

Zeitaufgelöste Transportspektroskopie an gekoppelten 2D-0D-Systemen

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

Dissertation

von

Andreas Martin Beckel
geboren in Oberhausen

Mitglieder der Prüfungskommission:

Vorsitzende: Prof. Dr. Rossitza Pentcheva
Gutachter: Prof. Dr. Axel Lorke
Prof. Dr. Cedrik Meier
Prof. Dr. Jürgen König
Prüfer: Prof. Dr. Michael Horn-von Hoegen

Tag der mündlichen Prüfung:

11. September 2014

Zusammenfassung

Diese Arbeit untersucht die elektronische Niveaustuktur selbstorganisierter InAs-Quantenpunkte über die Tunnelkopplung an ein zweidimensionales Elektronenreservoir. Im Fokus stehen dabei neben den Vielteilchen-Grundzuständen der bis zu sechsfach besetzbaren Quantenpunkte auch die *angeregten Zustände* mit ein- und zweifacher Besetzungszahl, also die des Quantenpunkt-Wasserstoffs bzw. Heliums. Die Dynamik des Tunnelvorgangs aus den Quantenpunkten heraus kann hier zum ersten mal gezielt genutzt werden, um das Anregungsspektrum der Wasserstoff- und Helium-Konfigurationen für die ersten drei Schalen (*s,p* und *d*) herauszufiltern. Die beobachteten Schalenabstände lassen sich dabei in guter Näherung mit einem einfachen Modell für die Additionsenergien der Einteilchen-Zustände, aus den Vielteilchen-Grundzuständen ableiten.

Ein Vergleich von Lade- und Entladedynamik der *Grundzustände* ermöglicht darüber hinaus eine Aufschlüsselung der Entartung beim Auffüllen der ersten sechs Elektronen. Ohne Zuhilfenahme eines Magnetfeldes kann hier gezeigt werden, dass das einschließende Potential der Quantenpunkte eine Asymmetrie aufweist, die zu einer Aufhebung der Entartung in der *p*-Schale der Quantenpunkte führt. Durch eine Messung des Tunnelstroms bei einem angelegten Magnetfeld kann diese Anisotropie durch eine Deformation der Wellenfunktion in den Quantenpunkten bestätigt werden. Hierbei zeigt sich auch, dass die Quantisierung des Elektronenreservoirs, mit Bewegungsfreiheitsgraden senkrecht zur Tunnelrichtung, beim Übergang nicht vernachlässigt werden kann. Quer zur Tunnelrichtung kann der Fermi-Impuls der Elektronen im Reservoir dabei nur schlecht von den, im Impulsraum lokalisierten, Grundzuständen der Quantenpunkte aufgenommen werden.

Im Experiment dient das Elektronengas nicht nur als Elektronenreservoir, sondern auch als *Detektor* der Ladung in den Quantenpunkten, die sich zeitaufgelöst als Verringerung der Leitfähigkeit beobachten lässt. In dieser Arbeit wird gezeigt, dass die Ladung der Quantenpunkte ausschließlich durch Abschirmung auf die spannungsgesteuerte Ladungsträgerdichte im Elektronengas wirkt und ein Einfluss auf die Beweglichkeit durch Streuung an geladenen Quantenpunkten vernachlässigt werden kann. Des weiteren wird gezeigt, dass sich das Elektronengas als schneller, wie auch als empfindlicher Detektor gegenüber etablierten Methoden eignet. So kann das Auslesen der Ladungsinformation in den Quantenpunkten mit einer Zeitaufösung von 3 ns demonstriert und getrennt auflösbare Subensembles innerhalb einer Probe mit 100 Quantenpunkten detektiert werden.

Abstract

The electronic structure of self-assembled InAs quantum dots is investigated via the coupling to a two-dimensional electron reservoir. Apart from the many-electron ground states of the quantum dots, which can be charged with up to six electrons, this work is also focused on the *excited states* of the one- and two-electron configurations, i.e. quantum dot hydrogen and helium. For the first time, the dynamics of the electron emission processes are used to filter the excited level spectrum with respect to the occupation number to clearly resolve the *s*-, *p*- and *d*-shells for the hydrogen and helium configurations. A simple model, which takes the addition energies of the many-particle ground states into account, gives good agreement to the observed separation between the shells.

Furthermore, a comparison of the charging and discharging dynamics of the *ground states* allows to break down the degeneracy of states for the first six electrons filling the *s*- and *p*-shells. Without the need for a magnetic field it can be shown, that the confining potential of the quantum dots exhibits a significant asymmetry, lifting the degeneracy for the four states in the *p*-shell, leaving only spin degeneracy. From a measurement of the tunneling current in an applied magnetic field this anisotropy can be confirmed as a deformation of the wave functions in the quantum dots. In this context it is also shown, that the confining potential of the electrons in the reservoir, which allows freedom of movement only perpendicular to the tunneling current, also affects the transition probability, as the high Fermi momentum does not fit well into the localized ground state of the quantum dots.

In the experiment the electron gas is not only used as reservoir, but also as a *detector* for the charge in the quantum dots, which can be observed as a drop in conductivity during the tunneling process. The effect of the charged quantum dots on the conductivity is shown to arise solely from screening the field-effect induced carriers in the electron gas while any scattering effects can be neglected. Furthermore, it is shown that the detection via conductance is fast as well as sensitive in comparison to established methods such as capacitance spectroscopy. It is demonstrated, that the charge in the quantum dots can be read-out within 3 ns and sub-ensembles in a sample with 100 dots can be resolved separately.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Niedrigdimensionale Systeme	4
2.1	Zweidimensionale Elektronensysteme	4
2.2	Nulldimensionale Elektronensysteme	9
2.2.1	Selbstorganisierte Quantenpunkte	10
2.3	Kopplung von Quantenpunkten und Elektronengasen	14
3	Zeitaufgelöste Leitfähigkeitsspektroskopie	19
3.1	Probenstruktur - Floating-Gate-Transistor	19
3.2	Detektion durch Verarmung	21
3.3	Messmethode: Dynamische Trennung der Ladevorgänge	23
4	Ladedynamik aus festen Ausgangszuständen	26
4.1	Abschirmung oder Streuung: Die Rolle der Quantenpunktladung	26
4.2	Spektrale Entwicklung: Die Rolle angeregter Zustände	31
4.2.1	Evolution der Zustandsdichte	31
4.2.2	Dynamik von Quantenpunkt-Wasserstoff	34
4.2.3	Dynamik von Quantenpunkt-Helium	38
5	Dynamik von Vielteilchen-Zuständen	42
5.1	Asymmetrie der Dynamik: Die Rolle der Entartung	43
5.2	Magnetotunneln: Die Rolle der Impulserhaltung	49
6	Perspektiven	54
6.1	Operationszeiten für Speicheranwendungen	54
6.2	Jenseits des Ensembles: Skalierungseigenschaften	59
7	Zusammenfassung und Ausblick	67
A	Probendaten	81

Kapitel 1

Einleitung

In den vergangenen Dekaden wurde der enorme Leistungsgewinn elektronischer Bauelemente hauptsächlich durch die Verringerung ihrer Strukturgrößen ermöglicht. Mit der Verkleinerung ließen sich nicht nur mehr Transistoren für immer anspruchsvollere Rechenoperationen nutzen, ihre Schaltgeschwindigkeit und Leistungsaufnahme profitierten ebenso von den kleineren Flächen. Der wachsende Bedarf an immer leistungsfähigerer Elektronik hat dazu geführt, dass eine Beobachtung zum Anstieg der Integrationsdichte von Gordon Moore aus dem Jahre 1965 [Moore65] bis heute nichts von ihrer Gültigkeit verloren hat und später durch Carver Mead passenderweise als *Moore'sches Gesetz* allgemein bekannt wurde. Obwohl die Beobachtung Moores kein Postulat aufgrund eines Naturgesetzes ist, sondern eher ein wirtschaftliches Phänomen beschreibt, stellt sich auch beim Erreichen von Größenskalen weniger Nanometer kaum die Frage *ob*, sondern lediglich *wie* das Gesetz in Zukunft eingehalten wird. In wieweit diese Zukunft dabei allein auf Silizium aufbauen wird ist jedoch fraglich. So wurden bereits Alternativen für einen der wesentlichen Faktoren des Siegeszugs der Silizium-Technik eingeführt, als Intel mit der Umstellung auf die 45-nm-Technologie im Jahre 2007 das native Oxid durch Hafnium-basierte, sogenannte High-k-Materialien als Dielektrikum ersetzte.

