsabstand über dem Detektionsloch platziert. Der fertige Aufbau am Kryostateneinsatz ist in Abb. 6.11 zu sehen.

6.2.5 Mikrowellenverstärker und gesamter Aufbau

Da die Feldamplitude entscheidend für die kohärente Spinmanipulation ist, ist eine hohe Ausgangsleistung der Quelle vonnöten. Um genügend Leistung der Mikrowellenquelle zur Verfügung zu stellen, wurde ein Verstärkersystem entwickelt [96, 143]. Die Quelle selbst besteht aus einem mechanisch verstimmbaren Gunn-Oszillator, der mittels weiterer Impatt-Dioden auf bis zu 1,4 W Mikrowellenleistung verstärkt werden kann. Die Mikrowellenquelle erlaubt eine gepulste Anregung mit Flankenzeiten von 1–2 ns, so dass Mikrowellenpulse von insgesamt kürzer als 10 ns möglich sind.

Die generierten Mikrowellenpulse werden anschließend durch das Hohlleitersystem in den Kryostaten zum Resonator geleitet. Der gesamte experimentelle Aufbau ist in Abb. 6.12 dargestellt. Darin ist linker Hand das Mikrowellensetup zu sehen. Neben der Gunnquelle mit Verstärkereinheit ist eine zweite Quelle zu sehen, die es erlaubt, mithilfe einer weiteren breitbandigen Impatt-Dioden-Quelle das Reflexionsspektrum der Mikrowellen über einen breiten Frequenzbereich zu beobachten, um das Verschieben der Moden beim Abkühlen zu beobachten. Zwischen den Quellen und dem Kryostat befindet sich ein System, das es ermöglicht, die Reflexion aufgrund von stehenden Wellen in langen Rechteckhohlleitern zu eliminieren. Detektiert wird daher nur die Absorption von Mikrowellen durch den Resonator im Kryostaten.

Es ist desweiteren möglich, den optischen Anregungs- und Detektionsweg zu nutzen. Das Detektionsloch des Resonators in Kombination mit dem im Kryostaten verfügbaren Raum schränkt die Numerische Apertur ein ($NA = 0,35$), und es werden Linsen mit langer Brennweite oder Objektive mit großem Arbeitsabstand verwendet ($WD \geq 11$ mm).

6.3 Prinzip der Spinmanipulation über den Spinausrichter

Aufgrund der nur begrenzten Lebensdauer der exzitonischen Zustände in den Quantenpunkten ist ein ESR-Experiment mit Spin-LEDs in einzelnen Quantenpunkten schwer realisierbar. Hierfür sind die in Kap. 4 beschriebenen Charge-Tuning-Strukturen potentiell geeignet, da sie ein Speichern von Spin-zuständen in Quantenpunkten ermöglichen. Es ist jedoch trotzdem möglich, auch mit Spin-LEDs Manipulationsexperimente durchzuführen, indem man an die Spins der Manganionen im Spinausrichter ZnMnSe koppelt. Dies wird im Folgenden erläutert.

6.3.1 Kopplung der Manganspins an das Mikrowellenfeld

Wie bereits erwähnt, spaltet auch das Mn-Spinsystem bei angelegten magnetischen Feldern in seine Spineigenzustände m_S auf (siehe Abb. 6.13). Die Mikrowelle kann äquivalent an das Mangansystem koppeln und Spin-Flip-Prozesse ermöglichen [144].

Bei genauerer Betrachtung der Mikrowellenabsorption kann sogar die Hyperfeinstruktur des Mangan aufgelöst werden [146, 147]. Insgesamt können bei ESR-Messungen mit ausreichend hoher Auflösung an Mangansystemen bis zu 30 ESR-Linien detektiert werden [46, 148]. Dies ist jedoch nur möglich, wenn die Mangan-(II)-Ionen hinreichend gut entkoppelt sind. Da das Mangansystem kein einfaches Zweiniveausystem darstellt, lassen sich kohärente Effekte nicht mit der einfachen Theorie aus Kap. 2.4.3 beschreiben. Es erweist sich

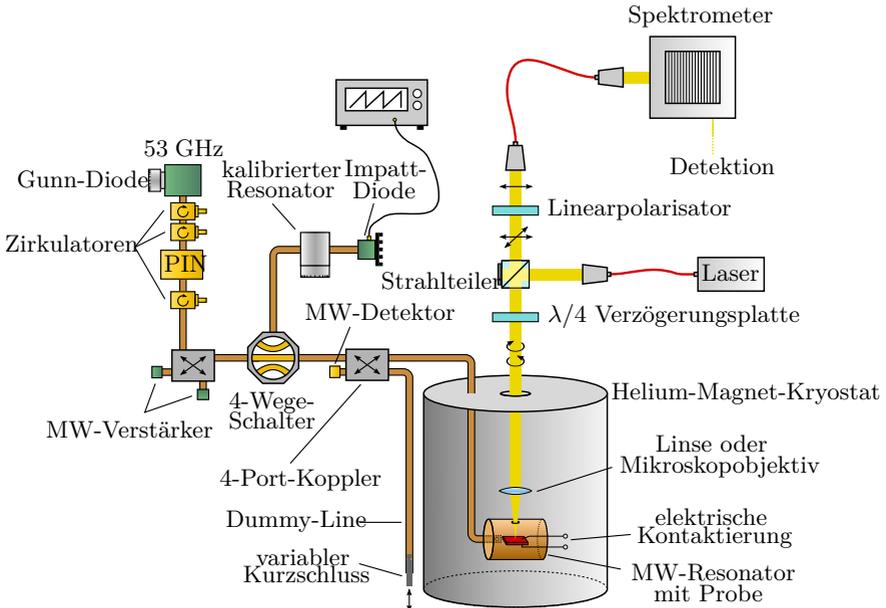


Abbildung 6.12: Gesamter Aufbau des Mikrowellenmanipulationsexperimentes [54]. Links sind die Mikrowellenquellen mit Verstärkereinheit und Hohlleitersystem zu erkennen. Letzteres endet im Kryostaten am Mikrowellenresonator. Über denselben optischen Aufbau wie bei den anderen Messungen kann Laserlicht zur Anregung auf der Probe im Resonator fokussiert werden und Lumineszenz (PL oder EL) außerhalb des Kryostaten polarisationsspezifisch selektiert und anschließend detektiert werden. Einzige Einschränkung im optischen Aufbau ist die verringerte Numerische Apertur und damit der vergrößerte Arbeitsabstand der Kollimationsoptik.

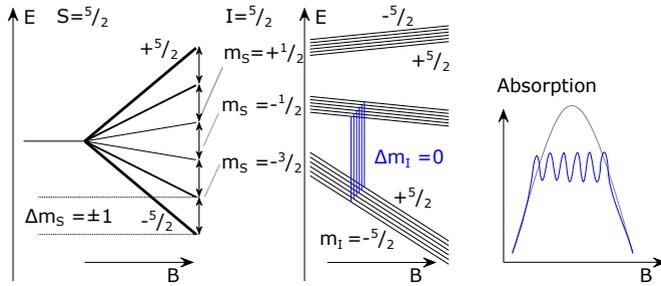


Abbildung 6.13: Aufspalten des 6-Niveausystems des Mangans im äußeren Magnetfeld. Aufgrund von Hyperfeinaufspaltung (Kernspinwechselwirkung) spaltet der Übergang mit $\Delta m_s = \pm 1$ wiederum in 6 Linien auf, was jedoch nur bei entsprechender Mn-Konzentration, Temperatur und Auflösung beobachtet werden kann [145].

durchaus als komplizierte Fragestellung, ob ein 6 Zustandssystem in der Betrachtung der Bevölkerung der einzelnen Zustände kohärent von einem in den nächsten Zustand transferiert werden kann. Für ein 3-Zustandssystem konnte theoretisch nachgewiesen werden, dass zumindest Oszillationen in der Besetzungsdichte der einzelnen Zustände auftreten [149]. Ebenfalls konnte eine analytische Lösung für ein N-Zustandssystem mit äquidistanten Niveaus gefunden werden, das ebenfalls Oszillationen der Besetzung der Zustände zeigt und sogar eine komplette Inversion ausgehend von einem Grundzustand zulässt [150, 151]. Inwiefern dieses vereinfachte System von äquidistanten Energieniveaus in der Realität auftritt und ob überhaupt kohärente Effekte zu beobachten sind, wird sich im Experiment zeigen.

Im Folgenden wird der Einfluss von Mangankonzentration und Temperatur auf die in der Spin-LED auftretenden Effekte genauer beleuchtet, um ein Verständnis für die Wahl der Probe zu erhalten.

6.3.2 Auswirkung des Spinheizens in Mn auf die Spin-LED

Die Funktion des Spinausrichters kann über die Messung der Riesen-Zeeman-Aufspaltung durch PL-Messungen an der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Schicht überprüft werden. Dabei kann über die Peakposition der Valenzband-Leitungsband-Übergänge die Stärke der Aufspaltung gemessen werden. Diese hängt vom angelegten Magnetfeld ab und sättigt bei hohen Feldern. Die PL-Peakposition bei einem definierten Magnetfeld ist demnach ein Maß für die Ausrichtung der Mn-3d-Spins. Koppelt die Mikrowelle nun resonant an das Spinsystem der Mn-Ionen, so werden die 3d-Spins durch ein kontinuierliches "Aufheizen" in Unordnung gebracht und die Riesen-Zeeman-Aufspaltung verringert sich

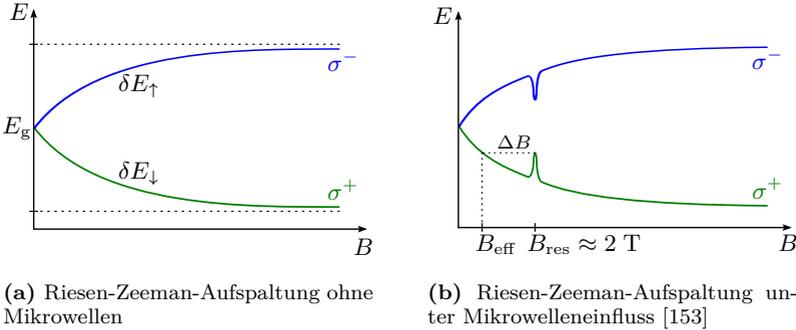


Abbildung 6.14: (a) In Abhängigkeit des angelegten Magnetfeldes spalten die Spinzustände von Elektronen im Leitungsband (und hier nicht gezeigt ebenfalls die Lochzustände des Valenzbandes) im $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ auf. Die Peak-Position dient als Maß für die Ausrichtung der 3d-Mn-Elektronenspins. (b) Ein resonantes Spinheizen verursacht eine Verringerung der Magnetisierung der Spins und damit eine Verringerung der Riesen-Zeeman-Aufspaltung. [85].

[152]. Dies ist schematisch in Abb. 6.14 dargestellt.

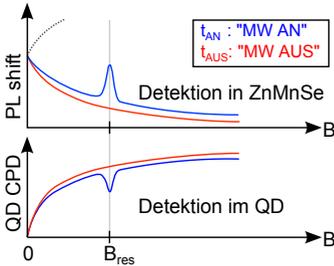


Abbildung 6.15: Schematische Darstellung des Mikrowelleneinflusses auf die Spininjektion. Wie in der PL von ZnMnSe erwartet man auch im CDP der Quantenpunkte eine Resonanz.

Dieses "Aufheizen" ist jedoch wesentlich schneller als ein rein thermisches Aufheizen der Probe, da resonant an die Spins der Elektronen in den Mn^{2+} -Ionen gekoppelt wird, und kein Heizen über Wechselwirkung mit dem Gitter und Phononen beteiligt sind. Misst man bei einer Spin-LED das PL-Spektrum, so verschiebt sich demnach die Bandkantenlumineszenz bei steigenden Magnetfeldern hin zu niedriger Photonenenergie aufgrund der Riesen-Zeeman-Aufspaltung. Für den Fall der resonanten Kopplung von Mikrowellen an das Mn-Spinsystem wird diese Verschiebung beeinflusst.

Bewirken die Mikrowellen eine Verminderung der energetischen Aufspaltung, so kann man diesem Wert ein effektives Magnetfeld B_{eff} zuordnen, das genau dem (geringeren) Feld für die kleinere Aufspaltung entspricht. Das Prinzip der optisch detektierten Magnetresonanz wird ODMR (engl. *optical*-

ly detected magnetic resonance) genannt.

Da die Spinpolarisation der injizierten Elektronen von der Ausrichtung der Mn-Spins abhängt und bis in die Quantenpunkte erhalten bleibt, lässt sich mit der Manipulation der Mn-3d-Spins die Spinpolarisation der Quantenpunkte kontrollieren. Die Spininjektion lässt sich daher mit den Mikrowellen kontrollieren. Dieses Schema ist in Abb. 6.15 dargestellt.

6.3.3 Auswirkung der Mangankonzentration auf Spinpolarisation und Spinrelaxation

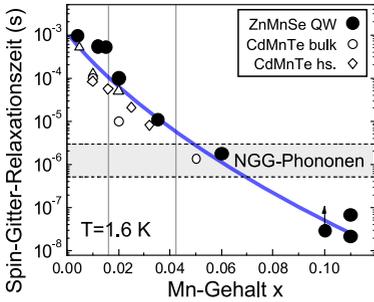
In den Kapiteln 2.3.2 und 5.2.2 wurde bereits auf die Funktionsweise des Spinausrichters $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ in einer Spin-LED eingegangen. Dieser Abschnitt betrachtet speziell die für die Spinmanipulation entscheidende Größe der Mangankonzentration in der Spinausrichterschicht.

Der Parameter x der Mangankonzentration wurde in vorangegangenen Arbeiten von Wolfgang Löffler und Bruno Daniel dahingehend optimiert, dass eine bestmögliche Funktion des Spinausrichters gewährleistet ist [42, 43]. Dabei spielt die Riesen-Zeeman-Aufspaltung zum einen und zum anderen die Gitterfehlpassung zwischen ZnMnSe und GaAs eine wesentliche Rolle. Aufgrund der Gitterfehlpassung sollte x einen möglichst kleinen Wert annehmen, um zu vermeiden, dass Versetzungen und weitere Fehlstellen die Spininjektion durch die Grenzschicht beeinflussen. Für die maximale Ausrichtung der Spins in der Spinausrichterschicht ist jedoch eine möglichst hohe Mangankonzentration wünschenswert, wobei das antiferromagnetische Koppeln der einzelnen Mn-Spins eine natürliche Obergrenze darstellt. Mit $x \approx 0,05$ wurde ein Wert gefunden, der beide obigen Kriterien erfüllt. Die bisher untersuchten Spin-LEDs wurden daher fast ausschließlich mit ca. 5% Mangan hergestellt.

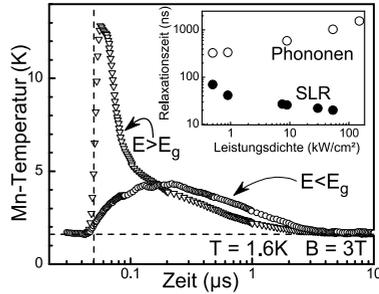
Betrachtet man die Zeit für die Relaxation von einem angeregten Zustand des Spinsystems hin zum Grundzustand im Kristallgitter (Spin-Gitter-Relaxationszeit, kurz SLR für engl. *spin-lattice relaxation*) τ_{SLR} in $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$, so ergibt sich, dass mit steigendem Mangangehalt die Relaxationszeit sehr kleine Werte annimmt [154]. Die Austauschwechselwirkung zwischen den einzelnen Mn-II-Ionen nimmt für stärkere Mn-Konzentrationen also zu, wie auch in Abb. 6.16a zu erkennen ist. Gekennzeichnet ist der Bereich der Nicht-Gleichgewichts-Phononen (NGG-Phononen). Für mögliche Manipulationsexperimente bedeutet dies, dass eine Relaxation des Spinsystems nach Mikrowellenanregung zu schnell stattfindet und das System daher nicht entscheidend angeregt werden kann.

Eine detaillierte Beschreibung der Spindynamik in Mn-Systemen ist in [155] gegeben und in Abb. 6.17 dargestellt.

In [156] wird weiter die Temperatur des Mangansystems für unterschiedliche Mn-Gehalte verglichen. Die Abhängigkeit der Temperatur des Mn-Systems



(a) Spin-Gitter-Relaxationszeit in Abhängigkeit des Mn-Gehalts. Für größeren Mn-Gehalt interagieren die Mn-Spins auf einer wesentlich kürzeren Zeitskala.



(b) Phononen- und Spingitterrelaxation können durch Laseranregung unterschiedlicher Anregungsleistung oberhalb und unterhalb der Bandkante separiert werden.

Abbildung 6.16: Spindynamik in $Zn_{1-x}Mn_xSe$ Strukturen nach [154]. Die Spin-Gitter-Relaxationszeit variiert dabei über mehrere Größenordnungen für nur geringe Variationen von x . Zwischen Relaxationsmechanismen mittels Nicht-Gleichgewichts-(NGG-)Phononen und der wesentlich schnelleren Spin-Gitter-Relaxation kann deutlich unterschieden werden (logarithmische Darstellung).

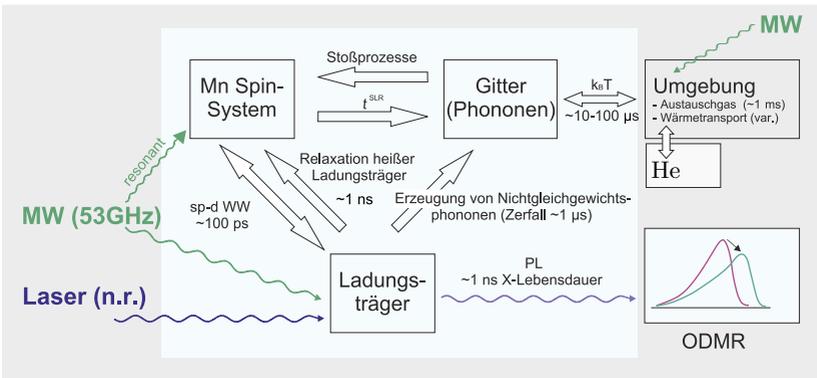


Abbildung 6.17: Erweitertes Schema der Wechselwirkungen im $Zn_{1-x}Mn_xSe$ -System unter optischer, nicht resonanter Laseranregung und unter Mikrowelleneinfluss. Freie Ladungsträger wechselwirken mit den Mn-3d-Elektronen und dem Kristallgitter und letztere auch untereinander. Die Umgebung der Probe reagiert dabei ebenfalls auf Mikrowellen aber auch auf Kühleinflüsse durch die Helium Kühlung.

von den unterschiedlichen Relaxationszeiten wird in Abb. 6.16b deutlich: Für kürzere Zeiten kleiner als $1\ \mu\text{s}$ tritt eine erhöhte Mn-Temperatur auf. Hier kann zudem mittels Laseranregung oberhalb und unterhalb der Bandkante zwischen den unterschiedlichen Relaxationsprozessen unterschieden werden.

