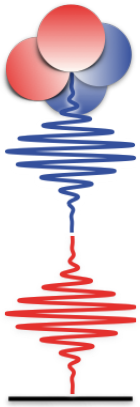
Universität Paderborn

Quantenoptik mit Halbleiterquantenpunkten

Dirk Heinze



Paderborn, November 2018

Quantenoptik mit Halbleiterquantenpunkten

DISSERTATION

zur

Erlangung des Doktorgrades der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.) dem Department Physik der Universität Paderborn vorgelegt

von

Dirk Florian Heinze

Paderborn, November 2018

Erstgutachter: Prof. Dr. Stefan Schumacher

Zweitgutachter: Prof. Dr. Jens Förstner

Zusammenfassung

Halbleiterquantenpunkte gelten als gute Kandidaten für deterministische Quantenlichtquellen. In dieser theoretischen Arbeit werden zwei Fälle untersucht, in denen Zweiphotonenprozesse Ein- und Zweiphotonenzustände erzeugen können. Dazu wird die Von-Neumann-Gleichung numerisch gelöst. Im Gegensatz zu der Emissionskaskade von einem Biexziton erzeugt der direkte Zweiphotonenübergang vom Biexziton in den Grundzustand eines Quantenpunktes über einen optischen Resonator hoher Qualität, dessen Energie der Hälfte der Biexzitonenergie entspricht, polarisationsverschränkte Photonen, deren Grad der Verschränkung unempfindlich gegenüber der Feinstrukturaufspaltung der Exzitonen ist. Es werden phononassistierte Zerfallsprozesse in Born-Markov-Näherung berücksichtigt und es zeigt sich, dass bei tiefen Temperaturen der Einfluss der Phononen unterdrückt wird, sodass hochgradig verschränkte Photonenpaare emittiert werden können. Das Spektrum und die Quantenstatistik der Photonenpaare werden untersucht. Von weiterem Interesse ist der Zerfall des Biexzitons in Systemen mit bimodalen Resonatoren. Auch in diesem Fall kann ein hoher Grad der Verschränkung erreicht werden. Ein Zweiphotonenprozess vom Biexziton eignet sich auch zur Erzeugung von Einzelphotonen. Es wird ein neues Konzept vorgestellt, bei dem ein Laserpuls das System vom Biexziton in ein virtuelles Niveau in der Bandlücke des Halbleiters treibt. Wenn das System nun von diesem Zwischenzustand in den Grundzustand relaxiert, wird ein einzelnes Photon emittiert. Ein Resonator hoher Qualität wird verwendet, um die Effizienz zu erhöhen. Auch unter Berücksichtigung von phononassistierten Prozessen zeigt sich das Potential zur On-Demand-Emission und die Quelle emittiert bei tiefen Temperaturen Photonen mit einer hohen Ununterscheidbarkeit. Der Prozess höherer Ordnung erlaubt es, die Polarisation, die Frequenz und den Emissionszeitpunkt optisch mit einem Laserpuls frei zu kontrollieren. Zweiphotonenprozesse ermöglichen somit vielseitig einsetzbare Quantenlichtquellen, die in der Quanteninformationswissenschaft benötigt werden.

Abstract

Applications in quantum information science require sources of quantum light. Here, sources that emit single photons or pairs of polarization entangled photons are of particular importance. In this theoretical work quantum light sources based on two-photon transitions from quantum-dot biexcitons are studied. Therefore, the von Neumann equation is solved numerically. The coupling to the environment is treated in the Born-Markov approximation. A high-Q cavity can be used to resonantly enhance a direct two-photon emission from an initially prepared biexciton. The biexciton emits polarization entangled photons. In contrast to the usual cascaded emission process via the excitons the degree of polarization entanglement is insensitive to the fine-structure splitting of the excitons. At low temperatures, this process is robust against the phonon-assisted cavity feeding. The spectral and quantum-statistical properties of the emitted photons are characterized. Additionally, the emission from the biexciton into high-Q bimodal cavities for a special case of resonance energies is studied. It can be shown that a high degree of polarization entanglement can be reached under these circumstances. A two-photon emission process can also be used to generate single photons. A novel single photon emission scheme is proposed that uses a laser pulse to drive the system from the biexciton into a virtual state inside the band gap from which a single photon is emitted once the system relaxes to its ground state. The properties of the single photon such as its polarization state, frequency and time of emission can be controlled optically in this higher order process. The emission scheme is enhanced by a high-Q cavity but it does not rely on it. The indistinguishability of the emitted photons and the possibility for on-demand generation of single photons is examined. It can be shown that – even considering phonon-assisted cavity feeding processes – at a low temperature a high degree of indistinguishability can be reached giving the potential for on-demand generation of single photons. Two-photon processes from a quantum dot biexciton are a versatile source for the generation of quantum light, as required in future quantum communication applications.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung **11**
1.1. Gliederung der Arbeit 13

I. Theorie **15**

2. Hamiltonoperator des Modellsystems **16**
2.1. Elektronische Zustände in Quantenpunkten 16
2.1.1. Exzitonen 16
2.1.2. Biexzitonen 18
2.2. Quantenlicht in optischen Resonatoren 20
2.2.1. Polarisation 21
2.2.2. Quantisierung des elektromagnetischen Feldes 22
2.3. Licht-Materie-Wechselwirkung 24
2.4. Hamiltonoperator des Modellsystems 25

3. Systemdynamik **28**
3.1. Von-Neumann-Gleichung 28
3.2. Verlust des optischen Resonators 28
3.3. Kopplung an andere Moden 30
3.4. Dynamik im Wechselwirkungsbild 31
3.5. Phononen 33
3.5.1. Dephasierung 34
3.5.2. Polarontransformation 34
3.5.3. Phononenassistierte Prozesse 38
3.5.4. Einfluss der Phononen auf die Exzitondynamik 42

4. Autokorrelationsfunktionen **45**
4.1. Autokorrelationsfunktion erster Ordnung und das Emissionsspektrum . 45

4.2. Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung 46
4.2.1. Zweiphotonendichtematrix und Polarisationsverschränkung . . . 47
4.2.2. Ununterscheidbarkeit von Einzelphotonen 48

II. Zwei-Photonen-Physik 51

5. Zweiphotonenemission 52
5.1. Prozess der Zweiphotonenemission 52
5.2. Spontaner Zerfall des Biexzitons 54
5.3. Emissionsspektren 56
5.4. Grad der Polarisationsverschränkung 58
5.4.1. Einfluss der Biexzitonbindungsenergie 60
5.4.2. Verstimmung der Resonatormode 61
5.4.3. Wechselwirkung mit der Umgebung 62
5.5. Photonenstatistik 65
5.6. Bimodale Kavitäten 67
5.6.1. Emissionsdynamik 69
5.6.2. Verschränkte Photonenpaare 71

6. Einzelphotonemission 73
6.1. Emissionsschema 73
6.2. Einzelphotonemission 75
6.2.1. Emissionszyklus 77
6.3. Kontrolle der Einzelphotoneigenschaften 79
6.3.1. Polarisationskontrolle 79
6.3.2. Kontrolle des Emissionszeitpunktes 81
6.4. Dekohärenz und strahlender Zerfall 84
6.5. On-Demand-Potential 86
6.5.1. Einzelphoton-Emissionswahrscheinlichkeit 86
6.5.2. Einfluss der phononassistierten Prozesse auf die Einzelphotonemission 90
6.6. Ununterscheidbarkeit der Einzelphotonen 94
6.6.1. Einfluss der Resonatorqualität auf die Ununterscheidbarkeit . . 94
6.6.2. Einfluss des strahlenden Zerfalls und der Dephasierungsrate auf die Ununterscheidbarkeit 96

6.6.3. Einfluss der phononassistierten Prozesse auf die Ununterscheidbarkeit . . . 98

7. Zusammenfassung **101**

Anhang A. *Concurrence* **103**

A.1. Zur Berechnung der *Concurrence* . . . 103

A.2. Plateaubildung . . . 104

Anhang B. Zeitentwicklungsoperator **105**

B.1. Der Zeitentwicklungsoperator . . . 105

B.2. Propagatoreigenschaft . . . 106

B.3. Spezialfälle . . . 107

Abbildungsverzeichnis **109**

Literaturverzeichnis **111**

Liste der Publikationen **121**

1. Einleitung

Die Quanteninformationswissenschaft – der Schnittpunkt zwischen Quantenmechanik und Informationstheorie – hat die Weise, wie man über die Quantenphysik denkt, verändert, da sie die Charakteristik der Quantenmechanik, *unteilbare, einzelne Quanten* und *Verschränkung*, mit Informationsübertragung verbindet [31, 32].

Einzelphotonquellen stellen die Grundlage für effiziente Quantencomputer dar [55]. Des Weiteren konnte Quantenteleportation, die in Netzwerken von Quantencomputern oder bei der Verteilung von Quantenschlüsseln zur sicheren Kommunikation relevant ist, experimentell demonstriert werden [13, 71]. Hier spielen verschränkte Photonen eine wichtige Rolle.

Experimente zur Quantenoptik wurden traditionell an atomaren Systemen durchgeführt. Heute stehen Halbleiterquantenpunkte aufgrund ihrer hohen Integrierbarkeit in Halbleiterchips im Vordergrund [89, 75]. Diese Nanostrukturen eignen sich zur Einzelphotonerzeugung auf Abruf (*on demand*) [66, 91, 99] und zur Generierung von polarisationsverschränkten Photonenpaaren [8, 87, 88, 1, 38, 68]. Außerdem konnten bereits Lasereigenschaften von einzelnen Quantenpunktquellen demonstriert werden [100, 90].

In Quantenpunkten besitzen die elektronischen Zustände relativ lange Lebenszeiten [10, 23], sodass sie stabil genug sind, um Photonen effizient zu kontrollieren. Die Kopplung der elektronischen Anregungen in Quantenpunkten an elektromagnetische Felder kann durch optische Resonatoren weitgehend bestimmt werden [16]. Die elektronischen Zustände bilden eine Hierarchie, zum Beispiel von einem Biexziton zu den Exzitonen, sodass ein höherer Zustand in die niedrigeren Energieniveaus zerfallen kann. Diese Kaskade war häufig Gegenstand vorangegangener Untersuchungen zur Erzeugung einzelner Photonen und von Photonenpaaren [68, 50, 42]. Hier ist den Einzelphotonen jedoch eine bestimmte, durch die beteiligten Quantenpunktzustände festgelegte Polarisation vorgegeben. In dieser Arbeit wird demonstriert, wie ein Zweiphotonenprozess dazu verwendet

werden kann, rein optisch ausgelöste Einzelphotonen mit vollständig kontrollierbarer Polarisation zu erzeugen.

Photonen können aufgrund unterschiedlicher Zerfallswege, wie sie zum Beispiel durch eine Feinstrukturaufspaltung der elektronischen Niveaus hervorgerufen wird, unterschieden werden, was die Verschränkung von Photonenpaaren verringert [94]. Hier stellen direkte optische Zweiphotonenübergänge in Quantenpunkten eine beachtenswerte Alternative dar. Für Quantenpunkte konnte experimentell gezeigt werden, dass durch die Absorption von zwei Photonen ein höherer Zustand, das sogenannte Biexziton, erzeugt werden kann [92, 14]. Ebenso ist es möglich, dass das Biexziton unter Emission zweier Photonen in den Grundzustand zerfällt [21, 69]. Es zeigt sich, dass dieser Prozess vorteilhaft für die Emission polarisationsverschränkter Photonen ist, da der Grad der Verschränkung unabhängig von der Feinstrukturaufspaltung der Exzitonen ist [81]. Die Autoren von Referenz [69], die zuerst den Zweiphotonenzerfall des Biexzitons experimentell demonstriert haben, äußerten die Hoffnung, dass diese optische Nichtlinearität in Halbleiterquantenpunkten quantenoptischen Geräten auf Basis von Zweiphotonenprozessen den Weg bereiten wird.

Da Quantenpunkte in ein Material eingebettet sind, koppeln diese stark an die Umgebung. Hier wird die Wechselwirkung mit Phononen relevant. Diese verbreitern die spektralen Emissionslinien asymmetrisch [28, 78] und begünstigen den Zerfall der Quantenpunktzustände in optische Resonatoren [44]. Es stellt sich die Frage, wie diese phononassistierten Prozesse die Dynamik der Quantenlichterzeugung beeinflussen.

1.1. Gliederung der Arbeit

Diese Arbeit gliedert sich in zwei Teile. Im ersten Teil werden die theoretischen Grundlagen zur Beschreibung der Quantenoptik in Halbleiterquantenpunkten und die Größen, die Aussagen über die Quanteneigenschaften machen, eingeführt. In Kapitel 2 wird der Hamiltonoperator des untersuchten Modellsystems dargelegt. Zentral ist hier die Lichtmateriewechselwirkung, die die elektronischen Zustände mit dem Quantenlicht in den optischen Resonatoren verbindet. Darauf aufbauend wird in Kapitel 3 die Gleichung für die Dynamik des Systems behandelt. Das Nanosystem wird als offenes Quantensystem beschrieben, sodass die Wechselwirkung mit der Umgebung zu Verlusttermen des Systems in der Bewegungsgleichung führt. Die Wechselwirkung mit Phononen steht hier im Vordergrund und wird besonders detailliert behandelt. In Kapitel 4 werden Methoden und Kenngrößen vorgestellt, um die untersuchten Quantenlichtquellen zu charakterisieren.

Im zweiten Teil werden Zweiphotonenübergänge, die sich zur Erzeugung von Photonenpaaren und von Einzelphotonen eignen, untersucht. In Kapitel 5 liegt der Focus auf der Erzeugung von polarisationsverschränkten Photonenpaaren. Der Einfluss von Phononen und die Abhängigkeit von relevanten Systemparametern auf den Grad der Verschränkung ist Gegenstand der Untersuchung. In Kapitel 6 wird eine neue Quelle für Einzelphotonen vorgestellt, die die rein optische Kontrolle aller Eigenschaften der emittierten Einzelphotonen ermöglicht. Es werden detaillierte numerische Berechnungen für wichtige Systemparameter vorgestellt. Der Einfluss phononassistierter Prozesse auf die Eigenschaften der emittierten Photonen wird behandelt. Die Ergebnisse sind in Kapitel 7 zusammengefasst.

Teil I.

Theorie

2. Hamiltonoperator des Modellsystems aus Quantenpunkt und optischen Resonatoren

2.1. Elektronische Zustände in Quantenpunkten

Quantenpunkte bilden einen nulldimensionalen Einschluss für Elektronen im Halbleiter. Optische Experimente machen ausgeprägte Emissionslinien sichtbar [92, 82]. Aufgrund ihres diskreten Energiespektrums werden Quantenpunkte manchmal auch künstliche Atome genannt [86]. Diese Emissionslinien gehen von speziellen elektronischen Zuständen aus. In dieser Arbeit sind hiervon Exzitonen sowie das Biexziton relevant. Diese werden, basierend auf den Referenzen [5] und [82, 74], im Folgenden eingeführt.

2.1.1. Exzitonen

In einem Halbleiterquantenpunkt sind Elektronen und Löcher in allen drei Raumdimensionen eingeschlossen. Wie in Abbildung 2.1 **a)** vereinfacht dargestellt, bildet der Quantenpunkt einen Potentialtopf für die elektronischen Zustände. Wird ein Elektron ins Leitungsband angehoben, so bleibt ein Loch im Valenzband zurück. Aufgrund der Coulombkraft bildet sich ein gebundener Zustand aus einem Elektron und einem Loch, welcher *Exziton* genannt wird [5].

Es gibt mehrere mögliche Exzitonen, die sich durch ihre Spinstruktur unterscheiden. Aufgrund der Austauschwechselwirkung (*exchange interaction*) spalten die optisch erlaubten Exzitonzustände um die sogenannte Feinstrukturkonstante δ auf. Der Wert von δ wird von der Symmetrie des Quantenpunkts bestimmt [5]. Quantenpunkte, die in der Quantenpunktebene rotationsinvariant sind, weisen keine Feinstrukturaufspaltung ($\delta =$

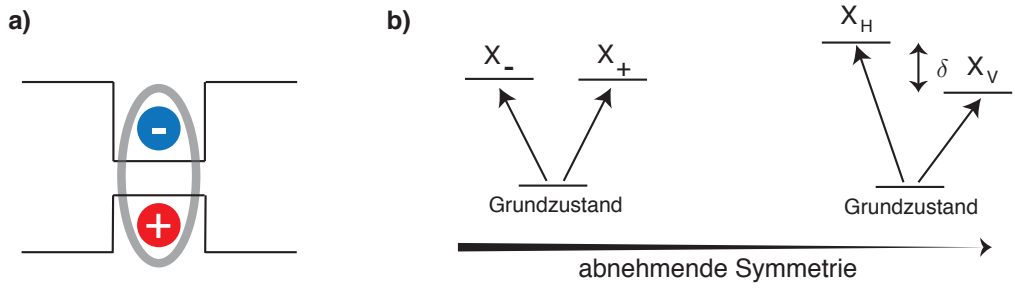


Abbildung 2.1. Exziton im Quantenpunkt: a) Vereinfachte Darstellung eines Quantenpunktes als Potentialtopf in einer Dimension im Valenz- und Leitungsband. Durch Anregung eines Elektrons ins Leitungsband bleibt ein Loch im Valenzband zurück. Aufgrund der Coulombkraft bilden diese einen gebundenen Zustand: das Exziton. **b)** In symmetrischen Quantenpunkten haben beide Spinzustände dieselbe Energie und es werden zirkular polarisierte Photonen emittiert. In Quantenpunkten mir geringerer Symmetrie sind die Exzitonzustände linear polarisiert und um einen Betrag δ aufgespalten.

0) auf [5]. Wird, zum Beispiel durch Verspannungen, die Symmetrie des Quantenpunkts reduziert, so ist $|\delta| > 0$. Dies ist schematisch in Abbildung 2.1 **b)** dargestellt. In den Referenzen [82] und [9] werden Ursachen diskutiert.

Der Hamiltonoperator der Elektron-Loch Austauschwechselwirkung für ein Exziton, das aus einem Loch mit Spin J_h und einem Elektron mit einem Spin S_e gebildet wird, ist durch

$$H_{exchange} = -\sum_{i=x,y,z} \left(a_i \; J_{h,i} S_{e,i} + b_i \; J_{h,i}^3 S_{e,i} \right) \tag{2.1}$$

gegeben [97]. Die z-Achse sei in Wachstumsrichtung des Quantenpunktes orientiert. Leichtlöcher können bei der Betrachtung vernachlässigt werden, da sie um einige zehn meV ($\gg \delta$) energetisch von den Schwerlöchern separiert sind. Die verbleibenden Exzitonen bestehen aus einem Schwerloch mit $J_h = \frac{3}{2}$, $J_{h,i} = \pm\frac{3}{2}$ und einem Elektron mit $S_e = \frac{1}{2}$, $S_{e,i} = \pm\frac{1}{2}$. Der Drehimpuls $M = J_{h,i} + S_{e,i}$ charakterisiert diese Zustände [5]. Optisch verbotene Zustände haben $|M| = 2$ und werden *dunkle* Exzitonen genannt. Diese werden in dieser Arbeit nicht betrachtet, da sie optisch nicht angeregt werden können. Die optisch erlaubten Zustände sind die *hellen* Exzitonen mit $|M| = 1$.

In der Basis der Exzitonen $(|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle)$ ergibt sich folgende Matrixdarstellung für den Hamiltonoperator

$$H_{exchange} = \begin{pmatrix} +\delta_0 & +\delta_1 & 0 & 0 \\ +\delta_1 & +\delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\delta_0 & +\delta_2 \\ 0 & 0 & +\delta_2 & -\delta_0 \end{pmatrix}, \tag{2.2}$$

mit $\delta_0 = \frac{3}{2}(a_z + 2,25b_z)$, $\delta_1 = \frac{3}{4}(b_x - b_y)$ und $\delta_2 = \frac{3}{4}(b_x + b_y)$ [5]. Hier zeigt sich, dass Quantenpunkte höherer Symmetrie ($b_x = b_y$) entartete Energieniveaus E_X besitzen. Die Eigenvektoren sind gegeben durch $|X_+\rangle = |+1\rangle$ und $|X_-\rangle = |-1\rangle$. Bei geringerer Symmetrie ($b_x \neq b_y$) bilden sich neue Eigenzustände [6, 74]

$$|X_H\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(|X_+\rangle + |X_-\rangle\right) \quad \text{und} \quad |X_V\rangle = \frac{i}{\sqrt{2}}\left(|X_+\rangle - |X_-\rangle\right) \tag{2.3}$$

mit den Energien

$$E_{H/V} = E_X \pm \delta. \tag{2.4}$$

Diese hellen Exzitonen bilden die Basis für weitergehende Betrachtungen. Die verbleibenden Eigenvektoren, die dunkle Exzitonen beschreiben, werden hingegen nicht betrachtet, da diese nicht an das elektrische Feld koppeln.

2.1.2. Biexzitonen

Exzitonen sind gebundene Zustände aus einem Elektron und einem Loch. Wenn sich zwei Exzitonen vereinigen, kann ein gebundener Zustand aus jeweils zwei Elektronen und Löchern gebildet werden. Dieser Zustand wird *Biexziton* genannt [80].

Das Biexziton

Das Biexziton zerfällt über die hellen Exzitonzustände, deswegen ist die Feinstrukturaufspaltung auch invertiert in der Emission des Biexziton zu finden [82]. Die optischen Auswahlregeln folgen denen der Exzitonen [82]. So wird zum Beispiel durch Emission eines σ_- polarisierten Photons vom Biexziton ein X_+–Exziton erzeugt, welches wiederum durch die Emission eines σ_+ polarisierten Photons in den Grundzustand zerfällt.

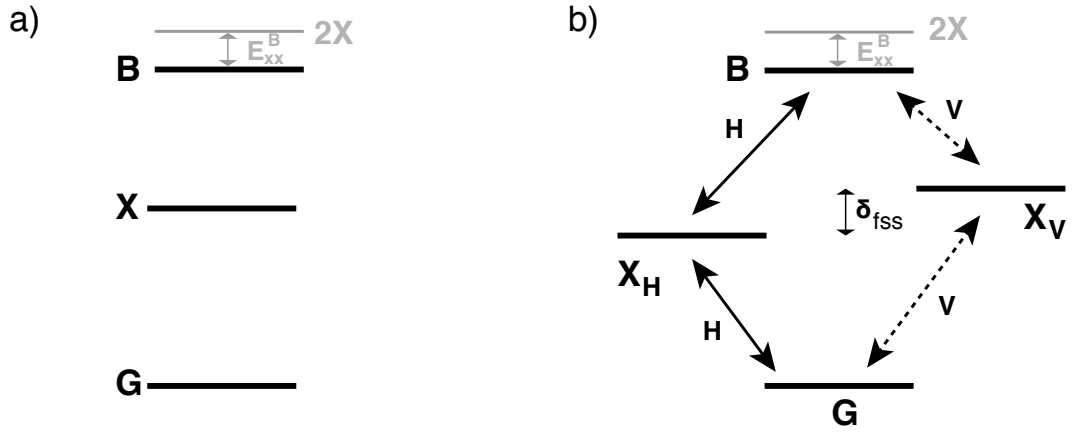


Abbildung 2.2. Das Biexziton und seine optischen Übergänge: a) Ein Biexziton B gewinnt gegenüber zwei Exzitonen $2X$ die Bindungsenergie E^B_{XX}. **b)** Das Biexziton kann dadurch erzeugt werden, dass zwei Exzitonen mit linearem Licht der selben Polarisation erzeugt werden.

Besitzen die Exzitonen aufgrund einer nicht verschwindenden Feinstrukturaufspaltung die Eigenzustände $|X_V\rangle$ und $|X_V\rangle$, so zerfällt das Biexziton durch Aussendung zweier gleich linear polarisierten Photonen über das entsprechende Exziton in den Grundzustand, siehe Abbildung 2.2 **b)**. Der Prozess kann auch umgekehrt ablaufen. Die Energie des Biexzitons ist

$$E_B = 2E_X - E^B_{XX}. \tag{2.5}$$

Es gewinnt[1] die Bindungsenergie E^B_{XX} gegenüber den zwei Exzitonen $2E_X$, aus denen es besteht [74], siehe Abbildung 2.2 **a)**. Der Biexzitonzustand wird nicht durch die Austauschwechselwirkung aufgespalten, da der Gesamtspin der beteiligten Elektronen und Löcher Null ergibt [82]. In dieser Arbeit werden kleine und mittlere Bindungsenergien, $E^B_{XX} = 1$ meV und $E^B_{XX} = 3$ meV, untersucht.

Biexzitoninitialisierung

Unter Berücksichtigung der zuvor genannten Auswahlregeln kann ein Biexziton optisch erzeugt werden. Abbildung 2.3 c) zeigt die Erzeugung des Biexzitons als Folgen zweier Einzelphotonprozesse. Dabei wird zuerst ein Exziton optisch erzeugt und anschließend wird mit einem weiteren Puls, der eine entsprechend kleinere Energie besitzt, der Biexzitonzustand initialisiert.

[1] Es wurden auch antibindende Biexzitonen experimentell nachgewiesen [76], für die $E_B > 2E_X$ gilt.

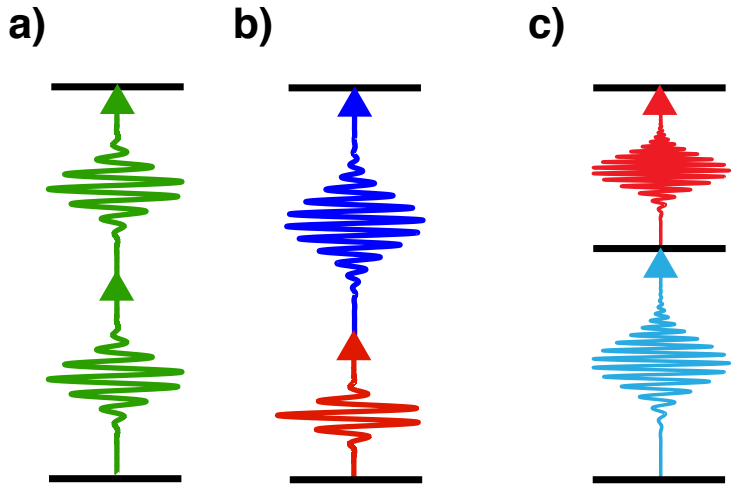


Abbildung 2.3. Schematische Darstellung der optischen Initialisierung des Biexzitons: a) Biexzitoninitialisierung mittels entarteter Zweiphotonenabsorption [92]. **b)** Präparation eines Biexzitons durch Zweifarben-Zweiphotonen-Absorption [14] . **c)** Folge zweier Einzelphotonprozesse vom Grundzustand ins Exziton und vom Exziton ins Biexziton.

Das Biexziton kann aber auch direkt aus dem Grundzustand eines Quantenpunkts erzeugt werden, indem zwei Photonen gleichzeitig absorbiert werden. Die Abbildungen 2.3 a) und b) stellen diese Prozesse schematisch dar. Man unterscheidet die Einfarben-Zweiphotonen-Absorption [92], bei der zwei Photonen derselben Energie absorbiert werden, von der Zweifarben-Zweiphotonen-Absorption [14], bei der sich die Energie der Photonen unterscheidet. Es konnte experimentell demonstriert werden, dass das Biexziton bei tiefen Temperaturen robust erzeugt werden kann [12].

In dieser Arbeit wird, soweit die Initialisierung des Biexzitons untersucht wird, die Einfarben-Zweiphotonen-Absorption verwendet.

2.2. Quantenlicht in optischen Resonatoren

In diesem Kapitel werden die Polarisationszustände und die Quantisierung des Lichts in optischen Resonatoren für einzelne und mehrere Moden behandelt.

2.2.1. Polarisation

Die Polarisation charakterisiert die Schwingungseigenschaften elektromagnetischer Wellen. Die Darstellung der Polarisation folgt dem Lehrbuch von John David Jackson [48]. In dieser Arbeit wird ausschließlich die Kopplung an das elektrische Feld untersucht.

Eine ebene elektrische Welle, die in $\vec{k}$-Richtung propagiert, hat am Ort $\vec{x}$ und zur Zeit t den Wert

$$\vec{E}(\vec{x}, t) = \vec{\mathcal{E}} e^{i\vec{k}\cdot\vec{x} - i\omega t}. \tag{2.6}$$

$\vec{\mathcal{E}} \in \{\vec{E}_{lin}, \vec{E}_{zirk}, \ldots\}$ charakterisiert die Bewegung in der Ebene, deren Lotrechte parallel zum Wellenvektor $\vec{k}$ orientiert ist. Die nachfolgenden Betrachtungen gelten jedoch nicht nur für ebene Wellen, sondern auch für (stehende) Wellen in eindimensionalen optischen Kavitäten. Diese Resonatormoden haben in eindimensionalen photonischen Kristallen einen transversal-elektromagnetischen (TEM) Charakter, das heißt, dass nur Feldkomponenten senkrecht zur Ausrichtung des Resonators vorkommen [52].

Linear in der x, y-Ebene polarisierte $\vec{E}$-Felder haben die Form

$$\vec{E}_{lin} = E_x\, \vec{x} + E_y\, \vec{y}, \tag{2.7}$$

wobei der Feldvektor in seine Anteile E_x, E_y zerlegt wird. Abbildung 2.4 a) zeigt beispielhaft einen möglichen linearen Polarisationszustand.

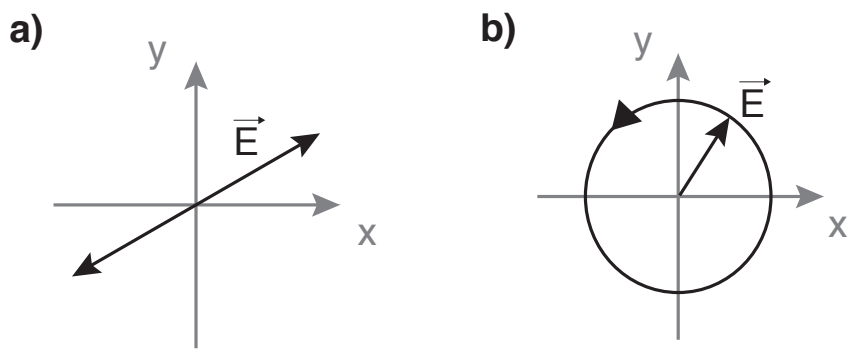


Abbildung 2.4. Polarisation elektromagnetischer Felder: Darstellung eines linear polarisierten elektrischen Feldes in **a)** und eines zirkular polarisierten $\vec{E}$-Feldes in **b)**.

In der x, y-Ebene *zirkular* polarisierte $\vec{E}$-Felder weisen eine Phasenverscheibung von $\frac{\pi}{2}$ zwischen der $\vec{x}$- und der $\vec{y}$-Komponente auf, sodass in komplexwertiger Darstellung

$$\vec{E}_{zirk} = E_0\ (\vec{x} \pm i\, \vec{y}) \tag{2.8}$$

gilt. Der Feldvektor rotiert auf einem Kreis in der x, y-Ebene, wie in Abbildung 2.4 b) dargestellt. Falls die Amplituden der beiden Feldkomponenten unterschiedlich ist, so spricht man von *elliptischer* Polarisation.

Analog zur linearen Basis $\vec{x}, \vec{y}$ lässt sich auch eine zirkulare Basis definieren, in der der Polarisationszustand angegeben werden kann. Beide Basen sind äquivalent bei der Beschreibung der Polarisation. Die Transformation zwischen den Basen ist gegeben durch

$$\sigma_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\vec{x} \pm i \, \vec{y} \right). \tag{2.9}$$

Damit lässt sich ein allgemeines Feld schreiben als

$$\vec{E}(\vec{x}, t) = \left(E_{+} \sigma_{+} + E_{-} \sigma_{-} \right) e^{i \vec{k} \cdot \vec{x} - i \omega t}. \tag{2.10}$$

Diese Darstellung eignet sich, um einen kontinuierlichen Übergang zwischen σ_+ und σ_- Polarisationszuständen zu beschreiben.

2.2.2. Quantisierung des elektromagnetischen Feldes

In dieser Arbeit wird die Emission weniger Lichtquanten aus optischen Resonatoren behandelt. Daher ist es notwendig, quantisierte Lichtfelder bei der theoretischen Beschreibung zu verwenden. Die Darstellung der Quantisierung elektromagnetischer Felder folgt Referenz [64] anhand eines einfachen Modells für eindimensionale optische Resonatoren.

Betrachtet man das elektrische Feld eines optischen Resonators des Volumens V, der durch perfekte Spiegel begrenzt ist, so besitzt ein klassisches monochromatisches Feld, das entlang der $\vec{x}$-Richtung polarisiert ist, die Form

$$\vec{E}(z, t) = \vec{x} \; q(t) \sqrt{\frac{2\Omega^2}{\epsilon_0 V}} \; \sin(kz), \tag{2.11}$$

wobei Ω die Frequenz der Resonatormode, $k = \Omega / c$ die Wellenzahl und $q(t)$ ein Maß für die Feldamplitude ist. Damit folgt aus den Maxwellgleichungen das in $\vec{y}$-Richtung polarisierte Magnetfeld

$$\vec{B}(z, t) = \frac{\vec{y}}{c^2 k} \; \dot{q}(t) \sqrt{\frac{2\Omega^2}{\epsilon_0 V}} \; \cos(kz) \tag{2.12}$$

und die klassische Energiedichte des elektromagnetischen Feldes

$$U = \frac{1}{2}\left(\epsilon_0 E^2 + \frac{B^2}{\mu_0}\right). \tag{2.13}$$

Die Hamiltonfunktion ist damit

$$H = \int_V dV \left(\epsilon_0 E^2 + \frac{B^2}{\mu_0}\right) \tag{2.14}$$

und nach dem Einsetzen von 2.11 und 2.12 folgt mit $p = \dot{q}$ sogleich

$$H = \frac{1}{2}\left(\Omega^2 q^2 + p^2\right). \tag{2.15}$$

Dies ist formal identisch mit der Hamiltonfunktion des harmonischen Oszillators. Das quantisierte elektromagnetische Feld einer Mode entspricht der quantenmechanischen Darstellung des harmonischen Oszillators [79] mit den Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren $b^\dagger$ und b. Man erhält

$$H = \hbar\Omega \left(b^\dagger b + \frac{1}{2}\right). \tag{2.16}$$

Für das elektrische Feld folgt mit $q = \sqrt{\frac{\hbar}{2\Omega}}(b^\dagger + b)$ somit

$$\hat{E}(z,t) = E_\Omega \ (b^\dagger + b) \ \sin(kz), \tag{2.17}$$

wobei $E_\Omega = \sqrt{\frac{\hbar\Omega}{\epsilon_0 V}}$ das *Feld pro Photon* ist. Die Operatoren $b^\dagger$ und b erzeugen beziehungsweise vernichten jeweils ein *Photon*. Es gilt

$$b^\dagger|n\rangle = \sqrt{n+1}|n+1\rangle \tag{2.18}$$

$$b|n\rangle = \sqrt{n}|n-1\rangle, \tag{2.19}$$

wobei $|n\rangle$ ein Fockzustand mit n Photonen ist.

Eine Generalisierung des oben beschriebenen Falles ist ein elektromagnetisches Feld mit mehreren Moden s bei unterschiedlichen Frequenzen $\Omega_s = cK_s$ und Wellenzahlen $K = s\pi/L$, wobei L die Länge des optischen Resonators ist. Der Hamiltonoperator ist in diesem Fall durch

$$H = \sum_s \hbar\Omega_s \left(b_s^\dagger b_s + \frac{1}{2}\right) \tag{2.20}$$

gegeben, wobei die Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren der Kommutatorrelation

$$\left[b_s, b_{s'}^\dagger\right] = \delta_{s,s'} \tag{2.21}$$

genügen. Das quantisierte elektrische Feld wird zu

$$\hat{E}(z,t) = \sum_s E_s \ (b_s^\dagger + b_s) \ \sin(K_s z), \tag{2.22}$$

wobei $E_s = \sqrt{\frac{\hbar\Omega_s}{\epsilon_0 V}}$ das *Feld pro Photon* in Mode s ist.

Diese Darstellung des quantisierten elektrischen Feldes verdeutlicht, dass das elektrische Feld einer Mode $\propto (b^\dagger + b)$ ist und dass die Feldenergie analog zum harmonischen Oszillator behandelt werden kann. Des Weiteren ist die Wechselwirkung des Quantenlichts mit Quantenpunktzuständen von besonderer Bedeutung in dieser Arbeit. Diese wird im nachfolgenden Kapitel eingeführt.

2.3. Licht-Materie-Wechselwirkung

Die Wechselwirkung zwischen einem elektrischen Feld und einem Quantenpunkt kann in Dipolnäherung [64, 51]

$$H_{LM} = -e\hat{r} \cdot \hat{E} \tag{2.23}$$

beschrieben werden, wobei $\hat{E}$ das elektrische Feld und $e\hat{r}$ der Dipoloperator ist. Unter Verwendung von Gleichung 2.17 wird der Wechselwirkungshamiltonoperator zu

$$H_{LM} = (b^\dagger + b) \sum_{i,j;\ i>j} \left(g_{i,j} \ |i\rangle\langle j| + g_{j,i} \ |j\rangle\langle i|\right), \tag{2.24}$$

wobei der Dipoloperator nach den Zuständen $|i\rangle$ des Quantenpunktes entwickelt wurde und $g_{i,j}$ das jeweilige Dipolmatrixelement ist. Hier kommt es sowohl zu Operatorkombinationen, welche die Energie bei einem optischen Übergang erhalten, indem ein Photon emittiert wird und der Quantenpunkt von Zustand 2 nach 1 abgeregt wird ($b^\dagger \ |1\rangle\langle 2|$), als auch zu solchen, die die Energie nicht erhalten, bei denen ein Photon absorbiert und der Quantenpunkt abgeregt wird ($b \ |1\rangle\langle 2|$). In der *Rotating-Wave-Approximation* werden nur die energieerhaltenden Terme beibehalten und die Wechselwirkung vereinfacht sich zu [64]

$$H_{LM} = \sum_{i,j;\ i>j} \left(g_{i,j} \ b|i\rangle\langle j| + g_{j,i} \ b^\dagger|j\rangle\langle i|\right). \tag{2.25}$$

Dieser Formalismus kann leicht auf Systeme mit mehreren Energieniveaus verallgemeinert werden [85], sodass auf der Grundlage dieser allgemeinen Betrachtung im nachfolgenden Kapitel der Hamiltonoperator des Quantenpunkt-Resonator-Systems für einen Quantenpunkt mit vier elektronischen Zuständen und zwei unterschiedlich polarisierten Photonenmoden eingeführt wird.