Für die Aufrechterhaltung des Mooreschen Gesetzes wird damit auch immer mehr die Suche nach neuen Materialien relevant, um die Begrenzungen der Silizium-Technik zu überwinden [King13]. Besonders vielversprechend sind dabei Verbindungshalbleiter aus Elementen der dritten und fünften Hauptgruppe wie GaAs, AlAs, InAs, etc. sowie ihre Mischungen zu ternären und quaternären Verbindungen [delAlamo11]. Transistoren auf GaAs-Basis sind dabei bereits fester Bestandteil unseres Alltags, denn sie sind für mobile Breitbandkommunikation unverzichtbar, deren rapide Zunahme gleichermaßen einen Rekordzuwachs der GaAs-Industrie im Jahr 2011 bedingte. Verantwortlich für den Erfolg von GaAs sind dabei zum einen seine reinen Materialeigenschaften, wie beispielsweise die im Vergleich zu Si höhere Elektronenbeweglichkeit. Mit der Entwicklung moderner Herstellungsverfahren, wie der Molekularstrahl-Epitaxie (MBE¹) [Cho75] und der Möglichkeit unterschiedliche Halbleiter mit Monolagenpräzision, defektfrei aufeinander aufzubauen, kommt den III-V-Verbindungen jedoch eine weitere besondere Bedeutung zu. So lassen sich die Verbindungen $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ nahezu spannungsfrei auf GaAs aufwachsen. Ihre unterschiedlichen Bandlücken ermöglichen aber die präzise Einstellung der Energien in Leitungs- oder Valenzband, um so Potentia-

¹Molecular Beam Epitaxy

le für Elektronen oder Löcher zu definieren. An Grenzflächen oder in Potentialtöpfen lassen sich so zweidimensionale Elektronensysteme erzeugen, deren Einschränkung ihren Bauelementen neue Eigenschaften verleihen, wie negativ differentielle Widerstände [Esaki70] oder extrem hohe Beweglichkeiten [Dingle78].

Aber auch das verspannte Wachstum lässt sich ausnutzen, zur selbstorganisierten Herstellung dreidimensionaler Strukturen auf der Nanometerskala, sogenannter Quantenpunkte. Derartige Bottom-Up-Verfahren sind nicht nur als wirtschaftlichere Alternative der etablierten, aber immer kostspieligeren Top-Down-Verfahren anzusehen. Selbstorganisierte Strukturen zeichnen sich oft auch durch überragende Eigenschaften wie hohe Homogenität oder geringe Defektdichten aus. Am weitesten entwickelt und bereits von kommerzieller Bedeutung² sind dabei Quantenpunkte aus InAs, eingebettet in GaAs, die Laser mit einstellbaren Wellenlängen im Bereich von 1100 bis 1300 nm erlauben, die sich durch hohe Schaltgeschwindigkeit und Temperaturstabilität bei reduzierten Schwellströmen auszeichnen [Kirstaedter94, Bimberg97]. Trotz des hohen Verständnisses, das über die Jahre entwickelt wurde, sind diese Systeme aber keineswegs uninteressant für die Grundlagenforschung. In dem effektiven Medium verhalten sich die nanometergroßen Inseln wie künstliche Atome und zeigen starke Coulomb- und Quantisierungseffekte. Durch die gezielte Kopplung an Ladungsreservoirs oder exzitronische Anregung lassen sich Wechselwirkungen zwischen verschiedenen Ladungsträgerkomplexen studieren. Besonders interessant waren und sind dabei korrelierte Effekte [Hawrylak93, Kleemans10, Labud14], zu denen auch der Kondo-Effekt zählt [Igarashi07, Shibata08, Kanai10]. Aber auch Spin-Zustände und ihre Manipulation sind von großem Interesse [Kroutvar04, dosSantos11, Warburton13], angetrieben durch die Aussicht auf eine Anwendung in zukünftigen Quantencomputern [Loss98, Ladd10].

Auch wenn die natürliche Grenze einzelner Atome noch nicht Gegenstand gegenwärtiger Prognosen der ITRS³ ist, so sind bereits jetzt Größenskalen erreicht, bei denen Quantenmechanik eine immer größere Rolle bei der Funktionsweise bzw. der Realisierung von Bauelementen spielt. Diese Effekte können von Nachteil sein, wie beispielsweise durch Tunneleffekte verursachte Leckströme [Frank02]. Sie bieten aber auch die Möglichkeit bestehende Technologie effektiver zu machen, wie im Fall des Quantenpunktlasers. Wie das starke Interesse am Forschungsfeld des Quantencomputers, jenseits der klassischen Computeralgorithmen [Shor97] zeigt, sind aber auch völlig neue Ansätze zu klassisch etablierten Konzepten denkbar. An der Grenze zwischen dem rein quantenmechanischen Mikrokosmos der atomaren Welt und der makroskopischen Welt unserer Alltagserfahrung, sollte die Aufgabe der Nanotechnologie also nicht nur darin bestehen, das Mooresche Gesetz in den Mikrokosmos zu führen, sondern auch die Vorzüge beider Welten zu neuen Anwendungen zu vereinen.

In dieser Arbeit wird die Kopplung zwischen einem zweidimensionalen Elektronengas und selbstorganisiert gewachsenen InAs-Quantenpunkten untersucht. Die beiden Systeme sind dabei zu einer Art Flash-Speicher kombiniert, bei dem das Elektronengas als Ladungsdetektor der Quantenpunkte agiert (Abb. 1.1). Ein naheliegendes Anwendungsziel ist daher der Einsatz als Speicherbaustein, worauf in Kapitel 6 näher eingegangen wird. Eine neu entwickelte Methode zur Präparation von Nicht-Gleichgewichten zwischen den zwei gekoppelten Systemen [Marquardt09, Marquardt11b] eröffnet

²Quantenpunktlaser sind z.B. bei www.innolume.com oder www.qdlaser.com erhältlich.

³International Technology Roadmap for Semiconductors - www.itrs.net/Links/2012ITRS/Home2012.htm

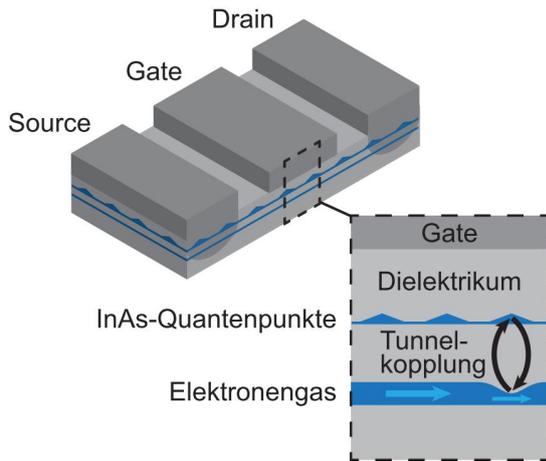


Abbildung 1.1: Schematischer Aufbau der Probenstruktur, bei der eine Schicht selbstorganisiert gewachsener InAs-Quantenpunkte als Floating-Gate in das Dielektrikum eines Heterostruktur-Transistors eingebettet sind. Ein Gate-gesteuerter Ladungsaustausch zwischen Elektronengas und Quantenpunkten ist über eine Tunnelkopplung möglich. Wie bei einem Flash-Speicher kann die Ladung in den Quantenpunkten als Widerstandsänderung im Elektronengas zwischen Source und Drain detektiert werden.

aber eine Vielzahl neuer experimenteller Methoden, die auch für die Grundlagenforschung von Interesse sind. In Kapitel 5 stehen daher die Coulomb-Wechselwirkung der Vielteilchen-Zustände innerhalb der Quantenpunkte und die Tunnelkopplung an die Zustände im Elektronengas im Vordergrund. Angeregte (Spin-) Zustände in den Quantenpunkten werden in Kapitel 4 untersucht. Dabei werden die Detektionsmechanismen untersucht und eine Methode vorgestellt, die die spektrale Einordnung in angeregte Zustände und Grundzustände ermöglicht. Kapitel 3 gibt eine Übersicht von Probenstruktur und Messmethode. Im Folgenden Kapitel 2 sollen die verwendeten Konzepte der zwei Systeme und ihrer Kopplung eingeführt werden.

Kapitel 2

Niedrigdimensionale Systeme

Das Konzept der Bandstruktur, welches durch Felix Bloch am Ende der 1920er Jahre vorgestellt wurde, steht am Beginn der modernen Festkörperphysik und bildet die Grundlage jedes Kurses auf dem Gebiet [Ibach09, Kittel02]. Im quasi-unendlich ausgedehnten, atomaren Gitter des Festkörpers ermöglicht es, die Bewegung der Elektronen in einer mathematisch einfachen und vertrauten Form zu erfassen. Blochs Separationsansatz für die Wellenfunktion der Elektronen $\Psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = u_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$ erlaubt dabei eine Abtrennung des atomaren Anteils $u_{\mathbf{k}} \approx u_{\mathbf{k}=0}$ nahe der Bandlücke ($\mathbf{k} \approx 0$). Die Näherung für das abseparierte Problem des einhüllenden Anteils $\psi(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$ kann nun als die Bewegung eines freien Teilchens in einem effektiven Medium verstanden werden:

$$\frac{\hat{p}^2}{2m}\psi(\mathbf{r}) = E\psi(\mathbf{r}). \quad (2.1)$$

Die Information des periodischen Gitters geht dabei lediglich in Form einer materialabhängigen, effektiven Masse m ein (Effektive-Masse-Näherung).

Im gleichen Zeitraum, der späten 1920er Jahre, beschreibt ein Patent von Julius Lilienfeld das Prinzip des ersten Feldeffekttransistors, dessen Weiterentwicklungen später die Grundlage der elektronischen Revolution darstellten. Die ersten von Shockley und Pearson in den Bell Laboratories realisierten Bauelemente nutzten dünne Halbleiterschichten, deren Widerstand sich über eine angelegte Spannung verändern ließ, indem an ihren Oberflächen kapazitiv Ladungen aufgebracht wurden [Shockley48]. Bevor die zunächst visionären Transistoren kommerziellen Erfolg erlangten, waren jedoch weitere Fortschritte in der Halbleiterverarbeitung nötig. Beflügelt durch den Erfolg der Halbleiterindustrie sind dabei immer neuere, geschicktere Herstellungsverfahren entwickelt worden, von denen auch die Halbleiterphysik profitiert. Hier zeigt sich im Besonderen die Faszination von Phänomenen, die an Materialübergängen auftreten. Mit der effektiven-Masse-Näherung (2.1) ist es nun möglich, solche Übergänge ohne genaue Kenntnis der atomaren Komposition, lediglich über materialabhängige Potentiale $V(\mathbf{r})$ und effektive Massen $m(\mathbf{r})$ zu beschreiben.