In Abb. 6.17 ist das Zusammenspiel der Einflussnahme der wichtigsten Parameter und Systeme untereinander eingezeichnet. Im $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Volumenhalbleiter interagieren die freien Ladungsträger über die s/p-d Wechselwirkung mit den 3d-Mn-Elektronen. Diese Wechselwirkung findet auf der Zeitskala von wenigen 100 ps statt und ist damit der schnellste Prozess. Ladungsträger können für PL-Messungen mit einem nichtresonanten Laser angeregt werden. Man beobachtet das PL-Signal nach dem exzitonischen Zerfall nach ca. 1 ns. Das Mn-Spin-System koppelt nun wie die Ladungsträger im Kristall über Phononen an das Gitter. Eine Mikrowelle (hier kurz MW) kann das Mn-Spin-System resonant anregen, letzteres kann anschließend über die Spin-Gitter-Relaxation (SLR) wieder seinen Grundzustand annehmen.

Die Mikrowelle selbst kann jedoch auch nichtresonant freie Ladungsträger anregen (heiße Ladungsträger) und die Umgebung der Probe erwärmen. Die Umgebung (Austauschgas, inklusive He-Kühlung) ist wiederum über das Kristallgitter mit dem System in Wechselwirkung, jedoch auf einer langsameren Zeitskala. Typischerweise findet letzteres im Millisekunden-Zeitbereich statt.

Die Wahl des Mangengehalts für die Mikrowellenmanipulationsexperimente mit Spin-LEDs sollte daher ein Abwägen zwischen genügend hohem Anteil an Mn für die Spinausrichtung und ausreichend geringer Konzentration für die effektive Manipulation sein. Aufgrund der schnellen Spin-Gitter-Relaxation bei zu hohen Mn-Konzentrationen. In den Arbeiten von Robin Schwerdt und Robert Schittny wurden unterschiedliche Mn-Konzentrationen getestet [54, 143]. Der Mangengehalt wurde dabei über Magneto-PL-Messungen bestimmt.

Einige Messkurven sind in Abb. 6.18 dargestellt. Aus der Anpassung der Messkurven an die in Gleichung 5.2 aufgeführte Formel ergab sich der jeweilige Mn-Gehalt. Für $x = 0,016$ wurden erfolgreiche ODMR-Messungen durchgeführt und ebenfalls die Funktion der Spin-LED nachgewiesen.

6.4 Methodik zum Auslesen der Spinmanipulation

Der nun folgende Abschnitt behandelt die methodische Vorgehensweise, die es erlaubt, Spinmanipulation in Spin-LEDs nachzuweisen. Ziel dieser Messungen ist es, kohärente Manipulation von Elektronenspins durchzuführen und nachzuweisen. Auch für nichtkohärente Spinmanipulation werden gepulste Mikrowellen genutzt, um die Dynamik des Systems bestimmen zu können. Für die PL-Messung der Riesen-Zeeman-Verschiebung wird ein UV-Diodenlaser stroboskopisch eingeschaltet, sodass entweder während des Mikrowellenpulses

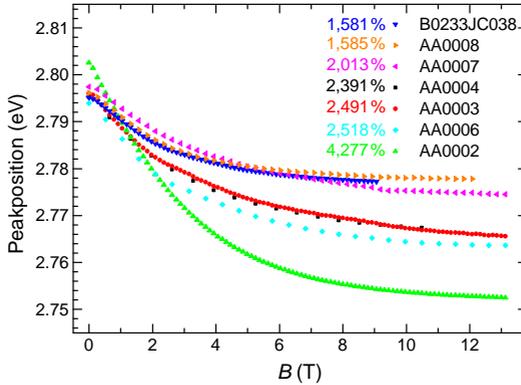


Abbildung 6.18: Magneto-PL-Messungen an verschiedenen Schichtsystemen von $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ für unterschiedliche Mn-Konzentrationen x . Bei einem höheren Mangan Gehalt von ca. 5% ist die Riesen-Zeeman-Verschiebung deutlich größer. Auch für eine Konzentration von 1,6% ist die Verschiebung noch hinreichend groß, so dass nur das niedrigste Spinsubband besetzt wird und eine hohe Spinpolarisation erzielt werden kann.

oder kurz zuvor das Lumineszenzsignal stimuliert wird. Der Ablauf der Pulse ist in Abb. 6.19 dargestellt. Zur Detektion werden Spektren mithilfe der kontinuierlich belichtete CCD-Kamera aufgenommen. Der für die PL verwendete Laser wird dazu für die Mikrowellen-an-(MW an) und die Mikrowellen-aus-(MW aus)-Messung gegenüber den Mikrowellenpulsen mit den Verzögerungszeiten t_1 bzw. t_2 zeitlich verschoben. Dies ermöglicht das Sammeln von Lumineszenz während/am Ende des Mikrowellenpulses für die MW-an-Messung oder am Ende eines Zyklus kurz vor der erneuten Mikrowellen-Anregung für die MW-aus-Messung. Da eine geringe Wiederholrate des Experiments gewählt wird, kann die MW-aus-Messung zusätzlich mit einer Messung völlig ohne Mikrowellenpulse (MW ganz aus) verglichen werden und stimmt in der Regel damit überein.

Wie im folgenden Abschnitt noch gezeigt wird, kann natürlich auch eine variable Verzögerung zwischen den Zeiten für MW an und MW aus gewählt werden, um die Relaxation des Systems zeitlich zu erfassen.

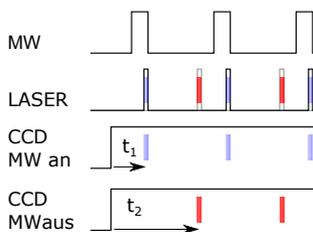


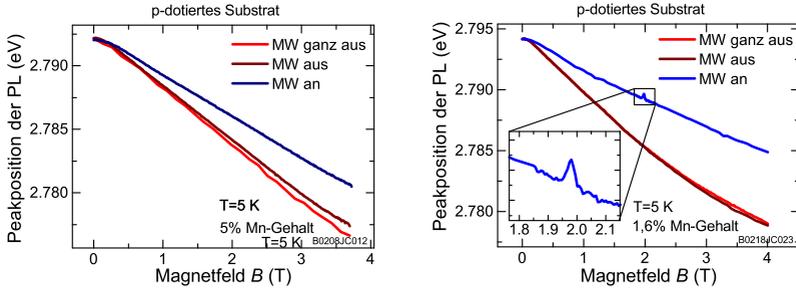
Abbildung 6.19: Messzyklus für die ODMR-Messungen. Die Mikrowelle wird mit kurzen Pulsen eingestrahlt, dabei wird eine geringe Wiederholrate gewählt, so dass vor Beginn einer Anregung eine vollständige Relaxation stattgefunden hat. Für die PL-Messungen wird ein stroboskopischer Laser nach verschiedenen Verzögerungszeiten relativ zu den Mikrowellenpulsen geschaltet. Im Falle einer MW-an-(MW-aus-)Messung wird der Laser am Ende eines Mikrowellenpulses (am Ende des Zyklus kurz vor erneuter Mikrowellenanregung) kurz eingeschaltet. Die kontinuierliche Detektion mithilfe der CCD-Kamera sammelt demnach nur Licht, wenn der Laser eingeschaltet ist.

6.5 Nachweis der Spinmanipulation in Spin-LEDs

Im folgenden Abschnitt werden zuerst die Ergebnisse der ODMR-Messungen an der Spinausrichterschicht $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ für unterschiedliche Mangankonzentrationen präsentiert. Die Ergebnisse werden durch Relaxationsmessungen für jeweils resonantes und nichtresonantes magnetisches Feld komplettiert, sofern eine erfolgreiche ODMR-Messung möglich war. Dabei wird die Mikrowellenanregung immer weiter verkürzt, um reine Spinphänomene zu beobachten und thermische Anregung des Gitters zu minimieren. Im Anschluss daran wird der Einfluss dieser Manipulation auf die Spininjektion untersucht, und die Ergebnisse werden präsentiert.

6.5.1 Optisch detektierte magnetische Resonanzen in $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$

In Abb. 6.20 ist die optisch detektierte magnetische Resonanz-(ODMR-)Messung für zwei verschiedene $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Proben dargestellt. Abb. 6.20a zeigt dabei das Verhalten einer Probe mit $x = 0,05$, also 5% Mangangehalt. Hierbei wurde als MW-Pulslänge 10 ms gewählt bei einer Wiederholrate von 6,7 Hz. Der Laser für die PL wurde jeweils für die Dauer von 2 ms eingeschaltet. Zu erkennen ist die Verschiebung des PL-Peaks zu niedrigeren Energien mit zunehmendem Magnetfeld, wie es durch das Riesen-Zeeman-Splitting erwartet wird. Die MW-aus-Messung und MW-ganz-aus-Messung unterscheiden



(a) ODMR-Messung bei einer Probe mit 5% Mn-Gehalt. Es ist keine Resonanz zu erkennen.

(b) ODMR-Messung bei einer Probe mit 1,6% Mn-Gehalt. Bei $B \approx 2$ T ist eine Resonanz zu erkennen.

Abbildung 6.20: Die ODMR Messung an verschieben Proben belegt: Durch die extrem kurze SLR-Zeit τ_{SLR} ist kein Resonanzphänomen bei 5% Mn zu erkennen. Erst bei niedrigerer Mn-Konzentration (1,6%) ist die Resonanz des Spinheizens zu erkennen.

sich nur minimal bei höheren magnetischen Feldern, was für eine ausreichend niedrige Wiederholrate der Mikrowellenpulse spricht. Die MW-an-Messung jedoch ist deutlich gegenüber der MW-aus-Messung verschoben, und zwar über alle Magnetfeldstärken hinweg. Dies bedeutet, dass die Mikrowelle durch einfaches Gitterheizen das System erwärmt und dadurch die Riesen-Zeeman-Aufspaltung verkleinert. Über den gesamten Magnetfeldbereich hinweg ist keine Resonanz zu erkennen.

Für die Probe mit 1,6% Mn (vergleichbare Geometrie und Probenpräparation) ist jedoch eine signifikante Resonanz bei $B \approx 2$ T zu erkennen. Bei diesem Magnetfeld ist die Mikrowelle resonant zum Übergang in den 3d-Mn-Spins und kann durch die Spin-Flip-Prozesse die Riesen-Zeeman-Aufspaltung verringern. Dies ist in Abb. 6.20b durch einen Peak in der Messkurve zu erkennen. Um nun die Relaxationszeiten zwischen resonantem Spinheizen und nichtresonantem Gitterheizen unterscheiden zu können, wurden zeitaufgelöste Relaxationsmessungen durchgeführt.

6.5.2 Relaxationsmessungen an $Zn_{1-x}Mn_x$ Se-Schichten

Für Relaxationsmessungen werden nicht nur zwei Verzögerungszeiten für MW an und MW aus gewählt, sondern die Verzögerung der Laseranregung wird in feinen Schritten zwischen den beiden obigen Zeiten variiert und jeweils eine Messung aufgenommen. Diese Messung gibt genau die Peakposition der PL

zu unterschiedlichen Zeiten während des Mikrowellenpulsablaufs wieder.

Die dabei entstandenen Messkurven sind in Abb. 6.21 dargestellt. Der erste Graph zeigt eine Messung an einer Probe mit 1,6% Mangangehalt, jedoch auf intrinsischem Substrat. Dabei ist zu erkennen, dass hier kaum nichtresonantes Heizen vorliegt und fast ausschließlich Spinheizen. Die mittleren Messkurven entsprechen der Messung aus Abb. 6.20b für jeweils resonantes und nichtresonantes Magnetfeld bei dotiertem Substrat. Wie oben erwähnt, spielt bei einer Mikrowellenpulslänge im Millisekundenbereich das nicht-resonante Gitterheizen die Hauptrolle und nur ein kleiner Beitrag entspricht dem resonanten Spinheizen.

Dies liegt an der hohen Dotierung des verwendeten Substrats, auch wenn dies bis auf 60 μm Dicke abpoliert wurde, bevor die Probe auf dem Quarzstab montiert wurde. Die freien Ladungsträger in der Struktur absorbieren die Mikrowellenleistung, und es kommt zur Erwärmung der Probe. Da dies jedoch auf einer längeren Zeitskala stattfindet als das Spinheizen, liegt es nahe, die Mikrowellenpulslänge zu reduzieren. Dies wurde für die Messung im unteren Graphen in Abb. 6.21 realisiert. Bei Mikrowellenpulslängen von 1 ms ist das Verhältnis zwischen Spin- und Gitterheizen bereits fast ausgeglichen.

Verkürzt man die Mikrowellenpulse weiter auf bis zu 50 μs , so sind deutlich die unterschiedlichen Zeitskalen der einzelnen Prozesse zu beobachten. In Abb. 6.22 ist die entsprechende Messung gezeigt, mit einer Anpassung an die Relaxation. Dabei wurde eine Funktion mit drei exponentiellen Zerfällen genutzt, da vermutet wird, dass drei verschiedene Prozesse zur Relaxation beitragen, die auf unterschiedlichen Zeitskalen stattfinden. Neben der Spin-Gitter-Relaxation tragen noch thermische Effekte der Probe selbst, aber auch der Umgebung zur Relaxation bei. Die Vermutung liegt nahe, dass neben dem nichtresonanten Gitterheizen auch ein Beitrag durch die Erwärmung des Kupferresonators vorhanden ist, welcher aber wesentlich träger und damit langsamer ist. Die verwendete Funktion lautet

$$f(t) = a_1 e^{-(t-t_0)/\tau_1} + a_2 e^{-(t-t_0)/\tau_2} + a_3 e^{-(t-t_0)/\tau_3} + y_0.$$

Dabei sind τ_1 bis τ_3 die Zeitkonstanten der drei exponentiellen Zerfälle. Die Anpassung entspricht exakt der Messkurve. Ebenfalls wird anhand der Anpassung an die nichtresonante Relaxation deutlich, dass die beiden langsamen Prozesse den rein thermischen Gitterheizprozess und das Erwärmen der Umgebung der Probe darstellen. Daher kann für die Spin-Gitter-Relaxation ein Wert von $\tau_{\text{SLR}} = 24 \mu\text{s}$ angegeben werden. Dieser Wert passt in die Größenordnung der gemessenen Werte für die Spin-Gitter-Relaxation [157].

Geht man zu noch kürzeren Mikrowellenpulsen, nimmt der Anteil des Spinheizens stetig zu, bis schließlich eine Grenze erreicht wird. Von dort an nimmt auch das Spinheizen deutlich an Amplitude ab (siehe Abb. 6.23).

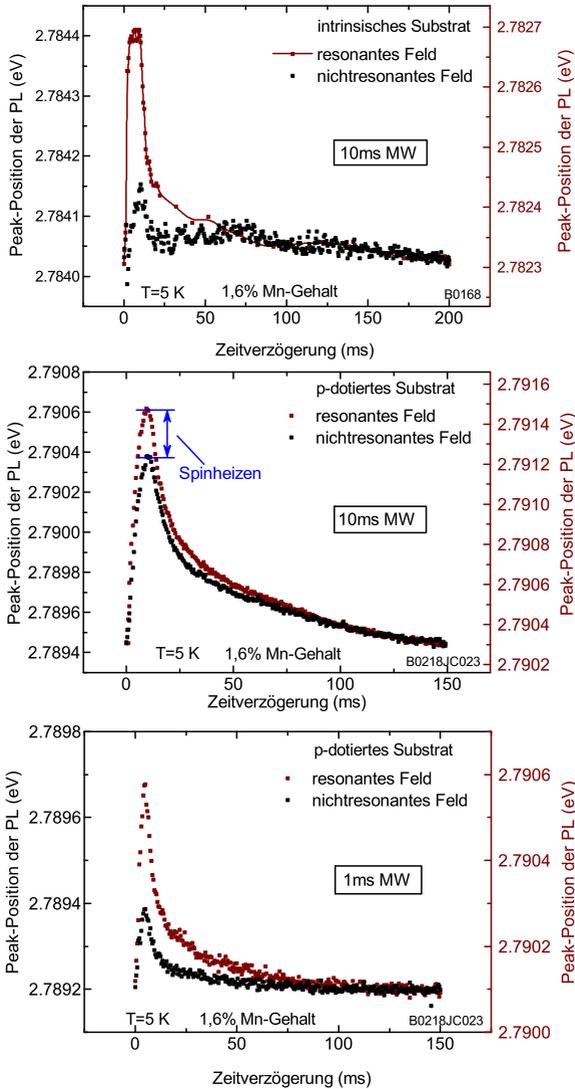


Abbildung 6.21: Relaxationsmessungen für unterschiedliche Substrate und verschiedene Mikrowellenpulslängen. Für kürzere Mikrowellenpulse und geringere Dotierung ist das Spinheizen effizienter als das Gitterheizen. Jedoch ist eine Dotierung zum Bau einer Spin-LED unvermeidbar. Als nichtresonantes Magnetfeld wurde $B = 1,59 \text{ T}$ gewählt.