2.4. Hamiltonoperator des Modellsystems

Das in dieser Arbeit untersuchte System besteht aus elektronischen Halbleiterquantenpunktzuständen und quantisierten Resonatormoden sowie einem klassischen optischen Puls. Der Hamiltonoperator ist in linearer Polarisationsbasis des elektrischen Felds gegeben durch [94, 81, 17]

$$H_S = H_{qd} + H_{cav} + H_{QD-cav} + H_{QD-L}. \tag{2.26}$$

Der nicht wechselwirkende Anteil $H_{qd} + H_{cav}$ beschreibt die niedrigsten elektronischen Konfigurationen im Quantenpunkt mit H_{qd} und die beiden linearen Polarisationszustände im Resonator mit H_{cav}. Der elektronische Anteil ist explizit gegeben durch

$$H_{qd} = E_G|G\rangle\langle G| + E_H|X_H\rangle\langle X_H| + E_V|X_V\rangle\langle X_V| + E_B|B\rangle\langle B|, \tag{2.27}$$

wobei G den Grundzustand, X_V und X_H die beiden Exzitonzustände sowie B den Biexzitonzustand des Quantenpunktsystems darstellen. Diese sind Eigenzustände des Hamiltonoperators der Coulombwechselwirkung in einem Quantenpunkt [18]. Die linearen Polarisationszustände des Resonators mit den Energien $\hbar\omega_V$ und $\hbar\omega_H$ tragen mit

$$H_{cav} = \sum_{i=H,V} \hbar\omega_i b_i^\dagger b_i \tag{2.28}$$

bei, wobei $b_i^\dagger$, b_i die Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren in der Polarisationsmode i sind. Aufgrund der Energieerhaltung beim Zerfall des Biexzitons müssen zwei Photonen je Polarisationszustand in der Basis des Systems berücksichtigt werden.

Die Licht-Materie-Wechselwirkung wird in *Rotating-Wave-Approximation* behandelt. Die Interaktion der Quantenpunktzustände mit den quantisierten Lichtfeldern der Resonatormoden ist durch

$$H_{QD-cav} = [\mathcal{X} + h.c.]\,, \tag{2.29}$$

gegeben. Die optischen Übergänge werden durch

$$\begin{aligned}\mathcal{X} =& g[(|X_V\rangle\langle G|b_V + |B\rangle\langle X_V|b_V)] \quad + \\ & g[(|X_H\rangle\langle G|b_H + |B\rangle\langle X_H|b_H)]\end{aligned} \tag{2.30}$$

modelliert. Die Konstante g ist proportional zum Dipolmatrixelement des entsprechenden Übergangs [29]. Wenn keine andere Angabe gemacht wird, ist $g = \frac{\hbar}{10\,\mathrm{ps}}$.

Der Hamiltonoperator für die Wechselwirkung mit einem klassischen Lichtfeld ist in analoger Weise durch

$$H_{QD-L} = \sum_j |G\rangle\langle X_j|\Omega_j^*(t) + |X_j\rangle\langle B|\Omega_j^*(t) + h.c. \tag{2.31}$$

gegeben, wobei $j = H, V$ die linearen Polarisationsfreiheitsgrade des elektrischen Feldes sind. Die Ω_j enthalten jeweils das Dipolmatrixelement des entsprechenden optischen Übergangs sowie das zeitabhängige elektrische Feld. Im Allgemeinen unterscheiden sich die unterschiedlich polarisierten Felder und es gilt $\Omega_j \neq \Omega_{j'}$. Für V–polarisiertes Licht ist $\Omega_H = 0$ zu wählen. In dieser Arbeit werden gepulste Anregungen betrachtet. Das heißt, dass ein kontinuierlich schwingendes Lichtfeld durch eine Einhüllende $\Omega_e(t)$ zeitlich begrenzt wird, sodass

$$\Omega_j^*(t) = \Omega_0\,\Omega_e(t)\,e^{i\omega_L t}, \tag{2.32}$$

wobei die Pulsamplitude Ω_0 die Einheit einer Energie trägt und ω_L die Frequenz des Pulses ist. Als Einhüllende des Pulses wird die Gauß'sche Normalverteilung

$$\Omega_e(t) = e^{-\frac{(t-t_0)^2}{2\sigma^2}} \tag{2.33}$$

betrachtet, welche ihr Maximum zum Zeitpunkt t_0 erreicht und die Breite σ hat. Die Angabe einer Pulslänge bezieht sich im Folgenden jedoch auf die Breite bei halber Höhe der Pulsintensität.

Um die Energie zu quantifizieren, die ein elektronisches System durch einen Puls aufnimmt, wird die Pulsfläche Θ eingeführt. Ist der entsprechende Hamiltonoperator in der *Rotating-Wave-Approximation* gegeben, so definiert man

$$\Theta = \frac{2\Omega_0}{\hbar}\int_{-\infty}^{+\infty} d\tau\,\Omega_e(\tau). \tag{2.34}$$

Speziell für einen Gauß-Puls ergibt sich somit

$$\Theta = \frac{2\Omega_0}{\hbar}\sqrt{2\pi}\sigma. \tag{2.35}$$

Die Pulsfläche, als Maß der zugeführten Energie, hängt direkt von der Amplitude und der Länge des (Gauß-) Pulses ab.

3. Systemdynamik

3.1. Von-Neumann-Gleichung

Die Dynamik der Dichtematrix gehorcht der Von-Neumann-Gleichung

$$\frac{\partial}{\partial t}\rho_s = -\frac{i}{\hbar}[H, \rho_s] + \mathcal{L}_{\text{cavity}}(\rho_s) + \mathcal{L}_{\text{rad}}(\rho_s) + \mathcal{L}_{\text{pure}}(\rho_s) + \mathcal{L}_{\text{phonon}}(\rho_s)\,, \tag{3.1}$$

mit H aus Gleichung 2.26 bzw. 3.28 unter Berücksichtigung der Wechselwirkung mit Phononen. Die Lindbladterme [57] $\mathcal{L}_i$ beschreiben die Kopplung an die Umgebung. Dies wird in den folgenden Kapiteln näher besprochen.

Die Operatoren werden in der Teilchenzahlbasis entwickelt. Der Fockraum $|\chi; n_V, n_H\rangle$ besteht aus den Teilräumen des Quantenpunktes $\chi \in \{B, X_V, X_H, G\}$ und der Photonen $|n_V, n_H\rangle$. Erwartungswerte werden als Spur mit der Dichtematrix gebildet. So ist zum Beispiel

$$\langle N_V \rangle = Sp\,(N_V \rho_S) = Sp\left(b_V^\dagger b_V \rho_S\right) \tag{3.2}$$

der Erwartungswert der Photonenpopulation in der Resonatormode mit Polarisation V.

3.2. Verlust des optischen Resonators

Der optische Resonator, an den der Quantenpunkt gekoppelt ist, stellt ein offenes Quantensystem dar. Licht kann den Resonator verlassen und in die Umgebung entkommen.

Dies geschieht, wie in Abbildung 3.1 dargestellt, mit einer Rate κ und wird durch folgenden Lindbladterm [59] beschrieben

$$\mathcal{L}_{\text{cavity}}(\rho_s) = \frac{\kappa}{2}\sum_{i=H,V}\left(2b_i\rho_s b_i^\dagger - b_i^\dagger b_i \rho_s - \rho_s b_i^\dagger b_i\right), \tag{3.3}$$

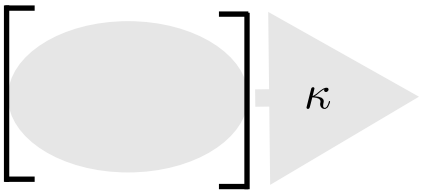


Abbildung 3.1. Verlust des optischen Resonators: Emission aus einer Resonatormode mit Rate κ.

wobei die b_i die Operatoren der Photonen im Resonator mit Polarisation $i = H, V$ sind. Die Qualität einer solchen Kavität kann als Verhältnis der Kopplungskonstante g und der Emissionsrate κ angegeben werden. In dieser Arbeit werden Variationen der Resonatorqualität von $g/\kappa = 0.02$ bis $g/\kappa = 1$ untersucht.

Die Emissionswahrscheinlichkeit der Photonen mit Polarisation $i = H, V$ aus einem Resonator mit der Zerfallskonstante κ bis zu einem Zeitpunkt t ist durch

$$P^{\kappa}_{ems}(t) = \kappa \int_0^t N_i(t')\ dt' \tag{3.4}$$

gegeben [3]. Wenn mehrere Photonen emittiert werden, ist die Emissionswahrscheinlichkeit größer als eins.

Ein weiterer Parameter zur Quantifizierung der Qualität optischer Resonatoren ist der Q-Faktor [29]. Dieser gibt das Verhältnis der Resonatorfrequenz ω zu der Breite der Resonatormode $\Delta\omega$ an

$$Q = \frac{\omega}{\Delta\omega} = \frac{\omega}{\kappa}\,, \tag{3.5}$$

wobei die Linienbreite der Kavität durch die Emissionsrate an die Umgebung κ gegeben ist.

3.3. Kopplung an andere Moden

Die Quantenpunktzustände koppeln an die Moden des optischen Resonators. Allerdings kann selbst bei Kavitäten hoher Qualität nicht ausgeschlossen werden, dass das System auch an andere Moden koppelt. Dies führt dazu, dass es spontane optische Übergänge im Quantenpunkt gibt, die keine Photonen in der Kavität erzeugen. Wie in Abbildung 3.2 dargestellt, gibt es zusätzlich zu dem Zerfall der Resonatormoden mit einer Rate κ weitere optische Verluste des Systems mit der Rate des radiativen Zerfalls γ_{rad}.

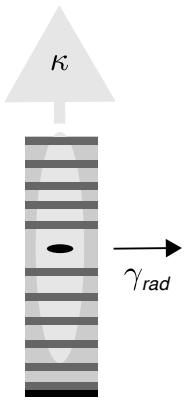


Abbildung 3.2. Kopplung an andere Moden: Emission einer Mode des optischen Resonators mit Rate κ (grauer Pfeil) und Emission des Quantenpunktes in andere Moden mit Rate γ_{rad} (schwarzer Pfeil). Eigene Darstellung nach [59, 78].

Diese strahlenden Verluste des offenen Quantensystems können durch den Term

$$\mathcal{L}_{\text{rad}}(\rho_s) = -\frac{\gamma_{\text{rad}}\langle\mathcal{B}\rangle^2}{2} \sum_{i=X_H,X_V} \left(\mathcal{L}_{|G\rangle\langle i|} + \mathcal{L}_{|i\rangle\langle B|}\right)(\rho_s) \tag{3.6}$$

beschrieben werden [21, 77, 78]. Hierbei ist

$$\mathcal{L}_\sigma(\rho_s) = (2\sigma\rho_s\sigma^\dagger - \sigma^\dagger\sigma\rho_s - \rho_s\sigma^\dagger\sigma) \tag{3.7}$$

und $\langle\mathcal{B}\rangle^2 < 1$ beschreibt die veränderte strahlende Emission in Gegenwart phononenassistierter Prozesse, welche in Kapitel 3.5 besprochen werden. Werden diese nicht berücksichtigt, so ist $\langle\mathcal{B}\rangle^2 = 1$ zu setzen. Die Rate des radiativen Zerfalls γ_{rad} kann Werte von $\sim 1\,\mu$eV annehmen [56, 22, 47, 1, 23, 43]. In dieser Arbeit werden, wenn nicht anders angegeben, Ergebnisse für $\gamma_{rad} = 1\,\mu$eV gezeigt.

3.4. Dynamik im Wechselwirkungsbild

Die Von-Neumann-Gleichung 3.1 beschreibt die Dynamik des Quantensystems. Für $H = H_0 + H_{WW}$ mit den nicht- und wechselwirkenden Anteilen $H_0 = H_{qd} + H_{cav}$ und $H_{WW} = H_{QD-cav} + H_{QD-L}$ und dem Verlustterm $\mathcal{L}_{\mathrm{O}}(\rho_s)$ bezüglich eines Operators O ergibt sich folgende Gleichung

$$\frac{\partial}{\partial t}\rho_s = -\frac{i}{\hbar}[H_0 + H_{WW}, \rho_s] + \mathcal{L}_{\mathrm{O}}(\rho_s)\,. \tag{3.8}$$

Da H_0, wie in den Gleichungen 2.27 und 2.28 angegeben, große Energien enthält, die numerisch nur auf ineffiziente Weise aufgelöst werden können, bietet es sich an, bezüglich H_0 ins Wechselwirkungsbild zu transformieren:

$$\tilde{\rho}_s(t) = U^\dagger(t)\rho_s(t)U(t). \tag{3.9}$$

Die Operatoren im Wechselwirkungsbild sind durch eine Tilde gekennzeichnet und

$$U(t) = \exp[-\frac{i}{\hbar}H_0 t]\,. \tag{3.10}$$

Damit folgt für die Zeitableitung des Dichteoperators

$$\begin{aligned}
\dot{\tilde{\rho}}(t) &= \dot{U}^\dagger(t)\rho(t)U(t) + U^\dagger(t)\dot{\rho}(t)U(t) + U^\dagger(t)\rho(t)\dot{U}(t) && (3.11)\\
&= [H_0, \tilde{\rho}(t)] + U^\dagger(t)\left(-\frac{i}{\hbar}[H_0 + H_{WW}, \rho_s] + \mathcal{L}_{\mathrm{O}}(\rho_s)\right)U(t) && (3.12)\\
&= -\frac{i}{\hbar}[\tilde{H}_{WW}, \tilde{\rho}_s] + U^\dagger(t)\mathcal{L}_{\mathrm{O}}(\rho_s)U(t) && (3.13)\\
&= -\frac{i}{\hbar}[\tilde{H}_{WW}, \tilde{\rho}_s] + \mathcal{L}_{\tilde{\mathrm{O}}}(\tilde{\rho}_s) && (3.14)
\end{aligned}$$

im Wechselwirkungsbild, wobei die Unitarität des Zeitentwicklungsoperators ausgenutzt wurde. Hierbei steht O stellvertretend für alle möglichen Operatorkombinationen, die in $\mathcal{L}(\rho_s) = \mathcal{L}_{\mathrm{cavity}}(\rho_s) + \mathcal{L}_{\mathrm{rad}}(\rho_s) + \mathcal{L}_{\mathrm{pure}}(\rho_s)$ und $\tilde{H}_{WW}$ auftreten. Die Wechselwirkung mit Phononen wird in Kapitel 3.5 im hier betrachteten Wechselwirkungsbild hergeleitet. Die Operatoren $\tilde{\mathrm{O}}(t) = U^\dagger(t)\mathrm{O}U(t)$ erhalten im Wechselwirkungsbild bezüglich H_0 einen entsprechenden Phasenfaktor, der bei der Bildung der Matrixelemente berücksichtigt werden muss. Die Operatoren wandeln sich folglich zu

$$|\chi_i\rangle\langle\chi_j| \rightarrow |\chi_i\rangle\langle\chi_j| e^{\frac{i}{\hbar}(E_i - E_j)t} \tag{3.15}$$

und

$$b_i^{(\dagger)} \to b_i^{(\dagger)} e^{\pm i\omega_i t}. \tag{3.16}$$

In dieser Darstellung müssen die schnellen Oszillationen von H_0 numerisch nicht mehr aufgelöst werden.

3.5. Wechselwirkung mit Phononen

Zuvor wurden bereits Kopplungen des Quantenpunkt-Resonator-Systems an die Umgebung eingeführt. Quantenpunkte sind aus Atomen aufgebaut, die im Kristallgitter angeordnet sind. Die Atome schwingen aufgrund thermischer Energie um ihre Ruhelage. Phononen sind die Quasiteilchen dieser quantisierten Schwingungen. Die Wechselwirkung mit Phononen beeinflusst die Emission (Absorption) eines Quantenpunktsystems. Dies ist in Abbildung 3.3 beispielhaft dargestellt. Die Wechselwirkung mit Phononen führt zu einer Verbreiterung der Quantenpunktemissionslinien [28, 78]. Des Weiteren sind bei Energiedifferenzen zwischen elektronischen Zuständen, optischen Resonatoren und elektrischen Feldern von bis zu einigen meV Prozesse relevant, die diese Energielücke mittels longitudinal-akustischer (LA) Phononen überbrücken können [44].

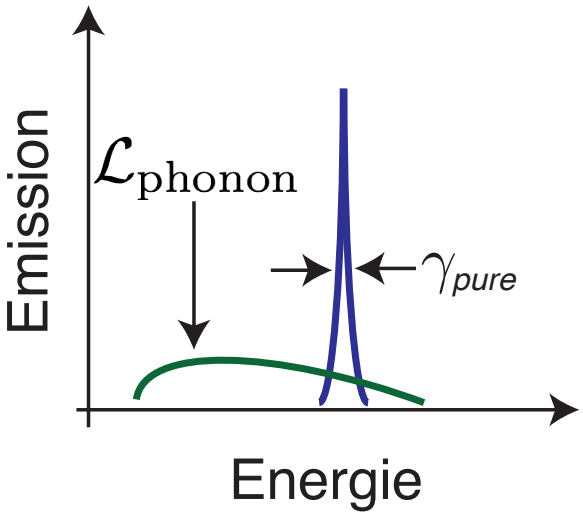


Abbildung 3.3. Quantenpunktemission mit Phononen: Schematische Darstellung des Einflusses der Phononen auf die Emission eines Quantenpunktes. Die Dephasierung der Quantenpunktkohärenzen verbreitert die sogenannte Null-Phononen-Linie in Abhängigkeit von der Temperatur mit γ_{pure} [77]. Des Weiteren erzeugen (LA-) Phononen ein Seitenband in der Emission.

In den folgenden Abschnitten werden diese Prozesse, die die Dynamik des Systems aufgrund der Wechselwirkung mit Phononen verändern, eingeführt. Dazu werden die Beiträge der phononassistierten Absorption und Emission von Licht hergeleitet.

3.5.1. Dephasierung

Durch die Wechselwirkung mit den Phononen der Umgebung verlieren elektronische Kohärenzen ihre Phasenbeziehung, ohne jedoch dabei ein Photon zu emittieren [49]. Dieser Prozess wird *(pure) Dephasing* genannt und kann durch folgenden Term beschrieben werden [94, 81, 77, 78]

$$\mathcal{L}_{\text{pure}}(\rho_s) = -\frac{1}{2} \sum_{\chi,\chi';\chi\neq\chi'} \gamma_{\text{pure}}^{\chi,\chi'} |\chi\rangle\langle\chi|\rho_s|\chi'\rangle\langle\chi'| \,. \tag{3.17}$$

Die Dephasierungskonstante $\gamma_{\text{pure}}^{\chi,\chi'} = \gamma_{\text{pure}}$ hängt auf lineare Weise von der Temperatur T für $0 < T < 30$ K ab, wobei sich die Rate mit $\sim 1\mu\text{eV/K}$ verändert [56, 77]. Im Folgenden wird im Temperaturbereich von $T = 1$ K bis 20 K die Abhängigkeit

$$\gamma_{\text{pure}}(T) = \frac{1\ \mu\text{eV}}{\text{K}} \cdot T \tag{3.18}$$

angenommen. Dies führt zu einer temperaturabhängigen Verbreiterung der elektronischen Zustände. Wenn keine anderen Angaben gemacht werden, wird $T = 4\,\text{K}$ verwendet. Auch wenn die nachfolgend hergeleiteten phononassistierten Prozesse nicht betrachtet werden, wird eine Dephasierungsrate von $\gamma_{\text{pure}} = 4\ \mu\text{eV}$ verwendet.

3.5.2. Polarontransformation

Um Beiträge der Wechselwirkung mit Phononen zu beschreiben, die über das Dephasieren hinausgehen, eignet es sich, in das Polaronbild zu wechseln [78, 62]. Diese Transformation ist geeignet, die Kopplung zwischen einem Quantenpunkt und einem Phononenbad zu beschreiben, die phononassistierte optische Übergänge enthält [27]. Der photonische Anteil wird von dieser Transformation nicht verändert.

Ausgangspunkt der Überlegungen zur Transformation ins Polaronbezugssystem ist der vollständige Hamiltonoperator des Systems H_S zuzüglich eines Phononenbads H_B und der Wechselwirkung dieses Bads mit dem Quantenpunkt $H_{qd-phonon}$. Insgesamt erhält man

$$H = H_0^{QD} + H_0^{cav} + H_{QD-cav} + H_{QD-L} + H_B + H_{qd-phonon}, \tag{3.19}$$

mit [40, 78]

$$H_0^{QD} = \sum_i E_i |\chi_i\rangle\langle\chi_i| \tag{3.20}$$

$$H_0^{cav} = \sum_j \hbar\omega_j b_j^\dagger b_j \tag{3.21}$$

$$H_{QD-cav} = g\sum_j (|G\rangle\langle X_j| b_j^\dagger + |X_j\rangle\langle Bj| b_j^\dagger + h.c.) \tag{3.22}$$

$$H_{QD-L} = \sum_j |G\rangle\langle X_j|\Omega_j^*(t) + |X_j\rangle\langle B|\Omega_j^*(t) + h.c. \tag{3.23}$$

$$H_B = \sum_q \hbar\omega_q a_q^\dagger a_q \tag{3.24}$$

$$H_{qd-phonon} = \sum_l |\chi_l\rangle\langle\chi_l| \sum_q \lambda_q^l (a_q^\dagger + a_q). \tag{3.25}$$

Der Index $j = H, V$ läuft über die linearen Polarisationszustände des Lichts, die an den Quantenpunkt koppeln; außerdem ist $\chi_i = \{G, X_V, X_H, B\}$ und $\chi_l = \{X_V, X_H, B\}$. Die Operatoren $a_q^{(\dagger)}$ vernichten (erzeugen) ein Phonon in Mode q, mit der Energie $\hbar\omega_q$, und λ_q^l koppelt die Quantenpunktzustände an das Phononenbad.

Der Hamiltonoperator 3.19 wird mit

$$H' = e^S H e^{-S} \tag{3.26}$$

ins Polaronbild transformiert, wobei $S = \sum_l |\chi_l\rangle\langle\chi_l| \sum_q \lambda_q^l (a_q^\dagger - a_q)$. Es wird des Weiteren angenommen, dass das Biexziton in Vergleich zu den Exzitonen doppelt mit dem Phononenbad wechselwirkt, $\lambda_q^B = 2\lambda_q^{X_v} = 2\lambda_q^{X_H} = 2\lambda_q$ [45, 40]. Die Transformation wird über die Baker-Campbell-Hausdorff Formel ausgewertet [36]

$$A' = e^S A e^{-S} = A + [S, A] + \frac{1}{2!}[S, [S, A]] + \dots . \tag{3.27}$$

Es folgt somit:

$$H' = H_0^{QD\prime} + H_0^{cav\prime} + H_B{}' + H_{qd-phonon}{}' + H_{QD-cav}{}' + H_{QD-L}{}' \tag{3.28}$$

mit

$$H_0^{QD\prime} = H_0^{QD}, \tag{3.29}$$

$$H_0^{cav\prime} = H_0^{cav}, \tag{3.30}$$

$$H_B{}' = H_B - H_{qd-phonon} + \sum_{l,q} \frac{\lambda_q^{i\,2}}{\omega_q} |\chi_l\rangle\langle\chi_l|, \tag{3.31}$$

$$H_{qd-phonon}{}' = H_{qd-phonon} - \sum_{l,q} 2\frac{\lambda_q^{i\,2}}{\omega_q} |\chi_l\rangle\langle\chi_l|. \tag{3.32}$$

Die Kopplung des Phononenbads an den Quantenpunkt $H_{qd-phonon}$ wird durch diese Transformation entfernt. Die Energien der (Bi-)Exzitonen werden um den *polaron shift* $\Delta_i^p = \sum_{l,q} \frac{\lambda_q^{i\,2}}{\omega_q}$ korrigiert. Die Licht-Materie-Wechselwirkung transformiert sich zu

$$H_{QD-cav}{}' = g\sum_j (|G\rangle\langle X_j| + |X_j\rangle\langle Bj|) b_j^\dagger e^{\sum_q \frac{\lambda_q}{\omega_q}[a_q - a_q^\dagger]} + h.c. \tag{3.33}$$

$$= g\sum_j (|G\rangle\langle X_j| b_j^\dagger + |X_j\rangle\langle B| b_j^\dagger) B_+ + h.c. \tag{3.34}$$

und analog

$$H_{QD-L}{}' = \sum_j (|G\rangle\langle X_j|\Omega_j^*(t) + |X_j\rangle\langle B|\Omega_j^*(t)) B_+ + h.c., \tag{3.35}$$

mit $B_\pm = \exp(\sum_q \pm\frac{\lambda_q}{\omega_q}[a_q - a_q^\dagger])$ [77]. Es ist nun vorteilhaft die Operatoren als

$$H_{QD-cav/L}{}' = \langle B\rangle X_g + X_g\zeta_g - X_u\zeta_u \tag{3.36}$$

zusammenzufassen, wobei

$$X_g = H_{QD-cav} + H_{QD-L} \tag{3.37}$$

und

$$X_u = i\sum_j \quad (\quad |X_j\rangle\langle G|(g\, b_j + \Omega_j(t)) + |B\rangle\langle X_j|(g\, b_j + \Omega_j(t)) \tag{3.38}$$

$$- \quad |G\rangle\langle X_j|(g\, b_j^\dagger + \Omega_j^*(t)) - |X_j\rangle\langle B|(g\, b_j^\dagger + \Omega_j^*(t)) \quad). \tag{3.39}$$

Die Badkorrelationsfunktionen sind definiert als $\zeta_g = \frac{1}{2}(B_+ + B_- - 2\langle B\rangle)$ und $\zeta_u = \frac{1}{2i}(B_+ - B_-)$ mit [78]

$$\langle B\rangle = \langle B_\pm\rangle = \exp\left(-\frac{1}{2}\int_0^\infty d\omega \frac{J(\omega)}{\omega^2} \coth(\frac{\beta\hbar\omega}{2})\right). \tag{3.40}$$

Dieser Erwartungswert ist über $\beta = \frac{1}{k_b T}$ von der Temperatur T abhängig. Weiterhin findet die *spektrale Dichte* der akustischen Phononen im Deformationspotential

$$J(\omega) = \sum_q \lambda_q^2 \delta(\omega - \omega_q) = \alpha_p \omega^3 e^{-\frac{\omega^2}{2\omega_b^2}} \tag{3.41}$$

Eingang mit $\alpha_p = 0.06\,\mathrm{ps}^2$ und $\hbar\omega_b = 1\,\mathrm{meV}$ als realistische Parameter[1] für InAs/GaAs Quantenpunkte [77, 78]. Abbildung 3.4 stellt die spektrale Dichte grafisch dar. Die spektrale Dichte gibt die Stärke der Interaktion der Phononen mit den Quantenpunktzuständen in Abhängigkeit von der Energie der Phononen $\hbar\omega$ an.

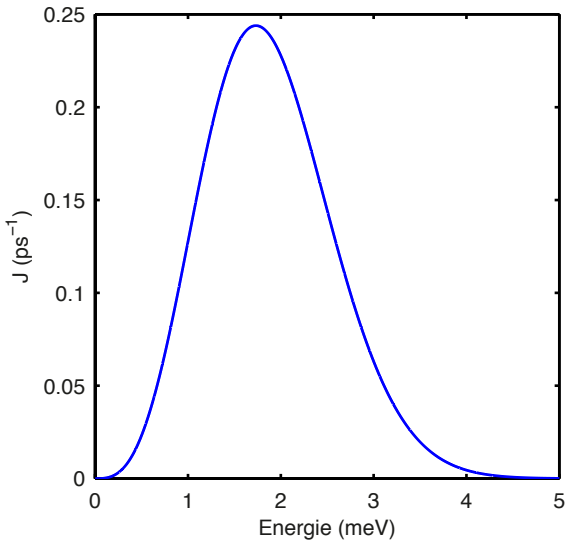


Abbildung 3.4. Spektrale Dichte der Phononen $J(\omega)$ in Abhängigkeit von der Energie der Phononen für die Parameter $\alpha_p = 0.06\,\mathrm{ps}^2$ und $\hbar\omega_b = 1\,\mathrm{meV}$.

Mit

$$H_I = X_g \zeta_g - X_u \zeta_u \tag{3.42}$$

lässt sich nun die Polaron-Transformation als

$$H' = \overline{H_0^{QD}} + H_0^{cav} + \langle B \rangle H_{QD-cav} + \langle B \rangle H_{QD-L} + H_B + H_I \tag{3.43}$$

zusammenfassen, wobei $\overline{H_0^{QD}} = \sum_i \overline{E_i} |\chi_i\rangle\langle\chi_i|$ mit $\overline{E_i} = (E_i - \Delta_i^p)$. Es wird im Folgenden davon ausgegangen, dass der *polaron shift* Δ_i^p bereits in den angegebenen (Bi-)Exzitonenergien enthalten ist. Eine weitere Konsequenz der Polarontransformation

[1] Die Kopplungsstärke der Phononen variiert von Quantenpunkt zu Quantenpunkt, sodass auch eine schwächere Wechselwirkung mit den Phononen möglich ist [37].

ist es, dass die Kopplung des Quantenpunktes an die Lichtfelder wegen $\langle B \rangle < 1$ zu $g \to \langle B \rangle g$ und $\Omega_j(t) \to \langle B \rangle \Omega_j(t)$ reduziert wird.

3.5.3. Phononenassistierte Prozesse

Ausgehend vom Hamiltonoperator im Polaronbild H' aus Gleichung 3.43 wird nun ein effektiver Beitrag der akustischen Phononen $\mathcal{L}_{\text{phonon}}(\rho_s)$ gesucht, der auf die reduzierte Dichtematrix des Systems ρ_s wirkt. Um dies zu erreichen, wird das vollständige System bestehend aus Quantenpunkt und Resonator sowie der Phononen betrachtet. Die Dichtematrix dieses Systems ist χ. Die Bewegungsgleichung des ganzen Systems lautet [19]

$$\frac{\partial}{\partial t}\chi = -\frac{i}{\hbar}[H, \chi]. \tag{3.44}$$

Diese Gleichung wird nun nacheinander in Wechselwirkungsbilder bezüglich der Operatoren O transformiert. Die jeweiligen Zeitentwicklungsoperatoren lauten

$$\mathcal{U}_O(t) = \mathcal{T} \exp[-\frac{i}{\hbar}\int_0^t dt\ O], \tag{3.45}$$

wobei $O \in \{H_B, \overline{H_0^{QD}} + H_0^{cav}, H_{QD-cav-L}(t)\}$ aus Gleichung 3.43 mit $H_{QD-cav-L}(t) = \langle B \rangle H_{QD-cav} + \langle B \rangle H_{QD-L}(t)$. $\mathcal{T}$ ist der Zeitordnungsoperator (vgl. Anhang B).

Die Transformation bezüglich H_B vertauscht mit allen photonischen und elektronischen Operatoren und erzeugt so die Zeitabhängigkeit der phononischen Operatoren in der phononassistierten Wechselwirkung

$$H_I(t) = X_g(t)\zeta_g(t) - X_u(t)\zeta_u(t), \tag{3.46}$$

mit $\zeta_i(t) = \mathcal{U}_B^\dagger(t)\zeta_i\mathcal{U}_B(t)$ [78] und $i = u, g$.

Die Transformation bezüglich $\overline{H_0^{QD}} + H_0^{cav}$ setzt die verbleibenden Operatoren ins Wechselwirkungsbild analog zu Gleichung 3.14. Es ergibt sich somit

$$\dot{\tilde{\chi}}(t) = -\frac{i}{\hbar}[\tilde{H}_{QD-cav-L}(t) + \tilde{H}_I(t), \tilde{\chi}]. \tag{3.47}$$

Die Transformation bezüglich $\tilde{H}_{QD-cav-L}(t)$ führt auf die Gleichung

$$\dot{\bar{\chi}}(t) = -\frac{i}{\hbar}[\bar{H}_I(t), \bar{\chi}]. \tag{3.48}$$

Die Integration der Gleichung liefert

$$\bar{\chi}(t) = \bar{\chi}(0) + \frac{1}{i\hbar}\int_0^t d\tau[\bar{H}_I(\tau), \bar{\chi}(\tau)]. \tag{3.49}$$

Man setzt anschließend $\tilde{\chi}(t)$ in Gleichung 3.48 ein und erhält [19]

$$\dot{\bar{\chi}} = \frac{1}{i\hbar}[\bar{H}_I, \bar{\chi}(0)] - \frac{1}{\hbar^2}\int_0^t d\tau\ [\bar{H}_I(t), [\bar{H}_I(\tau), \bar{\chi}(\tau)]]. \tag{3.50}$$

In dieser Gleichung lässt sich der erste Term auf der rechten Seite beseitigen, wenn man annimmt, dass die Operatoren des Bads, die an das System koppeln, den Erwartungswert Null besitzen. Es ist immer möglich, diesen Term zu eliminieren [19].

Unter der Annahme [19], dass die System-Bad-Wechselwirkung zum Zeitpunkt $t = 0$ beginnt und dann keine Korrelationen zwischen dem System S und dem Bad R bestehen, gilt $\chi(0) = \bar{\chi}(0)$. Des Weiteren faktorisiert der Dichteoperator

$$\chi(0) = \rho(0)\ R_0, \tag{3.51}$$

wobei R_0 der Dichteoperator des Phononenbads zum Zeitpunkt Null ist. Korrelationen entstehen erst später. Es kann angenommen werden, dass der Dichteoperator des Gesamtsystems $\chi(t)$ nur Abweichungen vom unkorrelierten Zustand der Ordnung H_{SR} zeigt, wobei insbesondere das Bad groß gegenüber dem betrachteten System ist und nur schwach von S beeinflusst wird. Daher lässt sich der Dichteoperator folgendermaßen schreiben [19]

$$\bar{\chi}(t) = \bar{\rho}(t)\ R_0 + \mathcal{O}(\bar{H}_I). \tag{3.52}$$

Setzt man diesen Operator in Gleichung 3.50 ein und bildet die partielle Spur über den Zuständen des Phononenreservoirs R, so erhält man mit $\rho_s(t) = tr_R[\chi(t)]$ die Dynamik in *Born'scher Näherung* [19]

$$\dot{\bar{\rho}}_s = -\frac{1}{\hbar^2}\int_0^t d\tau\ tr_R\Big([\bar{H}_I(t), [\bar{H}_I(\tau), \bar{\rho}_s(\tau)\ R_0]]\Big). \tag{3.53}$$

Diese Gleichung ist über $\bar{\rho}(\tau)$ von der gesamten Vergangenheit des Systems abhängig. Eine weitere Näherung besteht nun darin, das Gedächtnis des Systems auszuschalten

und $\bar{\rho}(\tau)$ durch $\bar{\rho}(t)$ zu ersetzen, sodass man die Bewegungsgleichung in *Born-Markov-Näherung* erhält [19]

$$\dot{\bar{\rho}}_s = -\frac{1}{\hbar^2}\int_0^t d\tau \; tr_R\Big([\bar{H}_I(t),[\bar{H}_I(\tau),\bar{\rho}_s(t)\; R_0]]\Big). \tag{3.54}$$

Diese Gleichung eignet sich im Allgemeinen, um die Dynamik von Halbleiterquantenpunkten zu beschreiben. Insbesondere lassen sich die Prozesse in Quantenpunkten unter Einbeziehung der Phononen auf angemessene Weise beschreiben [77, 61, 19], was auch durch Vergleiche mit dem Experiment bestätigt wird [40].

Wertet man nun den Kommutator in Gleichung 3.54 aus, so erhält man

$$\begin{aligned}\dot{\bar{\rho}}_s &= -\frac{1}{\hbar^2}\int_0^t d\tau \; tr_R\;\Big([\bar{H}_I(t),[\bar{H}_I(\tau),\bar{\rho}_s(t)\; R_0]]\Big)\\ &= -\frac{1}{\hbar^2}\int_0^t d\tau \; tr_R\;\Big(\bar{H}_I(t)\bar{H}_I(\tau)\bar{\rho}_s(t)\; R_0 - \bar{H}_I(t)\bar{\rho}_s(t)\; R_0\bar{H}_I(\tau)\\ &\qquad -\bar{H}_I(\tau)\bar{\rho}_s(t)\; R_0\bar{H}_I(t) + \bar{\rho}_s(t)\; R_0\bar{H}_I(\tau)\bar{H}_I(t)\Big).\end{aligned} \tag{3.55}$$

Die Badfunktionen sind diagonal in ihren Indizes [102], das heißt $\langle\zeta_i(t)\zeta_j(t')\rangle = \langle\zeta_i(t)\zeta_i(t')\rangle\delta_{i,j}$. Folglich treten auch nur Operatorkombinationen X_iX_i mit denselben Indizes zusammen auf. Es gilt weiterhin [78]

$$\langle\zeta_i(t)\zeta_j(t')\rangle = tr_R\{R_0\zeta_i(t)\zeta_j(t')\} = G_i(t-t')\;\delta_{i,j} \tag{3.56}$$

$$\langle\zeta_i(t')\zeta_j(t)\rangle = tr_R\{R_0\zeta_i(t')\zeta_j(t)\} = G_i(t'-t)\;\delta_{i,j} = G_i^*(t-t')\;\delta_{i,j}. \tag{3.57}$$

Andere Operatorkombinationen können durch (anti-)zyklisches Vertauschen unter der Spur auf obige Definitionen zurückgeführt werden. Die Polaron-Green-Funktionen [78, 102] sind definiert als

$$G_g(t) = \langle\mathcal{B}\rangle^2(\cosh\{\phi(t)\}-1) \tag{3.58}$$

$$G_u(t) = \langle\mathcal{B}\rangle^2\sinh\{\phi(t)\} \tag{3.59}$$

und die Phononkorrelationsfunktion $\phi(t)$ ist durch [77]

$$\phi(t) = \int_0^\infty d\omega\frac{J(\omega)}{\omega^2}\left(\coth(\frac{\beta\hbar\omega}{2})\cos(\omega t) - i\sin(\omega t)\right) \tag{3.60}$$

gegeben. Abbildung 3.5 stellt diese Funktionen graphisch dar.