2.1 Zweidimensionale Elektronensysteme

Ebenfalls in den Bell Laboratories wurde Ende der 1960er Jahre die Molekularstrahlepitaxie (MBE) von Cho und Arthur entwickelt [Cho75]. Das abwechselnde Wachstum unterschiedlicher Materialien ermöglicht es dabei mit hoher Präzision, Grenzflächen

innerhalb eines Kristalls zu erzeugen. Wird ein Material mit vergleichbarer Gitterkonstante auf ein Wirtsmaterial abgeschieden, kann ein nahezu verspannungsfreier Kristall entstehen. Die Adhäsionskräfte jeder neuen Monolage sind dabei vergleichbar mit der Adhäsion der ersten Monolage an das Wirtsgitter, es kommt zum sogenannten Frank-van-der-Merwe-Wachstum. Verschiedene Materialien erlauben diese Art der Herstellung, deren bekannteste die ternären Verbindungen $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ mit unterschiedlichem Aluminiumgehalt x darstellen. Durch Variation des Aluminiumgehalts lassen sich so die elektronischen Eigenschaften einer derartigen Heterostruktur entlang der Wachstumsrichtung z vorgeben. Die unterschiedlichen Bandlücken von 1,4 eV (GaAs) gegenüber 2,2 eV (AlAs), erlauben die Modellierung der Potentiallandschaft $V(z)$ zur Herstellung zweidimensionaler Elektronensysteme. Das Potential $V(z)$ ergibt sich aus den Diskontinuitäten in Leitungs- bzw. Valenzband an den Übergängen der Schichten. Trotz dieser Übergänge lässt sich aber auch hier die effektive-Masse-Näherung der Schrödinger-Gleichung (2.1) anwenden [Foreman95]. Mit dem eindimensionalen Potential erhält man:

$$\left[\frac{\hat{p}^2}{2m} + V(z) \right] \psi(\mathbf{r}) = \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 + V(z) \right] \psi(\mathbf{r}) = E\psi(\mathbf{r}). \quad (2.2)$$

Eine Schicht GaAs, umgeben von Barrieren aus $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$, stellt einen Potentialtopf für die Ladungsträger dar. Bei einer genügend dünnen Schicht können dabei die gebundenen Zustände energetisch so weit aufspalten, dass eine freie Bewegung nur noch parallel zur Schicht möglich ist. Werden durch eine geeignete Dotierung Elektronen im Leitungsband gebunden, spricht man von einem zweidimensionalen Elektronengas (2DEG), entsprechend für Valenzbandzustände von einem Lochgas (2DHG). Zur Lösung wird die Wellenfunktion separiert:

$$\psi(\mathbf{r}) = \varphi_n(z)\psi_{2D}(x, y) = \varphi_n(z)e^{ik_x x + ik_y y}. \quad (2.3)$$

Der Anteil $\varphi_n(z)$ enthält nun die Quantisierung entlang der Wachstumsrichtung z , ausgedrückt über die Quantenzahl $n \geq 1$, während die freie Dispersion in der Ebene der GaAs-Schicht erhalten bleibt. Mit der Vereinfachung unendlich hoher Banddiskontinuitäten lässt sich auch der Anteil in Wachstumsrichtung durch Sinus- und Cosinus-Funktionen lösen, die an den Übergängen im Abstand d verschwinden [Abb. 2.1(a)]. Ein Elektron im sogenannten „Subband“, mit dem Index n und einer Impulskomponente k_x bzw. k_y hat damit die Energie:

$$E_n(k_x, k_y) = E_x + E_y + E_z = \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m} + \frac{\hbar^2 k_y^2}{2m} + \frac{\hbar^2 \pi^2 n^2}{2m d^2}. \quad (2.4)$$

Der energetisch niedrigste Zustand liegt damit eine Energie $E_z = \frac{\hbar^2 \pi^2}{2m d^2}$ über dem Leitungsbandminimum E_L für ungebundene Elektronen. Wird das 2DEG nun mit Elektronen gefüllt, werden Zustände mit zunehmender kinetischer Energie $E_{x,y}$ besetzt. Die Oberfläche konstanter Energie beschreibt damit Kreisringe $k = \sqrt{k_x^2 + k_y^2}$ im k -Raum. Für den Grenzfall tiefer Temperaturen liegen alle besetzten Zustände unterhalb der Fermi-Energie $E_F = \hbar^2 k_F^2 / 2m$, deren Impulszustände auf dem Fermi-Kreis mit dem Radius k_F liegen [vgl. Abb.2.1(b)]. In einem isotropen Medium liegen die Zustände äquidistant im k -Raum und können wegen des zusätzlichen Spin-Freiheitsgrades doppelt besetzt werden. Mit dem Energiedifferential $dE = \hbar^2 k dk / m$ aus der Ableitung der Dispersionsrelation $E(k)$ erhält man dann die Zustandsdichte eines Subbandes im

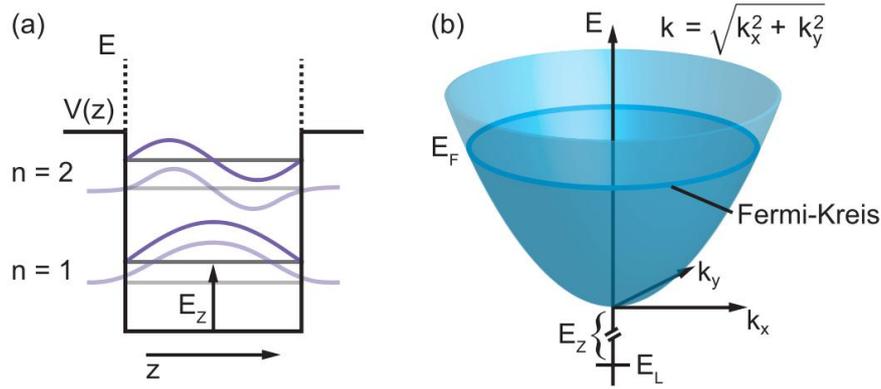


Abbildung 2.1: (a) Potentialtopf $V(z)$ mit eingeschlossenen Wellenfunktionen. Bei unendlich hohen Wänden verschwindet die Wellenfunktion am Übergang, bei endlich hohen Wänden dringt sie auch in die Barriere ein, wo sie exponentiell abklingt. (b) Auffüllen der parabelförmigen Dispersion $E(k)$ führt zu Kreisen im k -Raum.

2DEG:

$$D_{2D}(E) = \frac{dN}{dE} = \frac{dN}{dk} \frac{dk}{dE} = \frac{m}{\pi \hbar^2} = \text{konst.} \quad (2.5)$$

Ist der Einschluss genügend stark und die Temperatur tief genug, wird lediglich das untere Subband gefüllt und die Zustandsdichte des 2DEGs ist konstant. Bei endlichen Temperaturen weicht jedoch der Fermi-Kreis auf und die Ladungsträgerdichte berechnet sich aus dem Produkt mit der Fermi-Funktion $f(E)$:

$$n_{2D} = \int_{E_z}^{\infty} D_{2D}(E) f(E) dE \quad (2.6)$$

Bei tiefen Temperaturen lässt sich der Zusammenhang zwischen Ladungsträgerdichte und Fermi-Kreis annähern durch:

$$n_{2D} \approx D_{2D} E_F = \frac{k_F^2}{2\pi}. \quad (2.7)$$

Durch den Ansatz ebener Wellen (2.3) sind die Ladungsträger senkrecht zur Wachstumsrichtung delokalisiert. In Wachstumsrichtung z lässt sich die lokale Verteilung der Ladungsträger beschreiben durch das Produkt:

$$n_{2D}(z) = n_{2D} |\varphi_1(z)|^2. \quad (2.8)$$

Für das hier betrachtete einfache Problem liegt das Maximum der Ladungsträgerdichte genau in der Mitte des Potentialtopfes. Typischerweise werden 2DEGs jedoch in das elektrische Feld einer Schottky-Barriere eingebettet, damit die Ladungsträgerdichte über eine Spannung an dem Schottky-Kontakt (Gate) eingestellt werden kann. Innerhalb des Potentialtopfes verschiebt sich das Maximum der Ladung hierdurch von der Oberfläche in Richtung des Substrats. Eine letzte Korrektur zum einfachen Potentialtopf stellt die Wechselwirkung der Elektronen untereinander dar. In einfachster Näherung führt die Ladung der Elektronen dabei zu einer Anhebung des Potentials $V(z)$ gemäß der Poisson-Gleichung:

$$\frac{\epsilon \epsilon_0}{e} \frac{d^2}{dz^2} V(z) = -\rho(z) = e n_{2D}(z). \quad (2.9)$$