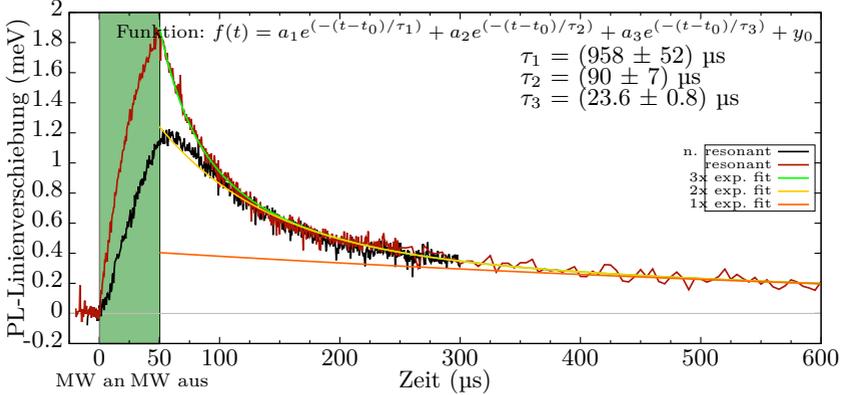


Abbildung 6.22: Relaxationsmessung für 50 μs MW-Pulslänge (in grün markiert). Das Verhältnis von reinem Spinheizen und Gitterheizen hat sich nicht verbessert, jedoch können nun die unterschiedlichen Zeitskalen der einzelnen Prozesse durch eine Anpassung bestimmt werden. Die schnellste Komponente entspricht dabei der Spin-Gitter-Relaxation.

Dies beruht auf der Tatsache, dass auch die Spinmanipulation einen sättigenden Prozess darstellt, der auf einer Zeitskala von einigen 10 μs sein Maximum erreicht. Hier treten dann weitere Prozesse zu Tage, die vermutlich vor allem mit Wärmetransport in der Probe zu tun haben, da zum Beispiel für sehr kurze Mikrowellenpulse eine Verschiebung der Peak-Position auch nach Einwirken der Mikrowellen eintritt (siehe dazu Abb. 6.23 für 2 μs Pulslänge).

Auch die Möglichkeit der Untersuchung kohärenter Effekte an der $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}$ -Spinausrichterschicht wurde nicht ausgelassen. Dabei wurde die Schicht mit 500-ns-Mikrowellenpulsen angeregt und die PL-Peak-Position in sehr feinen Schritten gemessen. Da hierzu ebenfalls sehr kurze Laserpulse nötig sind, nimmt die Stärke des PL-Signals drastisch ab (siehe Abb. 6.24a). Das zu erwartende Signal sollte im Falle von kohärenter Spinmanipulation zwischen unterschiedlichen Zuständen oszillieren oder zumindest wieder rückläufig sein. Die dabei beobachteten Verschiebungen konnten jedoch nicht belegen, dass kohärente Effekte zu Tage treten. Auch eine Fouriertransformation des zeitlichen Relaxationssignals kann nur eine Vermutung über ein oszillierendes Verhalten

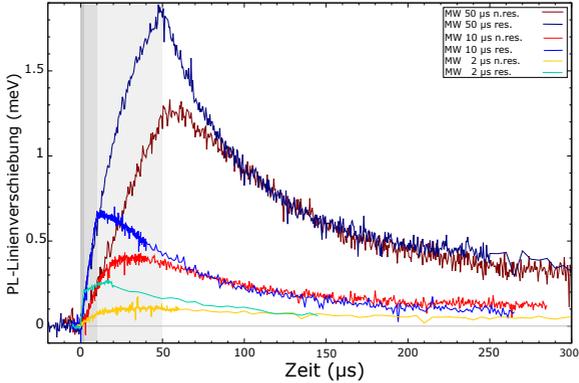


Abbildung 6.23: Resonanzmessungen für $50\ \mu\text{s}$ im Vergleich mit $10\ \mu\text{s}$ und $2\ \mu\text{s}$ langen Mikrowellenpulsen (als unterschiedliche Grautöne hinterlegt). Dabei ist bei den Messungen bei resonantem magnetischen Feld deutlich zu erkennen, dass auch die ansteigende Flanke ein Sättigungsverhalten zeigt, das nicht auf rein thermische Effekte zurückgeführt werden kann. Das nichtresonante Verhalten für kürzere Mikrowellenpulse zeigt auch Wärmetransportverhalten, da eine Veränderung auch nach Ende der Mikrowelleneinwirkung noch zu erkennen ist.

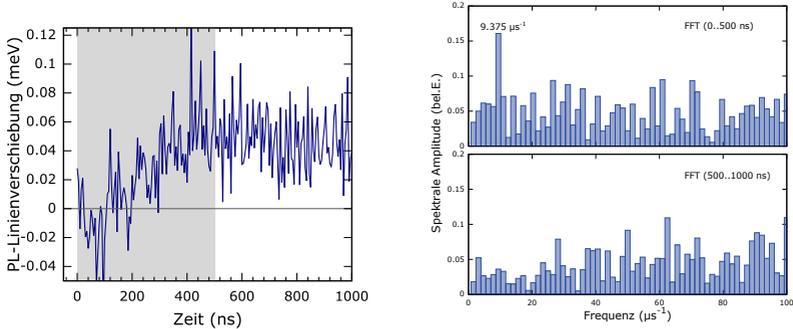
zulassen (siehe Abb. 6.24b). Die zu erkennende Oszillation mit knapp $10\ \text{MHz}$ entspricht einer Zeit für einen π -Puls von $\tau_\pi \approx 50\ \text{ns}$. Dies trifft die theoretisch zu erwartende Spinflip-Zeit aus Tabelle 6.2 von ca $30\text{--}40\ \text{ns}$ zwar recht gut, jedoch ist das Signal zu verrauscht, um weitere Interpretationen zuzulassen. Eine vollständige Inversion des Grundzustandes ist mit an Sicherheit grenzender Wahrscheinlichkeit jedoch nicht zu realisieren.

6.5.3 Mikrowellenspinmanipulation in einer Spin-LED

Die gewonnenen Erkenntnisse können nun genutzt werden, um die Manipulation des Spinzustandes beim Injektionsvorgang in die Quantenpunkte im EL-Spektrum nachzuweisen¹.

Dazu wurde eine Probe (AB0016) mit $1,6\%$ Mangengehalt eigens für diesen Zweck hergestellt und auf einem Quarzstab im Mikrowellenresonator präpariert. Auch an dieser Probe wurde die Funktion des Spinausrichters und der Einfluss der Mikrowellen untersucht. Abb. 6.25a zeigt die erhaltene ODMR-Messung mit beachtlich deutlicherem Signal. Die zugehörige Relaxationsmessung ist in Abb. 6.25b zu sehen.

¹Die Ergebnisse aus diesem Abschnitt sind zum Teil in [133] publiziert.



(a) Mikrowellenanregung mit nur 500 ns Mikrowellenpulsen. Die Verringerung der Riesen-Zeeman-Aufspaltung ist zwar noch zu erkennen, jedoch aufgrund der ebenfalls sehr kurzen PL-Signale aufgrund kurzer Laseranregung stark mit Rauschen belegt.

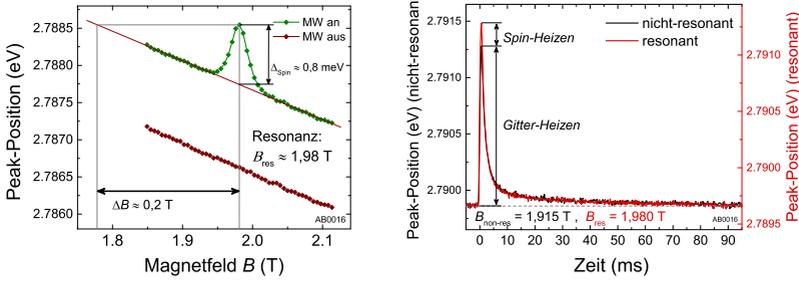
(b) Fouriertransformation der ersten 500 ns während der Einwirkung der Mikrowellen der Relaxationsmessung und Fouriertransformation während des Relaxationsprozesses danach.

Abbildung 6.24: Die Messung mit noch kürzeren Mikrowellenpulsen (500 ns) zeigt ein sehr verrauschtes Signal mit nur kleiner Amplitude. Mögliches oszillierendes Verhalten wird mithilfe einer Fouriertransformation überprüft. Dabei kann nur ein Peak bei knapp 10 MHz vermutet werden [46].

6.5.4 Nachweis Spinmanipulation durch Elektrolumineszenzmessung

Um den Einfluss der Spinmanipulation auf die Quantenpunkt-EL festzustellen, muss das Messprinzip leicht verändert werden. Anstatt der optischen Anregung durch Laserpulse kommt nun eine elektrische Anregung zum Einsatz. Diese folgt jedoch dem selben zeitlichen Ablauf wie die vorangegangene optische Anregung und ist in Abb. 6.26 dargestellt. An die Spin-LED wird dazu eine Pulsform angelegt, wie sie üblicherweise bei gepulstem Betrieb von Leuchtdioden verwendet wird. Eine Offset-Spannung in Durchlassrichtung wird knapp unter der Schwellspannung für Lumineszenz dauerhaft angelegt. Ausgehend von diesem Wert (hier 2 V) werden Rechteckpulse noch höherer Spannungen (4 V) angelegt, die zur Lumineszenz führen. Das Lumineszenzprofil wurde dabei analysiert und folgt bis in den μs -Bereich genau dem Spannungsverlauf. Da diese EL genau wie der Laser zu verschiedenen Zeiten relativ zu den Mikrowellenpulsen verschoben werden kann, wird dadurch die Messung für MW-an und MW-aus realisiert.

Da mit der Manipulation der Spins im Spinausrichter auch eine Manipulati-



(a) Die Resonanzmessung mit Mikrowellenpulslängen $\tau_{MW} = 50 \mu\text{s}$. Spinheizen und Gitterheizen sind fast äquivalent vertreten. Dies ist an der Peakhöhe der PL-Peak-Position im Vergleich zum Abstand zur MW-aus-Messung zu erkennen.

(b) Relaxationsmessung mit Mikrowellenpulsen mit Länge $\tau_{MW} = 1 \text{ ms}$ mit Periode $T = 100 \text{ ms}$. Der Anregungslaser wurde dabei mit $\tau = 0,5 \text{ ms}$ in sehr feinen Schritten über die gesamte Periode verzögert. Der Anteil des Spinheizens ist bei diesen längeren Mikrowellenpulsen schon deutlich geringer.

Abbildung 6.25: Resonanz- und Relaxationsmessung am $\text{Zn}_{0,984}\text{Mn}_{0,016}\text{Se}$ -Spinausrichter einer fertig präparierten Spin-LED im Mikrowellenresonator. Die Messungen zeigen ein beachtliches Signal-zu-Rauschen-Verhältnis.

on der injizierten Spins in den Quantenpunkten erzeugt werden soll, wirkt sich dies auf den zirkularen Polarisationsgrad CPD aus. Dieser sollte bei Mikrowelleneinwirkung sinken, das Verhalten ist ebenfalls in Abb. 6.26 schematisch dargestellt.

Zuerst wird das Verhalten der EL des Quantenpunktensembles auf die Mikrowellenpulse bei nichtresonantem Magnetfeld untersucht (1,85 T). Die auftretenden Effekte sind in Abb. 6.27 dargestellt. Dazu wurde die Lumineszenz der Quantenpunkte der hochenergetischen Flanke der Ensembleemission aufintegriert (Emission zwischen 1,33 eV und 1,36 eV). Typischerweise zeigen diese hochenergetischen Quantenpunkte die größte Spininjektionseffizienz [158]. Die beiden unterschiedlichen zirkularen Polarisierungen weisen deutlich unterschiedliches Verhalten auf. Die EL sinkt für die intensitätsstärkere Emission der σ^+ -zirkular-polarisierten Photonen während der Mikrowellenanregung. Dahingegen steigt die Emission der σ^- -zirkular-polarisierten Photonen während des Mikrowellenpulses. Beachtlich ist vor allem, dass die Summe der beiden Signale unter Mikrowelleneinfluss auch signifikant zunimmt. Die Messung wurde mit langen Mikrowellenpulslängen von $\tau_{MW} = 10 \text{ ms}$ durchgeführt. Aufgrund der geschilderten Intensitätsverläufe lässt sich folglich auch ein Einfluss auf den zirkularen Polarisationsgrad berechnen. Dieser fällt wäh-

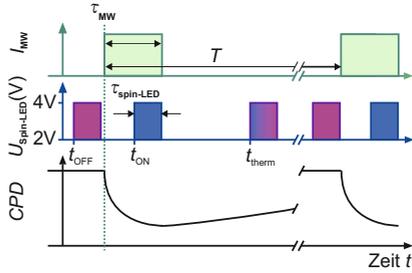


Abbildung 6.26: Messmethodik für den Nachweis der Spin-Manipulation im $\text{Zn}_{0,984}\text{Mn}_{0,016}\text{Se}$ -Spinausrichter durch die anschließende Injektion der spinpolarisierten Elektronen in die Quantenpunkte. Parallel zu den Mikrowellenpulsen (nach den Mikrowellenpulsen) wird ein Spannungspuls an der Spin-LED angelegt, um eine Messung Mikrowelle-an (Mikrowellen-aus) zu ermöglichen. Für Relaxationsmessungen wird die Verzögerung t_{therm} über die ganze Periode variiert. Die zu erwartende CPD-Entwicklung ist skizziert.

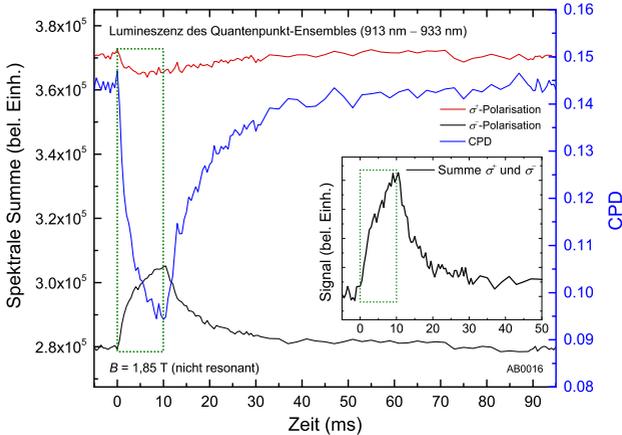


Abbildung 6.27: Nichtresonanter Einfluss der Mikrowellenpulse auf die EL von Quantenpunkten. Zu sehen ist die Auswirkung der Pulse auf die beiden zirkular polarisierten Signale σ^+ und σ^- . Die Summe der beiden Signale steigt während des Mikrowelleneinflusses. Der CPD sinkt deutlich durch die Mikrowellen.

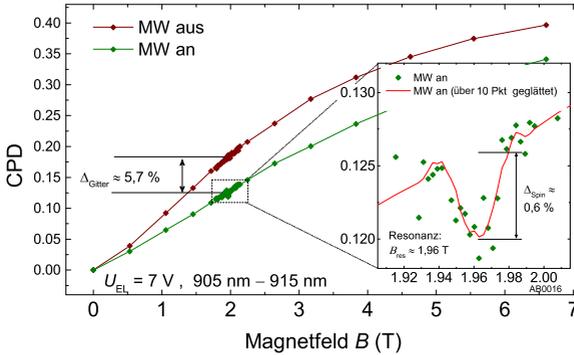


Abbildung 6.28: Erste erfolgreiche ODMR-Messung an Quantenpunkt-EL. Äquivalent zur Laseranregung findet nun eine elektrische Anregung für MW-an und MW-aus bei 10 ms langen Mikrowellenpulsen statt. Der *CPD* der beiden Messungen unterscheidet sich generell durch einen Offset, bedingt durch nichtresonantes Gitterheizen. Im Bereich von 2 T jedoch erlaubt eine feine Magnetfeldänderungsrate das Auflösen eines Resonanzverhaltens bedingt durch das gezielte Spinheizen.

rend der Mikrowellenpulse von gut 14% auf unter 10% absolut. Das Ansteigen der El bei Mikrowelleneinwirken wurde in der Diplomarbeit von B. Wolter ausführlich untersucht. Auch hier konnte eine Zunahme der Lumineszenz unter nichtresonantem Mikrowelleneinfluss gemessen werden [84]. Eine potentielle Erklärung dafür ist, dass die Aktivierung von Ladungsträgern die benachbart zu Quantenpunkten in Fehlstellen oder ähnlichem lokalisiert sind, dazu führt, dass auch solche Ladungsträger im Quantenpunkt eingefangen werden können und rekombinieren.

Diese Messung zeigt, dass die EL durch die Mikrowelle nicht komplett unterdrückt wird und erlaubt nun die ODMR-Messung an Quantenpunkt-EL. Das erste Ergebnis ist in Abb. 6.28 dargestellt. Es zeigt den Verlauf des *CPD* bei steigendem Magnetfeld. Für die MW-aus-Messung erreicht der *CPD* den für Spin-LEDs typischen Ensemblewert von knapp 40%. Die Entwicklung der Messung für MW-an zeigt dabei das Verhalten unter direktem Mikrowelleneinfluss. Der Polarisationsgrad ist deutlich geringer, sättigt jedoch ebenfalls für höhere magnetische Felder ab 7–8 T bei 35%.

Betrachtet man den Bereich um 2 T genauer, so kann bei feinem Verfahren des Magnetfeldes eine Resonanz in Form eines Lorentz-förmigen Einbruchs des *CPD* erkannt werden. Dies ist im Einsatz in Abb. 6.28 durch eine 10-Punkte-Glättung der einzelnen Messpunkte verdeutlicht. Der relativ geringe Anteil des Spinheizens von 0,6% im Vergleich zum Gitterheizen von 5,7%

ist aufgrund der 10 ms langen Mikrowellenpulse nicht verwunderlich. Wie bei den ODMR-Messungen am $\text{Zn}_{0,984}\text{Mn}_{0,016}\text{Se}$ -Spinausrichter kann jedoch zu kürzeren Mikrowellenpulsen übergegangen werden, um dieses Verhältnis zu verändern und den größtmöglichen Spinheizeffekt zu erhalten.

Geht man über zu kürzeren Zeiten τ_{MW} für die Mikrowellenpulse, so ändert sich, wie in Abb. 6.29 dargestellt, das Verhältnis von Spin- zu Gitterheizen hin zu ersterem.