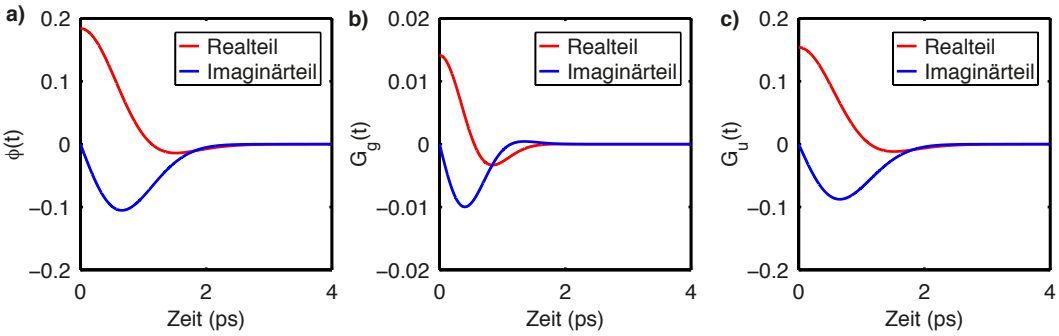


Abbildung 3.5. Phononkorrelationsfunktion $\phi(t)$ **a)** und Polaron-Green-Funktionen $G_g(t)$ **b)** und $G_u(t)$ **c)** für $T = 4$ K.

Die Phononkorrelationsfunktion $\phi(t)$ dämpft gemäß der spektralen Phonondichte $J(\omega)$ hohe Frequenzen ω. Dies führt zu einem schnellen zeitlichen Abklingen sowohl der Phononkorrelationsfunktion $\phi(t)$ als auch Polaron-Green-Funktionen $G_g(t)$ und $G_u(t)$, welche für die verwendeten Parameter innerhalb von $t_0 \leq 4$ ps auf Null abfallen. Die Polaron-Green-Funktionen verkürzen die Anzahl der vergangenen Zeitpunkte, die bei der Integration in Gleichung 3.54 berücksichtigt werden müssen. Für praktische Zwecke lässt sich dieses Integral folglich mit

$$\int_0^t d\tau \rightarrow \int_{t-t_0}^t d\tau \tag{3.61}$$

auswerten, was den numerischen Rechenaufwand wesentlich verringert.

Man ist nun in der Lage die Phononen in Gleichung 3.55 durch Bildung der partiellen Spur über dem Phononenbad zu eliminieren und man erhält

$$\begin{aligned}
\dot{\bar{\rho}}_s &= -\frac{1}{\hbar^2}\sum_{i=g,u}\int_0^t d\tau\; tr_R\Big(\bar{X}_i(t)\zeta_i(t)\bar{X}_i(\tau)\zeta_i(\tau)\bar{\rho}_s(t)R_0 - \bar{X}_i(t)\zeta_i(t)\bar{\rho}_s(t)R_0\bar{X}_i(\tau)\zeta_i(\tau) \\
&\qquad -\bar{X}_i(\tau)\zeta_i(\tau)\bar{\rho}_s(t)R_0\bar{X}_i(t)\zeta_i(t) + \bar{\rho}_s(t)R_0\bar{X}_i(\tau)\zeta_i(\tau)\bar{X}_i(t)\zeta_i(t)\Big) \\
&= -\frac{1}{\hbar^2}\sum_{i=g,u}\int_0^t d\tau\; \Big(\bar{X}_i(t)\bar{X}_i(\tau)\bar{\rho}_s(t)\; G_i(t-\tau) - \bar{X}_i(t)\bar{\rho}_s(t)\bar{X}_i(\tau)G_i^*(t-\tau) \\
&\qquad -\bar{X}_i(\tau)\bar{\rho}_s(t)\bar{X}_i(t)G_i(t-\tau) + \bar{\rho}_s(t)\bar{X}_i(\tau)\bar{X}_i(t)G_i^*(t-\tau)\Big).
\end{aligned} \tag{3.62}$$

Es ist angebracht die Transformation ins Wechselwirkungsbild bezüglich $\bar{H}_{QD-cav-L}(t)$ rückgängig zu machen, sodass die Gleichung nun im Wechselwirkungsbild bezüglich H_0 (wie in Gleichung 3.14) gegeben ist. Dazu wählt man (siehe auch Gleichung 3.45)

$$U(t) = \mathcal{U}_{QD-cav-L}(t). \tag{3.63}$$

Man erhält folglich

$$\dot{\tilde{\rho}}_s(t) = -\frac{i}{\hbar}[\langle\mathcal{B}\rangle\tilde{H}_{QD-cav} + \langle\mathcal{B}\rangle\tilde{H}_{QD-L}(t), \tilde{\rho}_s(t)] + \mathcal{L}_{\text{phonon}}(\rho_s), \tag{3.64}$$

wobei $\mathcal{L}_{\text{phonon}}(\rho_s) = U(t)\dot{\bar{\rho}}_s(t)U^\dagger(t)$ für $\dot{\bar{\rho}}_s(t)$ aus Gleichung 3.62 ist. Man ist damit in der Lage, die Von-Neumann-Gleichung 3.1 inklusive Phononen im Wechselwirkungsbild (siehe Gleichung 3.14) zu lösen.

3.5.4. Einfluss der Phononen auf die Exzitondynamik

In Abbildung 3.6 wird der Einfluss der phononenassistierten Prozesse auf die Exzitondynamik dargestellt. In den Teilen a) und b) wird jeweils der optische Übergang vom Grundzustand zum Exziton mit einem 4π-Puls untersucht. In a) wird die Wechselwirkung mit den Phononen vernachlässigt und man beobachtet Rabi-Oszillationen, wenn der Laser-Puls mit dem Exziton resonant ist. Bei dem betrachteten Puls befindet sich das System zum Schluss wieder im Grundzustand. Für kleine Pulsverstimmungen vom Exziton beobachtet man, dass die Exzitonpopulation dem Puls adiabatisch folgt und im Gegensatz zu einem π-Puls ein Interferenzmuster zu erkennen ist.

In Abbildung 3.6 b) werden nun die phononenassistierten Prozesse zwischen dem Puls und dem Exzitonübergang berücksichtigt. Die Temperatur beträgt 4 K. Ist der Puls im Bezug zum Exziton blauverstimmt, so beobachtet man ein Seitenband in der Exzitonpopulation. Dieses Verhalten stimmt mit experimentellen Beobachtungen überein [73, 2]. Das Phononenbad kann die überschüssige Energie absorbieren, um die der Puls verstimmt ist, sodass ein Exziton erzeugt werden kann. Die Phononen vernichten dabei die Phasenbeziehung zwischen Puls und Exziton, sodass man im Bereich des Seitenbands keine Rabi-Oszillationen beobachtet. Es wurde hier derselbe Puls wie in a) verwendet. Die Renormalisierung der Rabi-Energie in Gegenwart der Phononen (siehe Gleichung 3.43) sowie ein phononinduziertes Dephasieren führt dazu,

dass das System nach der Wechselwirkung mit dem Puls nicht wieder komplett den Grundzustand erreicht, wenn der Puls in Resonanz mit dem Exzitonzustand ist.

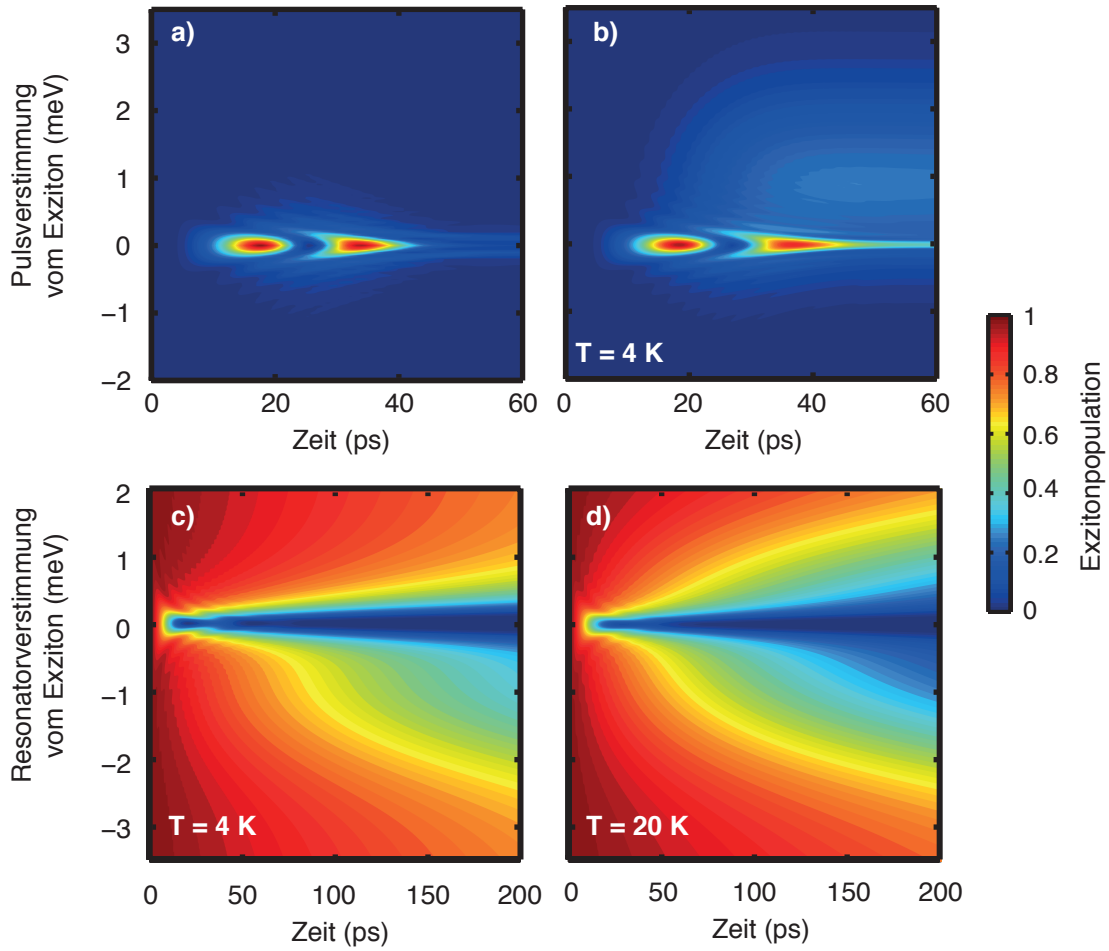


Abbildung 3.6. Exzitondynamik: Initialisierung des Exzitons mit einem 4π-Puls in a) ohne und in b) unter Berücksichtigung phononenassistierter Prozesse bei $T = 4$ K. Zerfall des Exzitons in einen optischen Resonator hoher Qualität ($g/\kappa = 1$) bei $T = 4$ K in c) und $T = 20$ K in d).

Die Abbildungen 3.6 c) und d) zeigen den Zerfall des Exzitons in einen optischen Resonator bei Temperaturen von $T = 4$ K und $T = 20$ K. Für $T = 4$ K zerfällt das Exziton bei einer Verstimmung des Resonators von 2 meV im Wesentlichen aufgrund des strahlenden Zerfalls in andere Moden. Im Falle kleiner negativer Resonatorverstimmungen wird der Zerfall des Exzitons durch die Wechselwirkung mit dem Phononenbad beschleunigt. Bei niedrigen Temperaturen bevorzugt das Phononenbad die Absorption von Energiequanten, sodass Photonen vorzugsweise in einen rotverstimmten Resonator emittiert werden. Mit steigender Temperatur wird auch die Emission von Energie aus

dem Phononenbad wahrscheinlicher. In Abbildung 3.6 d) sieht man, dass bereits ab einer Temperatur von $T = 20$ K die Photonemission in rot- und blauverstimmte Kavitäten relativ symmetrisch verläuft.

Bei tiefen Temperaturen ermöglichen Phononen die Photonemission in einen rotverstimmten Resonator, während bei der Photonabsorption aus Abbildung 3.6 b) der optische Puls blauverstimmt sein muss, um von phononassistierten Übergängen zu profitieren [77]. Bei betragsmäßig großen Verstimmungen des Resonators finden keine phononassistierten Prozesse statt und die Exzitondynamik wird durch den Zerfall in andere Moden bestimmt.

4. Autokorrelationsfunktionen

Viele physikalisch wichtige Größen beruhen auf zeitlicher Kohärenz. Diese lässt sich mathematisch durch Autokorrelationsfunktionen ausdrücken. Das Emissionsspektrum eines Quantensystems lässt sich auf die Autokorrelationsfunktion erster Ordnung zurückführen. Aus der Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung für Photonen lässt sich der Photonenzustand rekonstruieren und somit der Grad der Polarisationsverschränkung sowie die Ununterscheidbarkeit von Einzelphotonen quantifizieren.

4.1. Autokorrelationsfunktion erster Ordnung und das Emissionsspektrum

Die Autokorrelationsfunktion erster Ordnung ist definiert als zweizeitiger Erwartungswert der Photonoperatoren [33],

$$\begin{aligned} G^{(1)}_{j,k}(t,\tau) &= \langle b^\dagger_j(t) b_k(t+\tau)\rangle \\ &= \mathrm{tr}(\rho_s b^\dagger_j(t) b_k(t+\tau))\,. \end{aligned} \tag{4.1}$$

Diese zweizeitigen Erwartungswerte lassen sich mit Hilfe des Quantenregressionstheorems [19, 30] berechnen. Die spektrale Verteilung, der von einem optischen Resonator emittierten Photonen, kann durch das *Physikalische Emissionsspektrum* [21, 25]

$$S^i_C(\omega) = \Re \int_0^T dt \int_0^{T-t} d\tau \, \langle b^\dagger_i(t) b_i(t+\tau)\rangle e^{i\omega\tau} \tag{4.2}$$

berechnet werden [106]. Dieses Spektrum ist im Allgemeinen von der Detektionszeit T abhängig. Die Gesamtemission für $T \to \infty$ ist dagegen zeitunabhängig. Der Integrationsbereich aus Gleichung 4.2 ist in Abbildung 4.1 dargestellt und entspricht den Zeiten

t und Verzögerungszeiten τ, die in einem Zeitfenster $T = t + \tau$ beobachtet werden können.

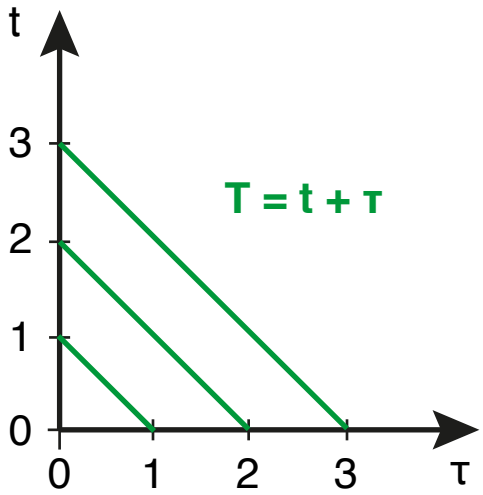


Abbildung 4.1. Kausale Zeitintegration: Die Abbildung veranschaulicht den Zeitbereich, der berücksichtigt werden muss, wenn man Photonen in einem Zeitfenster von $T = t + \tau$ betrachtet.

4.2. Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung

Die Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung ist durch [33, 60]

$$\begin{aligned} G^{(2)}_{ij,kl}(t,\tau) &= \langle b_i^\dagger(t) b_j^\dagger(t+\tau) b_k(t+\tau) b_l(t) \rangle \\ &= \mathrm{tr}(\rho_s b_i^\dagger(t) b_j^\dagger(t+\tau) b_k(t+\tau) b_l(t)) \end{aligned} \tag{4.3}$$

definiert. Zur Berechnung wird das Quantenregressionstheorem [19, 30] genutzt. Anschaulich bedeutet die $G^{(2)}_{ij,kl}(t,\tau)$-Funktion, dass nachdem in einem Experiment [15] ein erstes Photon zu einem Zeitpunkt t detektiert wurde, zu einem späteren Zeitpunkt $t + \tau$ ein zweites Photon detektiert wird [30].

Möchte man nun die Information erlangen, nach welcher Verzögerungszeit τ ein zweites Photon derselben Polarisation i zu erwarten ist, so mittelt man über alle Zeiten t und erhält

$$g^{(2)}_{i,i}(\tau) := \int G^{(2)}_{ii,ii}(t,\tau)\, dt\,. \tag{4.4}$$

Zeigt es sich, dass die höchste Zweiphotonenkorrelation bei $\tau = 0$ zu erwarten ist, das heißt, dass die zwei Photonen vornehmlich gleichzeitig emittiert werden, so spricht man vom *Photon-bunching*; tritt jedoch die maximale Korrelation zu einem Zeitpunkt $\tau > 0$ auf, so spricht man vom *anti-bunching* in der Photonenstatistik [58].

4.2.1. Zweiphotonendichtematrix und Polarisationsverschränkung

Bei dem Zerfall eines Biexzitons werden zwei Photonen emittiert. Der Quantenzustand kann durch die Zwei-Photonen-Dichtematrix beschrieben werden. Ihre Matrixelemente sind als doppeltes Zeitintegral definiert [95, 94]:

$$\rho^{\mathrm{2ph}}_{ij,kl} = \int_0^T dt \int_0^{T-t} d\tau \; G^{(2)}_{ij,kl}(t,\tau)\,, \tag{4.5}$$

wobei $G^{(2)}_{ij,kl}(t,\tau)$ die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung aus Gleichung 4.3 ist und $i,j,k,l \in \{H,V\}$ sind die möglichen linearen Polarisationszustände der Photonen. Zur Berechnung der Matrixelemente wird die Gesamtemission für $T \to \infty$ betrachtet. Das Biexziton zerfällt, indem zwei Photonen gleicher Polarisation emittiert werden. Die Photonen sind dann im Zustand $|VV\rangle$ oder $|HH\rangle$. Aufgrund quantenmechanischer Superposition gibt es auch nicht-verschwindende Nebendiagonaelemente $\rho^{\mathrm{2ph}}_{HH,VV}$ und $\rho^{\mathrm{2ph}}_{VV,HH}$. Die Zwei-Photonen-Dichtematrix muss $\mathrm{Sp}(\rho^{\mathrm{2ph}}) = 1$ erfüllen. Da diese Dichtematrix nur vier von Null verschiedene Matrixelemente besitzt, kann die Notation vereinfacht werden. Mit $i,j \in \{H,V\}$ kann man nun $\rho_{i,j} = \rho^{\mathrm{2ph}}_{ij,kl}$ definieren.

Die Zweiphotonendichtematrix enthält die Information über den Grad der Polarisationsverschränkung der emittierten Photonen. Als Maß wird die *Concurrence* C verwendet [20]. In Referenz [101] wird die *Concurrence* für einen allgemeinen Zustand definiert. Wegen der hier vorliegenden Symmetrie der Zwei-Photonen-Dichtematrix kann die *Concurrence* mit

$$C = 2|\rho_{H,V}| \tag{4.6}$$

berechnet werden (siehe Anhang A.1).

Abbildung 4.2 zeigt die Absolutbeträge der Zwei-Photonen-Dichtematrix für den maximalverschränkten Fall mit $C = 1$ und für einen Zweiphotonenzustand, der beim Zerfall des Biexzitons bei endlicher Feinstrukturaufspaltung $|\delta| > 0$ erwartet wird. Die Unterscheidbarkeit der Zerfallswege führt aufgrund der unterschiedlichen Energien der Exzitonen zu einer Verkleinerung der Nebendiagonalelemente und damit zu $C < 1$.

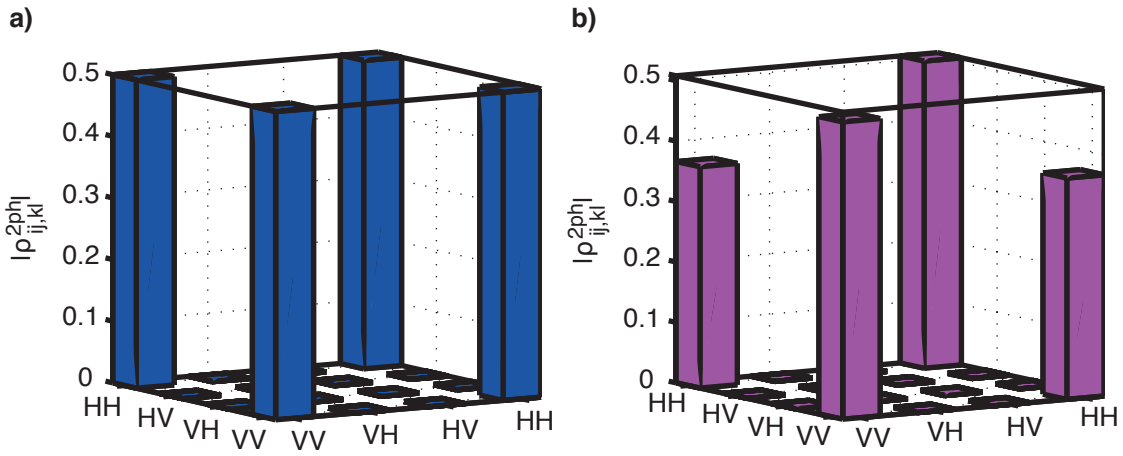


Abbildung 4.2. Zwei-Photonen-Dichtematrix: Dargestellt sind die Absolutbeträge der Zwei-Photonen-Dichtematrix für **a)** den maximal verschränkten Zustand und **b)** für einen typischen Zustand, der beim Zerfall des Biexzitons entsteht (vgl. Abbildung 5.4 für $g/\kappa = 1$, $T = 4$ K und $\delta = 10$ μeV).

In Abbildung 4.2 **b)** sieht man einen weiteren Effekt der Feinstrukturaufspaltung. Sind die optischen Resonatormoden resonant mit dem direkten Zweiphotonenübergang, so führt $|\delta| > 0$ dazu, dass ein Exziton näher am Resonator mit der Energie $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2$ liegt und somit Photonen etwas häufiger durch den Zerfall durch dieses Exziton entstehen. In diesem Fall ist das entsprechende Diagonalelement der Dichtematrix $\rho_{H,H}$ etwas größer als das andere Diagonalelement $\rho_{V,V}$.

4.2.2. Ununterscheidbarkeit von Einzelphotonen

Viele Anwendungen in der Quantentechnologie benötigen effiziente Wechselwirkungen zwischen einzelnen Photonen [83]. Für viele Protokolle aus der Quanteninformation spielt die Ununterscheidbarkeit dieser Einzelphotonen eine wichtige Rolle. Diese kann experimentell durch Hong-Ou-Mandel Interferenz [46] nachgewiesen werden. Bei diesem Experiment treffen, wie in Abbildung 4.3 **a)** dargestellt, Photonen aus zwei unterschiedlichen Quellen auf einen Strahlteiler. Diese interferieren miteinander und es werden an den beiden Ausgängen Photonen detektiert und zeitlich korreliert [83]. Für ununterscheidbare Einzelphotonen ist die Wahrscheinlichkeit Photonen gleichzeitig in Detektor I und Detektor II hinter einem symmetrischen Strahlteiler nachzuweisen Null [70], da die Wahrscheinlichkeitsamplituden für die Fälle, dass beide Photonen transmittiert oder beide reflektiert werden, destruktiv miteinander interferieren [83]. Die Abwesenheit von Zweiphotonenkoinzidenz weist somit auf ununterscheidbare Einzelphotonen hin.

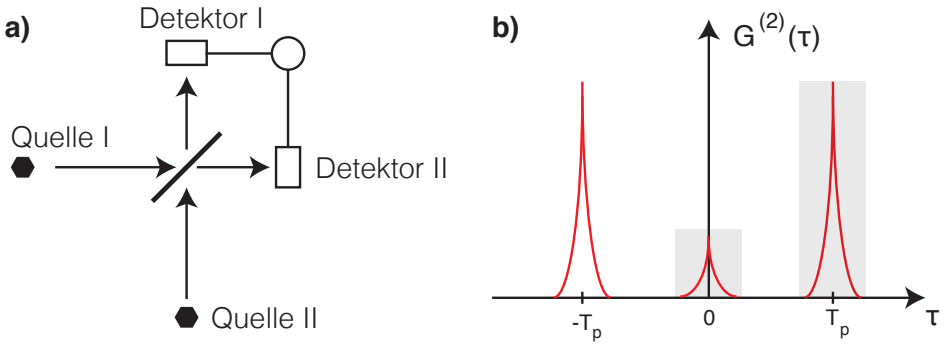


Abbildung 4.3. Koinzidenzdetektion einzelner Photonen: a) Schematische Darstellung eines Hong-Ou-Mandel Interferenzexperiments. **b)** Skizzierte Zweiphotonenkorrelation der Photonen aus den beiden Quellen. Der Abstand, der nacheinander ausgelösten Photonemissionsevents pro Quelle, ist jeweils T_p. Eigene Darstellung nach [54, 83].

Um die Eigenschaften von Einzelphotonen vorherzusagen, muss die zeitliche Korrelation berechnet werden. Die Theorie zur Berechnung der Ununterscheidbarkeit einzelner Photonen bei gepulster Emission von einem Quantenpunkt ist in Referenz [54] dargelegt und soll hier kurz für den in dieser Arbeit relevanten Fall dargestellt werden. Die zeitliche Korrelation der Photonen wird durch die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung der Photonen in den Detektoren I und II beschrieben

$$G^{(2)}_{Det.}(t,\tau) = \langle b^\dagger_{D_I}(t) b^\dagger_{D_{II}}(t+\tau) b_{D_{II}}(t+\tau) b_{D_I}(t)\rangle. \tag{4.7}$$

Die Photonen aus den Quellen I und II werden durch eine unitäre Operation (Strahlteiler) auf die Detektorphotonen abgebildet. Für ideal modenangepasste Emission, $b_{Q_I} = b_{Q_{II}} = b$, aus den beiden Quellen gilt, dass die Photonenkorrelation in den Detektoren direkt proportional zu den Autokorrelationsfunktionen der Quellen ist

$$G^{(2)}_{Det.}(t,\tau) \propto \langle b^\dagger(t) b^\dagger(t+\tau) b(t+\tau) b(t)\rangle. \tag{4.8}$$

Die experimentell relevante Korrelationsfunktion ist durch

$$G^{(2)}_{exp.}(\tau) = \int_0^T G^{(2)}_{Det.}(t,\tau)\, dt. \tag{4.9}$$

gegeben und ist schematisch in Abbildung 4.3 **b)** dargestellt. Hierbei ist $T(\rightarrow \infty)$ groß gegenüber der Einzelphotonpulsbreite. Die Korrelationsfunktion ist symmetrisch

um $\tau = 0$ und muss daher nur für $\tau \geq 0$ berechnet werden [61]. Die normierte Wahrscheinlichkeit zwei Photonen gleichzeitig in den Detektoren I und II zu messen, ist

$$p_{Koinzidenz} = \frac{A_0}{A_{T_p}}, \tag{4.10}$$

wobei A_0 die Fläche unter der $G^{(2)}(\tau)$-Funktion um den Zeitpunkt $\tau = 0$ und A_{T_p} die Fläche unter der $G^{(2)}(\tau)$-Funktion um den Zeitpunkt $\tau = T_p$ angibt. T_p ist hierbei die Zeit, nach der die Quellen jeweils ein weiteres Photon emittieren. Dies impliziert folgende Symmetrie der $G^{(2)}$-Funktion

$$G^{(2)}(t + nT_p, \tau) = G^{(2)}(t, \tau), \tag{4.11}$$

wobei n eine ganze Zahl ist. Damit lässt sich Gleichung 4.9 zu

$$G^{(2)}_{exp.}(\tau) = \sum_{n=0}^{N} \int_{nT_p}^{(n+1)T_p} G^{(2)}_{Det.}(t, \tau)\, dt = N \int_0^{T_p} G^{(2)}_{Det.}(t, \tau)\, dt \tag{4.12}$$

vereinfachen. Es gilt $T = NT_p$. Somit folgt für die Photonenkoinzidenz

$$p_{Koinzidenz} = \frac{A_0}{A_{T_p}} = \frac{\int_{\tau \approx 0} \left(\int_0^{T_p} G^{(2)}_{Det.}(t, \tau)\, dt \right) d\tau}{\int_{\tau \approx T_p} \left(\int_0^{T_p} G^{(2)}_{Det.}(t, \tau)\, dt \right) d\tau}. \tag{4.13}$$

Die Ununterscheidbarkeit I einzelner Photonen definiert man durch [70]

$$I = 1 - p_{Koinzidenz}. \tag{4.14}$$

Für perfekt ununterscheidbare Einzelphotonen ist $p_{Koinzidenz} = 0$ und somit $I = 1$.

Teil II.

Zwei-Photonen-Physik

5. Zweiphotonenemission

In diesem Kapitel wird die Photonenemission von Biexzitonen in Quantenpunkten betrachtet, welche in optische Resonatoren unter Berücksichtigung der Kopplung an ein Phononenbad Photonenpaare emittieren. Der Fokus liegt auf der Emission von Photonenpaaren, die in einem Zweiphotonenprozess entstehen.

5.1. Prozess der Zweiphotonenemission

Ein Biexziton kann zwei Photonen emittieren. Die Kopplung des Quantenpunktes an optische Resonatoren verstärkt nicht nur den Emissionsprozess, sondern eröffnet auch neue Möglichkeiten der direkten Emission von polarisationsverschränkten Photonenpaaren. In Abbildung 5.1 sind der Zweiphotonenemissionsprozess **a)** und die energetische Anordnung der beteiligten Zustände **b)** dargestellt. Das Biexziton kann durch den Zerfall in ein Exziton ein entsprechendes Photon mit Polarisation H oder V aussenden. Der Zerfall des jeweiligen Exzitons in den Grundzustand führt zur Emission eines zweiten Photons derselben Polarisation. Diese Photonen werden in den Moden des optischen Resonators erzeugt. Der Resonator beeinflusst die optischen Eigenschaften des Systems, indem die Modendichte verändert wird. Stellt man den Resonator so ein, dass seine Energie der Hälfte der Biexzitonenergie, $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2$, entspricht, so emittiert das Biexziton zwei Photonen gleichzeitig, während es direkt in den Grundzustand übergeht. Dieses Photonenpaar entspringt einem Prozess höherer Ordnung in der Dynamik des Systems ($\sim b^\dagger b^\dagger |G\rangle\langle B|$) und ist unabhängig von den Eigenschaften der exzitonischen Zustände.

Die Exzitonen haben aufgrund der Feinstrukturaufspaltung δ unterschiedliche Energien. Dieser Unterschied kann den Zerfallspfad der emittierten Photonen aufdecken, da die unterschiedlich polarisierten Photonen in einem leicht verschobenen Spektralbereich emittieren. Dies verringert die Polarisationsverschränkung der emittierten Photonen.

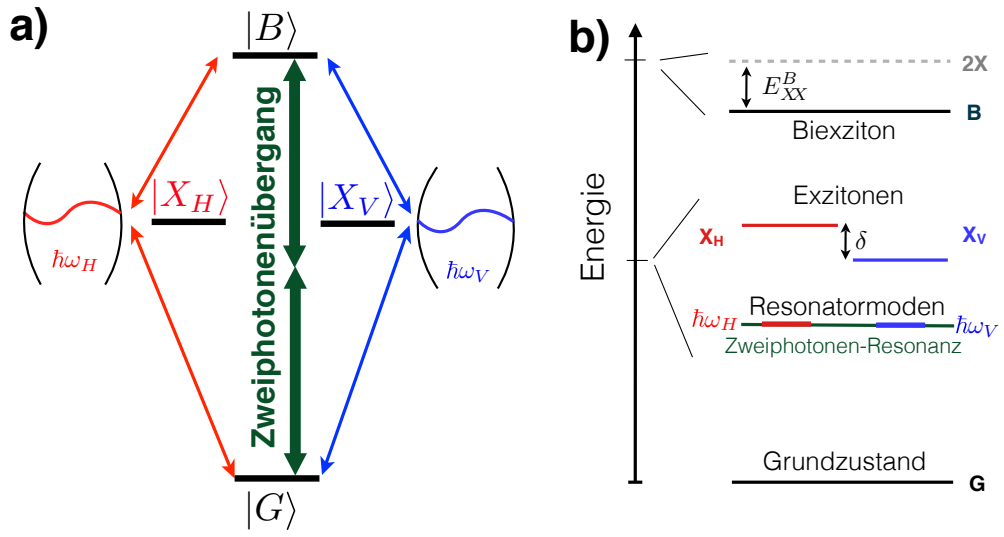


Abbildung 5.1. Schematische Darstellung der Zweiphotonenemission: In **a)** sind die relevanten optischen Übergänge im Quantenpunkt dargestellt. Der Quantenpunkt koppelt gemäß der optischen Auswahlregeln an Resonatormoden mit den Polarisationen H und V. Zusätzlich zu den linearen optischen Übergängen gibt es einen direkten Zweiphotonenübergang vom Biexziton in den Grundzustand. In **b)** sind die Lagen der Energieniveaus der relevanten Zustände gezeigt.

Entstehen die Photonen jedoch bei derselben Energie $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2$, so ist der Zerfallsweg nicht zu unterscheiden und der Grad der Polarisationsverschränkung ist hoch.

In der Vergangenheit konnte bereits gezeigt werden, dass ein direkter Zweiphotonenprozess vom Biexziton in den Grundzustand eines Quantenpunktes hochgradig polarisationsverschränkte Photonenpaare erzeugt, deren Grad der Verschränkung unabhängig von der Feinstrukturaufspaltung der Exzitonen ist [81]. In Systemen mit hochqualitativen optischen Resonatoren können Phononen eine wichtige Rolle spielen und die Dynamik des Systems und damit auch die Eigenschaften der emittierten Photonen verändern [44, 45]. Deswegen werden im Folgenden die Auswirkungen der Kopplung an ein Phononenbad auf die direkte Zweiphotonenemission untersucht.

5.2. Spontaner Zerfall des Biexzitons

Ein Biexziton zerfällt unter Aussendung zweier Photonen in die ankoppelnden Resonatormoden ($\hbar\omega_V = \hbar\omega_H$). Die Energie dieser Moden beeinflusst den Zerfallsweg maßgeblich. Abbildung 5.2 zeigt den Zerfall des Biexztons und die entsprechenden Photonpopulationen in einem Resonator in Abhängigkeit von der Verstimmung des Resonators Δ_{Res} von der Zweiphotonenresonanzbedingung $\hbar\omega = E_B/2$, sodass die Energie der Resonatormoden unterschiedlicher Polarisation $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 + \Delta_{Res}$ beträgt.

Das Biexziton ist jeweils am Anfang der Rechnungen vollständig besetzt. Die Biexzitonbindungsenergie beträgt 1 meV. Die Photonpopulationen für unterschiedliche Polarisationen sind wegen $\delta = 0$ identisch.

In Abbildung 5.2 **a)** und **b)** werden zunächst die Biexzitondynamik und die daraus resultierende Photonpopulation ohne phononassistierte Prozesse betrachtet. Entspricht die Energie der optischen Kavität dem Übergang vom Biexziton zum Exziton bei $\Delta_{Res} = -0.5\,\text{meV}$, so sieht man ausgeprägte Rabi-Oszillationen und einen schnellen Übergang in den Exzitonzustand. Wenn die Energie der Kavität in Resonanz mit dem Übergang vom Exziton in den Grundzustand bei $\Delta_{Res} = +0.5\,\text{meV}$ gebracht wird, so sieht man kein besonderes Zerfallsmuster in der Biexzitonpopulation, da das Biexziton in eine nicht-resonante Resonatormode oder mit γ_{rad} in andere Moden zerfällt. In diesem Fall ist jedoch der zweite Übergang vom Exziton in den Grundzustand resonant mit der Kavität, sodass sich langsam eine Photonpopulation im optischen Resonator aufbaut.

Wählt man die Energie des Resonators so, dass die Zweiphotonenresonanzbedingung, $\hbar\omega = E_B/2$ beziehungsweise $\Delta_{Res} = 0$, erfüllt ist, so relaxiert das Biexziton durch Emission zweier Photonen direkt in den Grundzustand des Quantenpunktes. Da es sich um einen Prozess höherer Ordnung handelt, findet die Emission auf einer längeren Zeitskala statt als ein resonanter Einzelphotonprozess.

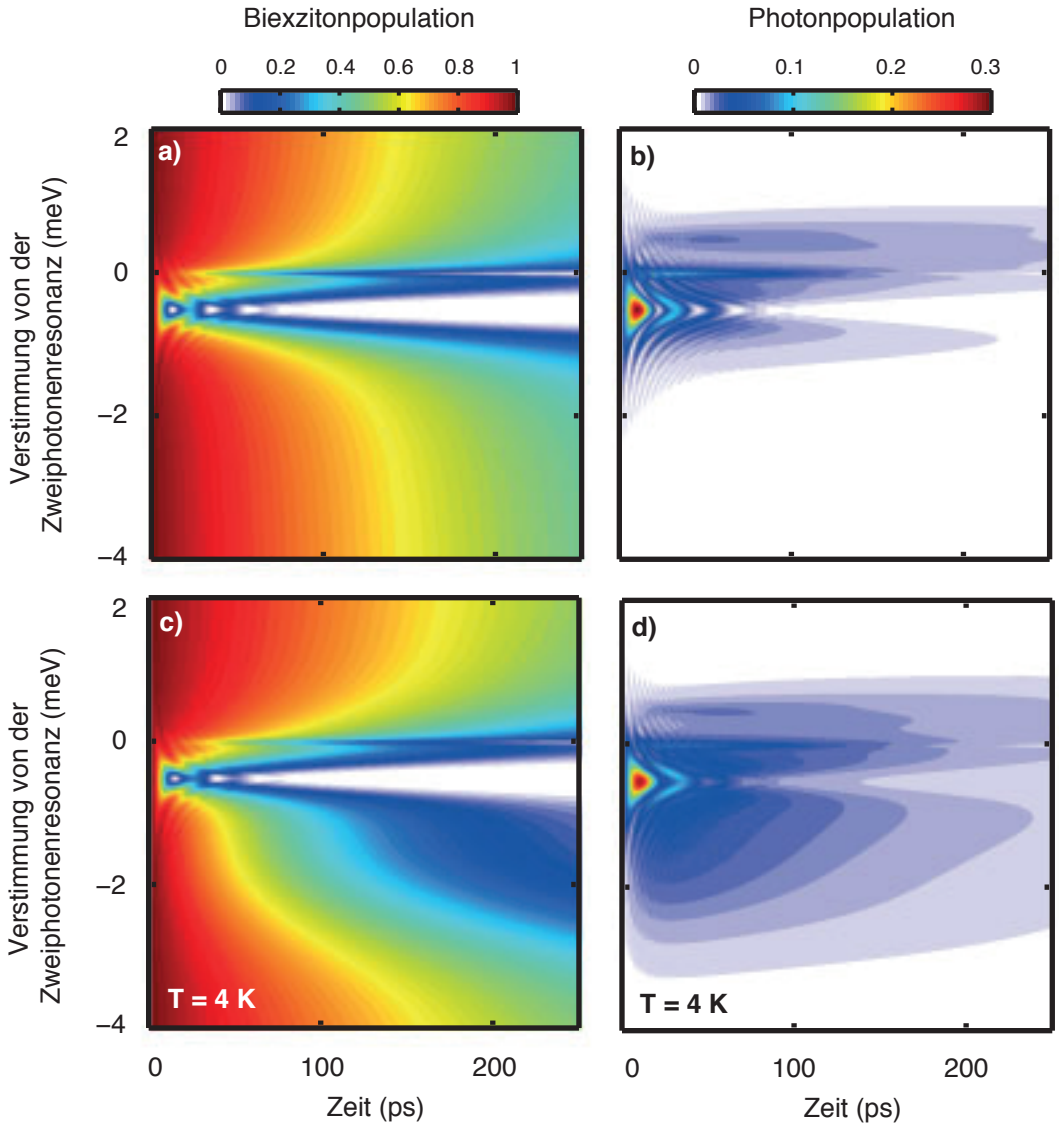


Abbildung 5.2. Spontaner Zerfall des Biexzitons: Biexziton- und Photonpopulationen in **a)** und **b)** ohne und in **c)** und **d)** mit Berücksichtigung der phononassistierten Prozesse bei $T = 4$ K. Es wird $E^B_{XX} = 1\,\text{meV}$ für die Rechnungen verwendet.