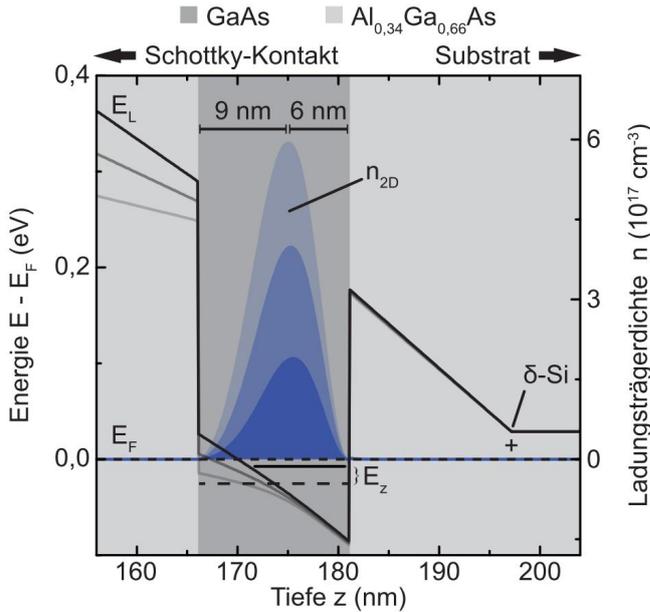


Abbildung 2.2: Verlauf von Leitungsbandkante E_L und Ladungsträgerdichte n_{2D} in Wachstumsrichtung z für das in dieser Arbeit verwendete 2DEG. Das elektrische Feld zwischen der Silizium-Dotierung (δ -Si) und einer Schottky-Barriere an der Oberfläche verschiebt das Maximum in Richtung Substrat. Typische Gatespannungen (hier: $-0,6 \dots 0,2$ V) verschieben das Maximum nur schwach (± 1 nm).

Die Wellenfunktion geht damit in das Potential der Schrödinger-Gleichung (2.2) ein, die nun selbstkonsistent gelöst werden muss. Eine derartige Lösung zeigt Abb. 2.2 für das in dieser Arbeit betrachtete 2DEG.¹ Die Struktur lässt sich als invertierter HEMT² oder MODFET³ bezeichnen. Die Dotierung, eine dünne Siliziumschicht (δ -Si), befindet sich hier substratseitig (invertiert) vom Potentialtopf des 2DEGs. Durch das elektrische Feld liegt das 2DEG, mit einem Abstand von ca. 6 nm, näher an der substratseitigen $\text{Al}_{0,34}\text{Ga}_{0,66}\text{As}$ -Barriere. Wegen des elektrischen Feldes lässt sich eine derartige Struktur auch ohne die beidseitige $\text{Al}_{0,34}\text{Ga}_{0,66}\text{As}$ -Barriere realisieren. Solche einfachen Übergänge $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ stellen den typischen Fall dar. Durch die zusätzliche $\text{Al}_{0,34}\text{Ga}_{0,66}\text{As}$ -Barriere erhöht sich die Quantisierungsenergie und damit der energetische Abstand zwischen den Subbändern. Auch bei höheren Ladungsträgerdichten n_{2D} genügt es daher, hier nur eine Besetzung des unteren Subbandes zu berücksichtigen.

Wird die Probe an der Oberfläche mit einem Schottky-Kontakt (Gate) ausgestattet, kann die Ladungsträgerdichte über eine Gatespannung V_G eingestellt werden. Abb. 2.2 zeigt den Bandkantenverlauf für drei Gatespannungen $V_G = -0,6, -0,2$ und $0,2$ V. Da die Dotierung hier tiefer als das 2DEG liegt, kann das 2DEG in erster Näherung als die Gegenplatte zum Schottky-Kontakt der Gate-Elektrode, also als einfacher Plattenkondensator behandelt werden. Für eine Schichtladung in der Tiefe d_{2D} in einem Dielektrikum ϵ folgt dann für die Ladungsträgerdichte:

$$n_{2D}(V_G) = \frac{1}{e} \int_{V_{th}}^{V_G} c dV \approx \frac{\epsilon\epsilon_0}{d_{2D}} (V_G - V_{th}). \quad (2.10)$$

Die spezifische Kapazität c ist in diesem Fall durch die *geometrische* Kapazität $c_g = \epsilon\epsilon_0/d_{2D}$ gegeben, da in der Reihenschaltung die große Quantenkapazität des 2DEGs $c_q = e^2 D_{2D}$ vernachlässigt werden kann. In Kapitel 3 wird dies noch einmal aufgenommen. Die Quantisierungsenergie des 2DEGs zeigt sich hier in der Einsatzspannung

¹Berechnet mit *1D Poisson*, entwickelt von Prof. Gregory Snider, Department of Electrical Engineering, University of Notre Dame, www3.nd.edu/~gsnider.

²High-Electron-Mobility Transistor

³Modulation-Doped Field-Effect Transistor

V_{th} , unterhalb derer das Subband energetisch über der Fermi-Energie liegt und die Ladungsträger vollständig verarmt sind.

Der große Vorteil dieser HEMT-Strukturen ist die räumliche Trennung zwischen Dotierung und 2DEG durch einen sogenannten Spacer (undotierte Pufferschicht), wodurch sich die Streuung an den geladenen Dotieratomen stark unterdrücken lässt [Dingle78]. Insbesondere bei tiefen Temperaturen zeigt sich dies in einer deutlichen Zunahme der Beweglichkeit μ der Ladungsträger im 2DEG. Diese geht über das Produkt mit der Ladungsträgerdichte $n_{2\text{D}}$ in die Leitfähigkeit σ des 2DEGs ein:

$$\sigma = en_{2\text{D}}\mu. \quad (2.11)$$

Die Leitfähigkeit ist dabei nicht notwendigerweise linear in der Gatespannung, denn die Beweglichkeit kann ebenfalls von der Ladungsträgerdichte abhängen. Dies hängt zum einen mit der Zunahme der Fermi-Geschwindigkeit $v_{\text{F}} = \hbar k_{\text{F}}/m$, beim Füllen der Zustände im k -Raum zusammen, zum anderen können geladene Störstellen durch eine höhere Ladungsträgerdichte effektiver abgeschirmt werden. Mit Hilfe von Fermis Goldener Regel für die Streuung der Elektronen und einem Störpotential, in dem die Thomas-Fermi-Abschirmung des 2DEGs berücksichtigt wird, lässt sich die Wirkung geladener Coulomb-Streuer nach [Davies98] berechnen. Für eine Schicht geladener Streuzentren der Dichte N_{S} im Abstand d_{S} zum 2DEG kann daraus mit einigen Näherungen ein analytischer Ausdruck abgeleitet werden:

$$\mu \approx \frac{8ed_{\text{S}}^3k_{\text{F}}^3}{\pi\hbar N_{\text{S}}} = \frac{8\sqrt{2}ed_{\text{S}}^3}{\sqrt{\pi}\hbar N_{\text{S}}}n_{2\text{D}}^{3/2}. \quad (2.12)$$

Für die hier betrachtete Struktur (Abb. 2.2) folgt damit für die Streuung an den geladenen Dotieratomen mit $N_{\text{S}} = 3 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$, $d_{\text{S}} = 16 \text{ nm}$ und typischen Ladungsträgerdichten von $n_{2\text{D}} = 5 \dots 8 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ Beweglichkeiten von $\mu = 3 \dots 6 \cdot 10^4 \text{ V s cm}^{-2}$. Tatsächlich erreicht werden hier auch bei tiefen Temperaturen (4,2 K) lediglich Beweglichkeiten im Bereich $0,5 \dots 1 \cdot 10^4 \text{ V s cm}^{-2}$ (vgl. Abb. 4.1). Ein möglicher Grund für die Abweichung kann die Annahme eines großen Spacers d_{S} in der Herleitung zu (2.12) sein, was hier nicht gegeben ist. Dies kann insbesondere bei invertierten Geometrien zudem durch Dotierungssegregation verstärkt werden, was den Spacer effektiv verkürzt [Heiblum85, Pfeiffer91].

Neben geladenen Dotieratomen spielen aber auch Hintergrunddotierung und ungeladene Streuer wie Legierungsrauhigkeit, durch zufällige Verteilung von Aluminiumatomen aus der $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Barriere, bei tiefen Temperaturen eine nicht vernachlässigbare Rolle. Letztere wird auch wieder bei invertierten Strukturen durch Segregation verstärkt [Sadeghzadeh12]. Werden diese Streuereignisse als statistisch unabhängig angenommen, lassen sich ihre individuellen Streuraten (inverse Streuzeit) $1/\tau_i \propto 1/\mu_i$ zur Gesamtstreurate $1/\tau \propto 1/\mu$ addieren. Für die Beweglichkeit folgt damit nach der Matthiessenschen Regel:

$$\frac{1}{\mu} = \sum \frac{1}{\mu_i}. \quad (2.13)$$

Für ungeladene Störstellen spielt die elektrische Abschirmung keine Rolle und der Zusammenhang zwischen μ und $n_{2\text{D}}$ ist komplexer. Auch Gl. (2.12) kann für geladene Störstellen nur eine grobe Näherung der Zusammenhänge wiedergeben, weswegen die Abhängigkeit $\mu(n_{2\text{D}})$ üblicherweise in Form eines Potenzgesetz ausgedrückt wird:

$$\mu \propto n_{2\text{D}}^{\alpha}, \quad (2.14)$$

wobei der Exponent über $\alpha = d \log \mu / d \log n_{2D}$ bestimmt wird. Bei tiefen Temperaturen und üblichen Strukturen, werden in der Literatur Werte im Bereich von 0,7 bis 1,7 berichtet [Hirakawa86, Hwang08].