In Abb. 6.29 werden die Ergebnisse zusammengefasst, die den Nachweis der Spinmanipulation bei der Spininjektion in Quantenpunkte erbringen [133]. Dabei wurden Mikrowellenpulse von $\tau_{\text{MW}} = 20 \mu\text{s}$ Länge und eine Periode von $T = 4 \text{ ms}$ gewählt. Die Mikrowellen wurden auf bis zu $P_{\text{MW}} = 1,2 \mu\text{W}$ Leistung verstärkt. Für die PL wurden dabei Laserpulse von $\tau_{\text{Laser}} = 10 \mu\text{s}$ für die jeweilige MW-an- und MW-aus-Verzögerungseinstellung verwendet. Gezeigt ist in Abb. 6.29(a) die magnetfeldabhängige der Riesen-Zeeman-Verschiebung der $\text{Zn}_{0,984}\text{Mn}_{0,016}\text{Se}$ -Spinausrichterschicht mit und ohne Mikrowelleneinfluss für Magnetfeldstärken bis 6 T. Das sättigende Verhalten für starke Magnetfelder ist zu erkennen. Die Peak-Position verschiebt sich jedoch nur für die MW-aus-Messung kontinuierlich. Bei der MW-an-Messung ist eine deutliche Resonanz- bei $B_{\text{res}} = 1,96 \text{ T}$ in Form der mikrowelleninduzierten Verschiebung der Emission hin zu höheren Photonenenergien zu erkennen. Bei exakt diesem Magnetfeld koppelt die Mikrowelle wie oben beschrieben an die Spins im Mn-Spinsystem. Die Verschiebung um ca. 3 meV entspricht einem Spinheizen des Systems, welches durch ein effektives Magnetfeld $B_{\text{eff}} = 1,25 \text{ T}$ beschrieben wird.

Bevor nun die Auswirkung auf den zirkularen Polarisationsgrad der Quantenpunktlumineszenz beschrieben wird, zeigt Abb. 6.29(b) zunächst den *CPD* in der Spinausrichterschicht selbst. Die unpolarisierte Anregung über der Bandlückenenergie resultiert in einer starken zirkularen Polarisation der emittierten Photonen bei angelegtem Magnetfeld. Dies demonstriert eindrücklich die Funktion des Spinausrichters. Da alle Ladungsträger in das energetisch günstigere Spin-Subband relaxiert sind, steigt der *CPD* der PL der $\text{Zn}_{0,984}\text{Mn}_{0,016}\text{Se}$ -Schicht schon für geringe magnetische Felder auf den Sättigungswert von über 80%. Die MW-an- und MW-aus-Messungen unterscheiden sich im wesentlichen wieder nur durch das Auftreten des Resonanzphänomens bei der Messung mit Mikrowelleneinfluss. Die Tiefe des Resonanzdips im *CPD* beträgt hier lediglich ca. 3%, jedoch kann erneut ein effektiver Magnetfeldwert von $B_{\text{eff}} = 1,25 \text{ T}$ angegeben werden, der exakt identisch ist mit dem Wert der PL-Messung aus 6.29(a). Insgesamt bedeutet dies, dass im Falle des resonanten Magnetfeldes die Mikrowellenpulse in der Lage sind, Elektronenspins im Leitungsband des Spinausrichters derart zu manipulieren, dass deren *CPD* sinkt. Die Möglichkeit, dies in den Quantenpunkten nachzuweisen, eröffnen die gepulsten EL-Messungen.

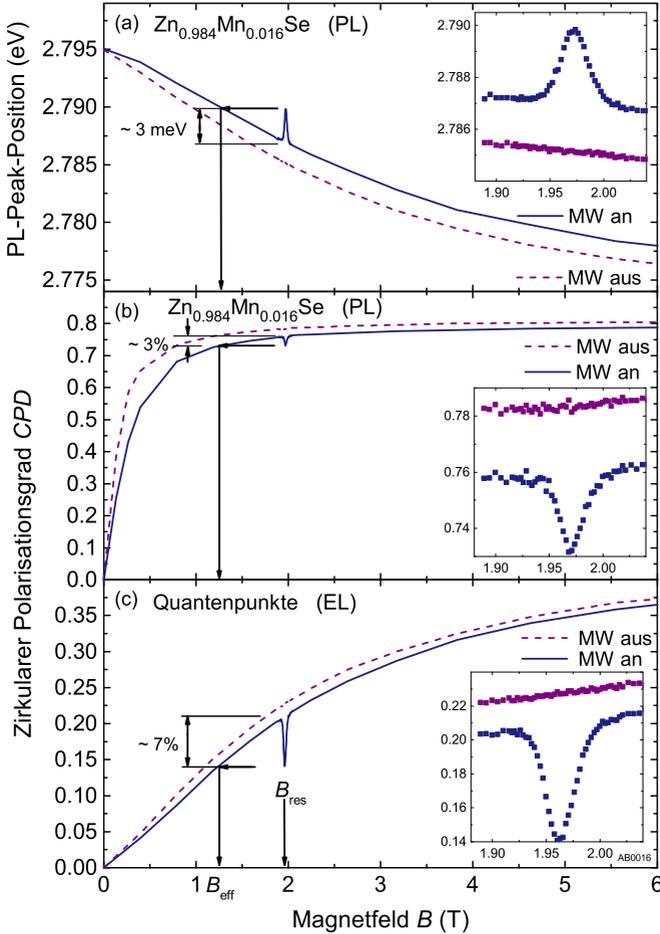


Abbildung 6.29: Erfolgreiche Spinmanipulation in einer Spin-LED durch magnetfeldabhängige Messungen: Durch die Verwendung von Mikrowellen-ESR wird eindeutig gezeigt, dass der Spin von Elektronen vor der elektrischen Injektion in Quantenpunkte signifikant manipuliert wird [133]. (a) ODMR-Messung an der $\text{Zn}_{0.984}\text{Mn}_{0.016}\text{Se}$ -Spinausrichterschicht mit und ohne Mikrowelleneinfluss. Bei $B_{\text{res}} = 1,96$ T ist eine Mikrowellen-induzierte Verschiebung der PL-Photonenenergie zu erkennen. (b) Zirkularer Polarisationsgrad (CPD) in der ZnMnSe -Schicht mit derselben Resonanz wie in (a) bei Mikrowelleneinfluss. Abb. (c) zeigt den zirkularen Polarisationsgrad (CPD) der Quantenpunkt-Ensemble-EL die ebenfalls ein Resonanzverhalten bei $B_{\text{res}} = 1,96$ T. aufweist. Dabei zeigen alle drei Messungen, dass die Mikrowelle das System derart beeinflusst, dass dem Messwert in der Resonanz ein effektives magnetisches Feld von $B_{\text{eff}} = 1,25$ T zugeordnet werden kann. Die fast übereinstimmenden Messungen für MW-an und MW-aus beweisen den nur schwachen Einfluss des nichtresonanten Heizeffektes der Mikrowellen.

Für die EL-Messungen wurden die Spannungspulse mit $\tau_{\text{EL}} = 10 \mu\text{s}$ vergleichbar zur Laseranregung gewählt. Abb. 6.29(c) zeigt die Messung des zirkularen Polarisationsgrads (*CPD*) ebenfalls für steigende Magnetfelder und die beiden Fälle mit und ohne Mikrowelleneinwirkung. Dabei ist die Spinpolarisation des Quantenpunktensembles aufgrund der bereits diskutierten vorhandenen Spinstreuung deutlich geringer als bei der $\text{Zn}_{0,984}\text{Mn}_{0,016}\text{Se}$ -Spinausrichterschicht. Ein drastischer Einbruch des *CPDs* kann bei dem resonanten Magnetfeld $B_{\text{res}} = 1,96 \text{ T}$ durch die Mikrowellenpulse erzeugt werden. Dieser Dip von 7% entspricht einem Zurückgehen der Polarisation um ein Drittel von 21% auf ca. 14%. Erneut kann der Wert (14%) einem geringeren Magnetfeld zugeordnet werden, sodass die Spinmanipulation einer Spinumordnung mit einem effektiven Magnetfeld von $B_{\text{eff}} = 1,25 \text{ T}$ entspricht.

Um die optimale Pulslänge für die Spinmanipulation experimentell zu bestimmen, wurden Messungen des *CPDs* für verschiedene Mikrowellenpulslängen durchgeführt. Diese Messungen erlauben auch das Überprüfen der Spinmanipulation hinsichtlich kohärenter Effekte, sofern diese auftreten. Die Pulsängenvariation wurde jeweils für den resonanten Fall mit $B_{\text{res}} = 1,96 \text{ T}$ und den nichtresonanten Fall bei $B_{\text{non-res}} = 1,91 \text{ T}$ durchgeführt. In Abb. 6.30 ist der *CPD* der Quantenpunkt-EL für die verschiedenen Felder und Verzögerungszeiten dargestellt. Dabei wurde mit den Pulsängen der Mikrowelle auch immer gleichzeitig die Periode der Wiederholung der MW-Pulse verändert. Dies erlaubt bei langen Mikrowellenpulsen eine lange Relaxationszeit des Systems bis zur erneuten Mikrowellenanregung und reduziert die Messzeit hinsichtlich der kürzeren Mikrowellenpulse. Ebenso wurde das Verhältnis von EL-Pulslänge immer an die Hälfte der Mikrowellen-Pulslänge angepasst.

$$\tau_{\text{EL}} = 0,5 \cdot \tau_{\text{MW}} \quad \text{und} \quad \frac{\tau_{\text{MW}}}{T} = 0,005 (= 0,5 \%) . \quad (6.3)$$

Für den resonanten Fall des Magnetfeldes ist jedoch bei der MW-ausmessung (also zum Ende eines Zyklus der Mikrowellenanregung) eine schwache Abhängigkeit des *CPDs* mit steigender Pulslänge in Abb. 6.30 erkennbar. Dies ist darauf zurückzuführen, dass mit längeren Mikrowellenpulsen das System aufgrund von Erwärmung, vor allem der Umgebung um die Probe, noch nicht vollständig relaxiert ist und daher der *CPD* kontinuierlich sinkt, da der Mikrowelleneintrag auch hier stetig steigt. Dieser Effekt tritt jedoch erst bei mehreren $100 \mu\text{s}$ in den Vordergrund und soll im weiteren als Hintergrunderwärmung betrachtet werden. Die Effekte des Gitter- und des Spinheizens spielen auf der dargestellten Pulsängenskala die entscheidende Rolle. So wurde der *CPD* für den nichtresonanten Fall und MW an Verzögerung, also der reinen Kopplung der Mikrowellen an die freien Ladungsträger und nicht das Spinsystem als weitere Messkurve eingezeichnet. Hier ist ein fast lineares Absinken des Mikrowelleneintrags festzustellen. Als wichtigste Messkurve in der

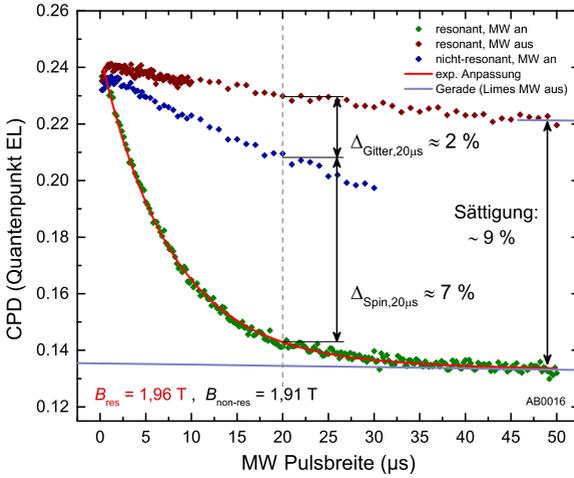


Abbildung 6.30: CPD-Messung für unterschiedliche Mikrowellenpulslängen. Die CPD-Absenkung des resonanten Einflusses nimmt im μs Regime stark zu und sättigt ab etwa $20 \mu\text{s}$. Die Entwicklung kann mit $y = y_0 + A \cdot e^{-t/\tau}$ mit $\tau = 7,9 \mu\text{s}$ gut wiedergegeben werden. Der nicht-resonante Gitterheizanteil steigt mit größeren Pulslängen stetig fast linear an. Für eine Pulsbreite von $20 \mu\text{s}$ sind beide Heizanteile eingezeichnet. Der Hintergrund des leicht sinkenden MW Heizanteils durch nicht relaxierte Erwärmungsprozesse der Umgebung ist erst ab mehreren $100 \mu\text{s}$ Pulslängen signifikant.

Abbildung ist jedoch das Absinken des CPDs in der Resonanz aufgrund der Mikrowellenstrahlen eingezeichnet. Eine einfache exponentielle Anpassung an die Entwicklung des CPDs erfolgt mit dem Parameter τ :

$$y = y_0 + A \cdot e^{-t/\tau} \text{ mit } \tau = 7,9 \mu\text{s}.$$

Dieses Verhalten sättigt schon nach wenigen Mikrosekunden. Daraus lässt sich ableiten, dass für sehr kurze MW Pulse ein nur kleiner Anteil Gitterheizen beiträgt, jedoch ebenfalls auch nur kleiner Anteil des resonanten Spinheizens. Dies bestätigt die Wahl der Messparameter aus Abb. 6.29.

6.5.5 Dynamik des CPDs bei Spinmanipulation in einer Spin-LED

Im letzten Abschnitt dieses Kapitels soll die Dynamik des Relaxationsprozesses der Spins bei der Injektion der Ladungsträger in die Quantenpunkte präsentiert und diskutiert werden. Dazu werden bei der Messung unterschiedliche Mikrowellenpulslängen verwendet.

In Analogie zu den Relaxationsmessungen der PL-Peak-Verschiebung am ZnMnSe-Spinausrichter kann auch der EL-Auslesepuls kontinuierlich zwischen MW-an- und MW-aus-Zeiten verzögert werden. Dadurch erhält man die Relaxationsmessungen für den *CPD*. Für die Messung mit Pulsbreiten von $\tau_{\text{MW}} = 20 \mu\text{s}$ und obiger Verstärkung ist dies in Abb. 6.31 dargestellt. Dabei ist zu beachten, dass die Messung aufgrund der Breite des EL-Pulses nur einer Faltung der beiden Rechteckfunktionen entspricht. Das Reagieren des *CPDs* auf die Mikrowellenpulse kann also bei dieser Messung nicht direkt am Graphen abgelesen werden. Jedoch ist deutlich zu erkennen, dass das resonante Spinheizen deutlich schneller und effektiver vonstatten geht als das Gitterheizen. Für die Relaxationen wurden drei exponentielle Anpassungen an die Messkurven durchgeführt, die zeigen, dass drei unterschiedliche Mechanismen den Vorgang beschreiben können. Eine langsame Komponente beschreibt den Verlauf der Kurven für resonante und nichtresonante Messung auf einer Zeitskala von mehreren Millisekunden. Dies ist eine Zeitskala, auf der Erwärmungs- und Abkühlvorgänge vor allem im Austausch mit der Umgebung stattfinden. Die charakteristische Zeit wurde hier zu $\tau_1 = 2 \text{ ms}$ bestimmt. Ein weiterer Parameter der Anpassung beschreibt den Abfall des nicht-resonanten Mikrowelleneinflusses. Die Anpassung mit einer Zeit $\tau_2 = 140 \mu\text{s}$ beschreibt die reine phononische Relaxation des Systems. Die kürzeste Zeitkonstante mit $\tau_3 = 12 \mu\text{s}$ ist dagegen verantwortlich für die Spin-Gitter-Relaxation.

Eine genaue Beschreibung oder Modellierung der vorliegenden einzelnen Zerfallskomponenten erweist sich als äußerst schwierig, da vor allem die thermische Kopplung der Probe über den Leitkleber und den Quarzstab bis hin zum Resonator (im Austauschgas des Kryostaten) nicht trivial gelöst werden kann. Die gemessenen längeren Zeitkonstanten liegen jedoch im erwarteten Bereich für thermische Prozesse.

Um genauere Informationen über die exakten Zerfallszeiten zu erhalten, wurde dieselbe Messung mit kürzeren Mikrowellenpulsen wiederholt. In Abb. 6.32 ist das Relaxationsverhalten für $\tau_{\text{MW}} = 1 \mu\text{s}$ dargestellt. Bei dieser kurzen Mikrowelleneinwirkung reagiert der *CPD* im Falle der nichtresonanten Messung kaum noch. Der Ausschlag ist im Bereich des Rauschens des Signals. Auch die resonante Messung zeigt nur einen geringen Ausschlag von unter 2%. Aufgrund des sehr schwachen EL-Signals wegen der noch kürzeren Anregung wurde die Lumineszenz über einen breiteren spektralen Bereich aufintegriert (1,326 eV–1,385 eV/895 nm–935 nm). Das Signal-zu-Rausch-Verhältnis ist jedoch sehr ungünstig, sodass nur eine vage Aussage über die Relaxationszeiten getroffen werden kann. Eine Anpassung an die Messdaten liefert einen Wert von knapp $20 \mu\text{s}$ für die Spin-Gitter-Relaxation im resonanten Fall. Deutlich wird jedoch bei dieser Messung, wie schnell der *CPD* im resonanten Fall auf die Mikrowellen reagiert. In Anbetracht der Tatsache, dass die EL-Pulse immer noch eine endliche Breite aufweisen, kann diese abfallende Flanke selbst

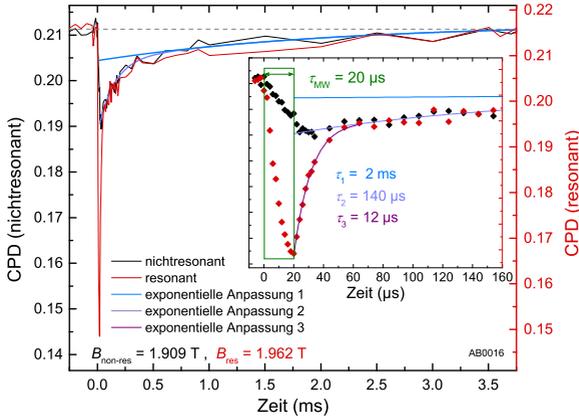


Abbildung 6.31: Relaxationsmessung anhand des CPD s der Quantenpunkte. Wie bei den vorherigen Relaxationsmessungen wurde dafür die Verzögerung für die EL Pulse kontinuierlich variiert. Auch hier können Anpassungen an die Messkurven die unterschiedlichen Relaxationsprozesse quantifizieren. Die Messung zeigt, dass das Spinheizen ein sehr schneller Prozess ist, der im μs Bereich anzusiedeln ist, hier jedoch durch die Faltung von Mikrowellenpuls und EL Puls nicht hinreichend aufgelöst werden kann.

bei Pulsen unter $1 \mu\text{s}$ nicht aufgelöst werden. Da im ns -Bereich bereits kohärente Effekte erwartet werden, soll dies im letzten Abschnitt erörtert werden.