In Abbildung 5.2 **c)** und **d)** sind Biexziton- und Photonpopulation unter Berücksichtigung der phononassistierten Prozesse dargestellt. Bezieht man diese Prozesse mit in die Rechnungen ein, so wird der Zerfall des Biexzitons in eine im Bezug auf den Biexziton-zu-Exziton-Übergang rotverschobene optische Kavität ermöglicht und beschleunigt. Bei diesem Übergang wird ein Photon im Resonator erzeugt, weil das Phononenbad die überschüssige Energie absorbiert. Bei tiefen Temperaturen kann das Phononenbad schlecht Phononen emittieren, sodass die phononassistierte Emission in blauverschobene Resonatoren nicht begünstigt wird. Dies wird erst bei höheren Temperaturen möglich.

5.3. Emissionsspektren

Nachdem der zeitliche Verlauf des Emissionsprozesses betrachtet wurde, soll nun das Emissionsspektrum der Zweiphotonenemission untersucht werden. Die Emissionsspektren werden nach Gleichung 4.2 berechnet und sind für verschiedene Parameter in Abbildung 5.3 dargestellt. Die Feinstrukturaufspaltung ist gleich Null und die linear polarisierten Resonatormoden sind jeweils resonant mit der halben Biexzitonenergie, das heißt $E_{Res.} = \hbar\omega_{H/V} = E_B/2$, sodass die Emission in die Moden mit horizontaler und vertikaler Polarisation identisch ist. Die Biexzitonbindungsenergie ist $E^B_{XX} = 1\,\text{meV}$.

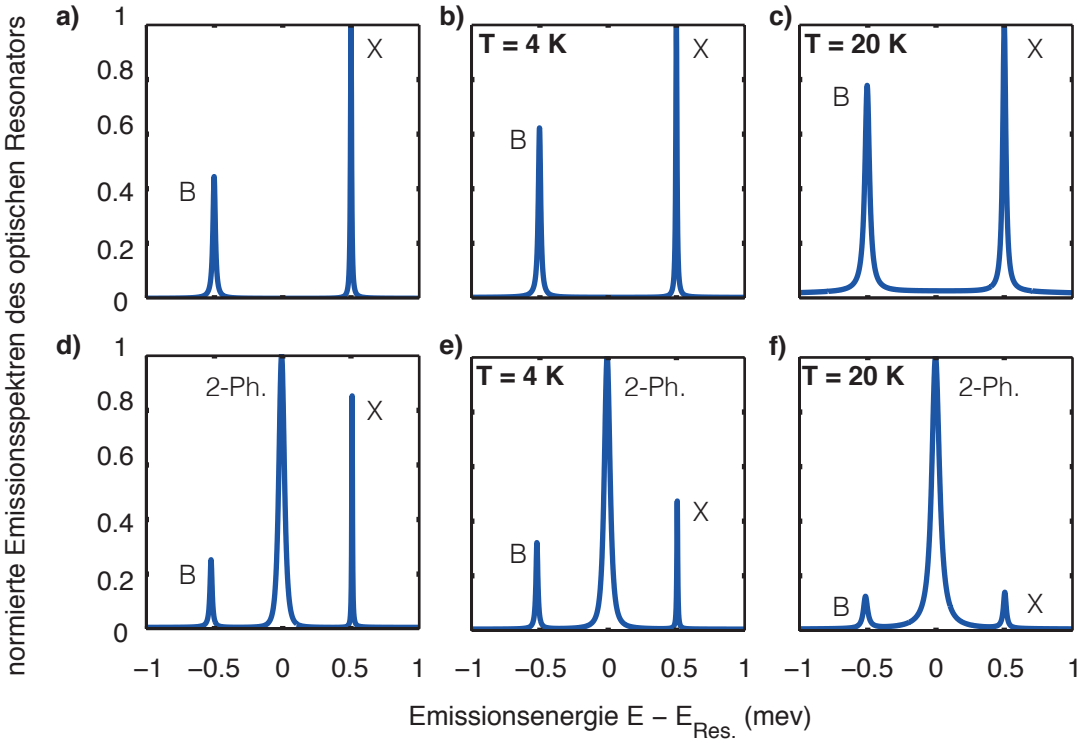


Abbildung 5.3. Emissionsspektren für optische Resonatoren niedriger ($g/\kappa = 0.02$) **a) - c)** und hoher ($g/\kappa = 1.0$) **d) - f)** Qualität. **a)** und **d)** zeigen die Spektren ohne Phononen. **b), e)** zeigen den Einfluss der Phononen bei $T = 4\,\text{K}$ und **c), f)** bei $T = 20\,\text{K}$. Die Energie des optischen Resonators $E_{Res.}$ entspricht der Energie der entarteten Zweiphotonenemission.

Betrachtet man zunächst die Emission ohne phononassistierte Prozesse, so stellt man fest, dass im Falle einer Kavität mit geringer Qualität ($g/\kappa = 0.02$) nur die Emissionslinien des Biexzitons B und des Exzitons X zu sehen sind. Die Fläche der jeweiligen Emissionslinien wäre ohne strahlende Verbreiterung der Emissionslinien γ_{rad} gleich, auch wenn sie sich in Breite und Höhe unterscheiden, da in diesem Fall für jedes B-Photon auch ein X-Photon erzeugt werden muss. Die strahlende Verbreiterung erzeugt jedoch

eine geringe Asymmetrie, da es einen alternativen Zerfallskanal für die elektronischen Quantenpunktzustände gibt. Die Biexzitonlinie ist breiter, da das Biexziton durch die Ankopplung an zwei Photonenmoden schneller zerfällt als das Exziton.

Im Falle einer Kavität hoher Güte ($g/\kappa = 1.0$) sieht man eine dritte Emissionslinie im Spektrum an der Stelle der Zweiphotonenresonanz bei der Hälfte der Biexzitonenergie. Diese Linie entsteht durch den direkten Zerfall des Biexzitons in den Grundzustand unter Emission zweier Photonen. Aufgrund der starken Kopplung der Zustände sind hier die Emissionslinien gegenüber der idealen Zweiphotonenresonanzbedingung bei $E - E_{Res.} = 0$ leicht verschoben [22].

Schaut man nun die Kopplung an das Phononenbad an, so stellt man fest, dass die Emissionslinien im Allgemeinen etwas asymmetrischer und breiter werden, da der von Phononen vermittelte Emissionsprozess nun schneller abläuft.

In Abbildung 5.3 **b)** und **c)** sind die Emissionsspektren für optische Resonatoren niedriger Qualität ($g/\kappa = 0.02$) bei Temperaturen von $T = 4\,\mathrm{K}$ und $T = 20\,\mathrm{K}$ dargestellt. Das Phononseitenband unterhalb des Exzitons führt bei $T = 4\,\mathrm{K}$ dazu, dass Phononen die Energiedifferenz vom Exziton zum optischen Resonator besonders effizient überbrücken können, sodass die Exzitonlinie X relativ zur Biexzitonlinie B kleiner wird. Dies äußert sich im normierten Spektrum dadurch, dass die Höhe der Emissionslinie B größer wird. Bei höheren Temperaturen ($T \sim 20\,\mathrm{K}$) begünstigen die Phononen auch eine Emission in eine vom Biexziton B blauverstimmte Kavität, sodass die entsprechende Linie etwas breiter wird. Man erkennt nun auch einen Untergrund im Spektrum, der der Modendichte des Resonators folgt.

Betrachtet man nun die Emissionsspektren eines Resonators hoher Güte ($g/\kappa = 1.0$) in Abbildung 5.3 **e)** und **f)** für Temperaturen von $T = 4\,\mathrm{K}$ und $T = 20\,\mathrm{K}$, so erkennt man die Auswirkungen des phononassistierten Prozesses (*phonon-assisted cavity feeding*) [44]: Das Phononenbad stellt Energie bereit, damit die Photonen nicht bei der Eigenenergie ihres optischen Übergangs entstehen müssen, sondern bei der Energie des Resonators emittiert werden können. Hier wächst die zentrale Emissionslinie auf Kosten der anderen Emissionslinien zunächst bei $T = 4\,\mathrm{K}$, da Phononen die Energiedifferenz vom Exziton zum rotverstimmten optischen Resonator besonders effizient überbrücken können. Diese phononassistierten Prozesse werden bei höheren Temperaturen ($T \sim 20\,\mathrm{K}$) auch vom Biexziton in eine blauverstimmte Kavität wahrscheinlicher, sodass die Biexziton- und Exzitonlinien nahezu die gleiche Höhe besitzen. Aufgrund der phononassistierten Prozesse dominiert nun die mittlere Emissionslinie bei $\hbar\omega = E_B/2$ das Spektrum. Diese

Zweiphotonenlinie (2-Ph.) enthält nun neben dem reinen Zweiphotonenanteil auch Beiträge aus der Biexzitonemissionskaskade (B,X).

5.4. Grad der Polarisationsverschränkung

Die Polarisationsverschränkung der emittierten Photonen hängt von den Parametern des Quantenpunktsystems und des optischen Resonators ab. Als Maß der Verschränkung wird die *Concurrence* aus Gleichung 4.6 verwendet. Die Abhängigkeit von der Verstimmung der Resonatormoden ($\hbar\omega_H = \hbar\omega_V$) zur Zweiphotonenresonanz, den unterschiedlichen Verlusttermen und der Biexzitonbindungsenergie werden in den nachfolgenden Unterkapiteln behandelt.

Zunächst wird die Abhängigkeit des Grads der Polarisationsverschränkung von der Feinstrukturaufspaltung der Exzitonen betrachtet. Abbildung 5.4 zeigt diese Abhängigkeit der *Concurrence* für unterschiedliche Temperaturen und Resonatorqualitäten. Es gilt $\hbar\omega_H = \hbar\omega_V = E_B/2$.

Im Falle eines Resonators geringer Güte ($g/\kappa = 0.02$) erfolgt die Emission der zwei Photonen über eine Kaskade, bei der das Biexziton unter Aussendung eines Photons ins Exziton zerfällt, welches wiederum später durch Emission eines Photons in den Grundzustand übergeht. Diese Emissionskaskade zeigt eine ausgeprägte Abhängigkeit von der Feinstrukturaufspaltung [38, 94].

Im Falle eines qualitativ hochwertigen Resonators ($g/\kappa = 1.0$) zeigt sich ein anderes Verhalten. Die hohe Güte des optischen Resonators ermöglicht den direkten Zweiphotonenzerfall des Biexzitons in den Grundzustand. Diese Photonen enthalten keine Information über den Pfad des Zerfalls und tragen so insgesamt dazu bei, dass der Grad der Polarisationsverschränkung hoch ist. Unter Vernachlässigung der Phononeneinflüsse wurde bereits festgestellt, dass in dieser Situation die Polarisationsverschränkung unabhängig von der Feinstrukturaufspaltung δ ist [81]. Für tiefe Temperaturen zeigt sich hier ein ähnliches Verhalten für große Werte der Feinstrukturaufspaltung δ, siehe auch Abbildung A.1. Mit sinkender Temperatur wird der Einfluss der Feinstrukturaufspaltung δ gemindert. Die Untersuchung der spektralen Emissionseigenschaften hat gezeigt, dass die Wechselwirkung mit den Phononen einen weiteren Zerfallskanal des Systems eröffnet, der dazu führt, dass Photonen, die die Emissionscharakteristik der Kaskade aufweisen, mit steigender Temperatur verstärkt bei $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2$ emittiert werden. Dies verringert den Grad der Polarisationsverschränkung mit steigender Temperatur

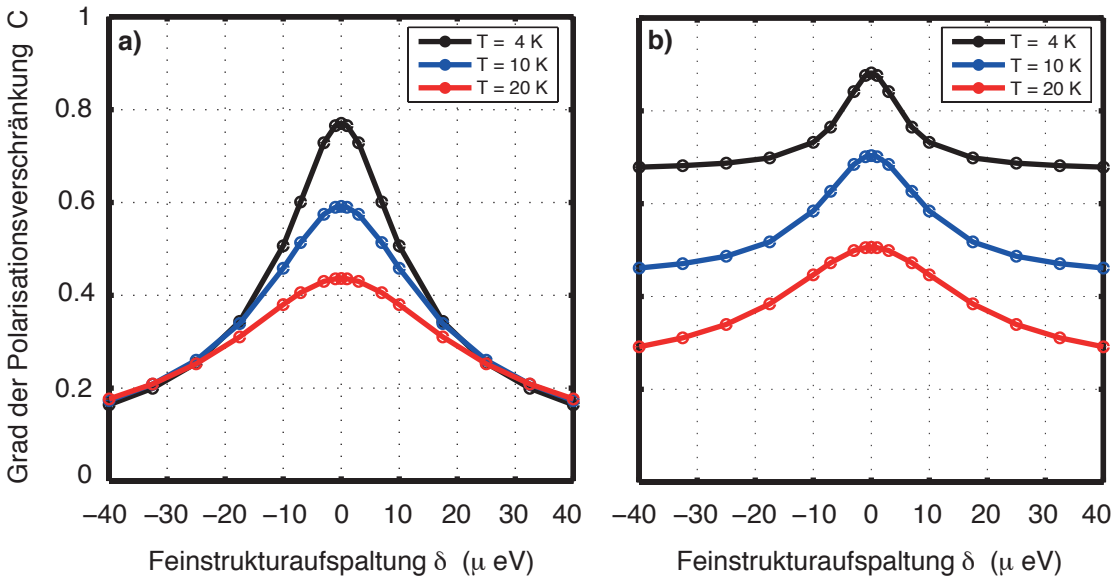


Abbildung 5.4. Verschränkte Photonen I: Grad der Polarisationsverschränkung in Abhängigkeit von der Feinstrukturaufspaltung der Exzitonen δ für verschiedene Temperaturen T und $E^B_{XX} = 1\,\text{meV}$ sowie in **a)** einen Resonator niedriger ($g/\kappa = 0.02$) und in **b)** hoher ($g/\kappa = 1.0$) Qualität.

auch im Falle der direkten Zweiphotonenemission vom Biexziton in den Grundzustand. Der Übergang vom Biexziton zum Exziton ist im Vergleich zur optischen Kavität, welche resonant mit der Zweiphotonenemissionslinie bei der Hälfte der Biexzitonenergie ist, rotverschoben. Dies führt dazu, dass phononassistierte Prozesse die Emission des ersten Photons bei niedrigen Temperaturen nur im geringen Maße begünstigen. Bei hohen Temperaturen ist auch die Emission vom Biexziton in eine blauverschobene Kavität wahrscheinlich, da hier das Phononenbad Energie emittieren kann. Die Intensität dieses Prozesses verringert sich mit fallender Temperatur [77].

Die Polarisationsverschränkung kann des Weiteren jedoch immer durch spektrale Filterung der Photonen weiter erhöht werden, sodass nur diejenigen Photonen detektiert werden, die resonant mit der direkten Zweiphotoenemission sind.

Bei tiefen Temperaturen und der Verwendung von optischen Resonatoren hoher Qualität ist es möglich, einen hohen Grad der Polarisationsverschränkung zu erreichen, der im Allgemeinen hoch und für mittlere bis große δ unabhängig von der Feinstrukturaufspaltung der Exzitonen ist (vgl. auch Abbildung A.1).

5.4.1. Einfluss der Biexzitonbindungsenergie

Die Biexzitonbindungsenergie E^B_{XX} ist diejenige Energie, die ein Biexziton im Vergleich zu zwei ungebundenen Exzitonen gewinnt. Der Biexziton-zu-Exziton-Übergang hat somit (im bindenden Fall) eine niedrigere Energie als der Exziton-zu-Grundzustand-Übergang [76]. Dies ist auch in Abbildung 5.3 zu sehen. Die Bindungsenergie ist abhängig von den Materialparametern des Quantenpunktes und kann durch Spannung und elektrische Felder beeinflusst werden [96, 76].

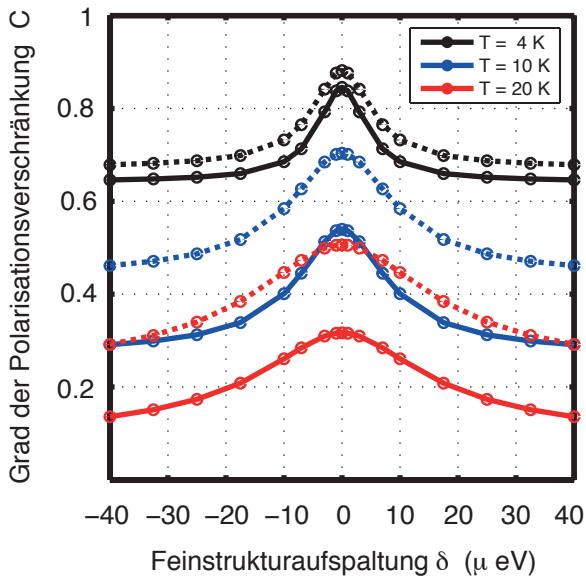


Abbildung 5.5. Verschränkte Photonen II: Grad der Polarisationsverschränkung für verschiedene Temperaturen T und Biexzitonbindungsenergien, $E^B_{XX} = 3\,\text{meV}$ (durchgezogene Linie) und $E^B_{XX} = 1\,\text{meV}$ (gestrichelte Linie), in Abhängigkeit von der Feinstrukturaufspaltung der Exzitonen δ. Es wird ein Resonator hoher Qualität ($g/\kappa = 1.0$) betrachtet.

Abbildung 5.5 zeigt die Abhängigkeit der Polarisationsverschränkung von der Biexzitonbindungsenergie E^B_{XX} für unterschiedliche Temperaturen und Werte der Feinstrukturaufspaltung δ. Bei tiefen Temperaturen ist festzustellen, dass die Erhöhung der Bindungsenergie von 1 meV auf 3 meV zu einer leicht gesenkten Polarisationsverschränkung führt. Eine höhere Bindungsenergie bedeutet hier, dass die Energiedifferenzen zwischen der entarteten Zweiphotonenresonanz und den Einzelphotonübergängen größer werden. Dies führt zu einem Verlust der Resonanzüberhöhung des Zweiphotonenprozesses durch diese Einzelphotonübergänge und zu einer Schwächung des direkten Zerfallsprozesses, sodass der Biexzitonzerfall und die Emission der Photonen auf längeren Zeitskalen stattfindet als im Fall der kleineren Biexzitonbindungsenergie.

Mit steigender Temperatur werden phononassistierte Prozesse stärker, sodass die emittierten Photonen durch diese zusätzlichen Zerfallsprozesse die Charakteristik der Biexzitonkaskade erhalten. Für die untersuchten Parameter verringert die Erhöhung der Biexzitonbindungsenergie den Grad der Polarisationsverschränkung.

5.4.2. Verstimmung der Resonatormode

Der direkte Zweiphotonenprozess vom Biexziton in den Grundzustand ist zusätzlich zu den, in den vorangegangenen Kapiteln genannten, Parametern abhängig von der Energie der optischen Kavität mit den beiden Polarisationsmoden H und V.

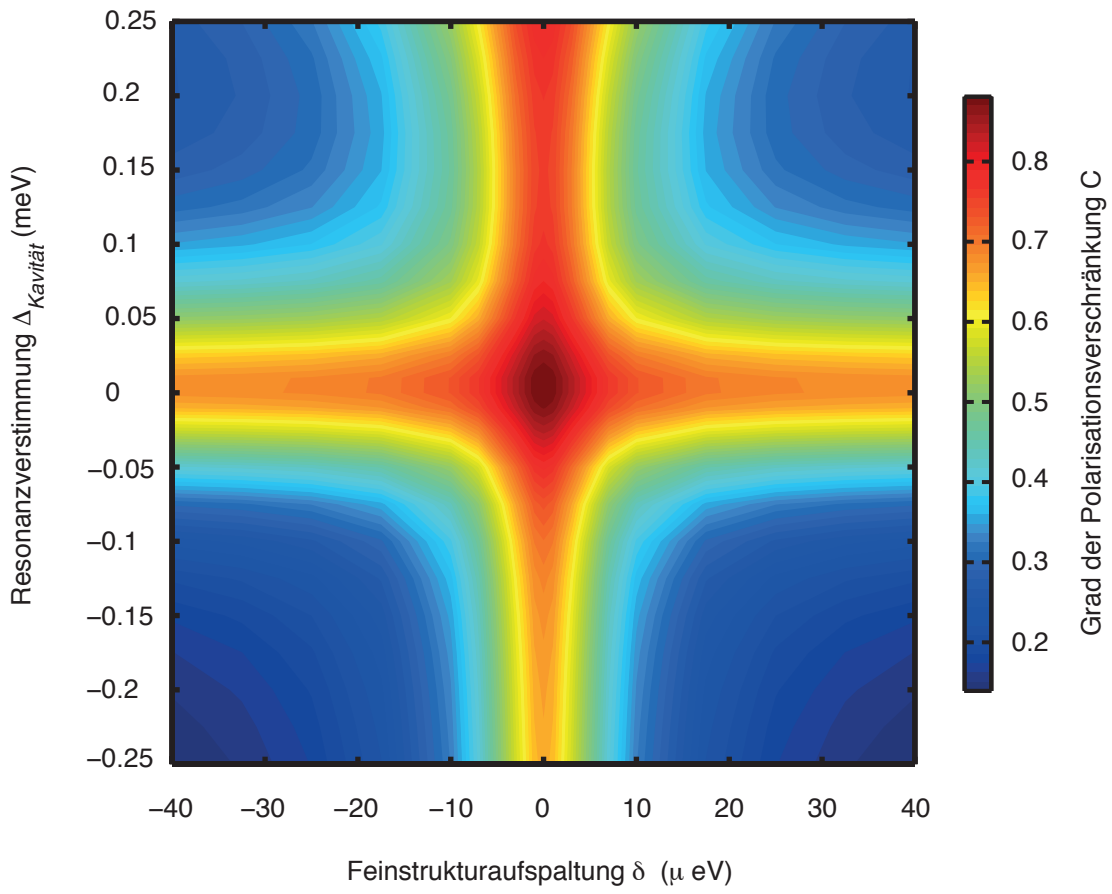


Abbildung 5.6. Verstimmung des Resonators: Grad der Polarisationsverschränkung in Abhängigkeit von der Verstimmung der Resonatormode $\Delta_{Kavität}$ von der Zweiphotonenresonanz sowie der Feinstrukturaufspaltung der Exzitonen δ bei einer Temperatur von 4 K. Es wird ein Resonator hoher Qualität ($g/\kappa = 1.0$) betrachtet und ein Biexziton mit $E^B_{XX} = 1\,\text{meV}$ angenommen.

Um Photonenpaare mit hoher Polarisationsverschränkung zu erhalten, ist es wichtig, dass die Resonatormoden ($\hbar\omega_H = \hbar\omega_V$) auf die Hälfte der Biexzitonenergie, das heißt $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2$, abgestimmt werden. Abbildung 5.6 zeigt den Grad der Polarisationsverschränkung in Abhängigkeit von der Feinstrukturaufspaltung der Exzitonen δ und der Verstimmung der optischen Kavität von der Zweiphotonenresonanz $\Delta_{Kavität}$. Die Energie des Resonators ist dann jeweils durch $\hbar\omega = E_B/2 + \Delta_{Kavität}$ gegeben.

Wenn der optische Resonator von der Zweiphotonenresonanz verstimmt ist, wird die Emission von der Biexzitonkaskade bestimmt und die *Concurrence* zeigt eine ausgeprägte Abhängigkeit von der Feinstruktur der Exzitonen. Die Asymmetrie in der Resonatorverstimmung für $\Delta_{Kavität} > 0$ und $\Delta_{Kavität} < 0$ hängt mit den unterschiedlichen Zerfallsanordnungen für das Biexziton bei $\Delta_{Kavität} \to \pm 0.5$ meV zusammen. Diese erzeugen, wie in Abbildung 5.2 bereits dargestellt, jeweils asymmetrische Biexziton- und Photondynamiken. Denn in dem einen Fall ($\Delta_{Kavität} = -0.5$ meV) kann das Biexziton das erste Photon schnell in eine resonante Kavität emittieren. Anschließend wird das zweite Photon aufgrund der Verstimmung von Exziton und Resonator langsam vom Exziton ausgestrahlt. Im zweiten Fall ($\Delta_{Kavität} = -0.5$ meV) wird das erste Photon langsam in eine nicht-resonante Resonatormode emittiert, dann jedoch kann das zweite Photon schnell vom Exziton resonant in die Kavität emittiert werden.

Nur wenn der Zweiphotonenprozess in Resonanz mit der optischen Kavität ist ($\Delta_{Kavität} = 0$), erreicht man bei tiefen Temperaturen einen Grad der Polarisationsverschränkung, der eine sehr hohe *Concurrence* zeigt und der (für große δ) unabhängig von der Feinstrukturaufspaltung der Exzitonen ist.

5.4.3. Wechselwirkung mit der Umgebung

In diesem Abschnitt werden die Auswirkungen der unterschiedlichen Verlustmechanismen in der Bewegungsgleichung 3.1 auf den Grad der Polarisationsveschränkung untersucht. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.7 dargestellt. Zentral für die Eigenschaft als Quantenemitter ist das Aussenden von Photonen an die Umgebung. Dies wird durch die zwei Lindbladterme $\mathcal{L}_{\text{cavity}}(\rho_s)$ und $\mathcal{L}_{\text{rad}}(\rho_s)$ modelliert, welche den Zerfall der Population des optischen Resonators sowie den strahlenden Zerfall in andere optische Moden beschreiben. Wenn ausschließlich diese Verluste berücksichtigt werden, erhält man eine *Concurrence* $C = 1$ bei verschwindender Feinstrukturaufspaltung δ. Mit steigendem $|\delta|$ sinkt in diesen Fällen der Grad der Polarisationsverschränkung bis ein nahezu konstanter Wert erreicht wird, der durch die direkte Zweiphotonenemission vom Biexziton in den

Grundzustand des Quantenpunktes gegeben ist [81]. Fügt man zum Verlust der Kavität $\mathcal{L}_{\text{cavity}}(\rho_s)$ noch den radiativen Zerfall in andere optische Moden $\mathcal{L}_{\text{rad}}(\rho_s)$ hinzu, so stellt man fest, dass der Grad der Polarisationsverschränkung der Photonen, die vom Resonator emittiert werden, ansteigt. Der radiative Zerfall beschreibt die Photonemission über die Biexzitonkaskade, sodass durch diesen Prozess einerseits die Helligkeit der Quelle reduziert wird. Andererseits jedoch werden – anschaulich gesprochen – Photonen der Kaskade aus dem System gefiltert, die einen geringeren Verschränkungsgrad aufweisen als die Photonen, die durch den direkten Zweiphotonenprozess vom Biexziton in den Grundzustand des Quantenpunkts im Resonator entstehen.

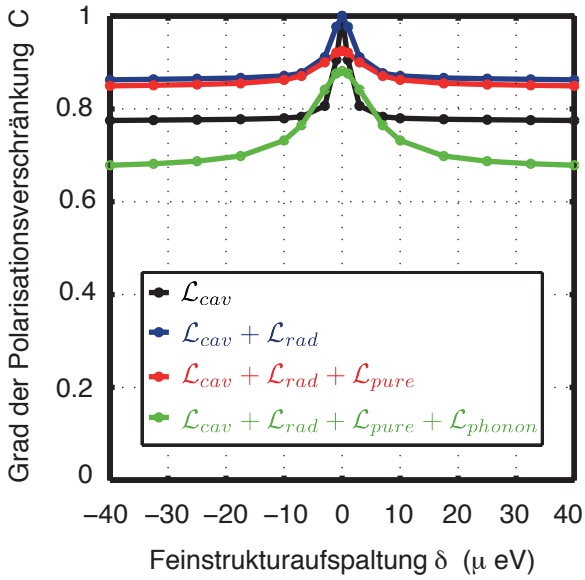


Abbildung 5.7. Wechselwirkung mit der Umgebung: Es wird der Grad der Polarisationsverschränkung C für verschiedene Systemverluste aus Gleichung 3.1 dargestellt. Temperaturabhängige Beiträge sind für $T = 4\,\text{K}$ gezeigt. Es wird ein Resonator hoher Qualität ($g/\kappa = 1.0$) und ein Biexziton mit $E^B_{XX} = 1\,\text{meV}$ betrachtet.

Betrachtet man nun die Verbreiterung der Nullphononenlinie, die durch $\mathcal{L}_{\text{pure}}(\rho_s)$ beschrieben wird, so stellt man fest, dass das Dephasieren der Quantenpunktkohärenzen aus Gleichung 3.17 dazu führt, dass $C < 1$ für $\delta = 0$ ist. Die Breite dieses zentralen Höhepunktes der *Concurrence* wird durch den Überlapp der beteiligten Übergänge mit ihren jeweiligen Linienbreiten verursacht. Die Kopplung an das Phononenbad mit $\mathcal{L}_{\text{phonon}}(\rho_s)$ resultiert in einer Verbreiterung des Merkmals um $\delta = 0$ und in einer generellen Absenkung der Polarisationsverschränkung. Quantenpunkte mit einer geringen Kopplung an die Umgebung sind hier vorteilhaft. Darüber hinaus ist die Kopplungsstärke der phononassistierten Prozesse abhängig von der Verstimmung des optischen Resonators

zu den elektronischen Zuständen, welche sich mit der Feinstrukturaufspaltung δ ändert und somit den Grad der Polarisationsverschränkung beeinflusst.

Für große Werte der Feinstrukturaufspaltung δ ändert sich die *Concurrence* kaum, da Photonen, die durch den direkten Zweiphotonenprozess entstehen, einen Grad der Polarisationsverschränkung erreichen, der unabhängig von δ ist (vgl. auch Abbildung A.1).

5.5. Photonenstatistik

Um einen Einblick in die Statistik der Photonenemission vom Biexziton zu erhalten, wird die $g^{(2)}(\tau)$-Funktion aus Gleichung 4.4 betrachtet. Hier bezeichnet τ die Zeit, die vergeht bis ein zweites Photon detektiert wird. Es wird die Emission in eine Kavität hoher Güte mit $g/\kappa = 1$ untersucht, wobei beide Polarisationsmoden dieselbe Energie haben ($\hbar\omega_H = \hbar\omega_V$) und die Feinstrukturaufspaltung ist $\delta = 0$, sodass die Emission in die beiden Resonatormoden unterschiedlicher Polarisation identisch ist. Abbildung 5.8 stellt die $g^{(2)}(\tau)$-Funktion in Abhängigkeit von der Resonatorverstimmung von der Zweiphotonenresonanz und vom Einfluss der Wechselwirkung mit einem Phononenbad bei niedrigen und hohen Temperaturen dar.

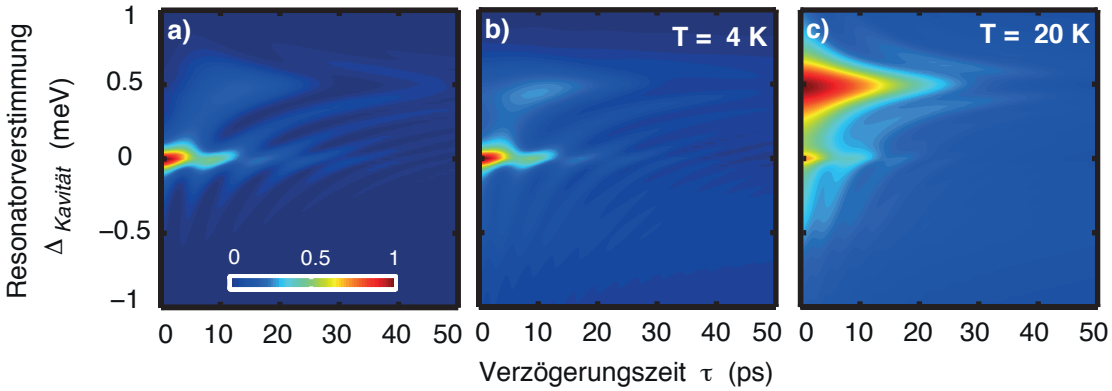


Abbildung 5.8. Photonenstatistik: Normierte $g^{(2)}(\tau)$ - Funktion ohne a) und mit Wechselwirkung mit einem Phononenbad bei einer Temperatur von b) $T = 4$ K sowie c) $T = 20$ K. Die Biexzitonbindungsenergie beträgt 1 meV.

Die Photonenstatistik zeigt ein deutliches *anti-bunching*-Verhalten bei $\Delta_{Kavität} = +0.5$ meV. Hier ist die optische Kavität resonant mit dem Exzitonübergang zum Grundzustand des Quantenpunktes. Das erste Photon aus der Biexzitonkaskade emittiert in eine nicht-resonante Resonatormode und ist deshalb ineffizient, was zur Bildung sehr kleiner Photonpopulationen führt. Es wird das charakteristische *anti-bunching*-Verhalten von zwei nacheinander emittierten Photonen beobachtet. Da das vom Biexziton emittierte Photon in eine blauverstimmte Mode ausgestrahlt wird, sind die Einflüsse eines Phononenbads bei tiefen Temperaturen nur gering. Bei $T = 4$ K ist die Intensität der Zweiphotonenkorrelation leicht erhöht, der maximale Wert wird jedoch auch bei einer kleinen Verzögerungszeit erreicht, da die Phononen den Zerfall des Biexzitons nur leicht begünstigen. Bei hohen Temperaturen von $T = 20$ K hingegen wird der Beitrag der Phononen symmetrischer im Bezug auf die Verstimmung der Kavität von den optischen

Übergängen. Die höchste Zweiphotonenkorrelation tritt nun bei $\tau = 0$ ps auf, was als *bunching* der Photonen bekannt ist. Die phononenassistierten Prozesse beschleunigen also die Emission des zweiten Photons.

Ist die optische Kavität nun jedoch resonant mit dem Biexzitonübergang zum Exziton ($\Delta_{Kavität} = -0.5$ meV), so ist die Zweiphotonenkorrelation sehr schwach ausgeprägt. Dies liegt daran, dass der zweite optische Übergang der Kaskade um die Biexzitonbindungsenergie blauverschoben ist und so der Zerfall in den Resonator unterdrückt wird. Wie bereits im Fall der Zerfallsdynamik und der Polarisationsverschränkung beobachtet, zeigt sich auch in der Photonenstatistik ein asymmetrisches Verhalten bei den optischen Einzelphotonübergängen ($\Delta_{Kavität} = \pm 0.5$ meV). Das Maximum der $g^{(2)}$-Funktion für $\Delta_{Kavität} = -0.5$ meV liegt bei $\tau = 0$ ps. Mit steigender Temperatur wird hier eine verlängerte Zweiphotonenkorrelation für große τ sichtbar.

Wählt man den direkten Zweiphotonenzerfall vom Biexziton in den Grundzustand mit $\Delta_{Kavität} = 0$ meV aus, so sieht man, dass die Statistik ein sehr deutliches *bunching* der zwei emittierten Photonen zeigt. Dies bedeutet, dass bei der direkten Zweiphotonenemission vornehmlich Photonen mit Verzögerungszeit $\tau \approx 0$ generiert werden. Dies ist auch unter Einfluss des Phononenbads und insbesondere bei hohen Temperaturen der Fall. Dies demonstriert sehr deutlich, dass der untersuchte Übergang höherer Ordnung zwei Photonen simultan emittiert.

5.6. Bimodale Kavitäten

In Referenz [42] wurde eine neue Quantenlichtquelle vorgestellt. Diese beruht auf der Emission von zwei Photonen aus einem Quantenpunkt, bei dem sowohl der Übergang vom Biexziton zum Exziton als auch der Übergang vom Exziton in den Grundzustand resonant mit einem einzigen Resonator ist, sodass die Quantenpunktübergänge und der Resonator dieselbe Energie besitzen. Die auf diese Weise generierten Photonen zeigen starke zeitliche Korrelationen.

In diesem Kapitel wird der Fall untersucht, bei dem eine von zwei Resonatormoden (pro Polarisationsrichtung) resonant mit jeweils einem der beiden Quantenpunktübergängen unterschiedlicher Energie ($E_B - E_X \neq E_X$) ist. So sind prinzipiell neben der nun resonant ablaufenden Emissionskaskade auch die direkte Zweifarbenzweiphotonenemission vom Biexziton in den Grundzustand als Prozess höherer Ordnung in der Bewegungsgleichung möglich.

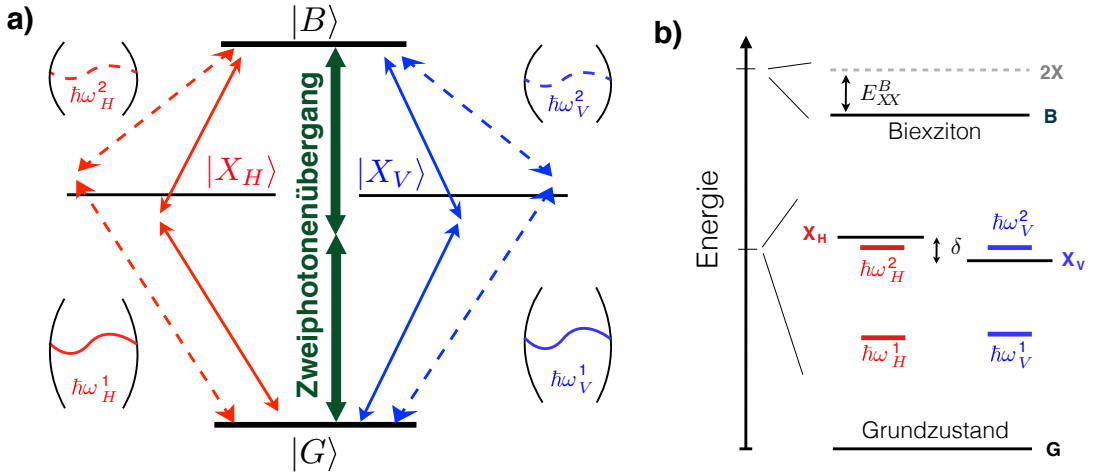


Abbildung 5.9. Schematische Darstellung der Zweiphotonenemission mit bimodalen Kavitäten: In **a)** sind alle optischen Übergänge des Quantenpunkts in die bimodale Kavität analog zu Abbildung 5.1 dargestellt. Teil **b)** zeigt die Lagen der Energieniveaus der beteiligten Zustände. Es sind nun zwei Moden je Polarisationsrichtung vorhanden.