In der hier untersuchten Struktur dient das 2DEG vorrangig als Reservoir und Detektor der Ladungen in einer Schicht selbstorganisierter Quantenpunkte, deren Grundlagen im Folgenden Abschnitt eingeführt werden. Da das Kristallgitter in der Nähe dieser Quantenpunkte Verspannungen aufweist [Stoleru02] wird die Beweglichkeit eines benachbarten 2DEGs jedoch verringert [Sakaki95]. Hier ist dieser Effekt die wahrscheinlichste Ursache für die vergleichsweise geringe Beweglichkeit. Mit Hilfe von Gl. (2.12) kann aber nun auch der Einfluss einer Ladung in den Quantenpunkten auf die Beweglichkeit des 2DEGs abgeschätzt werden. In einem Abstand von 30 nm kann diese Schicht maximal 10^{11} cm^{-2} Ladungen aufnehmen. Für die Beweglichkeit des 2DEGs folgt damit $\mu = 0,6 \dots 1,2 \cdot 10^6 \text{ V s cm}^{-2}$, was in der Summe (2.13) bereits gegenüber dem Einfluss der Dotierung vernachlässigt werden kann. Ein Einfluss der Ladung in den Quantenpunkten auf die Beweglichkeit des 2DEGs ist also zunächst nicht zu erwarten.

2.2 Nulldimensionale Elektronensysteme

Bisher wurde die Auswirkung eines Einschlusses der elektronischen Zustände nur in einer Richtung betrachtet. Wie die Wellenfunktion eines Elektrons im Atom lokalisiert ist, so kann auch die effektive Wellenfunktion der Elektronen in einem Halbleiter durch ein geeignetes Potential in allen Raumrichtungen eingeschränkt werden. Solche quasi nulldimensionalen Elektronensysteme werden entsprechend als künstliche Atome [Kastner93] oder Quantenpunkte (QD⁴) bezeichnet [Bimberg98]. Das starke Interesse an derartigen Systemen ist zu einem großen Teil den Erfolgen der vergangenen Jahre zu verdanken, gezielt einzelne Spinzustände in derartigen Systemen zu erzeugen und kohärent zu manipulieren [Hanson08]. Damit sind Quantenpunkte einer der vielversprechendsten Kandidaten zur Beherbergung zukünftiger Qubits, der Informationseinheit eines Quantencomputers [Ladd10]. Ausgehend von dem bereits in einer Richtung eingeschränkten 2DEG, besteht ein naheliegender Ansatz darin, dieses System mittels lithographischer Verfahren nun auch lateral einzuschränken. Sehr flexibel ist dabei die Modellierung des Potentials über Gateelektroden [Abb. 2.3(a),(b)]. Sie ermöglicht eine gezielte Positionierung von Quantenpunkten, ihre Kopplung zu künstlichen Molekülen und die Erzeugung von Quantenpunktkontakten als empfindliche Detektoren [Elzerman04b, DiVincenzo05, Granger12]. Ein Nachteil dieser Methode ist die elektrostatisch bedingte, geringe Modulation des Potentials aufgrund der entfernten Elektroden an der Oberfläche des Halbleiters. Durch diese Begrenzung zählen diese Systeme zu den größeren Quantenpunkten mit Dimensionen $\gtrsim 100 \text{ nm}$. Zur spektralen Auflösung der entsprechend geringeren Quantisierungsenergien ist daher der Betrieb bei tiefen Temperaturen von typischerweise $< 1 \text{ K}$ erforderlich. Auf der anderen Seite des Spektrums stellen einzelne Defekte oder Dotieratome [Abb. 2.3(d)] die kleinste mögliche Realisierung eines Einschlusses im Festkörper dar, mit Dimensionen von der Größe des effektiven Bohr-Radius $a = \epsilon a_0 m_0 / m \approx 1 \text{ nm}$ [Ibach09]. Eine der großen Herausforderungen dieser Strukturen stellt die gezielte Positionierung zur Realisierung entsprechender Bauelemente dar [Koenraad11]. Bei mittleren Dimensionen der Größen-

⁴Quantum Dot

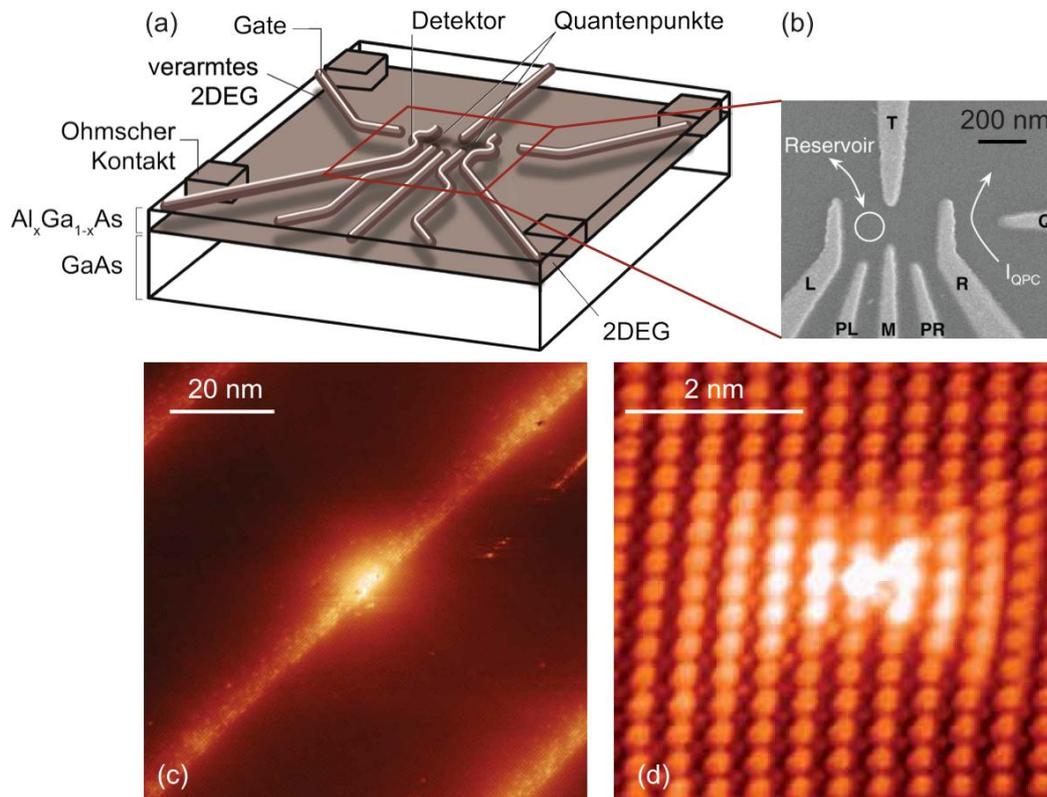


Abbildung 2.3: Verschiedene Ansätze zur Realisierung nulldimensionaler Systeme im Halbleiter. (a) Schema zur lithographischen Strukturierung eines 2DEGs mittels Gateelektroden [Hanson08], (b) REM-Aufnahme der Gatekontakte einer derartigen Probe [Simmons11], (c) XSTM-Aufnahme eines selbstorganisierten InAs-Quantenpunkts in GaAs [Giddings11], (d) STM-Aufnahme eines Mangan-Atoms in GaAs [Yakunin04, Koenraad11].

ordnung 10 nm bieten selbstorganisiert gewachsene Quantenpunkte [Abb. 2.3(c)] sowohl genügend große Quantisierungsenergien für den Betrieb bei Temperaturen > 4 K, als auch eine präzise Positionierung entlang der Wachstumsrichtung einer Heterostruktur. Dieser Typ von Quantenpunkten ist Gegenstand dieser Arbeit und soll im Folgenden kurz eingeführt werden.