Um kohärente Effekte zu messen, wurde bei noch kürzeren Mikrowellenpulsen nach Oszillationen in den Relaxationsmesskurven gesucht. Es sollten wie bei den PL Messungen am ZnMnSe -System entweder Oszillationen im CPD oder zumindest eine erneute Erhöhung des CPD s nach erstem Abfallen zu erkennen sein. Dies würde bedeuten, dass das 6-Nivausystem im Mn kohärent in einen weniger spinpolarisierten Zustand und zurück angeregt werden kann [159]. Desweiteren können Multiphotonenprozesse eine Rolle spielen, wie sie von Bertaina *et al.* untersucht wurden [160–162]. Hierbei werden jedoch weitere Resonanzen erwartet, welche trotz der hohen Leistungen in diesem Experiment nicht zu messen sind.

In Abb. 6.33 ist die Messung für 250-ns-Mikrowellenpulse abgebildet. Da kohärente Effekte laut den Simulationen der Mikrowellenfeldstärke am Ort der Probe mit $\approx 60 \text{ ns}$ Periodizität ($\tau_\pi \approx 30 \text{ ns}$) zu erwarten sind, sollten kohärente Effekte für 250-ns-Pulse durchaus zu sehen sein.

Wie im Verlauf des Kapitels deutlich wurde, sinkt aber zu kürzeren Messzeiten das Signal noch weiter. Obwohl eine Tendenz zu kleinerem CPD während

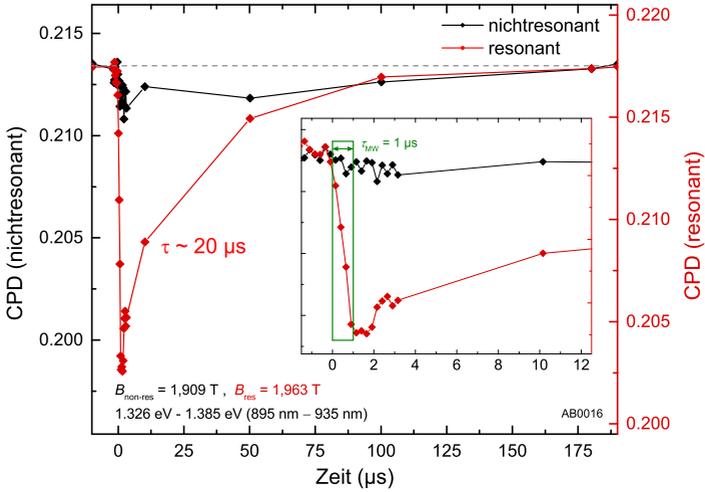


Abbildung 6.32: Relaxationsmessung des *CPDs* für sehr kurze Mikrowellenanregung von $\tau_{\text{MW}} = 1 \mu\text{s}$. Die Auswirkung auf die nicht-resonante Messung ist praktisch nicht mehr messbar, da sich die Stärke des Signals aufgrund der ebenfalls kürzeren EL Pulse deutlich verringert. Für die bessere Auswertung wurde über einen größeren Spektralbereich der Quantenpunkte integriert. Für die Messung des *CPDs* im resonanten Magnetfeld kann ein Einbruch signifikant aufgelöst werden, jedoch ist die Amplitude drastisch gesunken. Zu erkennen ist vor allem das sehr schnelle Reagieren des *CPDs* auf die Mikrowellen, und die Relaxation nach der Anregung des Spinsystems. Eine Anpassung liefert hier bei Relaxationszeiten von knapp $20 \mu\text{s}$.

des Mikrowellenpulses erkennbar ist, beträgt der Wert nur 0,3–0,4%. Das Rauschen des *CPDs* liegt zwar darunter, jedoch ist trotzdem kein oszillierendes Verhalten zu erkennen.

6.6 Zusammenfassung der Ergebnisse

In diesem Kapitel wurde die erfolgreiche Manipulation von Manganspinzuständen in einer Spin-LED demonstriert. Durch theoretische Betrachtungen und Simulationen wurde ein ESR-Aufbau für die notwendigen experimentellen Rahmenbedingungen wie tiefe Temperaturen, starke Magnetfelder und optischem Zugang zur Probe realisiert.

Nachdem ein geeignetes Verfahren für die Probenpräparation entwickelt und der Aufbau für seine Eignung getestet war, konnten erste Ergebnisse gewonnen werden. Bevor jedoch die eigentlichen Messungen zur Spinreso-

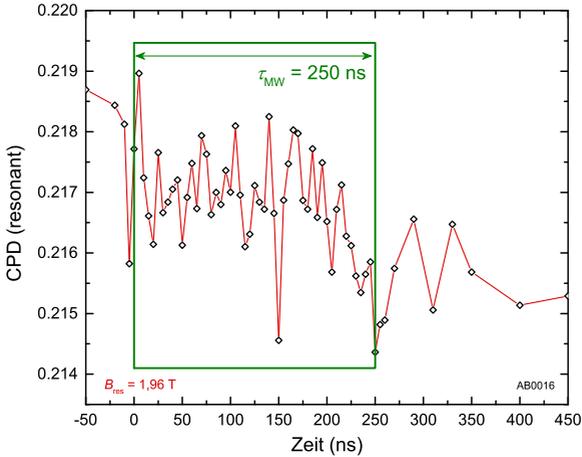


Abbildung 6.33: Versuch des Nachweises von kohärenten Effekten. Die 250-ns-Mikrowellenanregung sollte Oszillationen mit 60-ns-Periode aufweisen ($\tau_\pi \approx 30$ ns). Der *CPD*-Einbruch ist jedoch so gering (0,4%), so dass keine sich vom Rauschen abhebende Struktur zu erkennen ist.

nanz erfolgreich durchgeführt werden konnten, musste die zu verwendende Spin-LED umkonzipiert werden, um den für die Mikrowellen nötigen, niedrigeren Mangan Gehalt in der Leuchtdiode zu realisieren. Da dies ebenfalls erfolgreich funktionierte, konnte eine Messmethodik für die Untersuchung des Mikrowelleneinflusses auf die Spinausrichterschicht aus $\text{Zn}_{0,984}\text{Mn}_{0,016}\text{Se}$ entwickelt werden. Auf Basis von gepulsten Mikrowellen und stroboskopischen PL-Messungen wurde die erfolgreiche Spinmanipulation im Spinausrichter optisch nachgewiesen. Relaxationsmessungen erlaubten einen Einblick in die Spindynamik des Systems. Kohärente Effekte konnten jedoch nicht gezeigt werden.

Um die Spinmanipulation in den Quantenpunkten nachzuweisen, wurde analog zur Messmethodik der PL-Messungen des ZnMnSe eine Pulsabfolge für Mikrowellen und EL gewählt. Somit war es möglich, die Mikrowellenmanipulation auch nach der Injektion von Elektronen in den Quantenpunkten nachzuweisen. Auch hier konnte die Dynamik des Systems bestimmt werden, und es gelang der Nachweis, dass die Elektron-Spininjektion in Quantenpunkten durch das Verfahren der ESR auf einer μs -Zeitskala manipuliert werden kann. Dieser Mechanismus kann einen Beitrag für das Nutzen von spintronischen Systemen als Quanteninformationsspeicher darstellen.

7 Zusammenfassung und Ausblick

Zum Schluss sollen noch einmal die wesentlichen Punkte und Ergebnisse dieser Arbeit zusammengefasst werden. Ein kurzer Ausblick vermittelt zudem die Perspektiven von Spinmanipulation in Halbleiter-Quantenpunkten.

Dabei werden zuerst die Ergebnisse der verwendeten Bauteile zusammengefasst und final der entwickelte Mikrowellenmessplatz und die zugehörigen Ergebnisse präsentiert.

7.1 Ladungsträger-Speicherung

Die Messungen an der Charge-Tuning-Struktur haben gezeigt, dass mit diesen Proben eine Manipulation der elektronischen Zustände in InGaAs-Quantenpunkten möglich ist. Die unterschiedlichen Mehrteilchenzustände können anhand der Photonenenergie des jeweiligen exzitonischen Übergangs spektral separiert detektiert werden und schließlich durch polarisationsaufgelöste Spektroskopie identifiziert werden. Dies ist allein durch eine nichtresonante optische Laseranregung und das Verkippen der Bandstruktur vergleichbar mit einer Schottkydiode aufgrund einer angelegten Spannung möglich. Diese angelegte Spannung erlaubt es ebenfalls, die Lebenszeit der Ladungsträger in den Quantenpunkten zu beeinflussen. Dazu wurden zeitaufgelöste Messungen mit gepulster Laseranregung durchgeführt. Die Messungen zeigen deutlich, dass vor allem der neutrale exzitonische Zerfall stark durch die angelegte Spannung manipulierbar ist. Die Spannung am Bauteil führt zu Tunnelvorgängen, sodass Exzitonen dissoziiert werden und die Rekombination dadurch unwahrscheinlich wird. Dabei variieren die Zerfallszeiten von einer Nanosekunde (Zerfallszeit für Exzitonen ohne Feldeinfluss in Quantenpunkten) bis hin zu einigen 100 ns.

Die Funktion des Bauteils als Ladungsträgerspeicher konnte im folgenden durch eine geschickt gewählte Abfolge von Laser- und Spannungspulsen bewiesen werden. Wird während des optischen Laseranregungspulses die Spannung so gewählt, dass einer der beiden generierten Ladungsträger den Quantenpunkt durch Tunneln direkt verlässt, so kann instantan keine Rekombination mehr stattfinden. Erst beim Umschalten der Spannung auf einen Wert, bei dem der entfernte Ladungsträger wieder zurücktunneln kann, erfolgt die Rekombination. Es konnte gezeigt werden, dass dies bis zu 500 ns nach der eigentlichen Initialisierung durch den Laser erfolgen kann, und somit das nicht

tunnelnde Teilchen während dieser Zeit gespeichert wird. Somit kann der Spin des Teilchens zumindest theoretisch während dieser Zeit manipuliert werden.

7.2 Spin-Injektion

Das erprobte Bauteil für die elektrische Spin-Injektion bei angelegten äußeren magnetischen Feldern, die Spin-LED, konnte bezüglich der Licht-Auskoppel-effizienz mithilfe von Immersionslinsen optimiert werden, wenn auch nur für Proben mit hoher Quantenpunktdichte. Die nahezu perfekte Injektionseffizienz von einzelnen Spins in die Quantenpunkte innerhalb der Spin-LED-Probe konnte eindrücklich nachgewiesen werden. Desweiteren zeigten zeitaufgelöste Messungen mit gepulster elektrischer Anregung mit mehreren 100 ps Pulslänge, dass der Zerfall von Zuständen im Quantenpunkt durch die exzitonische Lebenszeit von 1 ns limitiert ist. Diese Tatsache wurde für die Herstellung einer Einzelphotonenquelle genutzt. Eine schnelle Wiederholrate über 100 MHz wurde gewählt, um bei einer Messung der Photonenstatistik das Generieren einzelner Photonen nachzuweisen. Da diese bei angelegtem äußeren Magnetfeld ebenfalls zu 100% polarisiert emittiert werden, ist dies der Beweis für das Herstellen einer spintronischen Einzelphotonenquelle.

7.3 ESR-Spinmanipulation in Spin-LEDs

In dieser Arbeit wurde ein Aufbau realisiert, der es ermöglicht, Spins in spintronischen Bauteilen zu manipulieren. Dazu wurde ein ESR-Experiment geplant, simuliert und anschließend als funktionstüchtig nachgewiesen. Dabei wurde darauf geachtet, dass das System in den bestehenden Aufbau integriert werden kann, die weitere Funktion der Bauteile erhalten bleibt und der Aufbau zudem möglichst flexibel einsetzbar ist. Die realisierte Resonatorlösung erlaubt es, starke, gepulste und präzise ausgerichtete Mikrowellenfelder an elektrisch kontaktierten Proben bei 53 GHz zu erzeugen. Weiterhin bleibt die Möglichkeit erhalten, einzelne Quantenpunkte spektroskopisch zu betrachten.

Da die Lebenszeit der Ladungsträger und damit auch der Spinzustände der Elektronen in Spin-LEDs auf die kurze Lebenszeit von ca. 1 ns begrenzt ist, musste an einer anderen Stelle für Spinmanipulation angesetzt werden. Als geeignet erwies sich das im Spinausrichter verwendete Mn-(II)-Spinsystem. Mittels optisch detektierter magnetischer Resonanzmessung konnte die resonante Kopplung dieses Systems an die Mikrowellen nachgewiesen werden. Dies erlaubte die Optimierung der Spin-LED hinsichtlich der Spinmanipulationsexperimente. Am Mn-System konnte durch zeitaufgelöste Messungen die Spindynamik im Spinausrichter erfasst werden.

Den Nachweis der erfolgreichen Spinmanipulation während des Injektionsprozesses lieferte schlussendlich gepulste Elektrolumineszenz-Messungen an einer Spin-LED mit einer $\text{Zn}_{0,984}\text{Mn}_{0,016}\text{Se}$ -Spinausrichterschicht. Hier konnte gezeigt werden, dass das resonante Spinheizen des Mn-(II)-Spinsystems eine signifikante Änderung des Polarisationsgrades der injizierten Elektronenspins in den Quantenpunkten zufolge hat. Die Spinmanipulation im Mangansystem ist also auch in den Quantenpunkten deutlich messbar. Hier konnten ebenfalls zeitaufgelöste Messungen durchgeführt werden, die den Relaxationsmechanismus genau auflösen konnten. Eine kohärente Manipulation der Spins im Mangan konnte trotz Verringerung der Länge der Mikrowellenpulse in den ns-Bereich nicht beobachtet werden. Trotzdem erlaubt der Vorgang ein sehr schnelles Manipulieren der in die Quantenpunkte injizierten Spins auf einer μs -Zeitskala.

7.4 Ausblick

Da die Funktion des Mikrowellenaufbaus mit den hier gezeigten Messungen erfolgreich bewiesen wurde, gilt es nun Proben zu verwenden, die es ermöglichen, einzelne Elektronenspins in den Quantenpunkten für längere Zeiten als der exzitonischen Lebensdauer zu speichern. Dazu kommen die untersuchten Charge-Tuning-Proben in Frage. Leider kann die hier verwendete Probe nicht für die Manipulationsexperimente verwendet werden, da diese nur als Lochspeicher funktioniert. Andere Proben mit zusätzlicher Barrierschicht zwischen Rückkontakt und Quantenpunkten konnten jedoch heute schon dazu benutzt werden, Spinspeicherzeiten von mehr als $1\ \mu\text{s}$ zu realisieren. Diese sind ideal dazu geeignet, um in den Quantenpunkten kohärente Spinmanipulation im ns-Bereich durchzuführen. Hierzu wurde eine Kooperation mit der Gruppe um Jonathan Finley aus München begonnen. Dort konnte die Funktion des Spinspeichers bereits erfolgreich nachgewiesen werden. Es gilt für die Zukunft, das System der Mikrowellen-Spinmanipulation mit den Proben aus München zu kombinieren.

Sofern dies gelingt, ist ein entscheidender Schritt hinsichtlich der Nutzung von Elektronenspins in Quantenpunkten als Quantenbit gelungen.

A Verbesserung der Ausleseeffizienz mithilfe von Immersionslinsen

Die Auskopplungseffizienz von Licht aus einem Medium ist generell durch die Brechungsindizes der verwendeten Materialien vorgegeben. Vor allem der Effekt der Totalreflexion spielt dabei eine nicht unerhebliche Rolle. Da das Licht im optisch dichteren Halbleitermaterial generiert wird, kann man durch unterschiedliche Geometrien der Probenoberfläche die Lichtauskoppeleffizienz steigern [106, 107]. Oft werden hierzu Immersionslinsen (engl. *solid immersion lens, SIL*) auf die zu untersuchenden Bauteile aufgebracht oder gefräst [108–110]. Auf die zu untersuchenden Bauteile werden dazu hemisphärische oder super-hemisphärische (mit elliptischem Querschnitt) Linsen mit einem zum Bauteil vergleichbarem Brechungsindex positioniert. Licht, welches im Zentrum der hemisphärischen Geometrie erzeugt wird, trifft somit immer fast senkrecht auf die Grenzschicht zwischen Material und meist Luft und kann somit nicht totalreflektiert oder ungünstig gebrochen werden. Manche Geometrien erlauben sogar direkt das Bündeln der Emission in Richtung von kollimierenden Optiken. Dazu werden Strukturen mit elliptischen Querschnitten verwendet, so dass Licht beim Übergang von Linse zu Luft in Richtung Sammellinse oder Mikroskopobjektiv gebrochen wird.

Im Rahmen der Bachelorarbeiten von Nicolas Kurz und Mareike Stulz wurden dazu Simulationen von Nahfeldoptiken, deren Umsetzung in die Praxis und schließlich auch Messungen an den entsprechenden Proben durchgeführt.

Die erstellten hemisphärischen Geometrien wurden dabei mittels fokussiertem Ionenstrahl (engl. *focussed ion beam, FIB*) in die oberste ZnSe-Schicht gefräst. Dazu wurde auf die oben beschriebene Struktur der Spin-LED während des Wachstumsprozesses zusätzlich eine 4 μm dicke ZnSe-Schicht gewachsen. Nach dem Ätzen der Mesas wurde die Probe in eine FIB-Anlage eingebaut, und mehrere Matrizen von Linsen wurden in die Leuchtdioden geschrieben.