In Abbildung 5.9 sind die relevanten Quantenzustände, ihre Kopplungen untereinander und ihre Energien schematisch dargestellt. Der Hamiltonoperator des Systems muss in den Teilen angepasst werden, die mit den optischen Resonatoren zu tun haben [85]. Es werden nun zwei Resonatormoden mit jeweils zwei Polarisationszuständen benötigt

$$H_{cav}^{bimodal} = \sum_{k=1,2} \sum_{i=H,V} \hbar\omega_i^k b_i^{\dagger k} b_i^k, \tag{5.1}$$

wobei $b_i^{\dagger k}$, b_i^k die Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren in der Resonatormode k mit Polarisation i sind. Da die betrachteten *bimodalen Kavitäten* zwei Resonatormoden je Polarisationszustand besitzen, kann der Index k hier nur die Werte 1 und 2 annehmen. Die Interaktion der Quantenpunktzustände mit den quantisierten Lichtfeldern ist durch

$$H_{QD-cav}^{bimodal} = \sum_k [\mathcal{X}^k + h.c.] \tag{5.2}$$

mit den optischen Übergängen

$$\mathcal{X}^k = g \sum_{i=H,V} (|X_i\rangle\langle G|b_i^k + |B\rangle\langle X_i|b_i^k) \tag{5.3}$$

modelliert. Es werden jeweils bis zu zwei Photonen pro Mode und Polarisationszustand in der Basis des Systems berücksichtigt.

Damit die Dynamik des Systems beschrieben werden kann, muss der Lindblad-Term des Resonatorzerfalls angepasst werden:

$$\mathcal{L}_{\text{cavity}}^{bimodal}(\rho_s) = \frac{1}{2} \sum_{i=H,V} \sum_k \kappa^k (2b_i^k \rho_s b_i^{\dagger k} - b_i^{\dagger k} b_i^k \rho_s - \rho_s b_i^{\dagger k} b_i^k)\,, \tag{5.4}$$

wobei $\kappa^1 = \kappa^2 = \kappa$ angenommen wird. Hier muss berücksichtigt werden, dass die Resonatormoden derselben Polarisation nicht überlappen, da sonst der Lindblad-Term des Resonatorverlusts nicht diagonal in den Modenindizes ist [26].

Die Berechnung der Polarisationsverschränkung beruht auf der Kenntnis der Korrelationsfunktion zweiter Ordnung. Um diese zu berechnen, muss nun das komplette Feld (je Polarisationsrichtung) als Überlagerung der Felder der einzelnen Moden verwendet werden, um die positiven und negativen Frequenzkomponenten $E_i^{(\pm)}$ [64, 103] zu bestimmen. Diese können entsprechend ihrer Polarisation i als

$$E_i^{(-)}(t) \quad \propto \quad B_i^\dagger(t) = \sum_\zeta b_i^{\dagger\zeta}(t), \tag{5.5}$$

$$E_i^{(+)}(t) \quad \propto \quad B_i(t) = \sum_\zeta b_i^\zeta(t) \tag{5.6}$$

modelliert werden, wobei über die Moden ζ summiert wird. Somit ist

$$G_{ij,kl}^{(2)}(t,\tau) \quad \propto \quad \langle B_i^\dagger(t) B_j^\dagger(t+\tau) B_k(t+\tau) B_l(t)\rangle. \tag{5.7}$$

Im Folgenden werden die Systemdynamik und die Verschränkung der zwei emittierten Photonen untersucht.

5.6.1. Emissionsdynamik

Es wird nun die Dynamik des Quantenpunkt-Resonator-Systems mit zwei Moden je Polarisationsrichtung betrachtet. Ausgangspunkt ist zum Zeitpunkt $t = 0$ ein voll besetztes Biexziton, alle anderen Zustände sind nicht besetzt. Es wird eine Biexzitonbindungsenergie von 3 meV und eine Feinstrukturaufspaltung der Exzitonen von 40 μeV angenommen. Die Energien der Resonatormoden sind $\hbar\omega^1_{V,H} = E_B/2 - \Delta_{Res.}$ und $\hbar\omega^2_{V,H} = E_B/2 + \Delta_{Res.}$, wobei $\Delta_{Res.}$ die Verstimmung der Moden von der entarteten Zweiphotonenresonanz bei $E_B/2$ ist. Aufgrund dieser speziellen Wahl gilt immer $E_B = \hbar\omega^1_{V,H} + \hbar\omega^2_{V,H}$, sodass die Möglichkeit besteht, dass das Biexziton auch durch einen Zweiphotonenprozess zerfallen kann, bei dem die beteiligten Photonen unterschiedliche Energien besitzen.

Im Folgenden werden zwei Fälle verglichen. Im ersten Fall ist $\Delta_{Res.} = E^B_{XX}/2 = 1.5\,\text{meV}$, sodass $\hbar\omega^1_{V,H} = E_B - E_X$ und $\hbar\omega^2_{V,H} = E_X$ ist. Dies bedeutet, dass die Resonatormoden genau auf die optischen Übergänge bei einer Feinstrukturaufspaltung von Null abgestimmt sind. Die hier betrachtete Feinstrukturaufspaltung von 40 μeV sorgt nun dafür, dass die optischen Übergänge symmetrisch um die Resonatormoden aufspalten. In Abbildung 5.10 **a)** und **b)** sind die zugehörigen Populationen des Quantenpunkts und der Resonatoren dargestellt. Das System geht schnell vom Biexziton in den Grundzustand über, wobei auch Exzitonen gebildet werden. Etwas später sind deutliche Rabi-Oszillationen zwischen den Exzitonen und dem Grundzustand zu erkennen. Aufgrund der energetischen Anordnung werden zuerst Photonen in Mode 1 erzeugt und erst kurze Zeit später wird die Mode 2 besetzt, teilweise getrieben durch den Zerfall der Exzitonen. Hier ist zu beachten, dass Prozesse höherer Ordnung mit zeitlicher Verzögerung ablaufen. Obwohl die Feinstrukturaufspaltung 40 μeV beträgt, sind sowohl die Exzitonpopulationen als auch die Besetzungen der Photonmoden unterschiedlicher Polarisation schon nahezu identisch.

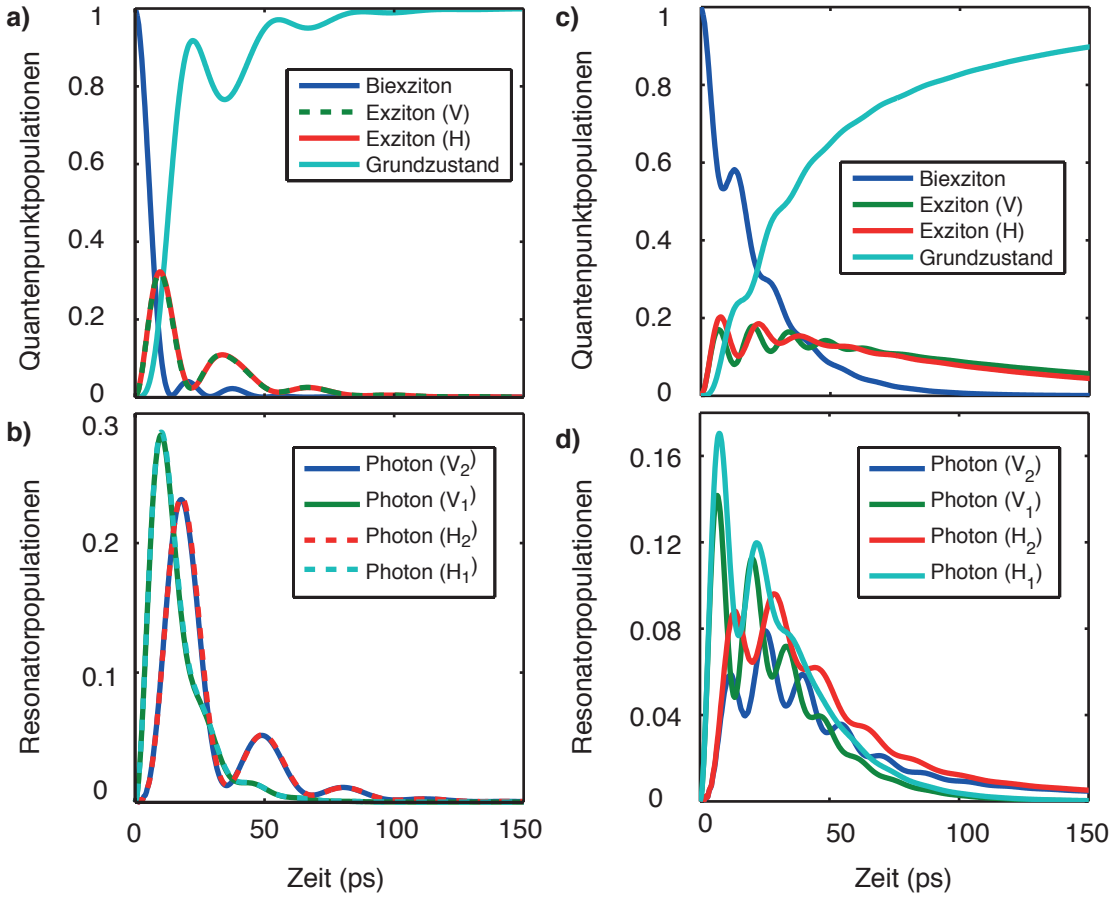


Abbildung 5.10. Dynamik der Zweiphotonenemission mit bimodalen Kavitäten: in **a)** und **b)** ist $\Delta_{Res.} = 1.5\,\text{meV}$ und in **c)** und **d)** ist $\Delta_{Res.} = 1.3\,\text{meV}$. Die bimodale Kavität besitzt eine hohe Qualität ($g/\kappa = 1$), die Feinstrukturaufspaltung beträgt jeweils $40\,\mu\text{eV}$ und $E^B_{XX} = 3\,\text{meV}$.

Im zweiten Fall werden die Resonatormoden von den optischen Quantenpunktübergängen mit $\Delta_{Res.} = 1.3\,\text{meV}$ verstimmt. Die optischen Quantenpunktübergänge wären nun im Fall $\delta = 0$ nicht mehr resonant mit der Kavität. Außerdem sind die Exzitonübergänge nun nicht mehr symmetrisch um den optischen Resonator aufgespalten, sodass jeweils ein Exziton bei den Zerfallsprozessen energetisch bevorzugt wird. Das Biexziton zerfällt immer noch schnell, wenn auch etwas langsamer als im Vergleichsfall, in den Grundzustand. Nun sind jedoch Rabi-Oszillationen zwischen dem Biexziton und den Exzitonen sichtbar. Die Exzitonen werden nicht so stark bevölkert wie im vorangegangenen Fall und die Exzitonen zerfallen nun langsamer, da die Resonatormoden nicht resonant mit den optischen Übergängen sind. Es fällt auf, dass die Exzitonpopulationen abhängig von ihrer Polarisation deutlich anders schwingen. Dies ist auf die unterschiedlichen Energie-

lücken zu den Resonatormoden zurückzuführen. Die Photonpopulationen reflektieren dieses Verhalten deutlich.

Die Systempopulationen sind in Abbildung 5.10 ohne Berücksichtigung der phononassistierten Prozesse dargestellt, da die Systemdynamik bei niedrigen Temperaturen $\sim 4\,\mathrm{K}$ bis auf geringe quantitative Unterschiede das gleiche Verhalten zeigt.

Beide Szenarien zeigen einen ausgeprägten qualitativen Unterschied bei den Populationsoszillationen der photonischen Moden mit unterschiedlicher Polarisation. Da die Photonpopulationen im ersten Fall ($\Delta_{Res.} = 1.5\,\mathrm{meV}$) fast identisch oszillieren, erwartet man, dass die Photonen in diesem Fall einen höheren Grad der Polarisationsverschränkung aufweisen als im anderen Fall.

5.6.2. Verschränkte Photonenpaare

Der Zerfall des Biexzitons ermöglicht die Emission von verschränkten Photonenpaaren. Wie zuvor wird hier auch die Polarisationsverschränkung betrachtet. Die emittierten Photonen können aufgrund ihres Zerfallsweges, der sich in der Polarisation der Photonen widerspiegelt, unterschieden werden, was den Grad der Verschränkung verringert.

Wegen der hohen numerischen Komplexität wird im Folgenden nur der Fall mit $\Delta_{Res.} = 1.5\,\mathrm{meV}$ untersucht. Die photonischen Moden haben die Energien $\hbar\omega^1_{H,V} = E_B - E_X$ und $\hbar\omega^2_{H,V} = E_X$. Im Unterschied zum Fall der entarteten Zweiphotonenemission lassen sich die beiden emittierten Photonen spektral trennen.

Die Emission von polarisationsverschränkten Photonenpaaren von einem Biexziton mit einer Bindungsenergie von $3\,\mathrm{meV}$ aus bimodalen Resonatoren hoher Qualität ($g/\kappa = 1$) ist in Abbildung 5.11 dargestellt. Vernachlässigt man zunächst die phononassistierten Prozesse, so stellt man fest, dass die Abhängigkeit der Polarisationsverschränkung von der Feinstrukturaufspaltung δ der Exzitonen von einem hohen Maximalwert mit steigendem $|\delta|$ abnimmt[1]. Die bimodalen Resonatoren ermöglichen in der untersuchten Anordnung eine Emissionswahrscheinlichkeit von ~ 1.96, sodass (nahezu) immer zwei Photonen emittiert werden. Im Bereich üblicher Werte der Feinstrukturaufspaltung $|\delta| \leq 40\,\mu\mathrm{eV}$ erzeugt das Emissionsschema für die verwendeten Parameter verschränkte Photonen mit einer *Concurrence* $C > 0.8$.

[1] Dieser Verlauf kann auch bei der spontan ablaufenden Emissionskaskade vom Biexziton in nur eine Resonatormode hoher Qualität mit $\hbar\omega_{H/V} = E_X$ in ähnlicher Weise beobachtet werden. Die Emissionswahrscheinlichkeit ist mit $P_{ems} \approx 1.2$ aber sehr klein für eine Zweiphotonenquelle.

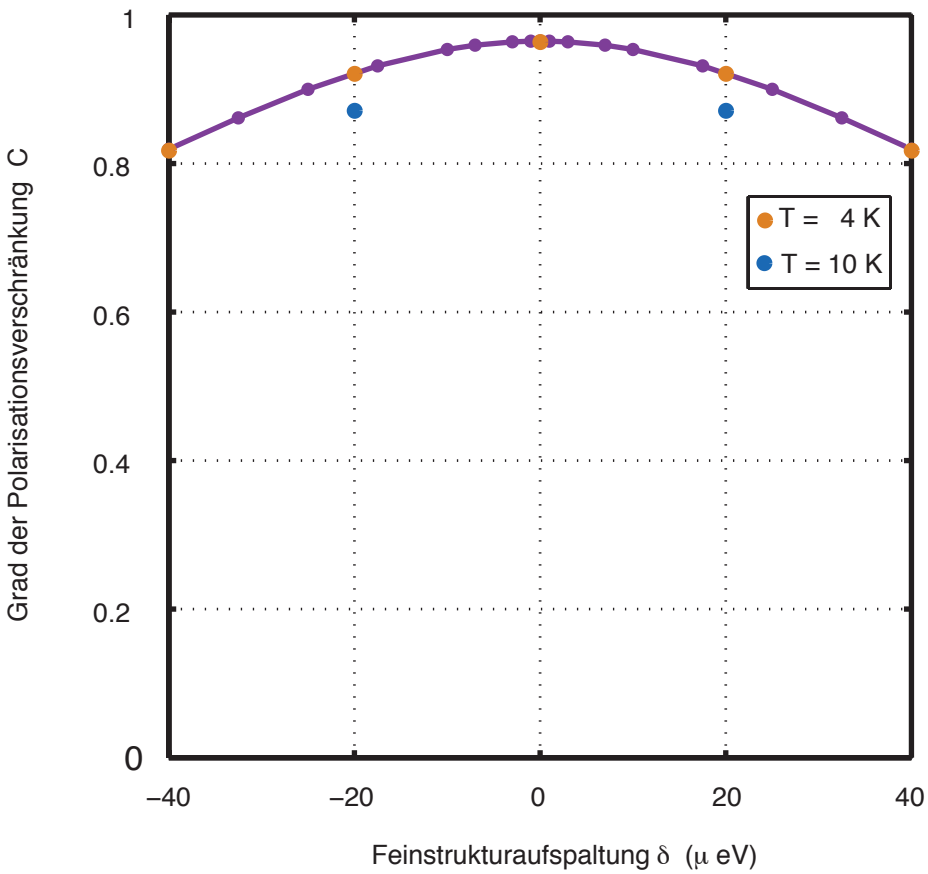


Abbildung 5.11. Polarisationsverschränkung der bei Emission aus bimodalen Kavitäten ($g/\kappa = 1$) mit $\hbar\omega^1_{H,V} = E_B - E_X$ und $\hbar\omega^2_{H,V} = E_X$ und einer Biexzitonbindungsenergie von $E^B_{XX} = 3\,\text{meV}$. Der Grad der Polarisationsverschränkung ist ohne (violet) und mit phononassistierten Prozessen für Temperaturen von $T = 4\,\text{K}$ (orange) und $T = 10\,\text{K}$ (blau) abgebildet.

Berücksichtigt man phononassistierte Prozesse bei der Berechnung der Verschränkung der emittierten Photonen, so zeigt sich, dass bei niedrigen Temperaturen der Grad der Polarisationsverschränkung robust gegenüber der Wechselwirkung mit Phononen ist. Wie in Abbildung 5.11 zu erkennen ist, verringert die phononassistierte Photonmodenbesetzung die *Concurrence* bei tiefen Temperaturen nur unwesentlich. Erst bei höheren Temperaturen ($\sim 10\,\text{K}$) wird der Grad der Polarisationsverschränkung sichtbar verringert. Diese vorteilhaften Eigenschaften werden jedoch durch eine präzise Abstimmung zweier Resonatormoden erkauft, wohingegen bei der entarteten Zweiphotonenemission nur ein Resonator verwendet werden muss und die Emissionscharakteristik über einen weiten Parameterbereich unabhängig von der Feinstrukturaufspaltung der Exzitonen ist.

6. Einzelphotonemission

In diesem Kapitel wird eine neuartige Einzelphotonenquelle basierend auf einem direkten Zweiphotonenübergang vom Biexziton in den Grundzustand eines Quantenpunktes vorgestellt. Es wird demonstriert, dass die Einzelphotonemission rein optisch durch einen Laserpuls kontrollierbar ist. Im Folgenden werden der Emissionsprozess und die Eigenschaften der Einzelphotonen untersucht.

6.1. Emissionsschema

Der Zweiphotonenübergang vom Biexziton in den Grundzustand des Quantenpunktes kann nicht nur spontan in optische Resonantoren erfolgen, sondern auch durch einen äußeren optischen Puls kontrolliert werden, sodass ein einzelnes Photon emittiert wird. Wie in Abbildung 6.1 a) dargestellt, ist der Biexzitonzustand der Ausgangspunkt eines stimulierten Zweiphotonenprozesses. Ein Kontrollpuls, der nicht resonant mit den optischen Übergängen des Systems ist, treibt das System in ein *virtuelles Niveau* in der Bandlücke des Quantenpunktes, von dem das System in den Grundzustand gelangt, indem es ein einzelnes Photon emittiert. Als *virtuelles Niveau* wird hier eine Resonanzerscheinung des Systems bezeichnet, die nicht trivialer Weise als (optischer) Übergang aus dem Hamiltonoperator abgelesen werden kann, sondern auf einen Prozess in höherer Ordnung der Systemdynamik ($\sim \Omega^\dagger(t) b^\dagger |G\rangle\langle B|$) zurückzuführen ist. Hier wird, soweit in der Zweiphotonenresonanzbedingung die Gesamtenergie erhalten ist, durch einen Kontrollpuls $\Omega^\dagger(t)$ im Quantenpunkt der Übergang vom Biexziton in den Grundzustand $|G\rangle\langle B|$ eingeleitet und dabei ein einzelnes Photon $b^\dagger$ emittiert. Um diesen Effekt zu verstärken wird ein optischer Resonator hoher Qualität verwendet. Abbildung 6.1 b) zeigt die Anordnung des Pulses und des Resonators für ein Szenario, bei dem aufgrund der Energiedifferenzen der optischen Felder von den Quantenpunktübergängen von $\pm 5\,\mathrm{meV}$ keine phononenassistierten Prozesse zu erwarten sind (vgl. Abbildung 3.4).

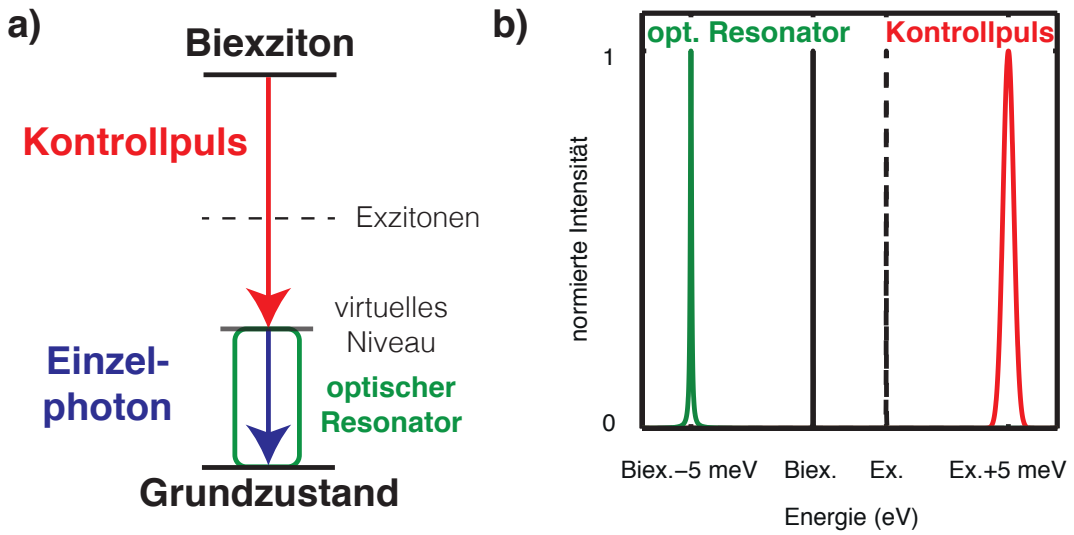


Abbildung 6.1. Schematische Einzelphotonerzeugung: a) Das System ist im Biexzitonzustand initialisiert. Mit einem Kontrollpuls wird das System in ein virtuelles Niveau getrieben, von dem es durch Emission eines Photons in den Grundzustand gelangt. Ein optischer Resonator macht diesen Prozess effektiver. **b)** Anordnung des Kontrollpulses, des optischen Resonators und der elektronischen Quantenpunktzustände.

Im Folgenden wird diese Anordnung genutzt, um das Prinzip der stimulierten Einzelphotonerzeugung zu demonstrieren. Dabei werden auch Kontrollmöglichkeiten des einzelnen Photons durch den optischen Puls sowie der Einfluss der Umgebung diskutiert. Des Weiteren werden auch Szenarien betrachtet, in denen phononenassistierte Prozesse berücksichtigt werden müssen.

6.2. Einzelphotonemission

Ausgangspunkt der stimulierten Einzelphotonerzeugung ist ein Biexziton im Quantenpunkt. Mit einem Picosekunden-Puls wird das System in einen virtuellen Zustand, welcher mit der Energie eines optischen Resonators übereinstimmt, getrieben, sodass bei dem direkten Übergang in den Grundzustand des Quantenpunkts ein Photon im Resonator erzeugt wird. Dieser Prozess kann nur dann stattfinden, wenn die Zweiphotonenresonanzbedingung $E_B - E_G \approx \hbar\omega_{H,V} + \hbar\omega_L$ erfüllt ist. Der optische Resonator verstärkt den Prozess mit einer Linienbreite von $\kappa = g$, was einem Qualitätsfaktor von 21 000 bei einer Emissionswellenlänge von 880 nm entspricht. Für diese Parameter wird in Abbildung 6.2 **a)** die Photonpopulation $N_V = \langle b_V^\dagger b_V \rangle$ in der Resonatormode mit Polarisation V in Abhängigkeit von der Verstimmung Δ der Pulsenergie $\hbar\omega_L$ von der Zweiphotonenresonanz dargestellt. Der Puls hat die Polarisation V.

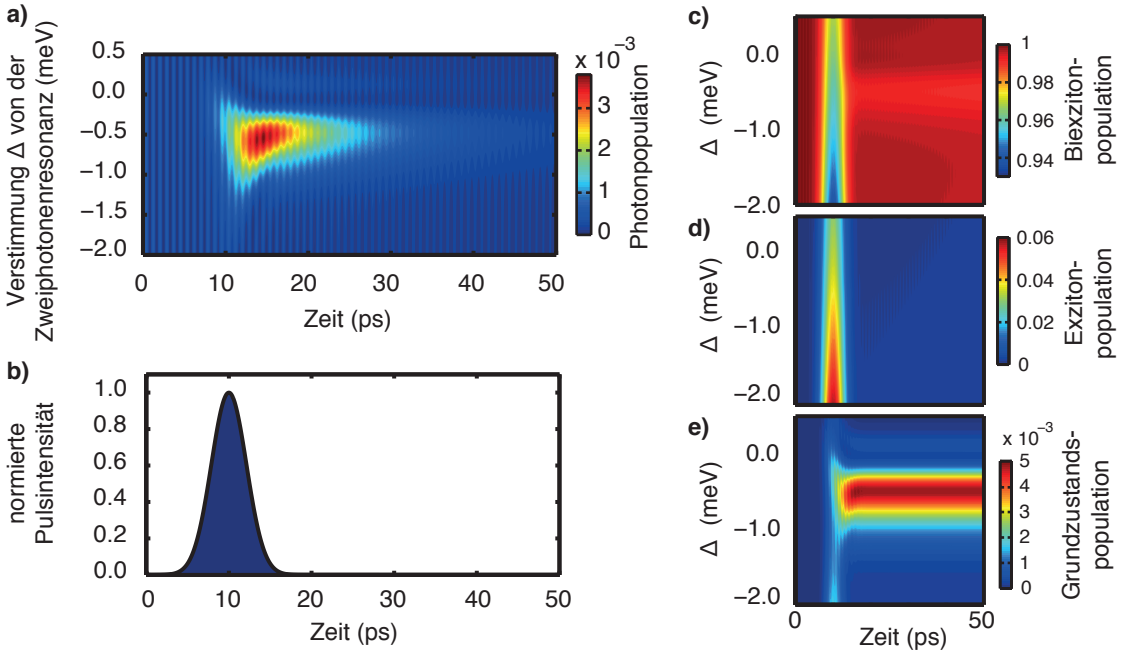


Abbildung 6.2. Einzelphotonemission: a) Optisch kontrollierbare Einzelphotonemission in einen optischen Resonator für unterschiedliche Verstimmungen Δ des Kontrollpulses von der Zweiphotonenresonanzbedingung. **b)** Intensitätsprofil des Kontrollpulses. **c) – e)** Besetzungen der elektronischen Zustände. Zu Demonstrationszwecken wurde hier $\gamma_{rad} = 0$ gesetzt.

In Abbildung 6.2 **b)** ist die zeitliche Intensitätsverteilung des 5 ps langen Kontrollpulses mit einer maximalen Rabi-Energie von $\Omega_0 = 1.5$ meV bei $t_0 = 10$ ps dargestellt. Man sieht, dass die Photonpopulation in Abbildung 6.2 **a)** nur in Anwesenheit des Pulses aufgebaut wird und anschließend mit der Zerfallskonstanten des Resonators κ

zerfällt. Die starke Wechselwirkung mit dem Feld des Kontrollpulses führt zu einer Abweichung von der naiven Zweiphotonenresonanzbedingung, sodass die maximale Photonpopulation bei $\Delta = -0.54$ meV beobachtet wird. Diese Resonanzverschiebung ist abhängig von Systemparametern, die die Licht-Materie-Wechselwirkung beschreiben. Abbildung 6.3 stellt den Zusammenhang zwischen der maximalen Rabi-Energie Ω_0 des Kontrollpulses und der beobachteten pulsinduzierten Resonanzverschiebung für unterschiedliche Quantenpunkt-Resonator-Systeme dar. Stärkere Pulse erhöhen den Betrag der Resonanzverschiebung Δ. Für die untersuchten Parameter zeigt sich, dass bei dem Resonator geringer Qualität ($g/\kappa = 0.04$, $g = \hbar/50\,\mathrm{ps}^{-1}$) eine höhere Resonanzverschiebung zu beobachten ist. Die Resonanzverschiebung kann auch analytisch bestimmt werden [105]. Sind im Gegensatz zur Darstellung in Abbildung 6.1 **b)** die Energien des optischen Resonators und des Kontrollpulses vertauscht, dann ändert sich das Vorzeichen der Resonanzverschiebung.

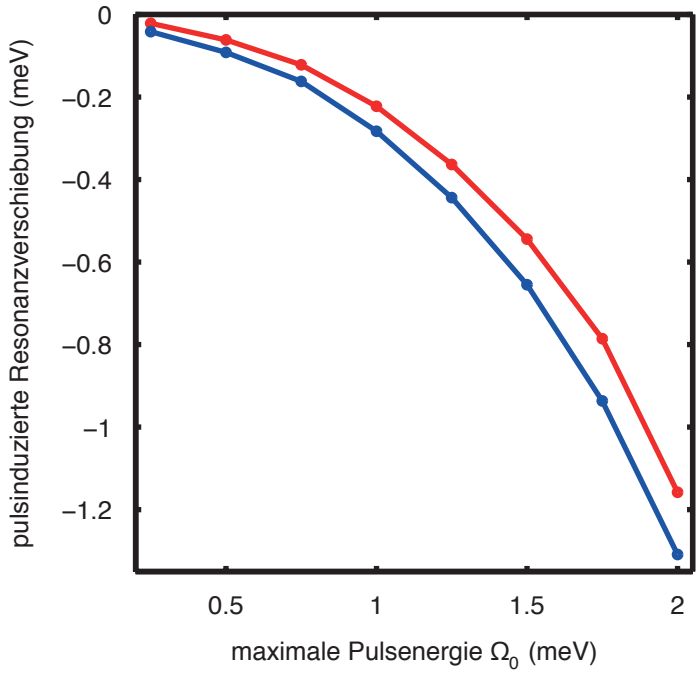


Abbildung 6.3. Pulsinduzierte Resonanzverschiebung: Dargestellt ist die Verstimmung der maximalen Einzelphotonemission von der idealen Zweiphotonenresonanz für verschiedene Rabi-Energien des Kontrollpulses. Die rote Kurve stellt den Verlauf für einen Resonator hoher Qualität ($g/\kappa = 1$, $g = \hbar/10\,\mathrm{ps}^{-1}$, vgl. Abb. 6.2) und die blaue Kurve zeigt die Abhängigkeit für einen Resonator geringer Qualität ($g/\kappa = 0.04$, $g = \hbar/50\,\mathrm{ps}^{-1}$, vgl. Abb. 6.6) dar.

In Abbildung 6.2 **c)** – **d)** sind die Populationen der beteiligten Quantenpunktzustände dargestellt. Man stellt fest, dass die Exzitonbesetzung lediglich dem Puls folgt und

keine dauerhafte Population durch den Puls erzeugt wird. In den Besetzungen des Biexzitons und des Grundzustandes sieht man, dass, wenn die Resonanzbedingung bei $\Delta = -0.54$ meV erfüllt ist, das System direkt vom Biexziton in den Grundzustand übergeht. Nur in diesem Fall wird durch den Puls auch ein Photon im Resonator erzeugt. Der spontane Zerfall des Biexzitons ins Exziton führt zu Oszillationen der Resonatorpopulation, die unabhängig von der Pulsverstimmung und als vertikale Streifen zu erkennen sind.

Es konnte gezeigt werden, dass ein klassischer Kontrollpuls ein Einzelphoton durch einen Zweiphotonenprozess von einem Biexziton emittieren kann. Hierbei ist zu berücksichtigen, dass sich durch die starke Kopplung des Kontrollpulses mit den Quantenpunktzuständen die Zweiphotonenresonanzbedingung verschiebt, sodass für die stimulierte Einzelphotonemission $E_B - E_G = \hbar\omega_{H,V} + \hbar\omega_L + \Delta$ gilt, wobei Δ die pulsinduzierte Verstimmung von der ungestörten (Δ=0) Resonanzbedingung ist. In dieser Demonstration des Emissionskonzeptes wurde zunächst die Initialisierung des Biexzitons vernachlässigt. Der komplette Emissionszyklus wird im Folgenden behandelt.

6.2.1. Emissionszyklus

Bisher war das initialisierte Biexziton stets der Ausgangspunkt der Einzelphotonerzeugung. In diesem Abschnitt wird nun der komplette Emissionszyklus betrachtet, bei dem sich das System am Anfang vollständig im Grundzustand befindet. Abbildung 6.4 zeigt die Initialisierung des Biexzitons mittels resonanter Zweiphotonenabsorption für einen klassischen, 5 ps-langen Puls mit der Energie $\hbar\omega_L = E_B/2$, einer maximalen Intensität bei $t_0 = 10$ ps und einer Pulsfläche von $4.2\,\pi$. Dieser Puls erzeugt ein Biexziton. Anschließend wird innerhalb eines kurzen Zeitraums, indem das Biexziton noch nicht zerfallen ist, das Einzelphoton mit einem weiteren 5 ps-Puls ($\Omega_0 = 1.5$ meV, $t_0 = 20$ ps), analog zu dem in Abbildung 6.2 dargestellten Ablauf, stimuliert. Die Initialisierung erfolgt hier mit einem H-polarisierten Puls und die stimulierte Einzelphotonerzeugung mit einem V-polarisierten Puls, um Interferenzen zwischen den Anregungspfaden bei kurzen Abständen zwischen den Pulsen zu vermeiden. Das Einzelphoton kann innerhalb eines sehr kurzen Zeitraums von ungefähr 10 ps nach der Biexzitoninitialisierung effizient erzeugt werden. Das Schema funktioniert auch, wenn Initialisierungs- und Kontrollpuls dieselbe Polarsiation besitzen, wobei es bei sehr kurzen Zeitabständen zwischen den Pulsen zu Interferenzerscheinungen kommt. Die Einzelphotonemission wird ineffizient, wenn die Pulsbreite des Kontrollpulses zu breit wird, da es dann zu einem Überlapp mit

den Quantenpunktzuständen kommt und die Einzelphotonemission nicht mehr exklusiv ausgelöst werden kann. Dies geschieht in der untersuchten Puls- und Resonatorkonfiguration bei Pulslängen $< 1\,\mathrm{ps}$. Damit die Quelle eine hohe Helligkeit aufweist, ist es nötig, dass der Kontrollpuls die Einzelphotonemisson auslöst, solange das Biexziton noch (nahezu) vollständig besetzt ist.

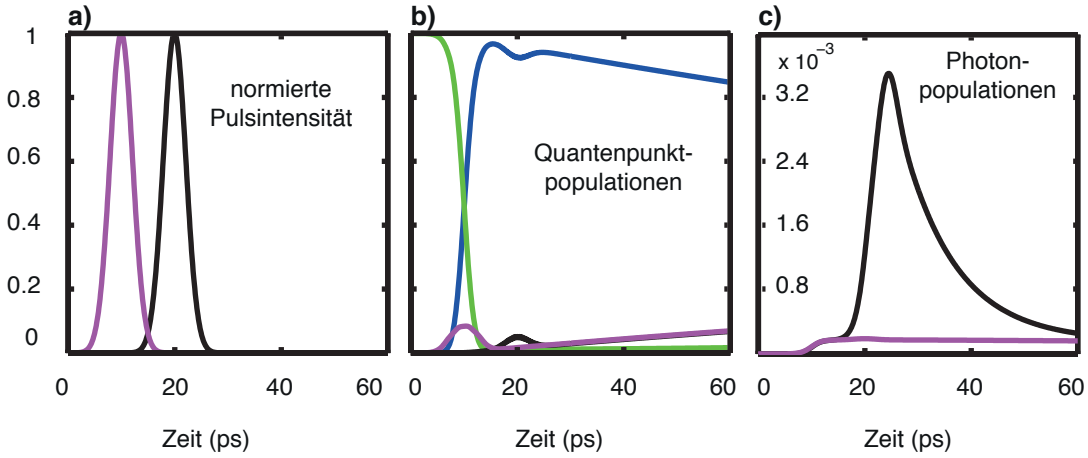


Abbildung 6.4. Vollständiger Emissionszyklus: In **a)** wird die normierte Intensität der Pulse, mit dem zum einen das Biexziton in der Polarisation H initialisiert (magenta) und zum anderen die Einzelphotonenemission mit dem Kontrollpuls der Polarisation V (schwarz) ausgelöst wird, gezeigt. **b)** Population des Grundzustands (grün), des Biexzitons (blau) und der Exzitonen beider Polarisationen (magenta und schwarz). **c)** Population der V-polarisierten Photonen (schwarz) und der H-polarisierten Photonen (magenta).

Mit einer Folge von zwei Pulsen ist es möglich, die vorgestellte Einzelphotonquelle zu betreiben. Der erste Puls initialisiert das Biexziton und der nachfolgende Kontrollpuls emittiert ein einzelnes Photon. Dies ist auf einer ps-Zeitskala möglich.

6.3. Kontrolle der Einzelphotoneigenschaften

Die Eigenschaften des Einzelphotons werden durch die Eigenschaften des Kontrollpulses festgelegt. Die Energie-, Drehimpuls- und Spinerhaltung sowie die stimulierende Natur des Emissionsprozesses erlauben es, Polarisation, Energie und den Zeitpunkt der Einzelphotonemission optisch zu kontrollieren. Die Kontrolle der spektralen Eigenschaften wird in Referenz [106] behandelt. Nachfolgend wird die Polarisationskontrolle und die Kontrolle des Emissionszeitpunktes demonstriert.