2.2.1 Selbstorganisierte Quantenpunkte

Neben der Erzeugung glatter Schichtsysteme mit der MBE-Technik, lassen sich auch direkt beim Wachstum dreidimensionale Materialinseln herstellen. Antrieb eines solchen Selbstorganisationsprozesses ist die Verspannung, die entsteht, wenn Materialien unterschiedlicher Gitterkonstanten aufeinander abgeschieden werden. Von besonderem Interesse ist dabei ein Wachstumsmodus, der bereits lange vor der Entwicklung der MBE durch Stranski und Krastanov [Krastanow38] beschrieben wurde. Wird InAs mit einer 7% größeren Gitterkonstante auf GaAs aufgewachsen, ist die Adhäsion zunächst so hoch, dass sich eine erste Monolage (ML) mit angepasster Gitterkonstante, die sog. Benetzungsschicht ausbilden kann. Ab einer kritischen Bedeckung mit ca. 1,5 ML kommt es jedoch zu einer abrupten Relaxation und zu einem Übergang in ein Insel-

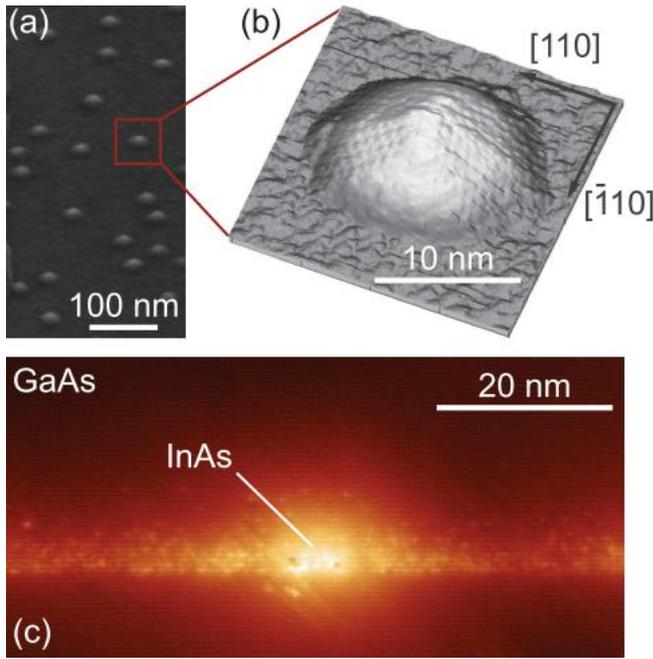


Abbildung 2.4: Selbstorganisierte gewachsene InAs-Quantenpunkte auf GaAs. (a) REM-Aufnahme eines Ensembles mit einem mittleren Abstand von ca. 100 nm zwischen den Inseln. (b) STM-Aufnahme eines Quantenpunktes [Marquez01], Facettierungen mit runder oder elliptischer Basis wurden beobachtet. (c) XSTM-Aufnahme eines, mit GaAs überwachsenen Quantenpunkts [Giddings11], Diffusion weicht die Materialgrenzen auf.

wachstum [Leonard94], da die Adhäsionskräfte mit zunehmendem Abstand zum Substrat abnehmen. Das komplexe Zusammenspiel aus Oberflächen- und Volumenenergien (einschließlich Verspannung) erlaubt dabei unter kontrollierten Wachstumsbedingungen Größe, Dichte und Morphologie [Pehlke96] zu beeinflussen und sogar der Übergang zu Ringen [Lorke02, Blosssey02] ist noch innerhalb der MBE möglich. Aufgrund von Spannungsfeldern [Ledentsov96] kommt es zu einer ungeordneten, aber weitgehend homogenen Dichte der Inseln mit typischen Abständen von 100 nm [vgl. Abb. 2.4(a)]. Diese defektfreien Strukturen aus einigen 10^4 Atomen haben typischerweise einen Basisdurchmesser von 20 nm und eine Höhe von 7 nm [Abb. 2.4(b)] mit einer geringen Größendispersion im Bereich 10 % [Moison94, Leonard94]. Zur Einbettung in Bauelemente lassen sie sich wie in der hier untersuchten Struktur mit GaAs überwachsen. Durch Segregation und Diffusion kommt es dabei zu morphologischen Veränderungen, bei denen die Inseln noch einmal an Höhe verlieren [Eisele08] und die harten Materialgrenzen aufweichen [Giddings11].

Elektronisch interessant werden die InAs-Inseln durch ihre geringere Bandlücke im Vergleich zum umgebenden GaAs. Sie erzeugen dadurch einen dreidimensionalen Potentialtopf in Leitungs- und Valenzband des Halbleiters. Analog zu vorher, betrachten wir die Schrödinger-Gleichung in der effektive-Masse-Näherung, unter Zuhilfenahme eines Separationsansatzes. Zusätzlich zu dem Potential $V(z)$ entlang der Wachstumsrichtung z haben wir nun auch einen Einschluss in der Ebene der Quantenpunktschicht x, y . Für die Komponenten x bzw. y , senkrecht zur Wachstumsrichtung, hat sich dabei eine harmonische Näherung des Potentials bewährt [Sikorski89, Alsmeier90, Wojs96, Warburton98]. Die Schrödinger-Gleichung ergibt sich dadurch zu:

$$\left[\frac{\mathbf{p}^2}{2m} + \frac{1}{2}m\omega^2(x^2 + y^2) + V(z) \right] \psi(\mathbf{r}) = E \psi(\mathbf{r}). \quad (2.15)$$

Durch die geringe Höhe der Quantenpunkte liegen die Quantisierungsenergien in Wachstumsrichtung z genügend weit auseinander um hier lediglich eine Besetzung des Grundzustandes zu berücksichtigen. Wir wollen daher das Problem $\psi(\mathbf{r}) = \varphi_n(z)\psi_{\text{QD}}(x, y)$ in

z -Richtung bereits als gelöst und absepariert annehmen und beschränken uns auf das verbliebene zweidimensionale Problem. Hier wird der Einfachheit halber ein rotations-symmetrisches Potential, mit einer einzelnen, isotropen Oszillatorfrequenz ω angenommen. Für den Grundzustand erhält man damit eine ebenfalls rotationssymmetrische [Abb. 2.5(a)] Gauß-Funktion:

$$\psi_s(x, y) = \frac{1}{\sqrt{\pi}l_{\text{QD}}} e^{-(x^2+y^2)/2l_{\text{QD}}^2}. \quad (2.16)$$

Die lokale Ausdehnung der Wellenfunktion wird dabei mit der effektiven Länge beschrieben:

$$l_{\text{QD}} = \sqrt{\frac{\hbar}{m\omega}}. \quad (2.17)$$

Weitere Lösungen und damit die angeregten Zustände erhält man durch Multiplikation mit zwei Hermiteschen Polynomen, bestimmt durch: $H_i(x) = (-1)^i e^{x^2} \frac{d^i}{dx^i} e^{-x^2}$. Hierdurch erhält man zwei Quantenzahlen ($i, i' \geq 0$), die der Anzahl der Knoten entlang x - bzw. y -Richtung entsprechen. Bei Verwendung eines rotationssymmetrischen Koordinatensystems $(x, y) \rightarrow (r, \varphi)$ erhält man stattdessen eine radiale Quantenzahl $\rho = 0, 1, \dots$ und eine Quantenzahl $l = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$, die dem Drehimpuls der eingefangenen Ladungsträger entspricht. Für die Energieeigenwerte erhält man dann:

$$E_{\rho, l} = \hbar\omega(2\rho + |l| + 1) \quad \text{bzw.} \quad E_{i, i'} = \hbar\omega(i + i' + 1). \quad (2.18)$$

In Analogie zur Atomphysik werden die Zustände gleicher Energie zu einer „Schale“ κ zusammengefasst und mit den Buchstaben $\kappa = s, p, d, \dots$ indiziert. In Abständen der Quantisierungsenergie $\hbar\omega$ sind die Schalen damit unter Berücksichtigung der Spinartung 2κ -fach entartet. Mit der radialen Quantenzahl $\rho = 1$ kann in der d -Schale auch ein drehimpulsloser Zustand mit $l = 0$ realisiert werden, den wir von den Zuständen d_{\pm} mit $l = \pm 2$ durch die Benennung d_0 unterscheiden wollen.

Abb. 2.5 zeigt die Aufenthaltswahrscheinlichkeiten der Zustände für die beiden energetisch niedrigsten Schalen s und p . Für ein rotationssymmetrisches Potential ist der Drehimpuls eine gute Quantenzahl und die Wellenfunktion $\psi_{p_{\pm}} = \psi_x \pm i\psi_y$ ist ebenso rotationssymmetrisch [Abb. 2.5(d)]. Bedingt durch die Facettierung oder eine In-Diffusion beim Wachstum⁵ kann das Potential der Quantenpunkte aber deformiert sein. Auch ohne Magnetfeld entlang der Wachstumsrichtung z ist dann die Entartung der p -Schale aufgehoben. In diesem Fall kann die Kartesische Repräsentation der Wellenfunktion $\psi_{x,y}$ auch experimentell beobachtet werden [Wibbelhoff05, Wibbelhoff06, Lei10, Rontani11].

Über ein geeignetes Reservoir lassen sich die Quantenpunkte mit Elektronen oder Löchern besetzen. Ein einzelnes Elektron als *QD-Wasserstoff* kann dabei einen der oben beschriebenen Zustände des harmonischen Oszillators einnehmen. Durch die zusätzliche räumliche Einschränkung kann hier jedoch die Wechselwirkung der Elektronen untereinander nicht wie beim Auffüllen der 2DEG-Zustände vernachlässigt werden. Berücksichtigt man in Gleichung (2.15) noch einen Wechselwirkungsterm, so erhält man für das zweidimensionale Problem von n Elektronen an den Koordinaten $\mathbf{r}_i = (x_i, y_i)$ die Vielteilchen-Schrödinger-Gleichung:

$$\left[\sum_{i=1}^n \frac{\mathbf{p}_i^2}{2m} + \sum_{i=1}^n \frac{1}{2} m\omega_0^2 \mathbf{r}_i^2 + \frac{e^2}{8\pi\epsilon\epsilon_0} \sum_{i,j \neq i}^n \frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \right] \psi(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_n) = E \psi(\mathbf{r}_1, \dots, \mathbf{r}_n). \quad (2.19)$$

⁵Aufgrund von anisotroper Beweglichkeiten der Atome an der Oberfläche.