Die Simulationen zeigten, dass die Sammeleffizienz um bis zu 100% gesteigert werden kann. Da bei der Realisierung keine idealen Linsen mit perfekter Oberflächenbeschaffenheit gefräst werden konnten, lag die gemessene Verbesserung der Effizienz im Bereich von 30–50% (siehe Strukturen in Abb. A.1). Dies konnte auch nur dann erreicht werden, wenn die Quantenpunktdichte der Probe hoch genug war [106]. Es zeigte sich vor allem bei Proben mit geringerer Quantenpunktdichte, dass der Vorteil nur dann besteht, wenn die

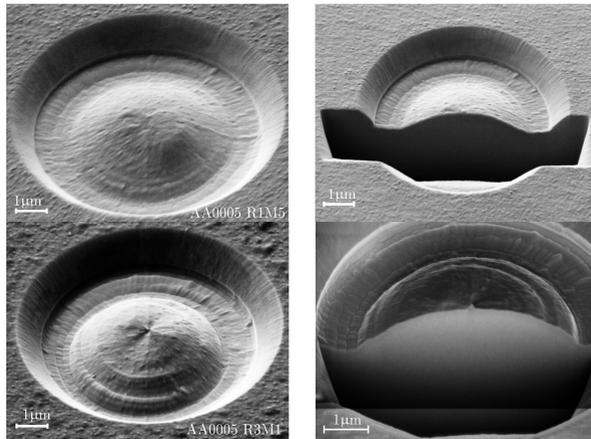


Abbildung A.1: Immersionslinsen auf einer Spin-LED. Mittels fokussiertem Ionenstrahl wurden Linsen unterschiedlicher Geometrie mit unterschiedlichen Parametern in die oberste ZnSe-Schicht gefräst. Die Form der Linsen war dabei meist hemisphärisch (mit nicht zu vernachlässigender Oberflächenrauigkeit), wie die Schnitte durch die jeweiligen Linsen rechts zeigen.

SIL direkt über einem emittierenden Quantenpunkt platziert ist. Da die Lage der einzelnen Quantenpunkte jedoch beim Fräsen der Linsen unbekannt ist, kann dadurch kein Vorteil erzielt werden. Zudem kommt die Tatsache, dass eine zusätzliche Schicht von $4\ \mu\text{m}$ ZnSe einen extra Zeitaufwand bedeutet und auch eine weitere Fehlerquelle im Herstellungsprozess von Spin-LEDs darstellt. Die weiteren Herstellungsprozeduren (Ätzen und Kontaktieren der einzelnen Dioden) werden dadurch ebenfalls nicht vereinfacht sondern werden komplexer.

Trotzdem erlaubt diese Technik bei hohen Quantenpunktdichten eine Verbesserung der räumlichen Auflösung und im Allgemeinen eine erhöhte Detektionseffizienz.

B Probenverzeichnis

Charge-Tuning-Proben Der Aufbau beider untersuchter Charge-Tuning-Proben ist in 4.1 erläutert. Sie stammen vom selben Wafer und unterscheiden sich nur in der Quantenpunktdichte sowie der Kontaktprozessierung. Sie entstammen der Probe mit der Nummer 14085 aus der MBE aus Bochum.

Name	Wafer	Quantenpunktdichte	Prozessierung
AC0001	WV/23085/U _n 120	höher	Arne Ludwig
AC0002	WV/23085/U _n 120	niedriger	Gunter Wüst
AC0004	WV/23085/U _n 120	sehr niedrig	A. Merz/J. Siller
AC0006I	WV/23085/U _n 120	sehr niedrig	Res: Siller/Merz
AC0006II	WV/23085/U _n 120	sehr niedrig	Res: Siller/Merz
AC0007	WV/23085/U _n 120	sehr niedrig	Res: Siller/Merz

Spininjektionsleuchtdioden Die Spininjektionsleuchtdioden sind wie in 2.3.2 dargestellt auf GaAs-Substrat gewachsen. An den folgenden Proben wurden magneto-PL-Messungen durchgeführt.

Kennziffer II-VI-MBE	x %	III-V-Substrat	ZnMnSe-Schichtdicke	Prozessierung
AA0002	4,3	A1517	– (Test-Probe)	–
AA0003	2,5	A1517	750 nm	F. Reiter, A. Merz
AA0004	2,4	A1517	750 nm	F. Reiter, A. Merz
AA0006	2,5	A1517	800 nm	F. Reiter, A. Merz
AA0007	2,0	A1517	1 μm	F. Reiter, A. Merz
AA0008	1,6	A1517	1 μm	F. Reiter, A. Merz
B0233JC038	1,6	A1328	750 nm	B. Wolter

Die Spin-LEDs wurden entsprechend der Beschreibung in 5 auf einem GaAs-Substrat gewachsen. Die Prozessierung und Präparation der untersuchten Proben erfolgte nach der Anleitung in [44, Anh. D].

Kennziffer	II-VI-Schicht	III-V-Substrat	Anmerkungen	Präparierung
AB0000	AA0007	A1517	für EL	F. Reiter
AB0004	AA0007	A1517	Res ($Q \sim 200$)	F. Reiter
AB0006	B0233JC038	A1328	Res ($Q \sim 700$)	F. Reiter
AB0010	AA0007	A1517D1	für Res	F. Reiter, A Merz
AB0011	AA0004	A1517	für EL	F. Reiter
AB0015	AA0008	A1517D2	für Res	J.Siller, A Merz
AB0016	AA0008	A1517D2	für Res	J.Siller, A Merz
AB0017	AA0008	A1517D2	für Res	J.Siller, A Merz
AB0018	AA0008	A1517D2	für Res	J.Siller, A Merz

Publikationen

Reguläre Artikel

1. **Fast electron spin resonance controlled manipulation of spin injection into quantum dots**
A. Merz, J.Siller, R. Schittny, C. Krämmer, H. Kalt und M. Hetterich. *Applied Physics Letters*, **104**, 252401 (2014).
Titelbild des Journals **104**(25) vom 23.6.2014
2. **A spintronic source of circularly polarized single photons**
P. Asshoff, A. Merz, H. Kalt und M. Hetterich. *Applied Physics Letters*, **98**, 112106 (2011).
3. **Nuclear spin polarization in single self-assembled In_{0.3}Ga_{0.7}As quantum dots by electrical spin injection**
P. Asshoff, G. Wüst, A. Merz, D. Litvinov, D. Gerthsen, H. Kalt und M. Hetterich. *Physical Review B*, **84**, 125302 (2011).

Beiträge zu internationalen Konferenzen mit Konferenzband

1. **A spintronic single photon source and spin manipulation in spin injection-LEDs**
A. Merz, P. Asshoff, H. Kalt, and M. Hetterich.
Nano-Optics for Enhancing Light-Matter Interactions on a Molecular Scale, Erice, Italien (2011).
NATO Science for Peace and Security Series B: Physics and Biophysics, 427 (2013).
2. **Nuclear spin-polarization in single InGaAs quantum dots through electrical and optical spin-injection in spin-LEDs**
M. Hetterich, P. Asshoff, G. Wüst, A. Merz, H. Kalt.
10th International Workshop on Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors (NOEKS10), Paderborn (2010).
physica status solidi (c), **8**(4), 1157 - 1160 (2011).

- 3. Polarizing nuclear spins in quantum dots by injection of a spin-polarized current**
P. Aschhoff, G. Wüst, A. Merz, H. Kalt and M. Hetterich.
29th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS), Seoul, Korea (2010).
AIP Conf. Proc. **1399**, 681 (2011)

Beiträge zu internationalen Konferenzen

- 1. Lifetime control of charges in quantum dots within charge tuning devices towards microwave manipulation**
A. Merz, H. Wurst, F. Reiter, A. Ludwig, A. Wieck, M. Hetterich und H. Kalt.
6th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (SPINTECH VII), Chicago, USA (2013).
- 2. Charge filling and readout control in single semiconductor quantum dots**
A. Merz, F. Reiter, A. Ludwig, A. Wieck, H. Kalt und M. Hetterich.
International Conference on Spin-Optronics (ICSO), INSA Toulouse, Frankreich (2013).
- 3. Spin manipulation in spinLEDs and microwave influence on single quantum dots**
A. Merz, R. Schittny, B. Wolter, H. Kalt und M. Hetterich.
7th International Conference on Physics and Applications of Spin Phenomena in Solids (PASPS VII), Eindhoven, Niederlande (2012).
- 4. Spin manipulation and enhancement of single quantum dot luminescence via microwaves**
A. Merz, B. Wolter, R. Schittny, H. Kalt und M. Hetterich.
11th International Workshop on Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors (NOEKS11), Stuttgart (2012).
- 5. Spin manipulation in semiconductor spin devices**
A. Merz, P. Aschhoff, R. Schittny, B. Wolter, H. Kalt und M. Hetterich.
High Magnetic Fields (HMF20), Chamonix Mont Blanc, Frankreich (2012).
- 6. A spintronic source of circularly polarized single photons**
A. Merz, P. Aschhoff, M. Hetterich und H. Kalt.
6th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (SPINTECH VI), Matsue, Japan (2011).

Eingeladene Vorträge in Seminaren

1. **Spin and charge storage and read-out in charge-tunable structures with InGaAs quantum dots and ESR microwave spin manipulation**
A. Merz, J. Siller, F. Reiter, H. Wurst, B. Wolter, R. Schittny, M. Stulz, N. Kurz, C. Krämmer, H. Kalt und M. Hetterich.
Seminar am Walter Schottky Institut, Technische Universität München (TUM), München (2014).
2. **Spin Light Emitting Diodes/Microwave Spin Manipulation/Charge Tuning Measurements**
A. Merz, G. Wüst, R. Schittny, B. Wolter, H. Wurst, F. Reiter, M. Hetterich, A. Ludwig, A. Wieck and H. Kalt.
Seminar des Lehrstuhls für angewandte Festkörperphysik, Ruhr-Universität Bochum (RUB), Bochum (2013).
3. **Spin storage and read-out in charge-tunable structures with InGaAs quantum dots**
A. Merz
Eingeladener Vortrag, Heriot Watt University, Edinburgh, Schottland (2013).

Nationale Konferenzen und Sommerschulen

1. **ESR spin manipulation in spin light emitting diodes**
A. Merz, J. Siller, R. Schittny, C. Krämmer, H. Kalt und M. Hetterich.
Verhandl. DPG (VI) 49, 4/HL 16.8, Dresden (2014).
2. **Spin storage and readout in charge-tunable structures with InGaAs quantum dots**
A. Merz, H. Wurst, F. Reiter, A. Ludwig, A. Wieck, M. Hetterich und H. Kalt. *Verhandl. DPG (VI) 48, 3/HL 5.4, Regensburg (2013).*
3. **Spin manipulation in spin light-emitting diodes: electron spin resonance in the ZnMnSe spin aligner**
F. Reiter, A. Merz, R. Schittny, B. Wolter, D. Rülke, H. Kalt und M. Hetterich. *Verhandl. DPG (VI) 48, 3/HL 29.13, Regensburg (2013).*
4. **Microwave spin manipulation in spintronic devices**
A. Merz. *Karlsruhe Days of Optics and Photonics (KDOP), Karlsruhe (2013).*
Posterpreis: Bestes Poster (Research Area II, Advanced Spectroscopy)

5. **Spin-manipulation in spin-LEDs via microwave ESR**
H. Wurst, F. Reiter, A. Merz, Michael Hetterich und H. Kalt. *Spintronics Workshop: Spinphänomene in reduzierten Dimensionen*, Regensburg (2012).
6. **Spin-manipulation in spin-LEDs via microwave ESR**
F. Reiter, A. Merz und H. Wurst. *Sommerschule des Centrums für Funktionelle Nanostrukturen (CFN)*, Bad Herrenalb (2012).
7. **Time-resolved spectroscopy of an electrically controlled three-terminal spin storage device**
H. Wurst, A. Merz und F. Reiter. *Sommerschule des Centrums für Funktionelle Nanostrukturen (CFN)*, Bad Herrenalb (2012).
8. **Time-resolved spectroscopy of a three-terminal semiconductor structure for electrical spin-storage und read-out**
H. Wurst, A. Merz, J. Zeller, R. Schittny, B. Wolter, H. Kalt und M. Hetterich. *Verhandl. DPG (VI) 47, 4/HL 91.2*, Berlin (2012).
9. **Microwave influence on the electroluminescence of single InGaAs quantum dots**
B. Wolter, A. Merz, R. Schittny, R. Schwerdt, G. Wüst, P. Asshoff, M. Hetterich und H. Kalt. *Verhandl. DPG (VI) 47, 4/HL 91.1*, Berlin (2012).
10. **A spintronic single photon source and nuclear spin-polarization in single self-assembled InGaAs QDs**
A. Merz. *Sommerschule des Centrums für Funktionelle Nanostrukturen (CFN)*, Bad Herrenalb (2011).
11. **Spin manipulation in spin injection-LEDs via microwave electron spin resonance (ESR)**
A. Merz. *Karlsruhe Days of Optics and Photonics (KDOP)*, Karlsruhe (2011).
12. **Basic design of a three-terminal semiconductor structure for electrical spin-storage and read-out**
J. Zeller, R. Diehm, P. Asshoff, A. Merz, H. Kalt und M. Hetterich. *Verhandl. DPG (VI) 46, 1/HL 85.48*, Dresden (2011).
13. **A spintronic circularly-polarized single-photon source**
A. Merz, P. Asshoff, R. Schwerdt, H. Kalt und M. Hetterich. *Verhandl. DPG (VI) 46, 1/Q 16.7*, Dresden (2011).

14. **Electrical spin-injection into single InGaAs quantum dots: circular polarization degree of light from different excitonic complexes**
P. Asshoff, G. Wüst, A. Merz, M. Hetterich und H. Kalt. *Verhandl. DPG (VI)* **45**, 3/HL 31.39, Regensburg (2010).
15. **Nuclear spin-polarization of InGaAs quantum dots due to electrical spin-injection**
A. Merz, P. Asshoff, H. Kalt und M. Hetterich. *Verhandl. DPG (VI)* **45**, 3/HL 64.7, Regensburg (2010).

Literaturverzeichnis

- [1] P. Zeeman. „Über den Einfluss der Magnetisierung auf die Natur des von einer Substanz emittierten Lichtes“. *Verhandlungen der Physikalischen Gesellschaft zu Berlin*, Seite 127 (1896).
- [2] W. Gerlach und O. Stern. „Der experimentelle Nachweis der Richtungsquantelung im Magnetfeld“. *Zeitschrift für Physik*, **9**, 349–352 (1922).
- [3] I. I. Rabi. „On the Process of Space Quantization“. *Physical Review*, **49**, 324–328 (1936).
- [4] I. I. Rabi. „Space Quantization in a Gyating Magnetic Field“. *Physical Review*, **51**, 652–654 (1937).
- [5] I. I. Rabi, N. F. Ramsey und J. Schwinger. „Use of Rotating Coordinates in Magnetic Resonance Problems“. *Reviews of Modern Physics*, **26**, 167–171 (1954).
- [6] G. Büch. *Entwicklung von Arzneiformen zur dermalen und ophthalmologischen Applikation schwerlöslicher Immunsuppressiva*. Doktorarbeit, Freie Universität Berlin (2007).
- [7] E. M. Purcell, H. C. Torrey und R. V. Pound. „Resonance absorption by nuclear magnetic moments in a solid“. *Physical Review*, **69**, 37–38 (1946).
- [8] S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnár, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova und D. M. Treger. „Spintronics: a spin-based electronics vision for the future.“ *Science*, **294**, 1488–95 (2001).
- [9] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach und W. Zinnal. „Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange“. *Physica Status Solidi B*, **39**, 4828–4830 (1989).
- [10] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich und J. Chazelas. „Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices“. *Physical Review Letters*, **61**, 2472–2475 (1988).

- [11] R. P. Feynman. „Simulating physics with computers“. *International Journal of Theoretical Physics*, **21**, 467–488 (1982).
- [12] P. W. Shor. „Polynomial-Time Algorithms for Prime Factorization and Discrete Logarithms on a Quantum Computer“. *SIAM Journal on Computing*, **26**, 1484–1509 (1997).
- [13] S. Datta und B. Das. „Electronic analog of the electro-optic modulator“. *Applied Physics Letters*, **56**, 665–667 (1990).
- [14] A. Buchachenko, F. Dalidchik und B. Shub. „Single spin ESR“. *Chemical Physics Letters*, **340**, 103–108 (2001).
- [15] M. Pioro-Ladrière, T. Obata, Y. Tokura, Y.-S. Shin, T. Kubo, K. Yoshida, T. Taniyama und S. Tarucha. „Electrically driven single-electron spin resonance in a slanting Zeeman field“. *Nature Physics*, **4**, 776–779 (2008).
- [16] I. Zutic, J. Fabian und S. D. Sarma. „Spintronics : Fundamentals and applications“. *Reviews of Modern Physics*, **76** (2004).
- [17] D. D. Awschalom und M. Flatté. „Challenges for semiconductor spintronics“. *Nature Physics*, **3**, 153–159 (2007).
- [18] P. Asshoff. *Spin-based Optoelectronics with Semiconductor Quantum Dots*. Doktorarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2011).
- [19] D. P. Divincenzo. „The Physical Implementation of Quantum Computation“. *Fortschritte der Physik*, **48**, 771 (2010).
- [20] A. Daley. „Physical Implementation of Quantum Computing“ (2014).
- [21] Y. Nakamura, Y. A. Pashkin und J. S. Tsai. „Coherent control of macroscopic quantum states in a single-Cooper-pair box“. *Letters to Nature*, **398**, 786–788 (1999).
- [22] T. Wirth, J. Lisenfeld, A. Lukashenko und A. V. Ustinov. „Microwave readout scheme for a Josephson phase qubit“. *Applied Physics Letters*, **97**, 262 508 (2010).
- [23] J. M. Martinis, M. H. Devoret und J. Clarke. „Energy-Level Quantization in the Zero-Voltage State of a Current-Biased Josephson Junction“. *Physical Review Letters*, **55**, 1543–1546 (1985).