6.3.1. Polarisationskontrolle

Das vorgestellte Schema zur Erzeugung von Einzelphotonen erlaubt die Kontrolle der Polarisation des emittierten Einzelphotons durch den Kontrollpuls. Für lineare Polarisation wurde in Abbildung 6.2 gezeigt, dass ein V-polarisierter Puls ein V-polarisiertes Photon erzeugt. Dies gilt analog auch für den Emissionsprozess in der H-Mode. An dieser Stelle wird demonstriert, dass die Kontrolle der Einzelphotonpolarisation mit beliebig polarisierten Kontrollpulsen möglich ist, sodass Photonen mit einer beliebigen Polarisation optisch erzeugt werden können. Dazu wird die Polarisation des stimulierenden Pulses gemäß

$$E(p) = E_0 \cdot (\cos(p)\sigma_- + \sin(p)\sigma_+) \tag{6.1}$$

parametrisiert, wobei p ein reeller Parameter ist, der den kontinuierlichen Übergang von σ_- zirkularer zu σ_+ zirkularer Polarisation für $p = 0$ bis $p = \pi/2$ beschreibt. In Abbildung 6.5 wird gezeigt, dass die Polarisation des Einzelphotons durch die Polarisation des Pulses vorgegeben ist. Die Abbildungen 6.5 **a)** und **b)** stellen die Photonpopulationen für σ_+ zirkulare und σ_- zirkulare Polarisation dar. Der Zweiphotonenübergang vom Biexziton (Spin 0) zum Grundzustand (Spin 0) erlaubt die Kontrolle der Polarisation des Einzelphotons durch den stimulierenden Puls. Für zirkulare Polarisation bedeuten die Spin-Auswahlregeln, dass das emittierte Einzelphoton die entgegengesetzte zirkulare Polarisation aufweist wie der Kontrollpuls. So erhält man für einen σ_+ zirkular polarisierten Kontrollpuls ein σ_- zirkular polarisiertes Photon. Auf diese Weise kann analog auch jeder beliebige, elliptische Polarisationszustand generiert werden. Aufgrund des Zerfalls des Biexzitons durch die linear polarisierten Photonmoden ergibt sich ein Hintergrund in den zirkular polarisierten Moden, sodass beispielsweise die Population der σ_+ polarisierten Photonen bei einem σ_+ polarisierten Puls nicht exakt Null ist. Diese Photonen werden jedoch bei der Energie des Biexziton-zu-Exziton-Übergangs

erzeugt, sodass sich durch spektrale Filterung ein deutlich höherer Kontrast erzielen lässt.

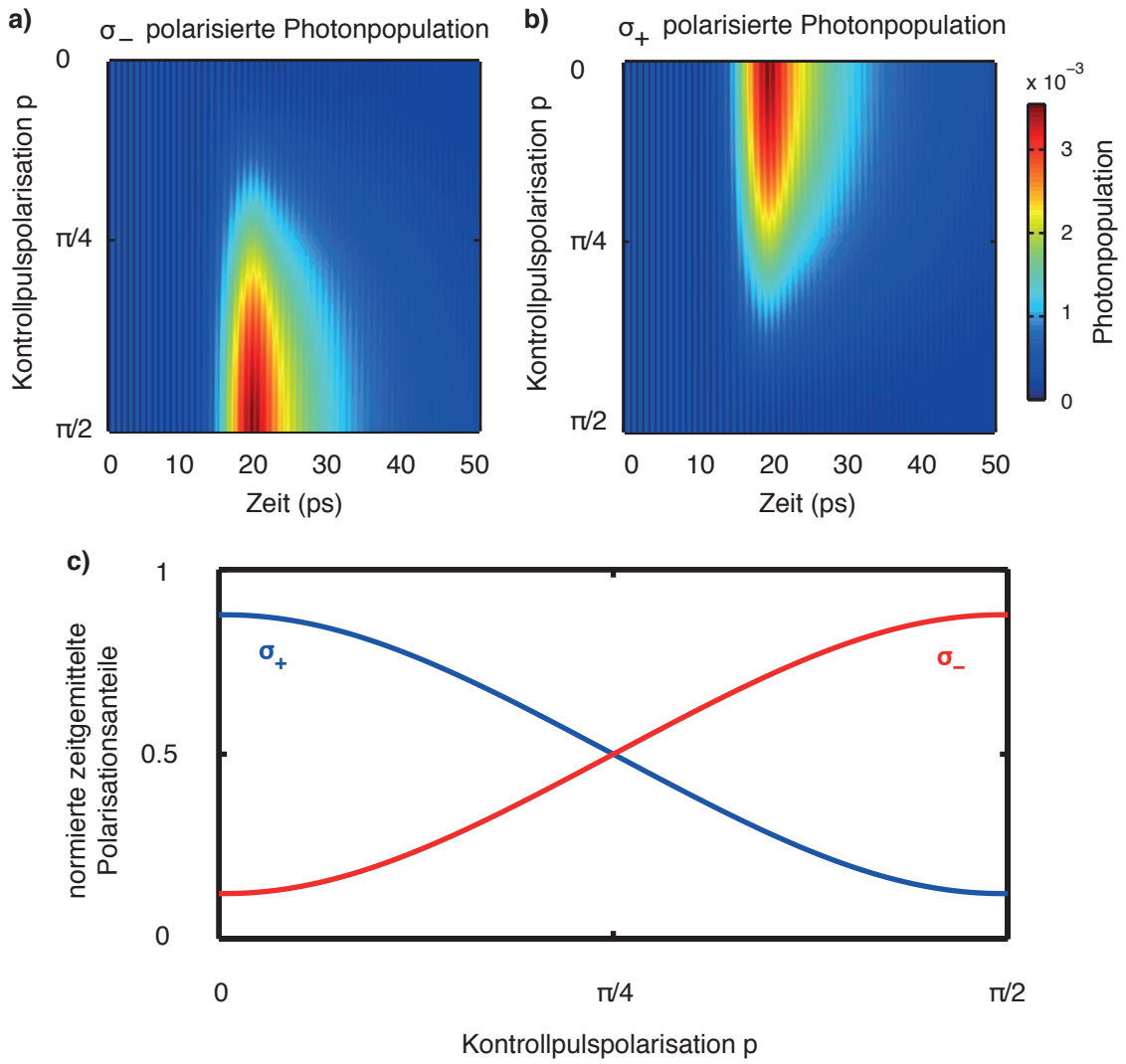


Abbildung 6.5. Polarisationskontrolle der Einzelphotonemission: Gezeigt ist die zeitaufgelöste Resonatormodenpopulation für **a)** σ_- zirkular polarisierte und **b)** σ_+ zirkular polarisierte Photonen in Abhängigkeit von der Polarisation des Kontrollpulses p. Der Kontrollpuls ändert seine Polarisation von σ_- ($p = 0$) zu σ_+ ($p = \pi/2$). In **c)** sind die normierten zeitlich gemittelten Polarisationsanteile dargestellt. Es sind die Photonpopulationen für $\Delta = -0.54\,\text{meV}$ bei einer Feinstrukturaufspaltung von $\delta = 40\,\mu\text{eV}$ abgebildet. Weitere Parameter sind entsprechend Abbildung 6.2 gewählt.

Abbildung 6.5 **c)** stellt den zeitgemittelten Anteil der zirkularen Polarisationsmoden dar, der von 12 ps bis 45 ps gemittelt und für jeden Wert von p auf die maximale Photonenzahl im Resonator normiert wurde. Indem die Polarisation kontinuierlich von

$p = 0$ zu $p = \pi/2$ geändert wird, geht auch die Polarisation des Einzelphotons von σ_+ zu σ_- über.

Ein klassischer Puls ist in der Lage, die Quanteneigenschaften eines Photons zu kontrollieren. Durch eine geeignete Wahl der Polarisation des Kontrollpulses kann jeder Polarisationszustand des Einzelphotons erzeugt werden. Der Grad der Polarisierung ist dabei durchgehend hoch. Da die einzelnen elektronischen Zustände aufgrund des Zweiphotonenprozesses nicht resonant beteiligt sind, wird die Polarisationskontrolle nicht durch die Feinstrukturaufspaltung der Exzitonen beeinflusst. Hier wurde zur Demonstration mit einer Feinstrukturaufspaltung von $\delta = 40\,\mu$eV gerechnet.

Bisherige Einzelphotonquellen basieren meist auf einer Photonemission, die von einzelnen elektronischen Zuständen, wie zum Beispiel einem Exziton, ausgeht. Die Eigenschaften der so emittierten Photonen sind durch die elektronischen Eigenschaften des Systems vorherbestimmt und eine Polarisationskontrolle beschränkt sich auf die Auswahl der beteiligten Zustände (Exzitonen) [91, 39]. Das hier vorgestellte Schema zur Emission einzelner Photonen auf Grundlage eines stimulierten Zweiphotonenprozesses von einem Biexziton in den Grundzustand eines Quantenpunktes bietet hingegen eine echte Polarisationskontrolle, bei der der Polarisationszustand der Einzelphotonen rein optisch durch einen Kontrollpuls festgelegt wird.

6.3.2. Kontrolle des Emissionszeitpunktes

Das Schema zur stimulierten Emission einzelner Photonen ist nicht auf den Bereich der starken Kopplung zwischen Quantenpunkt und Resonator beschränkt. In Abbildung 6.6 **a)** wird die Einzelphotonerzeugung für eine Kavität geringer Qualität von $g/\kappa = 0.04$ ($Q \approx 4200$) mit $g = \hbar/50\,\mathrm{ps}^{-1}$ und $\kappa = \hbar/2\,\mathrm{ps}^{-1}$ dargestellt. Der 5 ps lange Kontrollpuls hat seine maximale Rabi-Energie von $\Omega_0 = 1.5\,\mathrm{meV}$ bei $t_0 = 15\,\mathrm{ps}$. Auch im Bereich der schwachen Kopplung kann ein Einzelphoton erzeugt werden, wobei für die hier verwendeten Parameter die pulsinduzierte Resonanzverschiebung $\Delta = -0.66\,\mathrm{meV}$ ist. Aufgrund der geringeren Qualität der optischen Kavität werden die Photonen nur für eine kurze Zeitspanne, die durch $\kappa = \hbar/2\,\mathrm{ps}^{-1}$ gegeben ist, im Resonator gespeichert. Die Photonen sind also nur solange in der Kavität, wie der Kontrollpuls das System in den Grundzustand stimuliert.

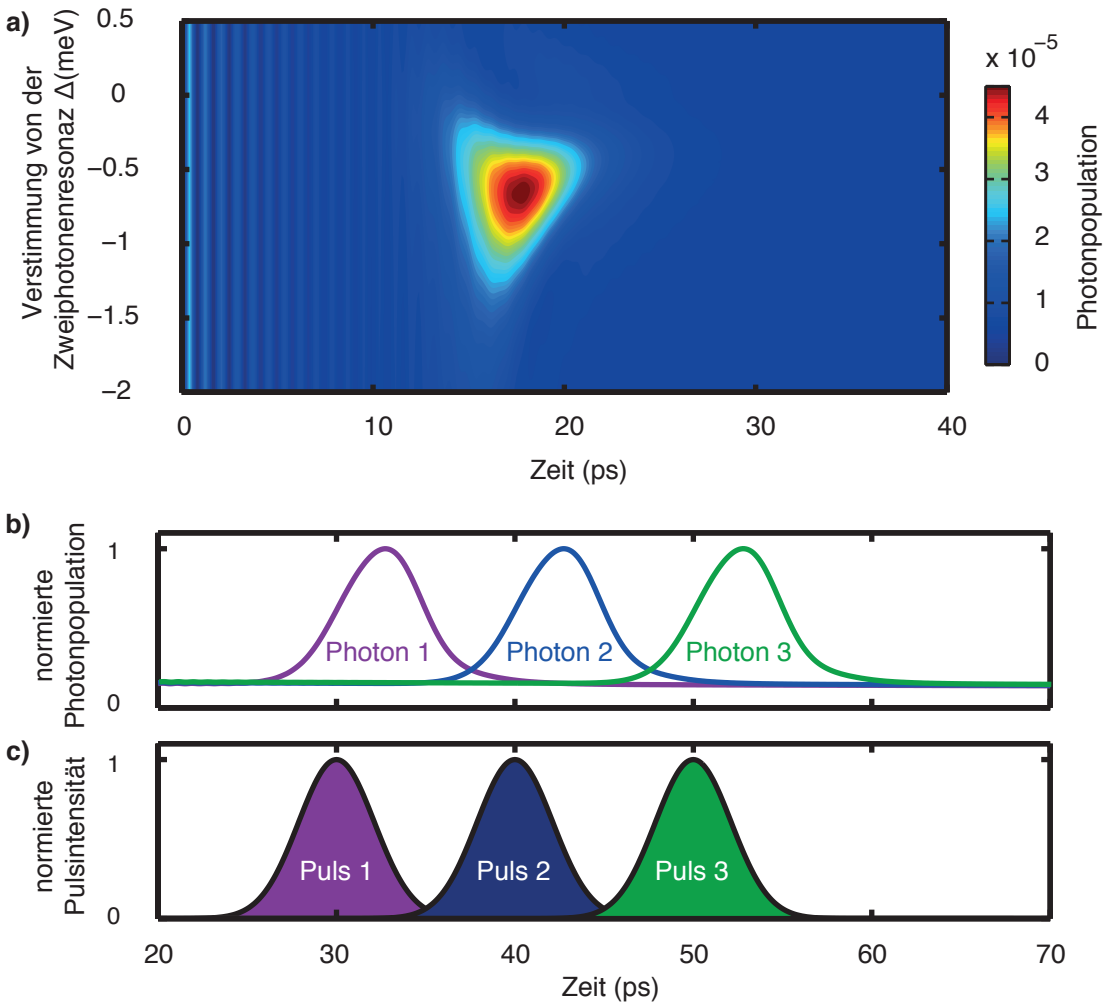


Abbildung 6.6. Kontrolle des Zeitpunktes der Einzelphotonemission: In **a)** löst ein 5 ps-Puls, der um $t_0 = 15\,\mathrm{ps}$ zentriert ist, die Einzelphotonemission in einer Kavität mit geringer Qualität ($g/\kappa = 0.04$, $g = \hbar/50\,\mathrm{ps}^{-1}$) aus. Für eine Kontrollpulsverstimmung von $\Delta = -0.66\,\mathrm{meV}$ wird in **b)** gezeigt, wie Photonen zu beliebigen Zeitpunkten emittiert werden können. Die zugehörigen Pulse sind in **c)** abgebildet. Die Photonen werden jeweils durch einen einzelnen Kontrollpuls von einem zum Zeitpunkt $t = 0$ voll besetzten Biexziton emittiert.

Die stimulierende Natur des Einzelphotonemissionsprozesses ermöglicht die Kontrolle des Emissionszeitpunktes der emittierten Einzelphotonen auf einer Pikosekunden-Zeitskala. Abbildung 6.6 **b)** zeigt die Photonpopulation im optischen Resonator für die in **c)** dargestellten Pulse. Für jeden Puls ist das System zum Zeitpunkt $t = 0\,\mathrm{ps}$ im Biexziton präpariert und es stimuliert jeweils nur ein einzelner Puls die Photonemission.

Es wird genau dann ein Photon im Resonator erzeugt, wenn der Kontrollpuls die stimulierte Emission treibt. Dies ist unabhängig vom Zeitpunkt t_0, zu dem der Puls mit dem Quantenpunkt in Wechselwirkung tritt. Solange das Biexziton noch nicht zerfallen

ist, hat man die vollständige Flexibilität den Emissionszeitpunkt zu wählen. Der im Hintergrund auftretende Anteil der Photonen, der durch den spontanen Zerfall des Biexzitons entsteht, kann durch spektrale Filterung bei der Photondetektion unterdrückt werden [34].

6.4. Dekohärenz und strahlender Zerfall

Bei der stimulierten Einzelphotonemission werden optische Übergänge im Quantenpunkt induziert. Die elektronischen Zustände im Quantenpunkt sind jedoch dekohärenten Prozessen und einem strahlenden Zerfall in Moden ausgesetzt, die nicht dem Resonator zuzuordnen sind. Der Einfluss dieser Prozesse auf die Einzelphotonemission wird im Folgenden untersucht. Die Parameter sind, wenn nicht anders angegeben, mit denen aus Abbildung 6.2 identisch.

Abbildung 6.7 zeigt den Einfluss der Dephasierung der Quantenpunktkohärenzen γ_{pure} auf die in der Resonatormode entstehende Einzelphotonpopulation. Um den Effekt der Dephasierung zu isolieren, wird der strahlende Zerfall hier nicht berücksichtigt, d. h. $\gamma_{rad} = 0$. Die Dephasierungsrate wird bis zu Werten variiert, denen Temperaturen von ungefähr 100 K [11, 4] entsprechen. Es zeigt sich, dass, während bei hohen Temperaturen eine leichte Senkung der maximal erreichbaren Photonpopulation eintritt, das Dephasieren der Quantenpunktkohärenzen bei tiefen Temperaturen die Effektivität des Emissionsschemas nicht einschränkt, da es nicht auf langlebige Kohärenzen angewiesen ist.

Der Einfluss des radiativen Zerfalls γ_{rad} auf die Einzelphotonemission ist in Abbildung 6.8 dargestellt. Der Effekt der Dephasierung wird hier ausgeschaltet, $\gamma_{pure} = 0$. Mit steigender Rate des strahlenden Zerfalls γ_{rad} nimmt die Population des Bexzitons zum Zeitpunkt der stimulierten Einzelphotonemission ab. Deshalb nimmt die Wahrscheinlichkeit, ein Photon zu erzeugen, aufgrund der sinkenden Wahrscheinlichkeit ein Biexziton vorzufinden, ab. Der radiative Zerfall wurde bis zu Werten von 30 μeV betrachtet, was einer strahlenden Lebensdauer von 150 ps entspricht. Meist spielt der strahlende Zerfall in Quantenpunkten mit typischen Linienbreiten von $\sim 0.5 - 4\,\mu$eV [40, 104, 65, 93] eine untergeordnete Rolle, sodass die Quantenpunktzustände nur langsam zerfallen. Da die Einzelphotonen in sehr kurzen Zeitspannen von wenigen 10 ps (vgl. Abbildung 6.4) mit dem vorgestellten Schema erzeugt werden können, stellt der strahlende Zerfall keine relevante Limitierung dar.

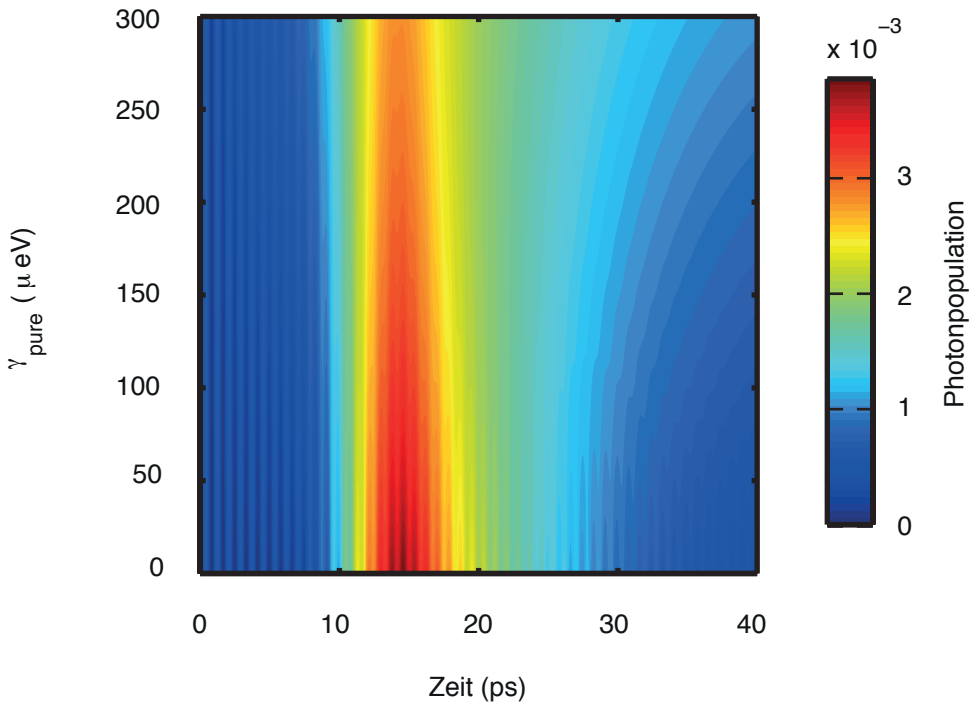


Abbildung 6.7. Einfluss der Dephasierung γ_{pure} auf die Einzelphotonemission: Dargestellt ist die Photonpopulation in einem Resonator ($g/\kappa = 1$) für ansteigende Werte von γ_{pure}. Hier ist $\gamma_{rad} = 0$ gesetzt.

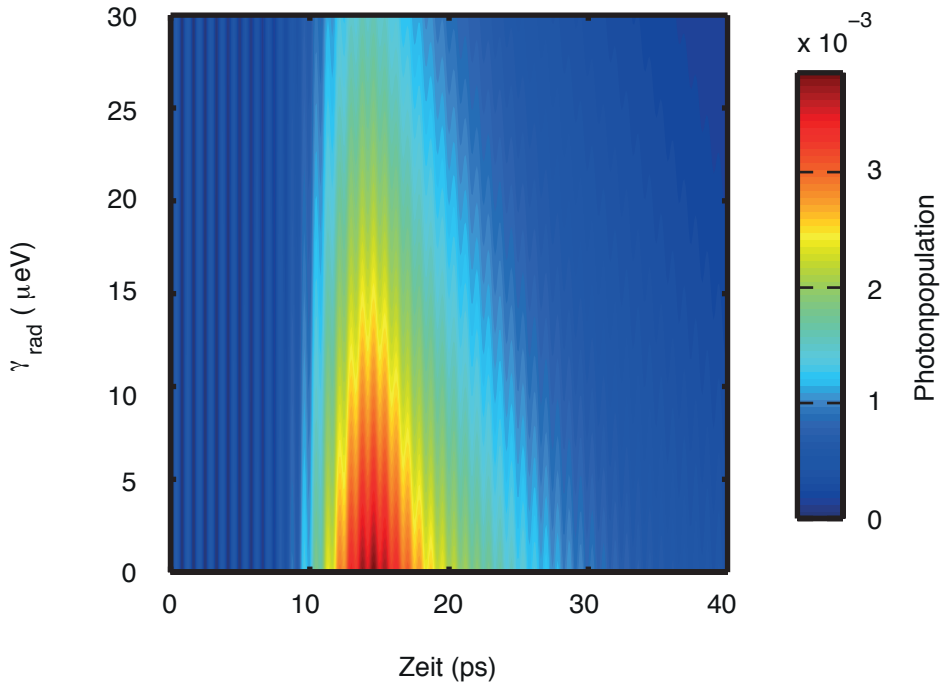


Abbildung 6.8. Einfluss des radiativen Zerfalls γ_{rad} auf die Einzelphotonemission: Gezeigt ist die Photonpopulation in einem Resonator ($g/\kappa = 1$) für ansteigende Werte von γ_{rad}. Hier ist $\gamma_{pure} = 0$ gesetzt.

6.5. On-Demand-Potential

Quantenkommunikation und Quantencomputing mit Photonen als Informationsträgern setzen voraus, dass die Photonen genau dann zur Verfügung stehen, wenn sie benötigt werden. So müssen zum Beispiel für bestimmte Anwendungen Photonen auf Verlangen (*on demand*) erzeugt werden können [84, 7]. Überlegungen zur Realisierung von effizienten Quantenrechnungen zeigen, dass eine gemeinsame Emissions- und Detektionswahrscheinlichkeit von $^2/_3$ erstrebenswert ist [98]. Experimentell realisierte Einzelphotonquellen zeigen jedoch nur eine geringe Emissionseffizienz im niedrigen einstelligen Prozentbereich [41, 24]. Im Folgenden soll daher untersucht werden, ob das hier vorgeschlagene Schema zur Erzeugung einzelner Photonen das Potential hat, Einzelphotonen *on demand* zu erzeugen.

6.5.1. Einzelphoton-Emissionswahrscheinlichkeit

Es gibt vier Möglichkeiten den Resonator und den Kontrollpuls gemeinsam anzuordnen, um Einzelphotonen zu erzeugen. Diese sind in Abbildung 6.9 angegeben. Die Energie des Pulses $\hbar\omega_L = E_B - \hbar\omega_{H/V} + \Delta_{2PhR}$ folgt aus der Energie des Resonators $\hbar\omega_{H/V}$ und dem Parameter Δ_{2PhR}, der die Verstimmung des Pulses von der Zweiphotonenresonanzbedingung angibt. Für einen speziellen Wert von Δ_{2PhR} ergibt sich jeweils die maximale Einzelphotonemissionswahrscheinlichkeit, welche von der individuellen pulsinduzierten Resonanzverschiebung abhängt. Die möglichen Konfigurationen sind folglich durch $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 \pm E_{XX}^B/2 \pm \Delta$ gegeben, wobei Δ eine Verschiebung von den Quantenpunktübergängen darstellt. Δ sollte möglichst klein gewählt werden, damit der stimulierte Zweiphotonenprozess von der Resonanzüberhöhung der realen optischen Übergänge profitieren kann, jedoch nicht so klein, dass die spontanen Zerfallsprozesse resonant ablaufen und den eigentlichen kontrollierbaren Einzelphotonemissionsprozess überlagern können. Die Wahl von $\Delta = 0.3\,\text{meV}$ stellt sich als guter Kompromiss heraus, um sowohl einige Herausforderungen der stimulierten Einzelphotonemission als auch eine hohe Emissionwahrscheinlichkeit zu demonstrieren. Nach $T = 120\,\text{ps}$ ist die pulsinduzierte Photonpopulation zerfallen, sodass die maximale Emissionswahrscheinlichkeit der stimulierten Einzelphotonemission angegeben werden kann.

Abbildung 6.9 stellt den zeitabhängigen Verlauf der Resonatoremissionswahrscheinlichkeit jeweils für die vier zuvor genannten Konfigurationen grafisch dar. Ausgangspunkt ist immer der Quantenpunkt im Grundzustand. In den Photonmoden befinden

sich keine Photonen. Der 5 ps-Puls, der das Biexziton mittels resonanter Zweiphotonenabsorbtion ($\hbar\omega_L = E_B/2$) initialisiert, hat sein Maximum bei $t_0 = 10\,\text{ps}$ und eine Pulsfläche $\Theta = 4.2\,\pi$. Es folgt darauf der Kontrollpuls der Einzelphotonemission mit 15 ps Länge bei $t_0 = 35\,\text{ps}$ und einer Pulsfläche von $7\,\pi$. Die Energie des Pulses $\hbar\omega_L = E_B - \hbar\omega_{H/V} + \Delta_{2PhR}$ wird mit Δ_{2PhR} variiert, um die maximale Emissionswahrscheinlichkeit zu finden.

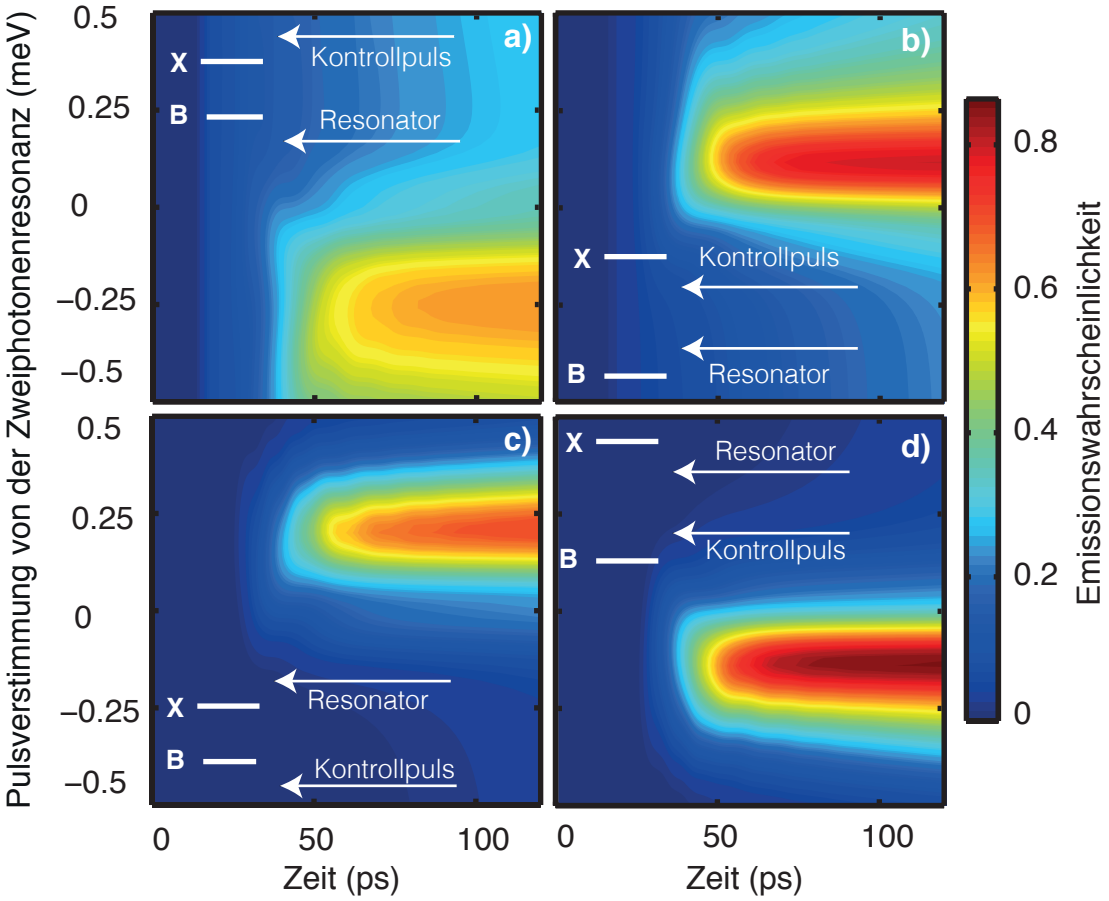


Abbildung 6.9. Emissionswahrscheinlichkeit der Einzelphotonemission für vier verschiedene Anregungsgeometrien mit $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 \pm E^B_{XX}/2 \pm \Delta$ und $\hbar\omega_L = E_B - \hbar\omega_{H/V} + \Delta_{2PhR}$, wobei hier $\Delta = 0.3\,\text{meV}$ gewählt wurde. Es ist jeweils der Zeitverlauf der Emissionswahrscheinlichkeit für unterschiedliche Pulsverstimmungen von der Zweiphotonenresonanz Δ_{2PhR} dargestellt.

Das Resultat hängt von der Anregungsgeometrie ab. Die erreichten Emissionswahrscheinlichkeiten befinden sich im Bereich von 62 % bis 86 %. In Abbildung 6.9 sind die Anregungsszenarien, bei denen sich die Energien des Pulses und des Resonators jeweils beide außerhalb der (**a**) und **c**)) oder beide zwischen (**b**) und **d**)) den elektronischen Resonanzen befinden, untereinander dargestellt.

Abbildung 6.9 **a)** stellt die Anregungssituation mit $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 - E_{XX}^B/2 - \Delta$ dar. Die Emissionswahrscheinlichkeit nach 120 ps ist mit 62 % bei $\Delta_{2PhR} = -0.24$ meV vergleichsweise gering ausgeprägt und das Emissionsmerkmal ist relativ breit. Die Ursache hierfür ist, dass sich zwei Prozesse zu überlagern beginnen und die Einzelphotonemission nicht isoliert ausgelöst werden kann. Bei $\Delta_{2PhR} = -0.2$ meV wird die maximale Besetzung des Grundzustandes auf die für die stimulierte Einzelphotonerzeugung charakteristische Weise erreicht. Dagegen wird bei $\Delta_{2PhR} = -0.36$ meV die maximale Photondichte aufgrund von Oszillationen zwischen den elektronischen Zuständen erzeugt. Es ist zu beachten, dass hier die natürlichen Resonanzen wegen der Anwesenheit starker Pulse zugunsten von $\Delta_{2PhR} < 0$ leicht verschoben sind. Dies äußert sich auch darin, dass die maximale Emissionswahrscheinlichkeit für nicht-resonante Pulse hier im Vergleich zum Fall **b)**, der nachfolgend diskutiert wird, für gleiche Werte von $|\Delta_{2PhR}|$ etwas erhöht ist. Des Weiteren fällt aufgrund der veränderten Resonanzbedingung die maximale Biexzitonbesetzung durch den Initialisierungspuls etwas kleiner aus als in den anderen Fällen. All dies resultiert in der vergleichsweise kleinsten Emissionswahrscheinlichkeit von 62 %.

Der Fall der Resonatorenergie $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 - E_{XX}^B/2 + \Delta$ ist in Abbildung 6.9 **b)** dargestellt. Hier wird eine Emissionswahrscheinlichkeit von 80 % bei $\Delta_{2PhR} = -0.12$ meV erreicht. Die Exzitonpopulationen werden mit jeweils $\sim$ 10 % Besetzung um circa ein Drittel im Vergleich zum nicht-resonanten Fall verringert. Spektral gut von der stimulierten Einzelphotonemission getrennt, tritt bei $\Delta_{2PhR} \approx 0.3$ meV, mit geringer Wahrscheinlichkeit, eine direkte Exzitonerzeugung aufgrund vorhandener Grundzustandspopulation durch den Kontrollpuls auf, sodass das Emissionsmerkmal nicht symmetrisch um $\Delta_{2PhR} = -0.12$ meV ist.

In Abbildung 6.9 **c)** wird die Einzelphotonemissionswahrscheinlichkeit für das Emissionsschema mit der Resonatorenergie $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 + E_{XX}^B/2 + \Delta$ gezeigt. Da der Resonator spektral nahe am Übergang vom Exziton in den Grundzustand liegt, wird der spontane Zerfall des Biexzitons in ein Exziton durch Photonemission in die Resonatormode unterdrückt. Deswegen beobachtet man selbst bei nicht-resonanten Kontrollpulsenergien nur eine äußerst geringe Emission des Resonators, insbesondre im Vergleich zu den in den Abbildungen 6.9 **a)** und **b)** beobachteten Fällen. Die stimulierte Einzelphotonemisson erfolgt bei $\Delta_{2PhR} \simeq 0.22$ meV und führt zu einer Emissionswahrscheinlichkeit von 71 %. Hier gibt es einen kleinen Überlapp der Linie des Kontrollpulses mit dem optischen Übergang vom Biexziton zum Exziton, welcher Oszillationen der Photonpopulation, die durch den stimulierten Prozess generiert wurden, erzeugt. Die unterschiedlichen Prozesse

überlagern sich und ergeben die Gesamtemissionswahrscheinlichkeit, die zum Großteil, jedoch nicht exklusiv, der stimulierten Einzelphotonemission zugerechnet werden kann.

Die Ergebnisse des verbleibenden Falles werden in Abbildung 6.9 **d)** dargestellt. Im Anregungsszenario mit der Resonatorenergie $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 + E_{XX}^B/2 - \Delta$ kann eine maximale Emissionswahrscheinlichkeit von 86 % bei $\Delta_{2PhR} \approx -0.14\,\mathrm{meV}$ festgestellt werden. Im Gegensatz zum zuvor beschriebenen Fall lässt sich hier der Zerfallskanal der stimulierten Einzelphotonemission von den Hintergrundprozessen trennen und die maximale Emissionswahrscheinlichkeit ist das Resultat des direkten Übergangs vom Biexziton in den Grundzustand des Quantenpunktes unter Emission eines Photons in die Resonatormode. Da die Resonatormode spektral sehr deutlich von der Resonanz des Biexziton-zu-Exziton-Übergangs getrennt ist, beobachtet man kaum Emission aus diesem spontanen, optischen Übergang in den Resonator.

Die höchsten Emissionswahrscheinlichkeiten der Einzelphotonemission erhält man, wenn sowohl der Kontrollpuls als auch die Resonatormode von der beidseitigen Resonanzerhöhung durch die realen Quantenpunktübergänge profitieren kann. Dies ist immer dann der Fall, wenn, wie in den Abbildungen 6.9 **b)** und **d)** dargestellt, Kavität und Kontrollpuls jeweils unter Berücksichtigung der Zweiphotonenresonanzbedingung niedrigere Energien als das Exziton aber höhere Energien als der Biexziton-zu-Exziton-Übergang aufweisen.

Es konnte gezeigt werden, dass das Potential, mit dem vorgestellten Schema Einzelphotonen *on demand* zu emittieren, vorhanden ist. Es ist zu erwarten, dass phononenassistierte Prozesse einen sichtbaren Einfluss auf die Einzelphotonemission haben. Dieser Einfluss wird im folgenden Abschnitt betrachtet.

6.5.2. Einfluss der phononassistierten Prozesse auf die Einzelphotonemission

Optische Kavitäten begünstigen die Photonemission bei Resonanz der optischen Quantenpunktübergänge mit der Resonatormode. Liegt diese Resonanzbedingung jedoch nicht vor, so läuft der Emissionsprozess mit verminderter Effizienz ab, da die entsprechenden Energien nicht aufeinander abgestimmt sind und somit entweder Energie fehlt oder im Übermaß vorhanden ist. In Halbleiterquantenpunkten können Phononen diese fehlende Energie bereitstellen oder die überschüssige Energie aufnehmen. Bei tiefen Temperaturen sind jedoch nur wenige Schwingungsquanten im Phononenbad vorhanden, sodass es wahrscheinlicher ist, dass das Phononenbad Energie aufnimmt. Dies führt zu der Ausbildung von asymmetrischen Phononseitenbändern, wie sie in den Abbildungen 3.6 und 5.2 im Falle der phononassistierten Exzitondynamik und des Zerfalls des Biexzitons zu sehen sind.

In Kapitel 6.5 wurde bereits die Emissionswahrscheinlichkeit für verschiedene Anregungssymmetrien untersucht. Im Folgenden wird diese Betrachtung unter Berücksichtigung der phononassistierten Prozesse wiederholt. Da bei hohen Temperaturen der Beitrag der Phononen dominant wird und die Einzelphotonemission mit verringerter Effizienz abläuft, wird hier eine niedrige Temperatur von $T = 4\,\mathrm{K}$ gewählt.

Betrachtet man die Biexzitoninitialisierung, so stellt man fest, dass die Wechselwirkung mit Phononen Konkurrenzprozesse begünstigt. Als Konsequenz wird die Pulsfläche des 5 ps-Pulses auf $\Theta = 5.1\,\pi$ erhöht, um eine größere Biexzitonpopulation als Ausgangspunkt für die Einzelphotonemission zu erhalten. Alle weiteren Parameter bleiben gleich.