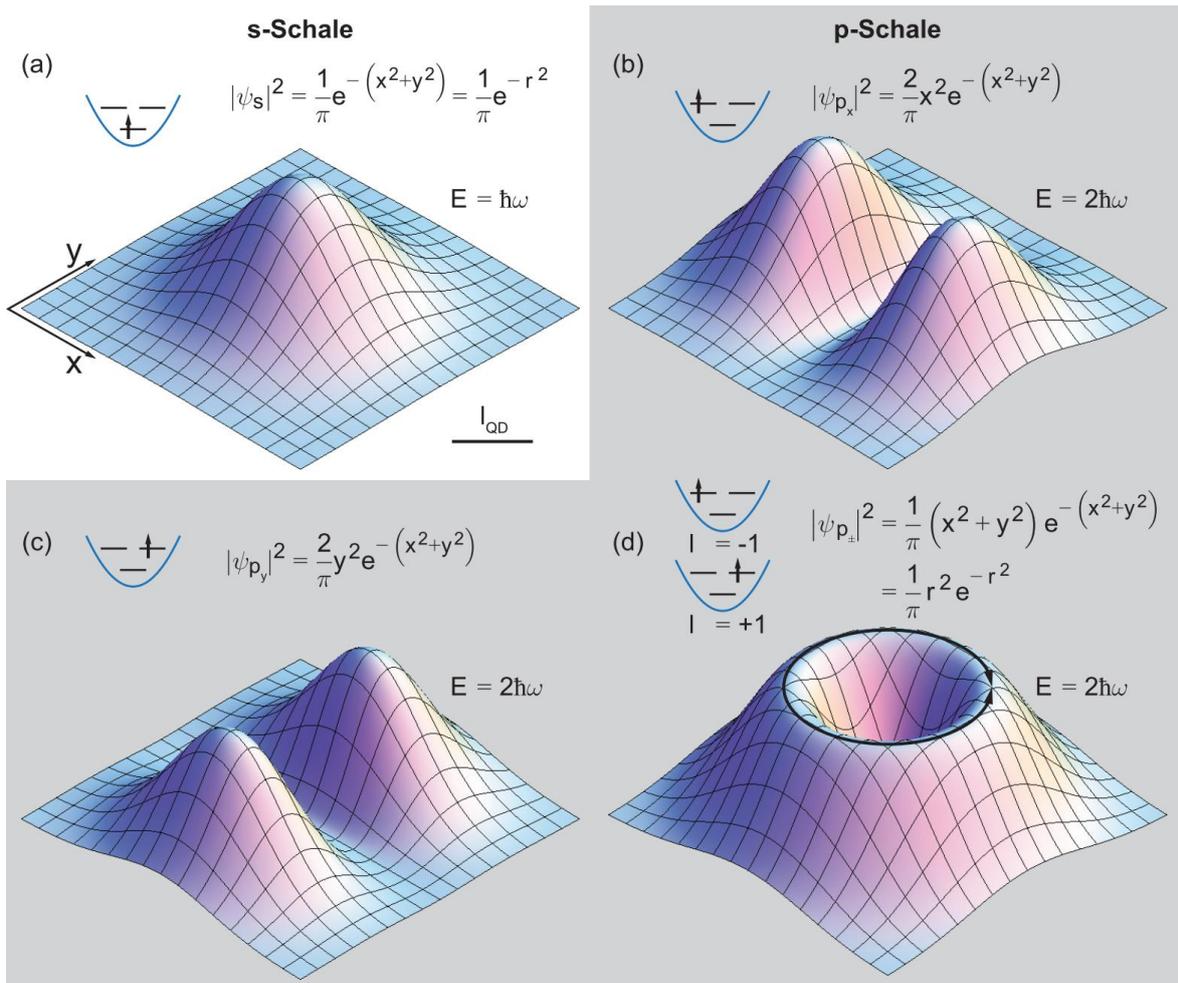


Abbildung 2.5: Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Wellenfunktionen im Ortsraum, in Einheiten von l_{QD} . Der Grundzustand (a) ist am Koordinatenursprung lokalisiert, der erste angeregte Zustand mit der Energie $2\hbar\omega$ kann je nach Symmetrie des Potentials (b,c) Kartesisch (p_x, y) oder (d) rotationssymmetrisch (p_{\pm}) repräsentiert werden.

Für das Zweiteilchen-Problem des *QD-Helium* lässt sich die Schrödinger-Gleichung durch Übergang zu Schwerpunkt- und Relativkoordinaten und unter der Annahme schwacher Coulomb-Wechselwirkung im Vergleich zur Quantisierungsenergie $\hbar\omega$ lösen [Merkt91]. In erster Näherung können dann die Wellenfunktionen des harmonischen Oszillators weiter verwendet werden. Für Quantenpunkte mit $n < 10$ Elektronen stellen diese Hartree-Fock-Lösungen eine gute Näherung im Vergleich zur exakten, direkten Diagonalisierung dar [Pfannkuche93].

Analytisch ist bereits das *QD-Lithium* nicht ohne weitere Näherungen lösbar und die direkte Diagonalisierung wird deutlich aufwendiger. Hier wollen wir daher noch einen Schritt weiter vereinfachen und die Einteilchen-Zustände nach [Warburton98] als völlig ungestört annehmen. Betrachten wir nur den Term der Coulomb-Wechselwirkung für zwei Elektronen in den ungestörten Zuständen ψ_i und ψ_j , so erhält man zwei Beiträge zur Gesamtenergie. Für die klassische, direkte Coulomb-Energie E_C und die

quantenmechanische Austausch-Energie E_X ergibt sich:

$$E_C(\psi_i, \psi_j) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0} \int \int \frac{|\psi_i(\mathbf{r}_1)|^2 |\psi_j(\mathbf{r}_2)|^2}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} d^3r_1 d^3r_2 \quad \text{bzw.} \quad (2.20)$$

$$E_X(\psi_i, \psi_j) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0} \int \int \frac{\psi_i^*(\mathbf{r}_1)\psi_j^*(\mathbf{r}_2)\psi_i(\mathbf{r}_2)\psi_j(\mathbf{r}_1)}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} d^3r_1 d^3r_2. \quad (2.21)$$

Für zwei Elektronen im Grundzustand ψ_s erhält man so [Warburton98] die direkte Coulomb-Energie:

$$E_C = E_C(\psi_s, \psi_s) = \frac{e^2}{4\sqrt{2\pi\epsilon\epsilon_0}l_{\text{QD}}}. \quad (2.22)$$

Die Wechselwirkungen zwischen unterschiedlichen Zuständen können nun als rationale vielfache dieser sogenannten Coulomb-Blockade E_C angegeben werden. Die Energien der Coulomb-Korrekturen in der Hartree-Fock-Näherung finden sich in [Merkt91], für das ungestörte Modell in [Warburton98]. In dem ungestörten Modell kann nun sehr einfach die Gesamtenergie E_n eines n -Elektronen-Zustandes aus der Summe der Einteilchen-Energien $E_{\rho,l}$ und aller Paarwechselwirkungen geschrieben werden:

$$E_{n,m} = \sum_i^n E_{\rho,l}(\psi_i) + \frac{1}{2} \sum_{i,j \neq i}^n [E_C(\psi_i, \psi_j) + E_X(\psi_i, \psi_j)]. \quad (2.23)$$

Dazu wird lediglich die Konfiguration bzw. die Verteilung der Elektronen auf die Einteilchen-Zustände $s, p_{\pm}, d_{\pm,0}, \dots$ benötigt (vgl. Abb. 2.5). Da sich ein n -Teilchen-Zustand durch mehr als eine Konfiguration realisieren lässt, tritt ein zusätzlicher Index $m \geq 0$ zur Zählung auf. Bei tiefen Temperaturen wird im Gleichgewicht dabei nur die Konfiguration mit der niedrigsten Energie $E_{n,0} \equiv E_n$ besetzt sein. In einem Nicht-Gleichgewicht lassen sich aber auch angeregte Zustände $m > 0$ erzeugen, die dann unter Energieabgabe über Phononen- oder Photonen-Erzeugung in den Grundzustand $m = 0$ zerfallen. Denkt man sich einen Grundzustand aus $n - 1$ Elektronen bereits realisiert und fügt in Gedanken ein weiteres Elektron hinzu, so lassen sich Zustände aufsteigender Energien $m = 1, 2, \dots$ mit unterschiedlicher Entartung erzeugen. Einige dieser m -ten angeregten Zustände sind in Tabelle 2.1 aufgelistet, zusammen mit ihren Energien und dem Entartungsgrad d aufgrund von Gesamtdrehimpuls L_z und Spin S_z .