- [24] S. Poletto, F. Chiarello, M. G. Castellano, J. Lisenfeld, A. Lukashenko, P. Carelli und A. V. Ustinov. „A tunable rf SQUID manipulated as flux and phase qubits“. *Physica Scripta*, **T137**, 014011 (2009).
- [25] A. Lupaşcu, E. Driessen, L. Roschier, C. Harmans und J. Mooij. „High-Contrast Dispersive Readout of a Superconducting Flux Qubit Using a Nonlinear Resonator“. *Physical Review Letters*, **96**, 127003 (2006).
- [26] H. Mooij. „Superconducting flux qubits“. *International Conference on Nano-Electronics*, Lancaster (2003).
- [27] C. F. Roos, M. Chwalla, K. Kim, M. Riebe und R. Blatt. „‘Designer atoms’ for quantum metrology“. *Nature*, **443**, 316–319 (2006).
- [28] H. Häffner, W. Hänsel, C. F. Roos, J. Benhelm, D. Chek-al Kar, M. Chwalla, T. Körber, U. D. Rapol, M. Riebe, P. O. Schmidt, C. Becher, O. Gühne, W. Dür und R. Blatt. „Scalable multiparticle entanglement of trapped ions.“ *Nature*, **438**, 643–646 (2005).
- [29] T. Monz, P. Schindler, J. T. Barreiro, M. Chwalla, D. Nigg, W. A. Coish, M. Harlander, W. Hänsel, M. Hennrich und R. Blatt. „14-Qubit Entanglement: Creation and Coherence“. *Physical Review Letters*, **106**, 130506 (2011).
- [30] P. Tamarat, N. B. Manson, J. P. Harrison, R. L. McMurtrie, A. Nizovtsev, C. Santori, R. G. Beausoleil, P. Neumann, T. Gaebel, F. Jelezko, P. Hemmer und J. Wrachtrup. „Spin-flip and spin-conserving optical transitions of the nitrogen-vacancy centre in diamond“. *New Journal of Physics*, **10**, 045004 (2008).
- [31] T. Gaebel, M. Domhan, I. Popa, C. Wittmann, P. Neumann, F. Jelezko, J. R. Rabreau, N. Stavrias, A. D. Greentree, S. Prawer, J. Meijer, J. Twamley, P. R. Hemmer und J. Wrachtrup. „Room-temperature coherent coupling of single spins in diamond“. *Nature Physics*, **2**, 408–413 (2006).
- [32] K. D. Jahnke, B. Naydenov, T. Teraji, S. Koizumi, T. Umeda, J. Isoya und F. Jelezko. „Long coherence time of spin qubits in ^{12}C enriched polycrystalline chemical vapor deposition diamond“. *Applied Physics Letters*, **101**, 012405 (2012).
- [33] J. Michl, T. Teraji, S. Zaiser, I. Jakobi, G. Waldherr, F. Dolde, P. Neumann, M. W. Doherty, N. B. Manson, J. Isoya und J. Wrachtrup. „Perfect alignment and preferential orientation of nitrogen-vacancy centers

- during chemical vapor deposition diamond growth on (111) surfaces“. *Applied Physics Letters*, **104**, 102407 (2014).
- [34] X.-S. Ma, T. Herbst, T. Scheidl, D. Wang, S. Kropatschek, W. Naylor, B. Wittmann, A. Mech, J. Kofler, E. Anisimova, V. Makarov, T. Jennewein, R. Ursin und A. Zeilinger. „Quantum teleportation over 143 kilometres using active feed-forward.“ *Nature*, **489**, 269–73 (2012).
- [35] L. M. K. Vandersypen, M. Steffen, G. Breyta, C. S. Yannoni, M. H. Sherwood und I. L. Chuang. „Experimental realization of Shor’s quantum factoring algorithm using nuclear magnetic resonance.“ *Nature*, **414**, 883–887 (2001).
- [36] A. Tyryshkin, S. Lyon, A. Astashkin und A. Raitsimring. „Electron spin relaxation times of phosphorus donors in silicon“. *Physical Review B*, **68**, 193207 (2003).
- [37] J. O’Brien, S. Schofield, M. Simmons, R. Clark, A. Dzurak, N. Curson, B. Kane, N. McAlpine, M. Hawley und G. Brown. „Towards the fabrication of phosphorus qubits for a silicon quantum computer“. *Physical Review B*, **64**, 161401 (2001).
- [38] B. E. Kane. „A silicon-based nuclear spin quantum computer“. *Nature*, **393**, 133–137 (1998).
- [39] J. R. Petta, A. C. Johnson, J. M. Taylor, E. A. Laird, A. Yacoby, M. D. Lukin, C. M. Marcus, M. P. Hanson und A. C. Gossard. „Coherent manipulation of coupled electron spins in semiconductor quantum dots.“ *Science*, **309**, 2180–2184 (2005).
- [40] W. G. V. D. Wiel, S. D. Franceschi, J. M. Elzerman, T. Fujisawa, S. Tarucha und L. P. Kouwenhoven. „Electron transport through double quantum dots“. *Review of Modern Physics*, **75**, 1–22 (2003).
- [41] D. Loss und D. P. DiVincenzo. „Quantum computation with quantum dots“. *Physical Review A*, **57**, 120–126 (1998).
- [42] B. Daniel. *Molekularstrahlepitaxie von $Zn_{1-x}Mn_xSe$ -basierten Halbleiter-Heterostrukturen sowie Untersuchungen zu ihren strukturellen, elektrischen und optischen Eigenschaften*. Doktorarbeit, Universität Karlsruhe (TH) (2006).
- [43] W. Löffler. *Electrical preparation of spin-polarized electrons in semiconductor quantum dots*. Doktorarbeit, Universität Karlsruhe (TH) (2008).

-
- [44] F. Reiter. *Einzelquantenpunktspektroskopie an Charge-Tuning-Strukturen und Spin-Leuchtdioden*. Diplomarbeit, Karlsruhe Institut für Technologie (KIT) (2013).
- [45] D. Rülke. *Quantenpunkt-Mikroresonatoren und Einzelphotonenquellen*. Doktorarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2012).
- [46] H. Wurst. *Zeitaufgelöste Mikrowellenmanipulation und Charakterisierung von spintronischen Bauelementen*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2012).
- [47] B. D. Gerardot, S. Seidl, P. a. Dalgarno, R. J. Warburton, D. Granados, J. M. Garcia, K. Kowalik, O. Krebs, K. Karrai, A. Badolato und P. M. Petroff. „Manipulating exciton fine structure in quantum dots with a lateral electric field“. *Applied Physics Letters*, **90**, 041 101 (2007).
- [48] W. Heller. „Electric-field effects on excitons in quantum dots“. *Physical Review B*, **57**, 6270–6273 (1998).
- [49] M. M. Vogel, S. M. Ulrich, R. Hafenbrak, P. Michler, L. Wang, A. Rastelli und O. G. Schmidt. „Influence of lateral electric fields on multiexcitonic transitions and fine structure of single quantum dots“. *Applied Physics Letters*, **91**, 051 904 (2007).
- [50] F. Stockmar. *Einzelquantenpunktspektroskopie - zeitaufgelöst und unter lateralem elektrischen Feld*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2010).
- [51] B. Eble, O. Krebs, A. Lemaître, K. Kowalik, A. Kudelski, P. Voisin, B. Urbaszek, X. Marie und T. Amand. „Dynamic nuclear polarization of a single charge-tunable InAs/GaAs quantum dot“. *Physical Review B*, **74**, 081 306 (2006).
- [52] S. Laurent, B. Eble, O. Krebs, A. Lemaître, B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand und P. Voisin. „Electrical Control of Hole Spin Relaxation in Charge Tunable InAs/GaAs Quantum Dots“. *Physical Review Letters*, **94**, 147 401 (2005).
- [53] A. Högele, S. Seidl, M. Kroner, K. Karrai, R. Warburton, B. Gerardot und P. Petroff. „Voltage-Controlled Optics of a Quantum Dot“. *Physical Review Letters*, **93**, 217 401 (2004).
- [54] R. Schittny. *Elektronenspinmanipulation in (Zn, Mn) Se mittels Mikrowellen-Elektronenspinresonanz*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2011).

- [55] J. K. Furdyna. „Diluted magnetic semiconductors“. *Journal of Applied Physics*, **64**, R29 (1988).
- [56] R. Dörlich. *Entwicklung verbesserter Spininjektions-Leuchtdioden und -Transistorstrukturen*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2009).
- [57] R. Diehm. *Herstellung und Untersuchung neuartiger Spininjektionstransistor-Strukturen*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2011).
- [58] B. Westenfelder. *Entwicklung von Spininjektions- Transistorstrukturen*. Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (TH) (2008).
- [59] J. Zeller. *Herstellung , Simulation und Charakterisierung von Spinbauelementen*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2011).
- [60] P. Asshoff, W. Löffler, J. Zimmer, H. Füser, H. Flügge, H. Kalt und M. Hetterich. „Spin-polarization dynamics in InGaAs quantum dots during pulsed electrical spin-injection“. *Applied Physics Letters*, **95**, 202 105 (2009).
- [61] J. Zimmer. *Zeitaufgelöste Elektrolumineszenzmessungen an einzelnen Quantenpunkten in Spin-Injektions-Leuchtdioden*. Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (TH) (2009).
- [62] T. Lundstrom. „Exciton Storage in Semiconductor Self-Assembled Quantum Dots“. *Science*, **286**, 2312–2314 (1999).
- [63] D. Gammon, A. L. Efros, T. A. Kennedy, M. Rosen, D. S. Katzer, D. Park, V. L. Korenev und I. A. Merkulov. „Electron and Nuclear Spin Interactions in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots“. *Physical Review Letters*, **86**, 5176–5179 (2001).
- [64] P. Asshoff, G. Wüst, A. Merz, D. Litvinov, D. Gerthsen, H. Kalt und M. Hetterich. „Nuclear spin polarization in single self-assembled In(0.3)Ga(0.7)As quantum dots by electrical spin injection“. *Physical Review B*, **84**, 125 302 (2011).
- [65] B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, O. Krebs, P. Voisin, P. Maletinsky, A. Högele und A. Imamoglu. „Nuclear spin physics in quantum dots: An optical investigation“. *Review of Modern Physics*, **85**, 79–133 (2013).

- [66] D. Brunner, B. D. Gerardot, P. a. Dalgarno, G. Wüst, K. Karrai, N. G. Stoltz, P. M. Petroff und R. J. Warburton. „A coherent single-hole spin in a semiconductor.“ *Science*, **325**, 70–72 (2009).
- [67] G. Burkard, D. Loss und D. P. Divincenzo. „Coupled quantum dots as quantum gates.“ *Physical Review B*, **59**, 2070–2078 (1999).
- [68] M. H. Levitt. *Spin Dynamics: Basics of Nuclear Magnetic Resonance*, Band 60. John Wiley & Sons (2008).
- [69] A. Khaetskii und Y. Nazarov. „Spin-flip transitions between Zeeman sublevels in semiconductor quantum dots.“ *Physical Review B*, **64**, 125 316 (2001).
- [70] L. Woods, T. Reinecke und Y. Lyanda-Geller. „Spin relaxation in quantum dots.“ *Physical Review B*, **66**, 161 318 (2002).
- [71] M. Kroutvar, Y. Ducommun, D. Heiss, M. Bichler, D. Schuh, G. Abstreiter und J. J. Finley. „Optically programmable electron spin memory using semiconductor quantum dots.“ *Nature*, **432**, 81–84 (2004).
- [72] A. Khaetskii, D. Loss und L. Glazman. „Electron spin evolution induced by interaction with nuclei in a quantum dot.“ *Physical Review B*, **67**, 195 329 (2003).
- [73] B. D. Gerardot, D. Brunner, P. a. Dalgarno, P. Ohberg, S. Seidl, M. Kroner, K. Karrai, N. G. Stoltz, P. M. Petroff und R. J. Warburton. „Optical pumping of a single hole spin in a quantum dot.“ *Nature*, **451**, 441–444 (2008).
- [74] E. A. Chekhovich, A. B. Krysa, M. S. Skolnick und A. I. Tartakovskii. „Direct Measurement of the Hole-Nuclear Spin Interaction in Single InP/GaInP Quantum Dots Using Photoluminescence Spectroscopy.“ *Physical Review Letters*, **106**, 027 402 (2011).
- [75] B. Eble, C. Testelin, P. Desfonds, F. Bernardot, A. Balocchi, T. Amand, A. Miard, A. Lemaître, X. Marie und M. Chamarro. „Hole–Nuclear Spin Interaction in Quantum Dots.“ *Physical Review Letters*, **102**, 146 601 (2009).
- [76] J. A. Gupta, R. Knobel, N. Samarth und D. D. Awschalom. „Ultrafast manipulation of electron spin coherence.“ *Science*, **292**, 2458–2461 (2001).

- [77] J. Berezovsky, M. H. Mikkelsen, N. G. Stoltz, L. A. Coldren und D. D. Awschalom. „Picosecond coherent optical manipulation of a single electron spin in a quantum dot.“ *Science (New York, N.Y.)*, **320**, 349–352 (2008).
- [78] A. Greilich, S. E. Economou, S. Spatzek, D. R. Yakovlev, D. Reuter, A. D. Wieck, T. L. Reinecke und M. Bayer. „Ultrafast optical rotations of electron spins in quantum dots“. *Nature Physics*, **5**, 262–266 (2009).
- [79] D. Press, K. D. Greve, P. L. McMahon, T. D. Ladd, B. Friess, A. Forchel, Y. Yamamoto, C. Schneider, M. Kamp und S. Ho. „Ultrafast optical spin echo in a single quantum dot“. *Nature Photonics*, **4**, 367–370 (2010).
- [80] Ludwig und Weig. „Optisch definiertes Qubit“ *Advanced Physics of Nanosystems*, Vorlesung LMU München, Übung 4 (http://www.physik.uni-muenchen.de/lehre/vorlesungen/wise_11_12/nano2/uebungen/blatt4-loesung.pdf), (2011).
- [81] H. Burger. *Magneto-optische Messungen am semimagnetischen Halbleitermaterial ZnMnSe*. Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (TH) (2003).
- [82] G. Wüst. *Feinstrukturuntersuchungen sowie Kernspinpolarisation durch optische und elektrische Anregung an einzelnen Halbleiterquantenpunkten*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2010).
- [83] C. Krämmer. *II–VI-Spinbauelemente*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2011).
- [84] B. Wolter. *Mikrowelleneinfluss auf die Elektrolumineszenz einzelner Halbleiterquantenpunkte in Spininjektionsbauelementen*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2012).
- [85] J. Siller. *Mikrowellen-Spinmanipulation in Spininjektionsleuchtdioden*. Masterarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2014).
- [86] I.-H. Tan, G. L. Snider, L. D. Chang und E. L. Hu. „A self-consistent solution of Schrödinger-Poisson equations using a nonuniform mesh“. *Journal of Applied Physics*, **68**, 4071 (1990).
- [87] T. Warming. *Elektronische Struktur angeregter Zustände einzelner InAs-Quantenpunkte*. Doktorarbeit, TU Berlin (2009).
- [88] P. Hawrylak und M. Korkusinski. *Electronic Properties of Self-Assembled Quantum Dots*. *Topics in Applied Physics*, **90**, 25-92 (2003).

-
- [89] K. F. Brennan. *The Physics of Semiconductors*. Cambridge University Press (2010).
- [90] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu und A. Imamoglu. „A quantum dot single-photon turnstile device.“ *Science (New York, N.Y.)*, **290**, 2282–5 (2000).
- [91] P. Michler. *Single Quantum Dots: Fundamentals, Applications and New Concepts*. Springer (2004).
- [92] D. Heiss, M. Kroutvar, J. J. Finley und G. Abstreiter. „Progress towards single spin optoelectronics using quantum dot nanostructures“. *Solid State Communications*, **135**, 591–601 (2005).
- [93] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. Reinecke, S. Walck, J. Reithmaier, F. Klopff und F. Schäfer. „Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots“. *Physical Review B*, **65**, 195 315 (2002).
- [94] A. K. Rai. *Optically pumped and electrically triggered single photon emission from a single quantum dot*. Doktorarbeit, Ruhr-Universität Bochum (2013).
- [95] H. Fuser. *Spininjektions-Leuchtdioden: Dynamik der Spininjektion, optische Spininjektion und Konstruktion eines Aufbaus zur Spinmanipulation mittels Mikrowellen*. Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (TH) (2009).
- [96] A. Merz. *Spinselektive Einzelquantenpunktspektroskopie und Entwicklung eines Messplatzes für Spin-Mikrowellenmanipulation*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2010).
- [97] D. Heiss, V. Jovanov, M. Bichler, G. Abstreiter und J. Finley. „Charge and spin readout scheme for single self-assembled quantum dots“. *Physical Review B*, **77**, 235 442 (2008).
- [98] W. Löffler. *Untersuchungen zur Spininjektion in Halbleiter-Heterostrukturen*. Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (TH) (2004).
- [99] J. A. Fallert. *Elektrische Spininjektion in InGaAs Quantenpunkt Leuchtdioden*. Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (TH) (2006).
- [100] M. I. D’yakonov und V. I. Perel’. „Spin relaxation of conduction electrons in noncentrosymmetric semiconductors“. *Sov. Phys. Solid State*, **13**, 3023 (1972).

- [101] D. Tröndle. *Spininjektion aus (Zn,Mn)Se in GaAs-Quantenfilme*. Doktorarbeit, Universität Karlsruhe (TH) (2006).
- [102] W. Löffler, D. Tröndle, J. Fallert, H. Kalt, D. Litvinov, D. Gerthsen, J. Lupaca-Schomber, T. Passow, B. Daniel, J. Kvietkova, M. Grün, C. Klingshirn und M. Hetterich. „Electrical spin injection from ZnMnSe into InGaAs quantum wells and quantum dots“. *Applied Physics Letters*, **88**, 062 105 (2006).
- [103] G. Czycholl. *Theoretische Festkörperphysik*. Springer, 3. Auflage (2008).
- [104] A. Wolos und M. Kaminska. *Semiconductors and Semimetals*. Elsevier (2008).
- [105] J. Kossut und J. A. Gaj. *Introduction to the Physics of Diluted Magnetic Semiconductors*. Springer (2010).
- [106] N. Kurz. *Nahfeldoptiken für Tieftemperaturspektroskopie an Quantenpunkten*. Bachelorarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2012).
- [107] M. Stulz. *Einzelquantenpunktspektroskopie an Spin-Leuchtdioden mit Nahfeldoptiken*. Bachelorarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2013).
- [108] J. P. Hadden, J. P. Harrison, A. C. Stanley-Clarke, L. Marseglia, Y.-L. D. Ho, B. R. Patton, J. L. O'Brien und J. G. Rarity. „Strongly enhanced photon collection from diamond defect centers under micro-fabricated integrated solid immersion lenses“. *Applied Physics Letters*, **97**, 241 901 (2010).
- [109] J. McFarlane, P. A. Dalgarno, B. D. Gerardot, R. H. Hadfield, R. J. Warburton, K. Karrai, A. Badolato und P. M. Petroff. „Gigahertz bandwidth electrical control over a dark exciton-based memory bit in a single quantum dot“. *Applied Physics Letters*, **94**, 093 113 (2009).
- [110] A. Zrenner. „A close look on single quantum dots“. *Journal of Chemical Physics*, **112**, 7790–7798 (2000).
- [111] D. Bouwmeester, A. K. Ekert und A. Zeilinger. *The Physics of Quantum Information: Quantum Kryptography, Quantum Teleportation, Quantum Computation*. Springer (2000).
- [112] R. a. Malaney. „Location-dependent communications using quantum entanglement“. *Physical Review A*, **81**, 042 319 (2010).