Abbildung 6.10 zeigt die Emissionswahrscheinlichkeiten für die vier Anregungsgeometrien unter Berücksichtigung der phononassistierten Prozesse bei einer Temperatur von $T = 4\,\mathrm{K}$. Um die maximale Emissionswahrscheinlichkeit aufzufinden, wird die Energie des Pulses, $\hbar\omega_L = E_B - \hbar\omega_{H/V} + \Delta_{2PhR}$, mit Δ_{2PhR} variiert. Die Parameter des Kontrollpulses der Einzelphotonemission mit 15 ps Länge und dem Maximum bei $t_0 = 35\,\mathrm{ps}$ sowie einer Pulsfläche von $\Theta = 7\,\pi$ bleiben unverändert. Es wird die Emissionswahrscheinlichkeit nach 120 ps betrachtet, da in dieser Zeit das erzeugte Einzelphoton vollständig emittiert wurde.

In Abbildung 6.10 **a)** ist die Anregungssituation mit $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 - E_{XX}^B/2 - \Delta$ dargestellt. Man erkennt eine maximale Emissionswahrscheinlichkeit von 59 %. Wie auch

schon im Fall ohne die Berücksichtigung der Phononen festgestellt wurde, wird auch hier die geringste Biexzitonbesetzung durch den Initialisierungspuls erzeugt. Des Weiteren wird durch die Lage des Resonators zum elektronischen Übergang (B) dieser phononassistierte Prozess in der Emission begünstigt, sodass man eine hohe Hintergrundemission ($> 37\,\%$) erhält. Aufgrund der ungünstigen Lage sowohl des Resonators als auch des Kontrollpulses in den jeweiligen Phononseitenbändern ist diese Anregungsanordnung bei den gewählten Parametern nicht geeignet, die Einzelphotonemission effizient zu realisieren.

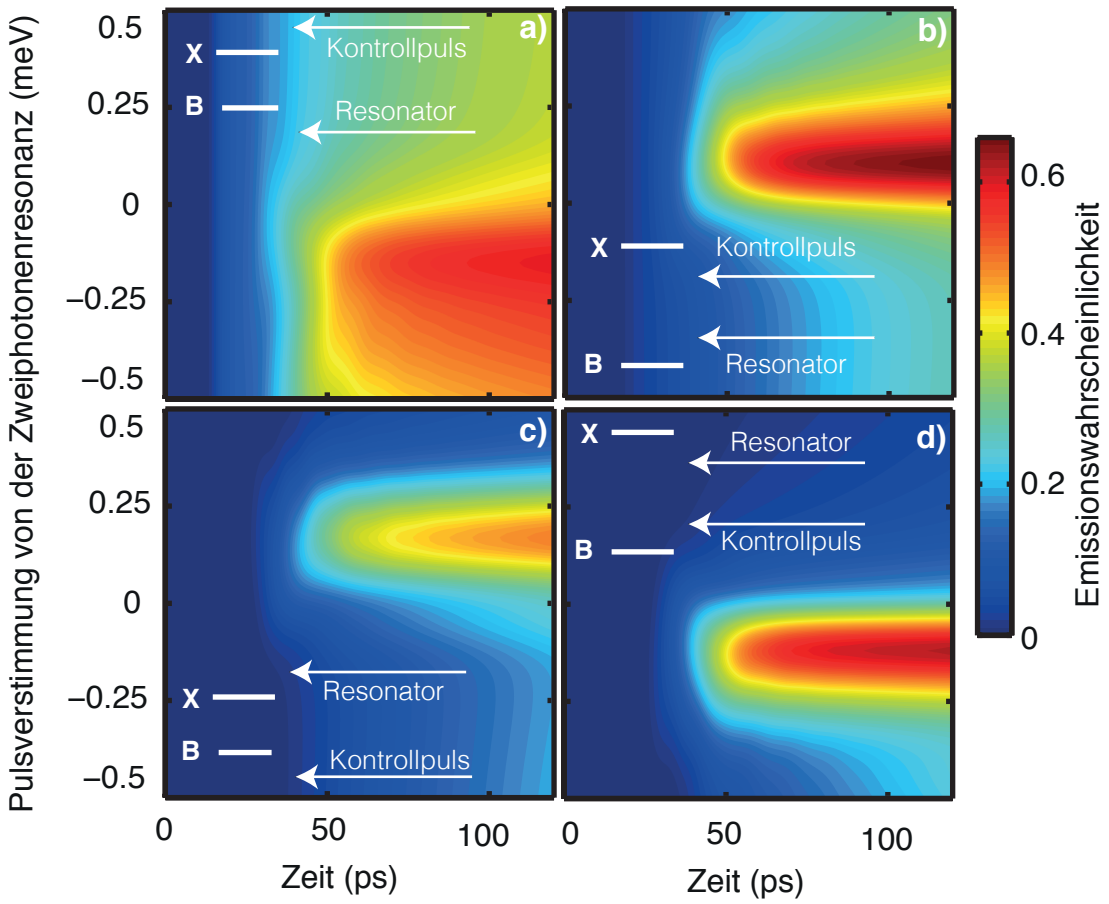


Abbildung 6.10. Emissionswahrscheinlichkeit der Einzelphotonemission für vier verschiedene Anregungsgeometrien unter Berücksichtigung der phononassistierten Prozesse bei $T = 4$ K.

In Abbildung 6.10 **b)** ist die Energie des Resonators $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 - E_{XX}^B/2 + \Delta$. Der Resonator befindet sich in der Nähe des Quantenpunktübergangs (B) vom Biexziton zum Exziton, wobei er nun im blauverschobenen Bereich nicht mehr voll im Phononseitenband liegt und so nur ein kleiner Effekt der Phononen beobachtet wird.

Diese Hintergrundemission beträgt $\sim 26\,\%$ im Vergleich zur maximalen Emissionswahrscheinlichkeit von $\sim 66\,\%$ bei $\Delta_{2PhR} = +0.1\,\text{meV}$, die im Bereich der stimulierten Einzelphotonemission entsteht. Bei dieser Anregungsanordnung kann ein größerer Energieabstand Δ des Resonators von den Quantenpunktübergängen dazu führen, dass die Wechselwirkung mit den Phononen verringert wird, sodass die Einzelphotonen beinahe hintergrundfrei emittiert werden können. Dies geht jedoch nur auf Kosten einer nun geringer ausfallenden Resonanzüberhöhung durch die Quantenpunktübergänge.

Wählt man nun als Resonatorenergie $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 + E_{XX}^B/2 + \Delta$, so ergibt sich ein Verlauf der Emissionswahrscheinlichkeit, wie er in Abbildung 6.10 **c)** dargestellt ist. Der optische Resonator befindet sich nun beim Übergang (X) vom Exziton in den Grundzustand, sodass der (phononassistierte) Zerfall des Biexzitons durch die Resonatormode unterbunden wird. Allerdings ist es in diesem Fall nun möglich, dass der Kontrollpuls, auch wenn dieser nicht resonant mit dem Übergang (B) vom Biexziton ins Exziton ist, mittels phononassistierter Prozesse für $\Delta_{2PhR} < \Delta = 0.3\,\text{meV}$ das Exziton bevölkern kann, sodass die stimulierte Einzelphotonemission nicht mehr exklusiv ausgelöst werden kann. So tritt die maximale Emissionswahrscheinlichkeit von $\sim 50\,\%$ bei $\Delta_{2PhR} = +0.17\,\text{meV}$ auf, wohingegen nach 120 ps der Grundzustand zu $\sim 70\,\%$ und das Exziton noch zu $\sim 20\,\%$ bevölkert ist. Die Einzelphotonemission kann also nicht effizient ablaufen, wenn ein starker Puls im Phononseitenband des Biexzitons die Emission kontrollieren muss, da in diesem Fall andere phononassistierte Emissionsprozesse begünstigt werden.

In Abbildung 6.10 **d)** wird die Emissionswahrscheinlichkeit für die noch verbleibende Einzelphotonemissionsanordnung dargestellt. Die Energie des Resonators beträgt hier $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 + E_{XX}^B/2 - \Delta$. Im Vergleich zum vorangegangenen Fall hat der optische Resonator auch hier eine vorteilhafte Lage für die stimulierte Einzelphotonemission. Die Energie des Kontrollpulses ist gegenüber dem Übergang (B) vom Biexziton zum Exziton blauverstimmt, sodass bei niedrigen Temperaturen die phononassistierten Prozesse nur schwach in Erscheinung treten. Für $\Delta_{2PhR} = -0.12\,\text{meV}$ wird eine maximale Emissionswahrscheinlichkeit von $\sim 62\,\%$ beobachtet, wobei der stimulierte Einzelphotonemissionsprozess isoliert ausgelöst werden kann. Dieses Szenario scheint somit am geeignetsten zu sein, um unter den genannten Bedingungen hintergrundfreie Einzelphotonen mit hoher Emissionswahrscheinlichkeit mittels stimulierter Emission vom Biexziton zu erhalten. Das ultimative Maximum der Einzelphotonemissionswahrscheinlichkeit muss durch Optimierung ermittelt werden und stellt ein eigenständiges Projekt für zukünftige Forschung dar [72].

Phononassistierte Prozesse eröffnen neue Zerfallskanäle, die die Einzelphotonemissionswahrscheinlichkeit bei tiefen Temperaturen geringfügig reduzieren. Aufgrund der Renormalisierung der Licht-Materie-Wechselwirkung durch die Kopplung an ein Phononenbad mit $g \to \langle \mathcal{B} \rangle g$, $\Omega \to \langle \mathcal{B} \rangle \Omega$ ist nun auch der stimulierte Zweiphotonenprozess ($\sim \langle \mathcal{B} \rangle^2 \, g \; b^\dagger \Omega^\dagger |G\rangle\langle B|$) etwas schwächer. Die favorisierten Anregungssymmetrien bleiben jedoch solche, bei denen sowohl der Kontrollpuls als auch der optische Resonator zwischen den optischen Übergängen des Quantenpunktes (B und X) liegt, da so der zugrunde liegende Zweiphotonenprozess von dieser doppelten Resonanzüberhöhung profitieren kann. Aufgrund der Lage der Phononseitenbänder scheint das Emissionsschema, bei dem der optische Resonator gegenüber dem Exziton rotverschoben ist und $\hbar\omega_{H/V} > \hbar\omega_L$ gilt, die reinsten Einzelphotonen zu erzeugen. Weiterhin kann durch spektrale Filterung die Hintergrundemission unterdrückt werden.

6.6. Ununterscheidbarkeit der Einzelphotonen

Ununterscheidbare Einzelphotonen werden in vielen Anwendungsgebieten der Quantentechnologie benötigt, um eine hohe Photon-Photon-Wechselwirkung, zum Beispiel bei der Umsetzung von Zwei-Photonen-Quantengattern, zu erreichen [83]. Im Folgenden wird daher die Ununterscheidbarkeit der Photonen untersucht, die von der vorgestellten Einzelphotonquelle emittiert werden.

6.6.1. Einfluss der Resonatorqualität auf die Ununterscheidbarkeit

Zunächst wird der Einfluss der Resonatorqualität auf die Ununterscheidbarkeit der Einzelphotonen untersucht. Die Effekte der phononassistierten Prozesse werden in Kapitel 6.6.3 untersucht.

Um die Ununterscheidbarkeit der emittierten Photonen zu berechnen, wird der stimulierte Emissionsprozess zweimal nacheinander mit einer Zeitverzögerung zwischen den Pulssequenzen von T_p berechnet. Dabei muss man warten, bis das System in den Grundzustand gelangt ist, bevor der zweite Zyklus gestartet werden kann. Der zweite Emissionsprozess wird benötigt, um den unkorrelierten Zweiphotonenbeitrag zur Normierung zu erhalten. Die Einzelphotonquelle wird vom Grundzustand des Quantenpunktes mittels Zweiphotonenabsorption, $\hbar\omega_L = E_B/2$, initialisiert. Dazu wird wie in Kapitel 6.5 ein 5 ps-Puls mit einer Pulsfläche von $\Theta = 4.2\,\pi$ verwendet. Bei $t_0 = 35\,\mathrm{ps}$ stimuliert ein 15 ps langer Puls mit einer Pulsfläche von $\Theta = 7\,\pi$ die Einzelphotonemission in der H-Mode. Die Anregungsanordnung ist weiterhin so gewählt, dass wie in Abbildung 6.9 bei $\Delta_{2PhR} \approx -0.14\,\mathrm{meV}$ die maximale Emissionswahrscheinlichkeit erreicht wird[1]. Innerhalb eines Zeitfensters von 2 ns hat das System den Grundzustand erreicht und der Einzelphotonemissionsprozess kann wiederholt werden.

Abbildung 6.11 stellt die $g^{(2)}(\tau)$-Funktion für $g/\kappa = 1$ und die Zweiphotonenkoinzidenz sowie die Ununterscheidbarkeit der emittierten Photonen für verschiedene Werte des Verhältnisses g/κ dar. Für $g/\kappa = 1$ sieht man in Abbildung 6.11 **a)**, dass bei einer hohen Resonatorqualität ($Q \approx 21000$ bei einer Wellenlänge von 880 nm) die Zweiphotonenkorrelation um $\tau \approx 0$ nahezu verschwindet. Die berechnete Ununterscheidbarkeit beträgt $I = 0.995$ und ist damit nahe am Maximum. Dies weist auf die hohe Qualität der durch den stimulierten Zweiphotonenprozess vom Biexziton entstandenen Photonen bei hohen

[1] Die pulsinduzierte Verschiebung ist in allen Fällen ungefähr gleich groß und muss nicht an das jeweilige Verhältnis von g/κ angepasst werden.

Verhältnissen von g/κ hin. Es verbleibt noch zu klären, wie die Ununterscheidbarkeit von der Qualität des Resonators abhängt.

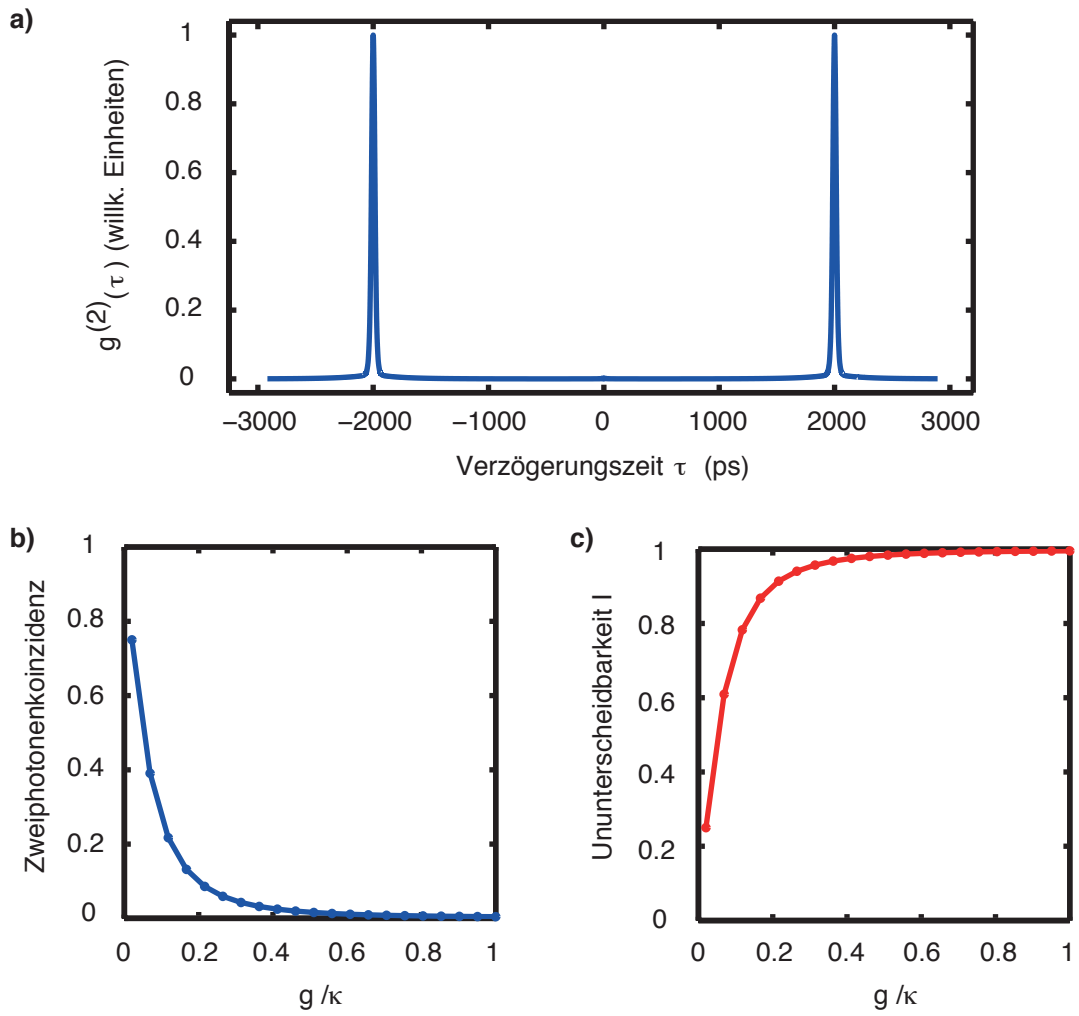


Abbildung 6.11. $g^{(2)}(\tau)$**, Photonenkoinzidenz und Ununterscheidbarkeit:** Für den Fall maximaler Emissionswahrscheinlichkeit mit $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 + E_{XX}^B/2 - 0.3\,\text{meV}$ (vgl. Abbildung 6.9 d)) ist in **a)** die $g^{(2)}(\tau)$-Funktion für $g/\kappa = 1$ abgebildet. In **b)** und **c)** wird die Photonenkoinzidenz beziehungsweise die Ununterscheidbarkeit der Einzelphotonen in Abhängigkeit von der Qualität des optischen Resonators g/κ dargestellt.

In Abbildung 6.11 **b)** und **c)** sind die Zweiphotonenkoinzidenz p sowie die Ununterscheidbarkeit $I = 1 - p$ für verschiedene Werte von g/κ dargestellt, die von der *schwachen* bis zur *starken Kopplung* reichen. Im Bereich der *schwachen Kopplung* bei Werten von $g/\kappa = 0.02$ beziehungsweise $Q = 400$ ist eine relativ große Zweiphotonenkoinzidenz $p = 0.75$ und damit eine vergleichsweise geringe Ununterscheidbarkeit der emittierten Photonen zu beobachten. Dies liegt daran, dass der Kontrollpuls in diesem Fall die

Einzelphotonemission nur in einem geringen Maße stimulieren kann und das System somit mehrheitlich spontan zerfällt. Die Ununterscheidbarkeit steigt für größere g/κ schnell an, da die stimulierte Einzelphotonemission effektiver ausgelöst werden kann. Bei $g/\kappa = 0.4$, was einem Q-Faktor von 8600 bei einer Wellenlänge von $880\,nm$ entspricht, erhält man bereits eine Ununterscheidbarkeit von $I \approx 0.97$. Dies macht deutlich, dass der stimulierte Einzelphotonemissionsprozess nicht auf hohe Resonatorqualitäten angewiesen ist, um ununterscheidbare Photonen zu erzeugen. Es ist zu beachten, dass der Kontrollpuls spektral nicht (stark) mit der Resonatormode gleicher Polarisation überlappt, da der Puls sonst direkt Photonen im Resonator erzeugen könnte. Dies kann man jedoch immer einfach unterdrücken, indem man für den Kontrollpuls eine zirkulare Polarisation verwendet, da dann das Einzelphoton die komplementäre zirkulare Polarisation aufweist. Sowohl für linear als auch für zirkular polarisierte Kontrollpulse verläuft die Einzelphotonemission jedoch gleichartig, sodass hier nur der lineare Fall exemplarisch dargestellt ist. Des Weiteren sei darauf hingewiesen, dass eine spektrale Filterung vor der experimentellen Photondetektion die Ununterscheidbarkeit weiter verbessern kann. Dies gilt insbesondere bei Kavitäten geringer Qualität.

6.6.2. Einfluss des strahlenden Zerfalls und der Dephasierungsrate auf die Ununterscheidbarkeit

Das System aus einem Quantenpunkt und einem optischen Resonator, das zur stimulierten Einzelphotonemission verwendet wird, ist ein offenes Quantensystem. Der strahlende Zerfall und der Dephasierungsprozess stellen zwei wichtige Kopplungen an die Umgebung dar. Im Folgenden wird untersucht, wie diese Prozesse die Ununterscheidbarkeit der emittierten Photonen beeinflussen. Es wird der Fall eines Resonators hoher Qualität ($g/\kappa = 1$) betrachtet. Die Einzelphotonemission wird wie im vorangegangen Kapitel 6.6.1 durchgeführt. Die Rechnungen werden nun für unterschiedliche Kombinationen der Parameter γ_{rad} und γ_{pure} wiederholt, dabei wird die Zeitdifferenz zwischen den Pulssequenzen T_p an die Zerfallsparameter angepasst. Das Ergebnis ist in Abbildung 6.12 dargestellt. Der Wertebereich für den Dephasierungsprozess ist so gewählt, dass Werte für Temperaturen $\leq 20\,\mathrm{K}$ berücksichtigt werden. Für den strahlenden Zerfall γ_{rad} werden Raten im gleichen Energieintervall verwendet.

Aufgrund der hohen Qualität des Resonators ist die Ununterscheidbarkeit nahe Eins. Die Dephasierung der Quantenpunktkohärenzen γ_{pure} führt zu einer Verringerung der Ununterscheidbarkeit mit steigender Dephasierungsrate, da der Zerfall der Quanten-

punktkohärenzen mit γ_{pure} zu einer Verbreiterung der Emissionslinien führt, was die Unterscheidbarkeit der emittierten Photonen erhöht.

Der radiative Zerfall zeigt für große γ_{rad} dieselbe Tendenz. Für kleine Werte des radiativen Zerfalls wird zunächst ein Ansteigen der Ununterscheidbarkeit beobachtet. Dieses Verhalten wird auch in anderen Quantenpunkt-Resonator-Systemen für die Licht-Materiekopplung beobachtet [53]. Der radiative Zerfall γ_{rad} wirkt wie ein Filter für die Resonatormode, da es einen zweiten optischen Zerfallskanal gibt, der jedoch keine Photonen in der Resonatormode erzeugt. Dies führt in Analogie zu den polarsationsverschränkten Photonenpaaren zu einer Erhöhung der untersuchten Quanteneigenschaft. Erst bei hohen Zerfallsraten γ_{rad} führt die Verbreiterung der Emissionslinien zu einer Verringerung der Ununterscheidbarkeit der emittierten Photonen.

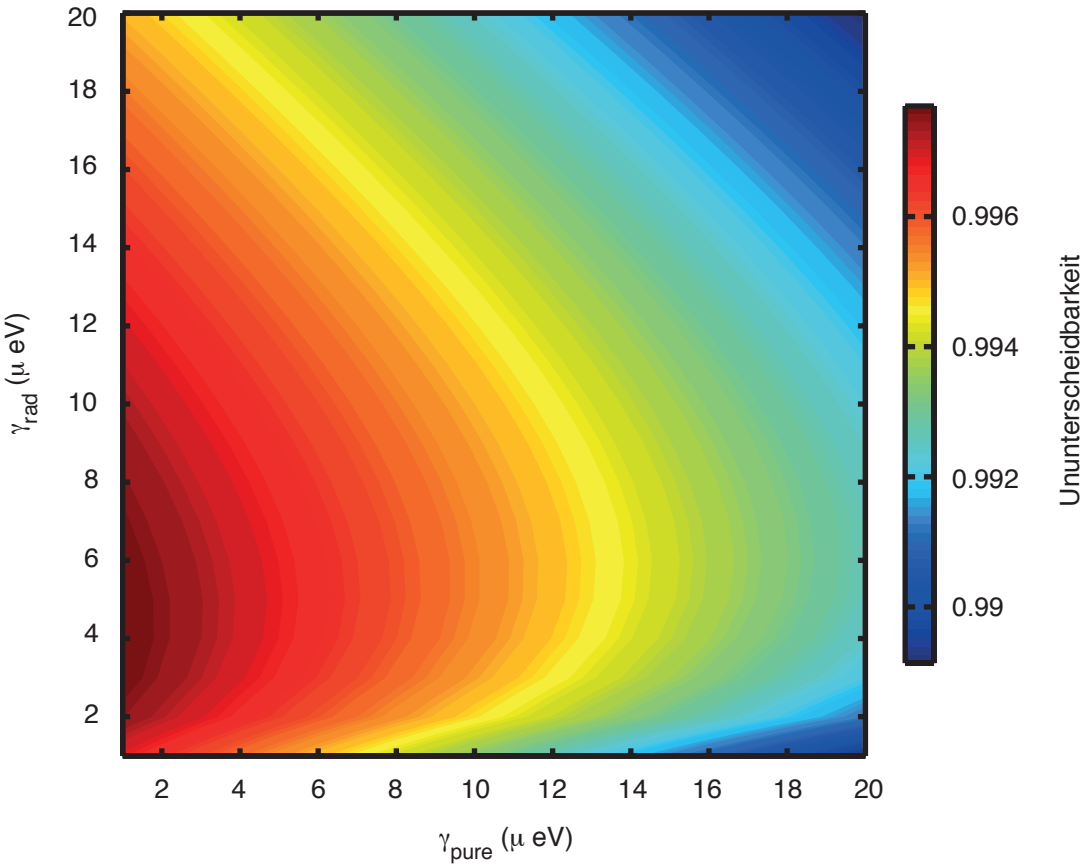


Abbildung 6.12. Einfluss dekohärenter Prozesse auf die Ununterscheidbarkeit für den Fall maximaler Emissionswahrscheinlichkeit mit $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 + E_{XX}^B/2 - 0.3\,\text{meV}$ (vgl. Abbildung 6.9 d)) und $g/\kappa = 1$.

Es lässt sich festhalten, dass die Ununterscheidbarkeit der Photonen, die bei der stimulierten Einzelphotonemission von einem Quantenpunktbiexziton erzeugt werden, in weiten Parameterbereichen einen Wert knapp unterhalb des theoretischen Maximums annimmt. Im vorangegangenen Kapitel konnte gezeigt werden, dass auch für Resonatoren mittlerer Qualität ($g/\kappa = 0.4$) eine sehr hohe Ununterscheidbarkeit erreicht werden konnte. Man kann somit zusammenfassen, dass die vorgestellte Einzelphotonenquelle für viele unterschiedliche Parameter hochgradig ununterscheidbare Photonen emittiert.

6.6.3. Einfluss der phononassistierten Prozesse auf die Ununterscheidbarkeit

Es konnte bereits gezeigt werden, dass die Photonen, die durch stimulierte Einzelphotonemission vom Biexziton erzeugt werden, eine hohe Ununterscheidbarkeit besitzen. Die Untersuchungen zur Emissionswahrscheinlichkeit haben es deutlich gemacht, dass phononassistierte Prozesse die Einzelphotonemission beeinflussen. Im Folgenden wird untersucht, wie die Ununterscheidbarkeit der emittierten Einzelphotonen unter Berücksichtigung dieser phononassistierten Prozesse von der Temperatur T abhängt. Die Ergebnisse sind in Abbildung 6.13 dargestellt. Es werden die Anregungsgeometrien betrachtet, bei denen sowohl die Energie des Resonators als auch die Energie des Kontrollpulses zwischen den Quantenpunktübergängen liegt. Die Parameter sind so gewählt, dass bei $T = 4\,\mathrm{K}$ die maximalen, in Abbildung 6.10 dargestellten Emissionswahrscheinlichkeiten erreicht werden. Es wird nun allein die Temperatur variiert. Die Emission erfolgt aus einer Kavität mit hoher Qualität ($g/\kappa = 1$).

In Abbildung 6.13 **a)** ist die Ununterscheidbarkeit als Funktion der Temperatur T für die Fälle der Resonatorenergien $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 + E_{XX}^B/2 - 0.3\,\mathrm{meV}$ und $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 - E_{XX}^B/2 + 0.3\,\mathrm{meV}$ gezeigt. Aufgrund der energetischen Lage der Resonatoren und der Kontrollpulse im Verhältnis zu den Phononseitenbändern zeigen die dargestellten Kurven einen unterschiedlichen Verlauf. Beim spontanen Zerfall des Biexzitons ins Exziton (B) ist das Phononseitenband bei niedrigen Temperaturen gegenüber der Emissionslinie B rotverschoben, und die phononassistierten Prozesse werden deshalb bei blauverschobenen Resonatoren weitgehend, aber nicht komplett, unterdrückt, sodass die Anregungsanordnung mit der Resonatorenergie $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 - E_{XX}^B/2 + 0.3\,\mathrm{meV}$ nicht so hohe Werte der Ununterscheidbarkeit erreicht wie bei der anderen Anordnung.

Im Fall der Resonatorenergie $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 + E_{XX}^B/2 - 0.3\,\text{meV}$ ist die Kavität weit vom Übergang B entfernt und nur der Kontrollpuls kann während seiner kurzen Zeitspanne mit den Phononen in Wechselwirkung treten, sodass hier bei tiefen Temperaturen eine vergleichsweise hohe Ununterscheidbarkeit zu beobachten ist.

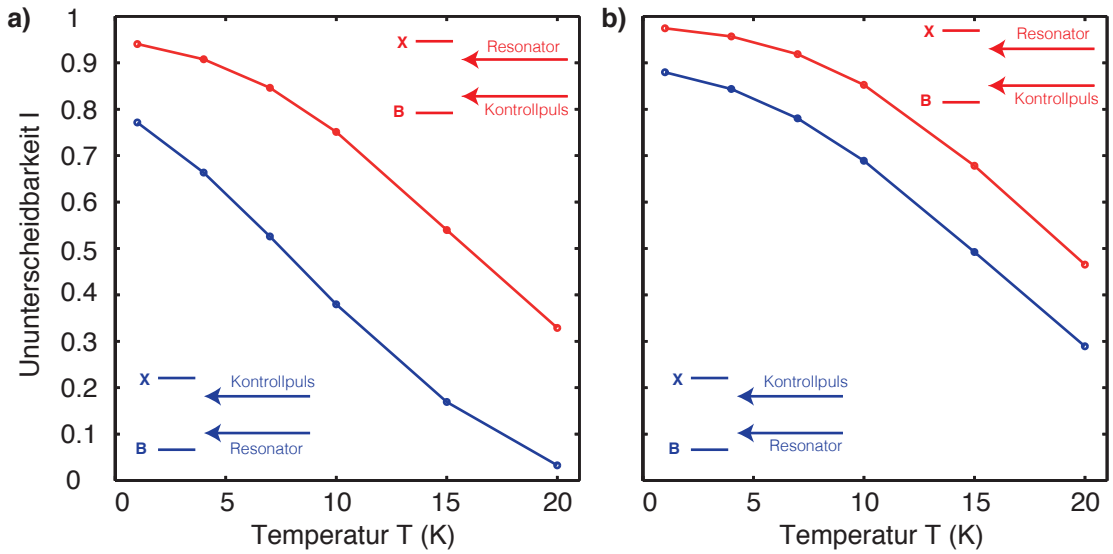


Abbildung 6.13. Einfluss der phononassistierten Prozesse auf die Ununterscheidbarkeit für die Emissionsanordnungen mit $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 + E_{XX}^B/2 - 0.3\,\text{meV}$ (rot) und $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 - E_{XX}^B/2 + 0.3\,\text{meV}$ (blau). In **a)** sind die ungefilterten und in **b)** die gefilterten Daten dargestellt. Details siehe Text.

Mit steigender Temperatur wird das Phononenseitenband symmetrischer im Bezug auf die Emissionslinie B, sodass auch bei einer leicht blauverschobenen Kavität phononassistierte Prozesse verstärkt zu beobachten sind. Dies erklärt das steile Abfallen der blauen Kurve in Abbildung 6.13 **a)**, welches vom phononassistierten Zerfall dominiert wird. Aufgrund der Wechselwirkung des Kontrollpulses und des Resonatores mit den Phononen führt die Erhöhung der Temperatur auch im Falle der Anregungsanordnung mit der Resonatorenergie $\hbar\omega_{H/V} = E_B/2 + E_{XX}^B/2 - 0.3\,\text{meV}$ zu einer sinkenden Ununterscheidbarkeit. Diese Anordnung ist jedoch am geeignetsten, um bei tiefen Temperaturen eine möglichst hohe Ununterscheidbarkeit zu erreichen.

In Abbildung 6.13 **b)** wurde zum Vergleich ein zeitlicher Filter bei der Berechnung der Ununterscheidbarkeit verwendet. Der Filter grenzt den zu integrierenden Zeitbereich auf einen für den Einzelphotonemissionsprozess relevanten Bereich ein, sodass Photonen, die durch spontane und phononassistierte Prozesse erzeugt werden, zu einem großen Teil gefiltert werden. Der relevante Bereich ist durch $t + \tau \leq 120\,\text{ps}$ für $\tau \geq 0$ gegeben.

Den entsprechenden Bereich für $\tau < 0$ erhält man durch Spiegelung an der t-Achse. Um auch den Bereich zu filtern, der für die Normierung verwendet wird, muss das zuvor beschriebene Intervall um $\tau = T_p$ entlang der τ-Achse verschoben werden, wobei T_p die Zeit zwischen den Emissionsprozessen darstellt.

Die Anwendung des Filters erhöht die berechnete Ununterscheidbarkeit der emittierten Photonen, da nun lediglich der Bereich, in dem die Einzelphotonemission zu erwarten ist, die Grundlage für die Auswertung bildet. Dies führt dazu, dass die Photonen aus den Konkurrenzprozessen die Ununterscheidbarkeit nun weniger verringern. Der Filter kann jedoch nicht die strukturellen Unterschiede zwischen den beiden Anregungsszenarien ausgleichen, sodass die Anregungssituation, bei der der Resonator nahe am Übergang X ist, die hochwertigsten Photonen liefert.

Dass die Ununterscheidbarkeit mit steigender Temperatur abnimmt, ist zum einen darauf zurückzuführen, dass die phononassistierten Übergänge verstärkt Photonen im relevanten Zeitintervall des Filters im Resonator erzeugen. Zum anderen werden jedoch aufgrund der temperaturabhängigen Renormalisierung der Kopplungskonstanten ($g \to \langle \mathcal{B} \rangle g$ und $\Omega \to \langle \mathcal{B} \rangle \Omega$) alle Zweiphotonenprozesse und somit auch der stimulierte Einzelphotonprozess ($\langle \mathcal{B} \rangle^2 g\, b^\dagger \Omega^\dagger |G\rangle\langle B|$) mit $\langle \mathcal{B} \rangle^2$ schwächer. So ist bei einer Temperatur von 10 K $\langle \mathcal{B} \rangle = 0.85$ und somit $\langle \mathcal{B} \rangle^2 = 0.72$, was einer Reduzierung der Emissionsrate um 28 % entspricht. Diese kann zum Beispiel durch eine größere Rabi-Energie des Pulses oder im Allgemeinen durch einen angepassten Puls kompensiert werden, was mitunter zu komplexen Optimierungsproblemen führen kann [72]. Eine schwache Kopplung des Quantenpunktes an Phononen ist hier vorteilhaft. Weiterhin ist eine spektrale Filterung des Signals möglich, um die Qualität der Einzelphotonquelle zu verbessern.

Es hat sich gezeigt, dass in Gegenwart phononassistierter Prozesse Einzelphotonen mit hoher Ununterscheidbarkeit durch stimulierte Emission vom Biexziton bei niedrigen Temperaturen erzeugt werden können. Dabei zeichnet sich die Konfiguration von Resonator und Kontrollpuls aus, die auch eine hohe, untergrundfreie Emissionswahrscheinlichkeit begünstigt hat.

7. Zusammenfassung

Quantenlichtquellen sind der Schlüssel zur Quanteninformation und von Bedeutung für die physikalische Grundlagenforschung. Halbleiterquantenpunkte stellen vielversprechende Quellen für Quantenlicht dar und können leicht in Halbleiterchipsätze integriert werden. Nichtlineare Prozesse in Quantenpunkten eröffnen vielfältige Möglichkeiten Quantenlicht mit wenigen Photonen zu erzeugen. In dieser Arbeit wurden zwei Fälle untersucht.

Erzeugung polarisationsverschränkter Photonenpaare
Quantenpunktbiexzitonen emittieren polarisationsverschränkte Photonenpaare. Im Gegensatz zur üblichen Emissionskaskade vom Biexziton wurde hier die direkte Zweiphotonenemission untersucht. Wählt man die Energie eines qualitativ hochwertigen, optischen Resonators so, dass sie der Hälfte der Biexzitonenergie entspricht, so wird der Zweiphotonenzerfallskanal mit hoher Wahrscheinlichkeit bevorzugt. Die auf diese Weise erzeugten Photonen besitzen einen hohen Verschränkungsgrad, der unempfindlich gegenüber der Feinstrukturaufspaltung der Exzitonen ist.

Das Quantensystem koppelt an die Umgebung. Phononassistierte optische Übergänge sind bei Resonatoren hoher Qualität relevant. Es wurden die spektralen Eigenschaften und die Photonenstatistik des emittierten Quantenlichts charakterisiert. Bei tiefen Temperaturen wird der schädliche Einfluss der Wechselwirkung mit Phononen auf den Grad der Polarisationsverschränkung unterdrückt.

Des Weiteren wurde ein Spezialfall des Biexzitonzerfalls in Resonatoren mit zwei Moden unterschiedlicher Energie betrachtet. Wird die Energie der ersten Mode auf den Übergang vom Biexziton zum Exziton und die zweite Mode auf den Übergang vom Exziton zum Grundzustand abgestimmt, so können Einzel- und Zweiphotonenprozesse resonant ablaufen. Auch hier kann ein hoher Grad der Verschränkung erreicht werden.

Einzelphotonquelle mit rein optischer Polarisationskontrolle

Es wurde ein neuartiges Konzept zur Einzelphotonerzeugung, das auf einem Zweiphotonenprozess vom Biexziton in den Grundzustand eines Quantenpunkts basiert, vorgestellt. Bisher wurden Einzelphotonen in Halbleiterquantenpunkten oft durch die Anregung und den Zerfall von einzelnen Zuständen, zum Beispiel einem Exziton, generiert. Hier ist jedoch der Zeitpunkt der Emission zufällig und die Polarisation durch den elektronischen Zustand festgelegt.

In dieser Arbeit wurde der direkte Zweiphotonenübergang vom Biexziton in den Quantenpunktgrundzustand untersucht. Ein Laserpuls treibt das System in einen virtuellen Zustand innerhalb der Bandlücke des Halbleiters. Von diesem Zwischenzustand wird dann ein Einzelphoton emittiert, wenn das System in den Grundzustand relaxiert. Dieser Prozess höherer Ordnung erlaubt die rein optische Kontrolle der Polarisation, der Frequenz und des Emissionszeitpunkts des Einzelphotons. Das Schema der Einzelphotonerzeugung wird von strahlenden Verlusten, Dephasierung und weiteren phononassistierten Prozessen bei tiefen Temperaturen nicht eingeschränkt.