- [113] P. A. Hiskett, D. Rosenberg, C. G. Peterson, R. J. Hughes, S. Nam, A. E. Lita, A. J. Miller und J. E. Nordholt. „Long-distance quantum key distribution in optical fibre“. *New Journal of Physics*, **8**, 193–193 (2006).
- [114] J. E. Nordholt und R. J. Hughes. „A New Face for Cryptography“ (2002).
- [115] T. Heindel, C. Schneider, M. Lerner, S. H. Kwon, T. Braun, S. Reitzenstein, S. Höfling, M. Kamp und A. Forchel. „Electrically driven quantum dot-micropillar single photon source with 34% overall efficiency“. *Applied Physics Letters*, **96**, 011 107 (2010).
- [116] P. Michler. *Quantum Dot Single Photon Sources in: Single Semiconductor Quantum Dots*. Springer, Berlin, Heidelberg (2009).
- [117] M. B. Ward, T. Farrow, P. See, Z. L. Yuan, O. Z. Karimov, A. J. Bennett, A. J. Shields, P. Atkinson, K. Cooper und D. A. Ritchie. „Electrically driven telecommunication wavelength single-photon source“. *Applied Physics Letters*, **90**, 063 512 (2007).
- [118] P. Asshoff, A. Merz, H. Kalt und M. Hetterich. „A spintronic source of circularly polarized single photons“. *Applied Physics Letters*, **98**, 112 106 (2011).
- [119] B. O. Dabbousi, M. G. Bawendi, O. Onitsuka und M. F. Rubner. „Electroluminescence from CdSe quantum-dot/polymer composites“. *Applied Physics Letters*, **66**, 1316 (1995).
- [120] M. Atatüre, J. Dreiser, A. Badolato, A. Högele, K. Karrai und A. Imamoglu. „Quantum-dot spin-state preparation with near-unity fidelity“. *Science (New York, N. Y.)*, **312**, 551–3 (2006).
- [121] J. Seufert, G. Bacher, H. Schömig, A. Forchel, L. Hansen, G. Schmidt und L. Molenkamp. „Spin injection into a single self-assembled quantum dot“. *Physical Review B*, **69**, 035 311 (2004).
- [122] Y. Chye, M. White, E. Johnston-Halperin, B. Gerardot, D. Awschalom und P. Petroff. „Spin injection from (Ga,Mn)As into InAs quantum dots“. *Physical Review B*, **66**, 201 301 (2002).
- [123] H. Höpfner, C. Fritsche, A. Ludwig, A. Ludwig, F. Stromberg, H. Wende, W. Keune, D. Reuter, A. D. Wieck, N. C. Gerhardt und M. R. Hofmann. „Magnetic field dependence of the spin relaxation length in spin light-emitting diodes“. *Applied Physics Letters*, **101**, 112 402 (2012).

- [124] Z. Yuan, B. E. Kardynal, R. M. Stevenson, A. J. Shields, C. J. Lobo, K. Cooper, N. S. Beattie, D. A. Ritchie und M. Pepper. „Electrically driven single-photon source.“ *Science (New York, N.Y.)*, **295**, 102–5 (2002).
- [125] R. B. Patel, A. J. Bennett, K. Cooper, P. Atkinson, C. A. Nicoll, D. A. Ritchie und A. J. Shields. „Quantum interference of electrically generated single photons from a quantum dot.“ *Nanotechnology*, **21**, 274 011 (2010).
- [126] V. Tasco, M. T. Todaro, M. De Vittorio, M. De Giorgi, R. Cingolani, a. Passaseo, J. Ratajczak und J. W. Katcki. „Electrically injected In-GaAs/GaAs quantum-dot microcavity light-emitting diode operating at 1.3 μm and grown by metalorganic chemical vapor deposition.“ *Applied Physics Letters*, **84**, 4155 (2004).
- [127] A. Bennett, D. Unitt, P. See, A. Shields, P. Atkinson, K. Cooper und D. Ritchie. „Electrical control of the uncertainty in the time of single photon emission events.“ *Physical Review B*, **72**, 033 316 (2005).
- [128] N. S. Malik, M. Bazin, N. Gregersen, C. Sauvan, P. Lalanne und J.-M. Gérard. „A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire.“ *Nature Photonics*, **4**, 174–177 (2010).
- [129] M. Pelton, C. Santori, J. Vuckovic, B. Zhang, G. Solomon, J. Plant und Y. Yamamoto. „Efficient Source of Single Photons: A Single Quantum Dot in a Micropost Microcavity.“ *Physical Review Letters*, **89**, 233 602 (2002).
- [130] M. Müller, S. Bounouar, K. D. Jöns, M. Glässl und P. Michler. „On-demand generation of indistinguishable polarization-entangled photon pairs.“ *Nature Photonics*, **8**, 224–228 (2014).
- [131] M. D. Eisaman, J. Fan, A. Migdall und S. V. Polyakov. „Invited review article: Single-photon sources and detectors.“ *The Review of scientific instruments*, **82**, 071 101 (2011).
- [132] P. Bhattacharya, A. Das, D. Basu, W. Guo und J. Heo. „An electrically injected quantum dot spin polarized single photon source.“ *Applied Physics Letters*, **96**, 101 105 (2010).
- [133] A. Merz, J. Siller, R. Schittny, C. Krämmer, H. Kalt und M. Hetterich. „Fast electron spin resonance controlled manipulation of spin injection into quantum dots.“ *Applied Physics Letters*, **104**, 252401 (2014).

- [134] T. Nakaoka, T. Saito, J. Tatebayashi und Y. Arakawa. „Size, shape, and strain dependence of the g factor in self-assembled In(Ga)As quantum dots“. *Physical Review B*, **70**, 1–8 (2004).
- [135] D. T. Wilkinson und H. Crane. „Precision Measurement of the g Factor of the Free Electron“. *Physical Review*, **130**, 852–863 (1963).
- [136] D. O. Tolmachev, R. A. Babunts, N. G. Romanov, P. G. Baranov, B. R. Namozov, Y. G. Kusrayev, S. Lee, M. Dobrowolska und J. K. Furdyna. „Optically detected magnetic resonance in CdMnSe/ZnSe submonolayer quantum wells“. *Physica Status Solidi (B)*, **247**, 1511–1513 (2010).
- [137] F. H. L. Koppens, C. Buizert, K. J. Tielrooij, I. T. Vink, K. C. Nowack, T. Meunier, L. P. Kouwenhoven und L. M. K. Vandersypen. „Driven coherent oscillations of a single electron spin in a quantum dot.“ *Nature*, **442**, 766–771 (2006).
- [138] M. Kroner, K. Weiss, B. Biedermann, S. Seidl, S. Manus, A. Holleitner, A. Badolato, P. Petroff, B. Gerardot, R. Warburton und K. Karrai. „Optical Detection of Single-Electron Spin Resonance in a Quantum Dot“. *Physical Review Letters*, **100**, 156 803 (2008).
- [139] A. Merz. *Construction of a Setup for the Implementation of Electron Spin Resonance Techniques for Semiconductor Quantum Dots: A Project Report*. Doktorarbeit, Universität Karlsruhe (TH) (2008).
- [140] T. Obata, M. Pioro-Ladrière, T. Kubo, K. Yoshida, Y. Tokura und S. Tarucha. „Microwave band on-chip coil technique for single electron spin resonance in a quantum dot.“ *The Review of scientific instruments*, **78**, 104 704 (2007).
- [141] W. Otto. „Berechnung von Hohlraumresonatoren höchster Kreisgüte“. *Nachrichtentechnik*, **5**, 205 (1960).
- [142] E. Lifshitz, A. Glzmann, I. D. Litvin und H. Porteanu. „Optically Detected Magnetic Resonance Studies of the Surface/Interface Properties of II-VI Semiconductor Quantum Dots“. *Journal of Physical Chemistry B*, **104**, 10 449–10 461 (2000).
- [143] R. Schwerdt. *Spinmanipulation mittels Mikrowellen in Halbleiterstrukturen und Spininjektions-Bauelementen*. Diplomarbeit, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) (2011).
- [144] S. Zeng, L. C. Smith, J. J. Davies, D. Wolverson, S. J. Bingham und G. N. Aliev. „Optically detected electron spin-flip resonance in CdMnTe“. *Physica Status Solidi (B)*, **243**, 887–891 (2006).

- [145] Z. Wang, W. Zheng, J. van Tol, N. S. Dalal und G. F. Strouse. „High-field electron paramagnetic resonance as a microscopic probe of anisotropic strain at Mn^{2+} sites in CdSe:Mn^{2+} quantum dots“. *Chemical Physics Letters*, **524**, 73–77 (2012).
- [146] M. L. Sadowski, M. Byszewski, M. Potemski, A. Sachrajda und G. Karczewski. „Optical detection of electron paramagnetic resonance in Cd-MnTe single quantum wells“. *Applied Physics Letters*, **82**, 3719 (2003).
- [147] M. Godlewski. „Optically detected magnetic resonance investigations of diluted magnetic semiconductors“. *Optica Applicata*, **2**, 271–283 (2006).
- [148] Z. Mickovic. *Study of Diluted Magnetic Semiconductors : the Case of Transition Metal Doped ZnO*. Doktorarbeit, École Polytechnique Fédérale de Lausanne (2010).
- [149] P. M. Radmore und P. L. Knight. „Population trapping and dispersion in a three-level system“. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, **15**, 561–573 (1982).
- [150] R. J. Cook und B. W. Shore. „Coherent dynamics of N-level atoms and molecules. III. An analytically soluble periodic case“. *Physical Review A*, **20**, 539–544 (1979).
- [151] E. Kyoseva und N. Vitanov. „Coherent pulsed excitation of degenerate multistate systems: Exact analytic solutions“. *Physical Review A*, **73**, 023420 (2006).
- [152] V. Y. Ivanov und M. Godlewski. „ODMR Study of $\text{Zn}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Se}/\text{Zn}_{1-y}\text{Be}_y\text{Se}$ and $(\text{Cd}_{1-x},\text{Mn})\text{Te}/\text{Cd}_{1-y}\text{Mg}_y\text{Te}$ Diluted Magnetic Semiconductor Quantum Wells“. *Applied Magnetic Resonance*, **39**, 31–47 (2010).
- [153] V. Ivanov, M. Godlewski, D. Yakovlev, M. Kneip, M. Bayer, S. Ryabchenko und A. Waag. „Optically detected magnetic resonance in $(\text{Zn},\text{Mn})\text{Se}/(\text{Zn},\text{Be})\text{Se}$ quantum wells“. *Physical Review B*, **78**, 085322 (2008).
- [154] M. Kneip, D. Yakovlev, M. Bayer, A. Maksimov, I. Tartakovskii, D. Keller, W. Ossau, L. Molenkamp und A. Waag. „Spin-lattice relaxation of Mn ions in $\text{ZnMnSe}/\text{ZnBeSe}$ quantum wells measured under pulsed photoexcitation“. *Physical Review B*, **73**, 045305 (2006).
- [155] D. R. Yakovlev. „Dynamics of spin interactions in diluted magnetic semiconductor heterostructures“. *Physica Status Solidi (a)*, **204**, 179–185 (2007).

- [156] D. Keller, D. Yakovlev, B. König, W. Ossau, T. Gruber, A. Waag, L. Molenkamp und A. Scherbakov. „Heating of the magnetic ion system in (Zn,Mn)Se/(Zn,Be)Se semimagnetic quantum wells by means of photoexcitation“. *Physical Review B*, **65**, 035 313 (2001).
- [157] V. Y. Ivanov, M. Godlewski, D. R. Yakovlev, S. M. Ryabchenko, G. Karczewski und A. Waag. „Time-resolved optically-detected magnetic resonance of II-VI diluted-magnetic-semiconductor heterostructures“. *Physica Status Solidi (a)*, **204**, 174–178 (2007).
- [158] W. Löffler, M. Hetterich, C. Mauser, S. Li, T. Passow und H. Kalt. „Parallel preparation of highly spin-polarized electrons in single InAs/GaAs quantum dots“. *Applied Physics Letters*, **90**, 232 105 (2007).
- [159] M. R. Nath, T. K. Dey, S. Sen und G. Gangopadhyay. „Effect of field quantization on Rabi oscillation of equidistant cascade four-level system“. *Pramana - J. Phys.*, **70**, 141–152 (2008).
- [160] S. Bertaina, N. Groll, L. Chen und I. Chiorescu. „Tunable multiphoton Rabi oscillations in an electronic spin system“. *Physical Review B*, **84**, 134 433 (2011).
- [161] S. Bertaina, L. Chen, N. Groll, J. Van Tol, N. Dalal und I. Chiorescu. „Multiphoton Coherent Manipulation in Large-Spin Qubits“. *Physical Review Letters*, **102**, 050 501 (2009).
- [162] S. Bertaina, N. Groll, L. Chen und I. Chiorescu. „Multi-photon Rabi oscillations in high spin paramagnetic impurity“. *Journal of Physics: Conference Series*, **324**, 012 008 (2011).

Danksagung

Abschließend möchte ich mich bei all denen bedanken, die direkt oder indirekt einen wesentlichen Anteil am Gelingen dieser Arbeit hatten. Insbesondere danke ich

- Prof. Dr. Heinz Kalt für die Möglichkeit zur Durchführung dieser Arbeit, seine hilfreichen fachlichen Ratschläge und sein Vertrauen, den Freiraum für eigenständiges Arbeiten zu lassen.
- Priv.-Doz. Dr. Michael Hetterich für die immer positiv ausgerichtete Betreuung, die intensiven fachlichen Diskussionen und Anregungen, sowie die Korrekturen schriftlicher Dokumente in rekordverdächtiger Zeit.
- MSc. Jan Siller für seine Arbeiten bezüglich der Spinmanipulation in Spin-LEDs und der Probenpräparation.
- Dipl.-Phys. Franziska Reiter und Dipl.-Phys. Helge Wurst für die Arbeit an den Charge-Tuning-Bauteilen und den Spin-LEDs.
- Dipl.-Phys. Robert Schittny für seine grundlegenden Arbeiten an den ZnMnSe-Schichten und der Hilfe jeglicher Korrekturen. Außerdem für die fachliche Betreuung der Python-Probleme weit über den zu erwartenden Rahmen hinaus.
- Dipl.-Phys. Benjamin Wolter für die herausragenden Probenpräparationen und die Arbeiten am Mikrowelleneinfluss auf einzelne Quantenpunkte.
- BSc. Mareike Stulz und BSc. Nicolas Kurz für die Beiträge bezüglich der Immersionslinsen in sehr eigenständiger Arbeit.
- Dipl.-Phys. Sarah Krämmer plus Ehemann Dipl.-Phys. Christoph Krämmer sowie Dipl.-Phys. Tobias Siegle für das Korrekturlesen der Arbeit und die immer fruchtbaren fachlichen Gespräche im Labor und die Hilfe darüber hinaus. Vor allem das gemeinsame, lösungsorientierte Arbeiten mit Euch hat wesentlich zum Erfolg der Arbeit beigetragen.
- Helmuth Barth und Horia-Eugen Portenau für die Hilfen bezüglich des Mikrowellenaufbaus.

- Gunter Wüst aus Basel für die Kooperation bezüglich der Charge-Tuning-Bauteile, ohne diese ich nicht die nötigen Einblicke in die elektronischen Zustände von Quantenpunkten erreichen hätte können.
- Dr. Daniel Rülke für die Herstellung sämtlicher III-V-MBE-Proben in Karlsruhe und die vielen Tipps im Labor.
- Dr. Arne Ludwig aus Bochum mit Prof. Dr. Andreas Wieck für die Bereitstellung weiterer Proben für die Charge-Tuning-Experimente.
- Patrice Brenner für die konstruktive Zusammenarbeit bei der Herstellung der Immersionslinsen mittels fokussiertem Ionenstrahl.
- Alexander Hepting für die stets sehr hilfreichen Anregungen und Lösungen bei verschiedensten technischen aber auch physikalischen Fragestellungen.
- Heinz Leonhard für die Mitplanung verschiedener Bauteile und Hilfe im Laborbetrieb.
- HW "Willi" Pensel für seinen unermüdlichen Kampf gegen die Heliumverflüssigungsanlage, den er jedes mal aufs Neue gewinnen konnte.
- Werner Gilde für die immer schnelle und kompetente Reparatur defekter Elektronik.
- Helmut Lay und Michael Hippe für die ebenso schnelle und kompetente Hilfe bei IT-Problemen.
- der gesamten Feinmechanikwerkstatt für die hervorragende Qualität der angefertigten Bauteile, vor allem bei der Herstellung der Mikrowellenresonatoren.
- Renate Helfen, Claudia Alaya und Monika Brenkmann für die stets geduldige Bearbeitung bürokratischer Fragestellungen am Institut.
- der Karlsruhe School of Optics & Photonics (KSOP) für die finanzielle Unterstützung und die vielen Möglichkeiten zur persönlichen Weiterbildung.
- dem Center for Functional Nanostructures (CFN) für die finanzielle Unterstützung des Projekts und die Bereitstellung von Geräten und Laboren.
- der gesamten AG Kalt für die konstruktive, freundschaftliche Atmosphäre während und nach der Arbeit.

- meiner Familie für die Unterstützungen jeglicher Art während meiner Promotion und meines Studiums.
- meiner Verlobten Kerstin, die mich trotz der Anstrengungen gegen Ende der Dissertation immer ertragen hat und darüber hinaus jederzeit unterstützend und liebevoll an meiner Seite steht.

Dipl.-Phys. M.Sc. Andreas Merz

**Karlsruher Institut für Technologie (KIT)
Institut für Angewandte Physik und
Center for Functional Nanostructures (CFN)**

**Wolfgang-Gaede-Straße 1
76131 Karlsruhe**

**andreas.merz@kit.edu
www.aph.kit.edu/kalt**

Karlsruher Institut für Technologie (KIT)