Die Möglichkeit Photonen auf Verlangen zu erzeugen, ist eine Eigenschaft von effizienten Einzelphotonquellen. Mit dem vorgestellten Emissionsschema kann On-Demand-Emission prinzipiell erreicht werden. Auch unter Berücksichtigung von phononassistierten Prozessen in qualitativ hochwertige, optische Resonatoren ist bei tiefen Temperaturen das Potential zur On-Demand-Emission gegeben.

Der vorgestellte Zweiphotonenprozess zur Einzelphotongenerierung kann Photonen mit sehr hoher Ununterscheidbarkeit erzeugen. Auch unter Berücksichtigung von phononassistierten Prozessen ist es möglich, ein Photon durch den Kanal der stimulierten Einzelphotonemission zu erzeugen, sodass bei tiefen Temperaturen eine hohe Ununterscheidbarkeit erreicht werden kann.

Conclusio

Die Untersuchungen haben gezeigt, dass Zweiphotonenübergänge von einem Biexziton in einem Quantenpunkt vielseitige Quantenlichtquellen ermöglichen, die in zukünftigen Anwendungen der Quanteninformationswissenschaft benötigt werden. Phononassistierte Prozesse beeinflussen die Emissionsdynamik. Sie stellen aber bei niedrigen Temperaturen keinen limitierenden Faktor dar. So besteht die Hoffnung, dass auch nichtlineare Prozesse höherer Ordnung die Basis für die Quantenlichtquellen der Zukunft bilden können.

A. *Concurrence*

A.1. Zur Berechnung der *Concurrence*

Hier wird die Formel zur Berechnung der *Concurrence* aus Gleichung 4.6 hergeleitet. Der Grad der Verschränkung wird gemäß Referenz [101] berechnet. Es wird die folgende Dichtematrix

$$\rho = \begin{pmatrix} a & 0 & 0 & c-id \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ c+id & 0 & 0 & b \end{pmatrix} \tag{A.1}$$

(vgl. Abbildung 4.2) betrachtet. Ausgehend von dieser Dichtematrix wird die Matrix für den Zustand mit „gedrehtem“ Spin (*spin flip*)

$$\tilde{\rho} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ -1 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a & 0 & 0 & c-id \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ c+id & 0 & 0 & b \end{pmatrix}^* \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ -1 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \tag{A.2}$$

$$= \begin{pmatrix} b & 0 & 0 & c-id \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ c+id & 0 & 0 & a \end{pmatrix} \tag{A.3}$$

berechnet. Man betrachtet nun die Matrix $R = \sqrt{\sqrt{\rho}\tilde{\rho}\sqrt{\rho}}$. Mit $|\rho_{14}|^2 = (c-id)(c+id)$ ergibt sich

$$R = \begin{pmatrix} \sqrt{ab} & 0 & 0 & |\rho_{14}| \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ |\rho_{14}| & 0 & 0 & \sqrt{ab} \end{pmatrix}. \tag{A.4}$$

Die Eigenwerte dieser Matrix sind $\lambda_1 = 0$, $\lambda_2 = 0$, $\lambda_3 = \sqrt{ab} - |\rho_{14}|$, $\lambda_4 = \sqrt{ab} + |\rho_{14}|$. Für die *Concurrence* C gilt somit

$$\begin{aligned} C &= \max\{0, \lambda_4 - \lambda_3 - \lambda_2 - \lambda_1\} && \text{(A.5)} \\ &= \max\{0, \sqrt{ab} + |\rho_{14}| - (\sqrt{ab} - |\rho_{14}|) - 0 - 0\} && \text{(A.6)} \\ &= 2|\rho_{14}|. && \text{(A.7)} \end{aligned}$$

A.2. Plateaubildung

Abbildung A.1 zeigt den Grad der Verschränkung analog zur Abbildung 5.4 **b)** bei einer Temperatur von 4 K. Für große Werte der Feinstrukturaufspaltung der Exzitonen $|\delta|$ bildet sich ein Plateau, da die Photonen, die durch den direkten Zweiphotonenprozess entstehen, eine *Concurrence* aufweisen, die unabhängig von δ ist.

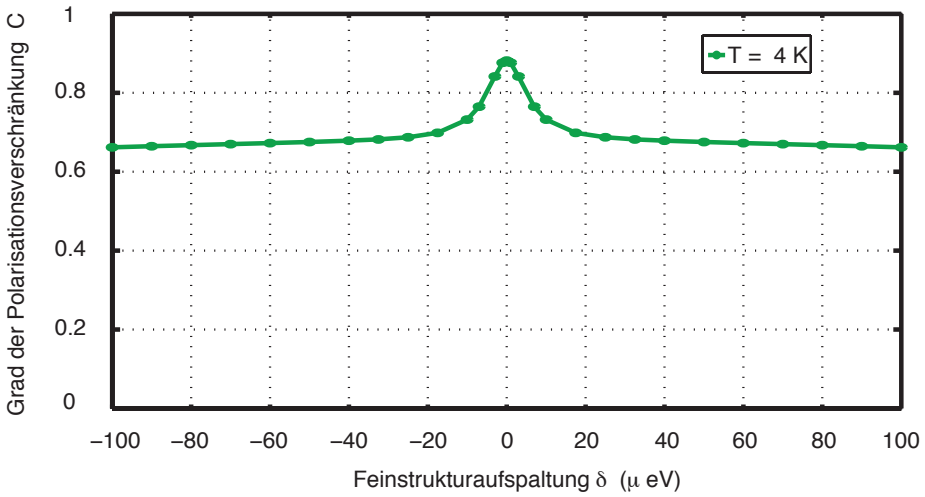


Abbildung A.1. Verschränkte Photonen III: Grad der Polarisationsverschränkung in Abhängigkeit von der Feinstrukturaufspaltung der Exzitonen δ für große Werte von $|\delta|$ bei einer Temperatur von 4 K. Alle weiteren Parameter sind wie in Abbildung 5.4 gewählt.

B. Zeitentwicklungsoperator

B.1. Der Zeitentwicklungsoperator

Es wird die Zeitentwicklung eines Quantenzustands betrachtet [67, 79, 35]. Die Quantenzustände gehorchen der Schrödingergleichung

$$\frac{\partial}{\partial t}|\varphi(t)\rangle = -\frac{i}{\hbar}H(t)|\varphi(t)\rangle. \tag{B.1}$$

Es wird nun der *Zeitentwicklungsoperator* $U(t, t_0)$ definiert als

$$|\varphi(t)\rangle = U(t, t_0)|\varphi(t_0)\rangle, \tag{B.2}$$

und es folgt $U(t_0, t_0) = 1$. Wenn dies in die Schödingergleichung eingesetzt wird, erhält man

$$\frac{\partial}{\partial t}U(t, t_0)|\varphi(t_0)\rangle = -\frac{i}{\hbar}H(t)U(t, t_0)|\varphi(t_0)\rangle. \tag{B.3}$$

Da diese Gleichung für jeden Anfangszustand gilt, folgt

$$\frac{\partial}{\partial t}U(t, t_0) = -\frac{i}{\hbar}H(t)U(t, t_0). \tag{B.4}$$

Die Integration dieser Gleichung ergibt

$$U(t, t_0) = 1 - \frac{i}{\hbar}\int_{t_0}^{t} d\tau\, H(\tau)U(\tau, t_0). \tag{B.5}$$

Durch iterative Lösung erhält man schließlich folgenden Ausdruck

$$U(t, t_0) = 1 + \sum_{i=1}^{\infty}\left(-\frac{i}{\hbar}\right)^n \int_{t_0}^{t} dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \ldots \int_{t_0}^{t_{n-1}} dt_n\, TH(t_1)\ldots H(t_n), \tag{B.6}$$

der als *Dyson-Reihe* bekannt ist. Diese Darstellung wird häufig mit

$$U(t,t_0) = T\exp[-\frac{i}{\hbar}\int_{t_0}^{t} dt\ H(t)] \tag{B.7}$$

abgekürzt und ist nur rein symbolisch zu verstehen. Der Operator T gibt an, dass die nachfolgenden Operatoren zeitlich aufsteigend von rechts nach links geordnet sind.

B.2. Propagatoreigenschaft

Der *Zeitentwicklungsoperator* lässt sich auch auf eine andere Weise darstellen. Dazu wird die Propagatoreigenschaft betrachtet [67]

$$U(t,t_0) = U(t,t_n)U(t_n,t_{n-1})\dots U(t_2,t_1)U(t_1,t_0). \tag{B.8}$$

Teilt man nun das Zeitintervall $[t,t_0]$ in sehr viele, gleich große Intervalle δt auf so lässt sich der *infinitesimale* Zeitentwicklungsoperator definieren [63, 35, 67, 79]

$$U(t+\delta t,t) = 1 - \frac{i}{\hbar}\mathcal{H}(t)\delta t. \tag{B.9}$$

Der gesamte Zeitentwicklungsoperator kann nun als Produkt der infinitesimalen Operatoren geschrieben werden [67]:

$$U(t,t_0) = \left(1-\frac{i}{\hbar}\mathcal{H}(t-\delta t)\delta t\right)\left(1-\frac{i}{\hbar}\mathcal{H}(t-2\delta t)\delta t\right)\dots\left(1-\frac{i}{\hbar}\mathcal{H}(t_0)\delta t\right). \tag{B.10}$$

Man hat nun eine einfache Möglichkeit, den Zeitentwicklungsoperator zu berechnen. Diese entspricht der Berechnung der *Dyson-Reihe* (Gleichung B.6), wenn δt klein genug gewählt wird [67]. Anstatt mehrere hochdimensionale Integrale numerisch auszuwerten, genügt es zur Berechnung von U die Eigenschaft B.9 der Zeitentwicklung auszunutzen. Eine feinere Unterteilung der Zeitschritte führt dazu, dass mehr Terme der Dyson-Reihe berücksichtigt werden [67].

B.3. Spezialfälle

Aus diesen allgemeinen Betrachtungen erhält man einige einfache Spezialfälle. Vertauscht der Hamiltonoperator zu unterschiedlichen Zeiten mit sich selbst, d. h. $[H(t), H(t')] = 0$, so gilt [35]

$$U(t, t_0) = \exp[-\frac{i}{\hbar} \int_{t_0}^{t} d\tau \; H(\tau)]. \tag{B.11}$$

Wenn der Hamiltonoperator zeitunabhängig ist, so vereinfacht sich dieser Ausdruck zu [79]

$$U(t, t_0) = \exp[-\frac{i}{\hbar} \; H \; (t - t_0)]. \tag{B.12}$$

Abbildungsverzeichnis

2.1. Exziton im Quantenpunkt 17
2.2. Das Biexziton und seine optischen Übergänge 19
2.3. Schematische Darstellung der optischen Initialisierung des Biexzitons . 20
2.4. Polarisation elektromagnetischer Felder 21

3.1. Verlust des optischen Resonators 29
3.2. Kopplung an andere Moden 30
3.3. Quantenpunktemission mit Phononen 33
3.4. Spektrale Dichte der Phononen 37
3.5. Phononkorrelationsfunktion und Polaron-Green-Funktionen 41
3.6. Exzitondynamik 43

4.1. Kausale Zeitintegration 46
4.2. Zwei-Photonen-Dichtematrix 48
4.3. Koinzidenzdetektion einzelner Photonen 49

5.1. Schema der Zweiphotonenemission 53
5.2. Spontaner Zerfall des Biexzitons 55
5.3. Emissionsspektren 56
5.4. Verschränkte Photonen I (Resonatorqualität) 59
5.5. Verschränkte Photonen II (Biexzitonbindungsenergie) 60
5.6. Verstimmung des Resonators 61
5.7. Wechselwirkung mit der Umgebung 63
5.8. Photonenstatistik 65
5.9. Schematische Darstellung der Zweiphotonenemission mit bimodalen Kavitäten 67
5.10. Dynamik der Zweiphotonenemission mit bimodalen Kavitäten 70
5.11. Polarisationsverschränkung bei der Emission aus bimodalen Kavitäten . 72

6.1. Schematische Einzelphotonerzeugung 74

6.2. Einzelphotonemission 75
6.3. Pulsinduzierte Resonanzverschiebung 76
6.4. Vollständiger Emissionszyklus 78
6.5. Polarisationskontrolle 80
6.6. Kontrolle des Zeitpunktes der Einzelphotonemission 82
6.7. Einfluss der Dephasierung γ_{pure} auf die Einzelphotonemission 85
6.8. Einfluss des radiativen Zerfalls γ_{rad} auf die Einzelphotonemission 85
6.9. Emissionswahrscheinlichkeit 87
6.10. Emissionswahrscheinlichkeit mit phononassistierten Prozessen 91
6.11. $g^{(2)}(\tau)$, Photonenkoinzidenz und Ununterscheidbarkeit 95
6.12. Einfluss dekohärenter Prozesse auf die Ununterscheidbarkeit 97
6.13. Einfluss phononassistierter Prozesse auf die Ununterscheidbarkeit . . . 99

A.1. Verschränkte Photonen III (große Feinstrukturaufspaltung) 104

Literaturverzeichnis

[1] N. Akopian, N. H. Lindner, E. Poem, Y. Berlatzky, J. Avron, D. Gershoni, B. D. Gerardot, and P. M. Petroff. Entangled photon pairs from semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 96:130501, Apr 2006.

[2] Per-Lennart Ardelt, Lukas Hanschke, Kevin A. Fischer, Kai Müller, Alexander Kleinkauf, Manuel Koller, Alexander Bechtold, Tobias Simmet, Jakob Wierzbowski, Hubert Riedl, Gerhard Abstreiter, and Jonathan J. Finley. Dissipative preparation of the exciton and biexciton in self-assembled quantum dots on picosecond time scales. *Phys. Rev. B*, 90:241404, Dec 2014.

[3] Alexia Auffèves, Benjamin Besga, Jean-Michel Gérard, and Jean-Philippe Poizat. Spontaneous emission spectrum of a two-level atom in a very-high-Q cavity. *Phys. Rev. A*, 77:063833, Jun 2008.

[4] M. Bayer and A. Forchel. Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in $In_{0.60}Ga_{0.40}As$/GaAs self-assembled quantum dots. *Phys. Rev. B*, 65:041308, Jan 2002.

[5] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. A. Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. L. Reinecke, S. N. Walck, J. P. Reithmaier, F. Klopf, and F. Schäfer. Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots. *Phys. Rev. B*, 65:195315, May 2002.

[6] Thomas Belhadj, Claire-Marie Simon, Thierry Amand, Pierre Renucci, Beatrice Chatel, Olivier Krebs, Aristide Lemaître, Paul Voisin, Xavier Marie, and Bernhard Urbaszek. Controlling the polarization eigenstate of a quantum dot exciton with light. *Phys. Rev. Lett.*, 103:086601, Aug 2009.

[7] Simon Benjamin. Single Photons on Demand. *Science*, 290(5500):2273–2274, 2000.

[8] Oliver Benson, Charles Santori, Matthew Pelton, and Yoshihisa Yamamoto. Regulated and entangled photons from a single quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, 84:2513–2516, Mar 2000.

[9] Gabriel Bester, Selvakumar Nair, and Alex Zunger. Pseudopotential calculation of the excitonic fine structure of million-atom self-assembled $In_{1-x}Ga_xAs/GaAs$ quantum dots. *Phys. Rev. B*, 67:161306, Apr 2003.

[10] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang, and D. Bimberg. Ultralong dephasing time in InGaAs quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 87:157401, Sep 2001.

[11] P. Borri, W. Langbein, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, and A. D. Wieck. Exciton dephasing via phonon interactions in InAs quantum dots: Dependence on quantum confinement. *Phys. Rev. B*, 71:115328, Mar 2005.

[12] S. Bounouar, M. Müller, A. M. Barth, M. Glässl, V. M. Axt, and P. Michler. Phonon-assisted robust and deterministic two-photon biexciton preparation in a quantum dot. *Phys. Rev. B*, 91:161302, Apr 2015.

[13] Dik Bouwmeester, Jian-Wei Pan, Klaus Mattle, Manfred Eibl, Harald Weinfurter, and Anton Zeilinger. Experimental quantum teleportation. *Nature*, 390(6660):575–579, 12 1997.

[14] S.J. Boyle, A.J. Ramsay, A.M. Fox, and M.S. Skolnick. Two-color two-photon rabi oscillation of biexciton in single InAs/GaAs quantum dot. *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures*, 42(10):2485 – 2488, 2010. 14th International Conference on Modulated Semiconductor Structures.

[15] R. HANBURY BROWN and R. Q. TWISS. Correlation between photons in two coherent beams of light. *Nature*, 177:27 EP –, 01 1956.

[16] Sonia Buckley, Kelley Rivoire, and Jelena Vućkovic. Engineered quantum dot single-photon sources. *Reports on Progress in Physics*, 75(12):126503, 2012.

[17] Alexander Carmele and Andreas Knorr. Analytical solution of the quantum-state tomography of the biexciton cascade in semiconductor quantum dots: Pure dephasing does not affect entanglement. *Phys. Rev. B*, 84:075328, Aug 2011.

[18] Alexander Carmele, Frank Milde, Matthias-René Dachner, Malek Bagheri Harouni, Rasoul Roknizadeh, Marten Richter, and Andreas Knorr. Formation dynamics

of an entangled photon pair: A temperature-dependent analysis. *Phys. Rev. B*, 81:195319, May 2010.

[19] H. J. Carmichael. *Statistical methods in quantum optics 1: master equations and Fokker-Planck equations*. Springer, Berlin, 2nd edition, 2002.

[20] M. Cygorek, F. Ungar, T. Seidelmann, A. M. Barth, A. Vagov, V. M. Axt, and T. Kuhn. Comparison of different concurrences characterizing photon pairs generated in the biexciton cascade in quantum dots coupled to microcavities. *Phys. Rev. B*, 98:045303, Jul 2018.

[21] E del Valle, A Gonzalez-Tudela, E Cancellieri, F P Laussy, and C Tejedor. Generation of a two-photon state from a quantum dot in a microcavity. *New Journal of Physics*, 13(11):113014, 2011.

[22] Elena del Valle, Stefano Zippilli, Fabrice P. Laussy, Alejandro Gonzalez-Tudela, Giovanna Morigi, and Carlos Tejedor. Two-photon lasing by a single quantum dot in a high-Q microcavity. *Phys. Rev. B*, 81:035302, Jan 2010.

[23] F. Ding, R. Singh, J. D. Plumhof, T. Zander, V. Křápek, Y. H. Chen, M. Benyoucef, V. Zwiller, K. Dörr, G. Bester, A. Rastelli, and O. G. Schmidt. Tuning the exciton binding energies in single self-assembled InGaAs/GaAs quantum dots by piezoelectric-induced biaxial stress. *Phys. Rev. Lett.*, 104:067405, Feb 2010.

[24] Xing Ding, Yu He, Z.-C. Duan, Niels Gregersen, M.-C. Chen, S. Unsleber, S. Maier, Christian Schneider, Martin Kamp, Sven Höfling, Chao-Yang Lu, and Jian-Wei Pan. On-demand single photons with high extraction efficiency and near-unity indistinguishability from a resonantly driven quantum dot in a micropillar. *Phys. Rev. Lett.*, 116:020401, Jan 2016.

[25] J. H. Eberly and K. Wódkiewicz. The time-dependent physical spectrum of light∗. *J. Opt. Soc. Am.*, 67(9):1252–1261, Sep 1977.

[26] M. Fanaei, A. Foerster, H. A. M. Leymann, and J. Wiersig. Effect of direct dissipative coupling of two competing modes on intensity fluctuations in a quantum-dot-microcavity laser. *Phys. Rev. A*, 94:043814, Oct 2016.

[27] Matthias Florian, Paul Gartner, Christopher Gies, and Frank Jahnke. Phonon-mediated off-resonant coupling effects in semiconductor quantum-dot lasers. *New Journal of Physics*, 15(3):035019, 2013.

[28] J. Förstner, C. Weber, J. Danckwerts, and A. Knorr. Phonon-assisted damping of rabi oscillations in semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 91:127401, Sep 2003.

[29] M. Fox. *Quantum Optics: An Introduction.* Oxford Master Series in Physics. OUP Oxford, 2006.

[30] C. Gies, M. Florian, F. Jahnke, and P. Gartner. 3 - modeling single quantum dots in microcavities. In Frank Jahnke, editor, *Quantum Optics with Semiconductor Nanostructures*, Woodhead Publishing Series in Electronic and Optical Materials, pages 78 – 114. Woodhead Publishing, 2012.

[31] Nicolas Gisin, Grégoire Ribordy, Wolfgang Tittel, and Hugo Zbinden. Quantum cryptography. *Rev. Mod. Phys.*, 74:145–195, Mar 2002.

[32] Nicolas Gisin and Rob Thew. Quantum communication. *Nat Photon*, 1(3):165–171, 03 2007.

[33] Roy J. Glauber. The quantum theory of optical coherence. *Phys. Rev.*, 130:2529–2539, Jun 1963.

[34] Alejandro González-Tudela, Elena del Valle, and Fabrice P. Laussy. Optimization of photon correlations by frequency filtering. *Phys. Rev. A*, 91:043807, Apr 2015.

[35] K. Gottfried and T.M. Yan. *Quantum Mechanics: Fundamentals.* Graduate Texts in Contemporary Physics. Springer New York, 2003.

[36] W. Greiner and J. Reinhardt. *Field Quantization.* Springer, 1996.

[37] Chris Gustin and Stephen Hughes. Influence of electron-phonon scattering for an on-demand quantum dot single-photon source using cavity-assisted adiabatic passage. *Phys. Rev. B*, 96:085305, Aug 2017.

[38] R Hafenbrak, S M Ulrich, P Michler, L Wang, A Rastelli, and O G Schmidt. Triggered polarization-entangled photon pairs from a single quantum dot up to 30 K. *New Journal of Physics*, 9(9):315, 2007.

[39] Lukas Hanschke, Kevin A. Fischer, Stefan Appel, Daniil Lukin, Jakob Wierzbowski, Shuo Sun, Rahul Trivedi, Jelena Vučković, Jonathan J. Finley, and Kai Müller. Quantum dot single-photon sources with ultra-low multi-photon probability. *npj Quantum Information*, 4(1):43, 2018.

[40] F. Hargart, M. Müller, K. Roy-Choudhury, S. L. Portalupi, C. Schneider, S. Höfling, M. Kamp, S. Hughes, and P. Michler. Cavity-enhanced simultaneous dressing of quantum dot exciton and biexciton states. *Phys. Rev. B*, 93:115308, Mar 2016.

[41] Yu He, Yu-Ming He, Y.-J. Wei, X. Jiang, M.-C. Chen, F.-L. Xiong, Y. Zhao, Christian Schneider, Martin Kamp, Sven Höfling, Chao-Yang Lu, and Jian-Wei Pan. Indistinguishable tunable single photons emitted by spin-flip raman transitions in ingaas quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 111:237403, Dec 2013.

[42] T. Heindel, A. Thoma, M. von Helversen, M. Schmidt, A. Schlehahn, M. Gschrey, P. Schnauber, J. H. Schulze, A. Strittmatter, J. Beyer, S. Rodt, A. Carmele, A. Knorr, and S. Reitzenstein. A bright triggered twin-photon source in the solid state. *Nature Communications*, 8:14870 EP –, 04 2017.

[43] Alexander Högele, Stefan Seidl, Martin Kroner, Khaled Karrai, Richard J. Warburton, Brian D. Gerardot, and Pierre M. Petroff. Voltage-controlled optics of a quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, 93:217401, Nov 2004.

[44] Ulrich Hohenester. Cavity quantum electrodynamics with semiconductor quantum dots: Role of phonon-assisted cavity feeding. *Phys. Rev. B*, 81:155303, Apr 2010.

[45] Ulrich Hohenester, Gernot Pfanner, and Marek Seliger. Phonon-assisted decoherence in the production of polarization-entangled photons in a single semiconductor quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, 99:047402, Jul 2007.

[46] C. K. Hong, Z. Y. Ou, and L. Mandel. Measurement of subpicosecond time intervals between two photons by interference. *Phys. Rev. Lett.*, 59:2044–2046, Nov 1987.

[47] A. J. Hudson, R. M. Stevenson, A. J. Bennett, R. J. Young, C. A. Nicoll, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie, and A. J. Shields. Coherence of an entangled exciton-photon state. *Phys. Rev. Lett.*, 99:266802, Dec 2007.

[48] J.D. Jackson. *Classical Electrodynamics*. Wiley, third edition, 1998.

[49] F. Jahnke. *Quantum Optics with Semiconductor Nanostructures*. Woodhead Publishing Series in Electronic and Optical Materials. Elsevier Science, 2012.

[50] Harishankar Jayakumar, Ana Predojević, Tobias Huber, Thomas Kauten, Glenn S. Solomon, and Gregor Weihs. Deterministic photon pairs and coherent optical control of a single quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, 110:135505, Mar 2013.

[51] E. T. Jaynes and F. W. Cummings. Comparison of quantum and semiclassical radiation theories with application to the beam maser. *Proceedings of the IEEE*, 51(1):89–109, Jan 1963.

[52] J.D. Joannopoulos, R.D. Meade, J.N. Winn, S.G. Johnson, and Princeton University Press. *Photonic Crystals: Molding the Flow of Light*. Princeton University Press, 1995.

[53] P. Kaer and J. Mørk. Decoherence in semiconductor cavity QED systems due to phonon couplings. *Phys. Rev. B*, 90:035312, Jul 2014.

[54] A. Kiraz, M. Atatüre, and A. Imamoğlu. Quantum-dot single-photon sources: Prospects for applications in linear optics quantum-information processing. *Phys. Rev. A*, 69:032305, Mar 2004.

[55] E. Knill, R. Laflamme, and G. J. Milburn. A scheme for efficient quantum computation with linear optics. *Nature*, 409(6816):46–52, 01 2001.

[56] A. Laucht, N. Hauke, J. M. Villas-Bôas, F. Hofbauer, G. Böhm, M. Kaniber, and J. J. Finley. Dephasing of Exciton Polaritons in Photoexcited InGaAs Quantum Dots in GaAs Nanocavities. *Phys. Rev. Lett.*, 103:087405, Aug 2009.

[57] G. Lindblad. On the generators of quantum dynamical semigroups. *Commun. Math. Phys.*, 48:119, 1976.

[58] R. Loudon. *The Quantum Theory of Light*. OUP Oxford, 2000.

[59] K H Madsen and P Lodahl. Quantitative analysis of quantum dot dynamics and emission spectra in cavity quantum electrodynamics. *New Journal of Physics*, 15(2):025013, 2013.

[60] L. MANDEL and E. WOLF. Coherence properties of optical fields. *Rev. Mod. Phys.*, 37:231–287, Apr 1965.

[61] Ross Manson, Kaushik Roy-Choudhury, and Stephen Hughes. Polaron master equation theory of pulse-driven phonon-assisted population inversion and single-photon emission from quantum-dot excitons. *Phys. Rev. B*, 93:155423, Apr 2016.

[62] Dara P S McCutcheon and Ahsan Nazir. Quantum dot rabi rotations beyond the weak exciton-phonon coupling regime. *New Journal of Physics*, 12(11):113042, 2010.

[63] E. Merzbacher. *Quantum Mechanics*. Wiley, 1998.

[64] P. Meystre and M. Sargent. *Elements of Quantum Optics*. Springer Berlin Heidelberg, 1998.

[65] P. Michler. *Single Semiconductor Quantum Dots*. NanoScience and Technology. Springer Berlin Heidelberg, 2009.

[66] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, Lidong Zhang, E. Hu, and A. Imamoglu. A quantum dot single-photon turnstile device. *Science*, 290(5500):2282–2285, 2000.

[67] S. Mukamel. *Principles of nonlinear optical spectroscopy*. Oxford series in optical and imaging sciences. Oxford University Press, 1995.

[68] M. Müller, S. Bounouar, K. D. Jöns, M. Glässl, and P. Michler. On-demand generation of indistinguishable polarization-entangled photon pairs. *Nat Photon*, 8(3):224–228, 03 2014.

[69] Yasutomo Ota, Satoshi Iwamoto, Naoto Kumagai, and Yasuhiko Arakawa. Spontaneous two-photon emission from a single quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, 107:233602, Nov 2011.

[70] P. K. Pathak and S. Hughes. Coherently triggered single photons from a quantum-dot cavity system. *Phys. Rev. B*, 82:045308, Jul 2010.

[71] A. Poppe, A. Fedrizzi, R. Ursin, H. R. Böhm, T. Lorünser, O. Maurhardt, M. Peev, M. Suda, C. Kurtsiefer, H. Weinfurter, T. Jennewein, and A. Zeilinger. Practical quantum key distribution with polarization entangled photons. *Opt. Express*, 12(16):3865–3871, Aug 2004.

[72] Tom Praschan. Private Kommunikation, 2018.

[73] J. H. Quilter, A. J. Brash, F. Liu, M. Glässl, A. M. Barth, V. M. Axt, A. J. Ramsay, M. S. Skolnick, and A. M. Fox. Phonon-assisted population inversion of a single InGaAs/GaAs quantum dot by pulsed laser excitation. *Phys. Rev. Lett.*, 114:137401, Mar 2015.

[74] D E Reiter, T Kuhn, M Glässl, and V M Axt. The role of phonons for exciton and biexciton generation in an optically driven quantum dot. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 26(42):423203, 2014.

[75] G. Reithmaier, S. Lichtmannecker, T. Reichert, P. Hasch, K. Müller, M. Bichler, R. Gross, and J. J. Finley. On-chip time resolved detection of quantum dot emission using integrated superconducting single photon detectors. *Scientific Reports*, 3:1901 EP –, 05 2013.

[76] S. Rodt, R. Heitz, A. Schliwa, R. L. Sellin, F. Guffarth, and D. Bimberg. Repulsive exciton-exciton interaction in quantum dots. *Phys. Rev. B*, 68:035331, Jul 2003.

[77] C. Roy and S. Hughes. Influence of electron-acoustic-phonon scattering on intensity power broadening in a coherently driven quantum-dot-cavity system. *Phys. Rev. X*, 1:021009, Nov 2011.

[78] C. Roy and S. Hughes. Polaron master equation theory of the quantum-dot Mollow triplet in a semiconductor cavity-QED system. *Phys. Rev. B*, 85:115309, Mar 2012.

[79] J.J. Sakurai. *Modern Quantum Mechanics*. The Benjamin / Cummings Publishing Company, Inc., 1985.

[80] W. Schäfer and M. Wegener. *Semiconductor Optics and Transport Phenomena*. Advanced Texts in Physics. Springer, 2002.

[81] Stefan Schumacher, Jens Förstner, Artur Zrenner, Matthias Florian, Christopher Gies, Paul Gartner, and Frank Jahnke. Cavity-assisted emission of polarization-entangled photons from biexcitons in quantum dots with fine-structure splitting. *Opt. Express*, 20(5):5335–5342, Feb 2012.

[82] R. Seguin, A. Schliwa, S. Rodt, K. Pötschke, U. W. Pohl, and D. Bimberg. Size-dependent fine-structure splitting in self-organized InAs/GaAs quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 95:257402, Dec 2005.

[83] Pascale Senellart, Glenn Solomon, and Andrew White. High-performance semiconductor quantum-dot single-photon sources. *Nature Nanotechnology*, 12:1026 EP –, 11 2017.

[84] Andrew J. Shields. Semiconductor quantum light sources. *Nature Photonics*, 1:215 EP –, 04 2007.

[85] Bruce W. Shore and Peter L. Knight. The Jaynes – Cummings Model. *Journal of Modern Optics*, 40(7):1195–1238, 1993.

[86] C. D. Simserides, U. Hohenester, G. Goldoni, and E. Molinari. Local absorption spectra of artificial atoms and molecules. *Phys. Rev. B*, 62:13657–13666, Nov 2000.

[87] T. M. Stace, G. J. Milburn, and C. H. W. Barnes. Entangled two-photon source using biexciton emission of an asymmetric quantum dot in a cavity. *Phys. Rev. B*, 67:085317, Feb 2003.

[88] R. M. Stevenson, R. J. Young, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie, and A. J. Shields. A semiconductor source of triggered entangled photon pairs. *Nature*, 439:179 EP –, 01 2006.

[89] E. Stock, F. Albert, C. Hopfmann, M. Lermer, C. Schneider, S. Höfling, A. Forchel, M. Kamp, and S. Reitzenstein. On-chip quantum optics with quantum dot microcavities. *Advanced Materials*, 25(5):707–710, 2013.

[90] S. Strauf and F. Jahnke. Single quantum dot nanolaser. *Laser & Photonics Reviews*, 5(5):607–633, 2011.

[91] Stefan Strauf, Nick G. Stoltz, Matthew T. Rakher, Larry A. Coldren, Pierre M. Petroff, and Dirk Bouwmeester. High-frequency single-photon source with polarization control. *Nature Photonics*, 1:704 EP –, 11 2007.

[92] S. Stufler, P. Machnikowski, P. Ester, M. Bichler, V. M. Axt, T. Kuhn, and A. Zrenner. Two-photon Rabi oscillations in a single InGaAs/GaAs quantum dot. *Phys. Rev. B*, 73:125304, 2006.

[93] Yong-Nan Sun, Yang Zou, Geng Chen, Jian-Shun Tang, Hai-Qiao Ni, Mi-Feng Li, Guo-Wei Zha, Zhi-Chuan Niu, Yong-Jian Han, Chuan-Feng Li, and Guang-Can Guo. Measurement of the inhomogeneous broadening of a bi-exciton state in a quantum dot using franson-type nonlocal interference. *Opt. Express*, 25(3):1778–1788, Feb 2017.

[94] F. Troiani, J. I. Perea, and C. Tejedor. Cavity-assisted generation of entangled photon pairs by a quantum-dot cascade decay. *Phys. Rev. B*, 74:235310, Dec 2006.

[95] Filippo Troiani and Carlos Tejedor. Entangled photon pairs from a quantum-dot cascade decay: The effect of time reordering. *Phys. Rev. B*, 78:155305, Oct 2008.

[96] R. Trotta, E. Zallo, C. Ortix, P. Atkinson, J. D. Plumhof, J. van den Brink, A. Rastelli, and O. G. Schmidt. Universal recovery of the energy-level degeneracy

of bright excitons in ingaas quantum dots without a structure symmetry. *Phys. Rev. Lett.*, 109:147401, Oct 2012.

[97] H. W. van Kesteren, E. C. Cosman, W. A. J. A. van der Poel, and C. T. Foxon. Fine structure of excitons in type-II GaAs/AlAs quantum wells. *Phys. Rev. B*, 41:5283–5292, Mar 1990.

[98] Michael Varnava, Daniel E. Browne, and Terry Rudolph. How good must single photon sources and detectors be for efficient linear optical quantum computation? *Phys. Rev. Lett.*, 100:060502, Feb 2008.

[99] Yu-Jia Wei, Yu-Ming He, Ming-Cheng Chen, Yi-Nan Hu, Yu He, Dian Wu, Christian Schneider, Martin Kamp, Sven Höfling, Chao-Yang Lu, and Jian-Wei Pan. Deterministic and robust generation of single photons from a single quantum dot with 99.5% indistinguishability using adiabatic rapid passage. *Nano Letters*, 14(11):6515–6519, 2014. PMID: 25357153.

[100] J. Wiersig, C. Gies, F. Jahnke, M. Aßmann, T. Berstermann, M. Bayer, C. Kistner, S. Reitzenstein, C. Schneider, S. Höfling, A. Forchel, C. Kruse, J. Kalden, and D. Hommel. Direct observation of correlations between individual photon emission events of a microcavity laser. *Nature*, 460:245 EP –, 07 2009.

[101] William K. Wootters. Entanglement of formation of an arbitrary state of two qubits. *Phys. Rev. Lett.*, 80:2245–2248, Mar 1998.

[102] Alois Würger. Strong-coupling theory for the spin-phonon model. *Phys. Rev. B*, 57:347–361, Jan 1998.

[103] Y. Yamamoto and A. Imamoglu. *Mesoscopic Quantum Optics*. Wiley, 1999.

[104] T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H. M. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O. B. Shchekin, and D. G. Deppe. Vacuum rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity. *Nature*, 432:200 EP –, 11 2004.

Liste der Publikationen

[105] Dominik Breddermann, Tom Praschan, **Dirk Heinze**, Rolf Binder, and Stefan Schumacher. Microscopic theory of cavity-enhanced single-photon emission from optical two-photon raman processes. *Phys. Rev. B*, 97:125303, Mar 2018.

[106] Dominik Breddermann, **Dirk Heinze**, Rolf Binder, Artur Zrenner, and Stefan Schumacher. All-optical tailoring of single-photon spectra in a quantum-dot microcavity system. *Phys. Rev. B*, 94:165310, Oct 2016.

[107] Hong Liu, **Dirk Heinze**, Huynh Thanh Duc, Stefan Schumacher, and Torsten Meier. Curvature effects in the band structure of carbon nanotubes including spin-orbit coupling. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 27(44):445501, 2015.

[108] **Dirk Heinze**, Dominik Breddermann, Artur Zrenner, and Stefan Schumacher. A quantum dot single-photon source with on-the-fly all-optical polarization control and timed emission. *Nature Communications*, 6:8473, 2015.

[109] **Dirk Heinze**, Artur Zrenner, and Stefan Schumacher. Polarization-entangled twin photons from two-photon quantum-dot emission. *Phys. Rev. B*, 95:245306, Jun 2017.

Diese Arbeit basiert auf den Publikationen [108, 109] sowie der zugehörigen *Supplementary Information* und stellt die behandelten Themen in einen gemeinsamen Rahmen, der um die Aspekte des spontanen Zerfalls eines Biexzitons in bimodale Kavitäten sowie um die Untersuchung der Emissionswahrscheinlichkeit und der Ununterscheidbarkeit der Photonen der Einzelphotonquelle unter Berücksichtigung phononassistierter Prozesse ergänzt wurde.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich jedem meinen Dank aussprechen, der mich in den letzten Jahren begleitet, unterstützt und gefördert hat.

An erster Stelle danke ich Herrn Prof. Dr. Stefan Schumacher für die gute Betreuung meiner Arbeit.

Für die Erstellung des zweiten Gutachtens bedanke ich mich bei Herrn Prof. Dr. Jens Förstner.

Der schönen Atmosphäre wegen bin ich den aktuellen und ehemaligen Mitgliedern der Arbeitsgruppen *Theorie Funktionaler Photonischer Strukturen* und *Computational Optoelectronics and Photonics* verbunden.

Ich danke besonders meiner Familie für ihre Unterstützung.