2.3 Kopplung von Quantenpunkten und Elektronengasen

Durch die Kopplung an ein geeignetes Ladungsträgerreservoir lassen sich selbstorganisierte Quantenpunkte kontrolliert mit Elektronen oder Löchern besetzen. Eine der ersten elektrischen Charakterisierungsmethoden nulldimensionaler Systeme stellt dabei die Kapazitäts-Spannungs-Spektroskopie (CV⁶) dar [Lambe69]. Frühe Geometrien zur Untersuchung selbstorganisierter Quantenpunkte ähneln daher einem Plattenkondensator, bei dem eine Quantenpunktschicht in das Dielektrikum (undotiertes $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$) eingebettet wurde. Die zwei Elektroden des Kondensators bilden sich aus einer Metallschicht an der Oberfläche des Halbleiters und einer entartet dotierten Schicht im Halbleiter, deren Dotiertyp die Untersuchung von Elektronen- [Drexler94, Fricke96] oder

⁶Capacitance-Voltage

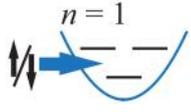
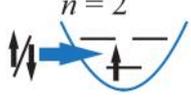
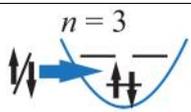
n	m	Konfiguration	Energie $E_{n,m}$	S_z	L_z	d
	0	s	$\hbar\omega$	$\pm\frac{1}{2}$	0	2
	1	p_{\pm}	$2\hbar\omega$	$\pm\frac{1}{2}$	± 1	4
	2	$d_{\pm,0}$	$3\hbar\omega$	$\pm\frac{1}{2}$	$0, \pm 2$	6
	0	ss	$2\hbar\omega + E_C$	0	0	1
	1	sp_{\pm}	$3\hbar\omega + \frac{1}{2}E_C$	$0, \pm 1$	± 1	6
	2	sp_{\pm}	$3\hbar\omega + \frac{3}{4}E_C$	0	± 1	2
	3	$sd_{\pm,0}$	$4\hbar\omega + \frac{1}{2}E_C$	$0, \pm 1$	$0, \pm 2$	9
	4	sd_{\pm}	$4\hbar\omega + \frac{19}{32}E_C$	0	± 2	2
	5	sd_0	$4\hbar\omega + \frac{11}{16}E_C$	0	0	1
	0	ssp_{\pm}	$4\hbar\omega + \frac{9}{4}E_C$	$\pm\frac{1}{2}$	± 1	4
	1	ssd_{\pm}	$5\hbar\omega + \frac{67}{32}E_C$	$\pm\frac{1}{2}$	± 2	4
	2	ssd_0	$5\hbar\omega + \frac{35}{16}E_C$	$\pm\frac{1}{2}$	0	2

Tabelle 2.1: Gesamtenergien $E_{n,m}$ aus dem ungestörten Einteilchen-Modell für verschiedene Konfigurationen m . Jeweils $n - 1$ Elektronen bilden einen Grundzustand $m = 0$, zu dem ein weiteres Elektron in einen freien Einteilchen-Zustand hinzugefügt wird.

Lochzuständen [Medeiros-Ribeiro95, Reuter04] erlaubt. Das Ladungsreservoir stellt in diesen Strukturen die quasi-metallische Dotierung dar, die über eine dünne (ca. 20...40 nm) Tunnelbarriere mit den Quantenpunkten verbunden ist. Bereits früh wurde dabei die Dotierung auch durch ein 2DEG ersetzt, um Einflüsse der Quantenpunkte auf die Beweglichkeit des 2DEGs zu untersuchen [Sakaki95]. Diese Transistorstruktur ermöglicht jedoch einen neuen experimentellen Ansatz neben der CV-Methode durch eine Detektion der Leitfähigkeit des 2DEGs [Ruf06b, Ruf06c]. Insbesondere die Erweiterung zur zeitaufgelösten Leitfähigkeitsspektroskopie und die Möglichkeit, den Tunnelstrom in die Quantenpunkte direkt zu messen, macht dieses System attraktiv [Marquardt09, Marquardt11b]. Da sich das 2DEG in vieler Hinsicht ebenfalls wie eine Metallplatte verhält, können dabei viele Konzepte der CV-Methode übernommen werden.

Wir betrachten die Energiebilanz beim Besetzen der Vielteilchen-Zustände in der untersuchten Probengeometrie. Abb. 2.6 zeigt Schichtaufbau und Verlauf der Leitungsbandkante $E_L(z)$ der $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Heterostruktur.⁷ Die Schicht selbstorganisierter InAs-Quantenpunkte befindet sich im (undotierten) Dielektrikum zwischen den metallischen Schichten einer Schottky-Gateelektrode und dem 2DEG mit den Abständen⁸ $d_1 = 151$ nm bzw. $d_2 = 24$ nm. An der Oberfläche kann die Energie des Leitungsbandes über das Anlegen einer Gatespannung V_G relativ zur Schottky-Barriere eV_S erniedrigt werden $E_L(0) = e(V_S - V_G)$. Da die gesamte Spannung linear zwischen Ga-

⁷Eindimensionale Lösung mit einer ML InAs als Benetzungsschicht anstelle des QD-Potentials, das mit den Übergangsenergien zur Veranschaulichung eingefügt wurde.

⁸Bezogen auf: Oberfläche, Quantenpunktbasis und Maximum der 2DEG-Ladung.

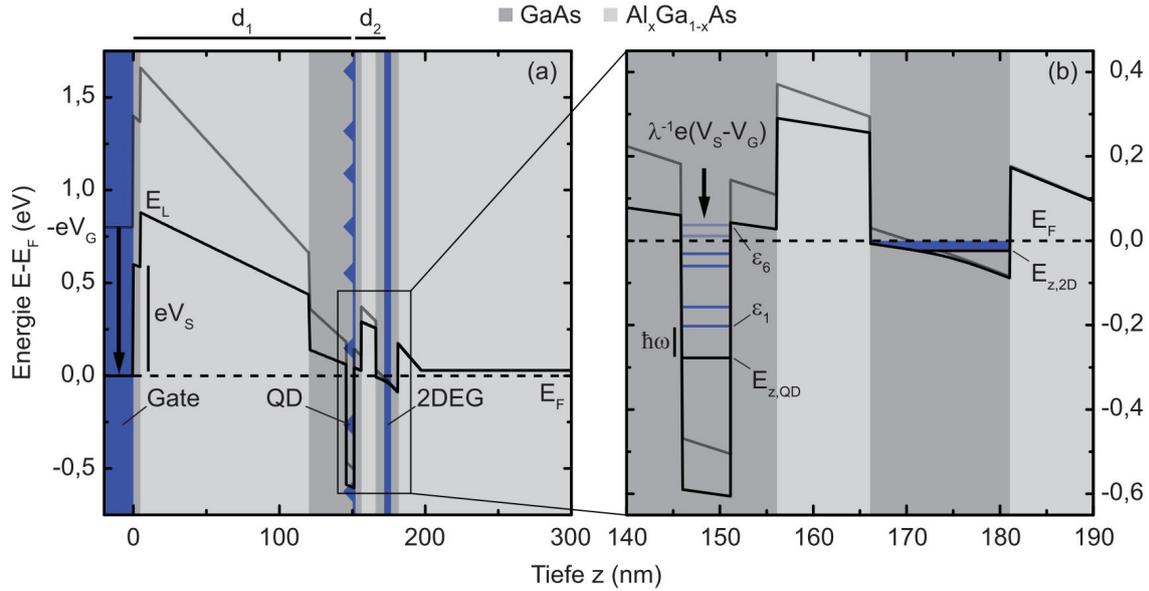


Abbildung 2.6: (a) Schichtstruktur und Leitungsbandverlauf der untersuchten Probe. Eine Schicht InAs-Quantenpunkte ist im Dielektrikum eines Plattenkondensators aus Gateelektrode und 2DEG eingebettet. (b) Vergrößerung des aktiven Bereichs. Die Energieänderung am Ort der Quantenpunkte folgt linear der Gatespannung über den Hebelarm λ . Die Coulomb-Wechselwirkung hebt die Entartung der Einteilchen-Niveaus auf und führt zu den Ladeenergien ϵ_n .

te und 2DEG abfällt, folgt für die Leitungsbandkante am Ort der Quantenpunkte $E_L(d_1) = \lambda^{-1}e(V_S - V_G)$. Der Proportionalitätsfaktor λ wird als Hebelarm bezeichnet und ergibt sich in einfachster Näherung aus den geometrischen Abständen der Schichten. Für die betrachtete Probengeometrie folgt damit:

$$\lambda \approx \frac{d_1 + d_2}{d_2} = 7. \quad (2.24)$$

Für Spannungen in Sperrrichtung und kleine Durchlassspannungen $V_G \lesssim 0,6$ V erlaubt der asymmetrische Aufbau $d_2 \gg d_1$ einen Ladungsaustausch nur zwischen 2DEG und Quantenpunkten, da der Tunnelwiderstand zum Gate als hinreichend groß angesehen werden kann. Das relevante chemische Potential, das die Besetzung der Quantenzustände regelt, ist damit das (Quasi-) Fermi-Niveau am Ort des 2DEGs, $E_F = 0$, was wir als Energierferenz für alle Spannungen verwenden wollen. Wir betrachten zunächst einen Fall, bei dem der Quantenpunkt im elektrostatischen Gleichgewicht einen n -fach geladenen Grundzustand besetzt. In dem Feld zwischen Gate und 2DEG muss nun zusätzlich zu den Vielteilchen-Energien E_n nach Gl. (2.23) auch die elektrostatische Energie seiner n -fachen Elementarladung berücksichtigt werden. Für die korrigierte Gesamtenergie E'_n erhält man damit:

$$E'_n = E_n - n\lambda^{-1}e(V_G - V_0), \quad (2.25)$$

wobei der Versatz V_0 sowohl die Schottky-Barriere als auch die Einschlussenergie⁹ der Quantenpunkte berücksichtigt. Ein Übergang bzw. eine Besetzungsänderung im Quan-

⁹Energetischer Abstand des niedrigsten QD-Niveaus zur Leitungsbandkante im GaAs.

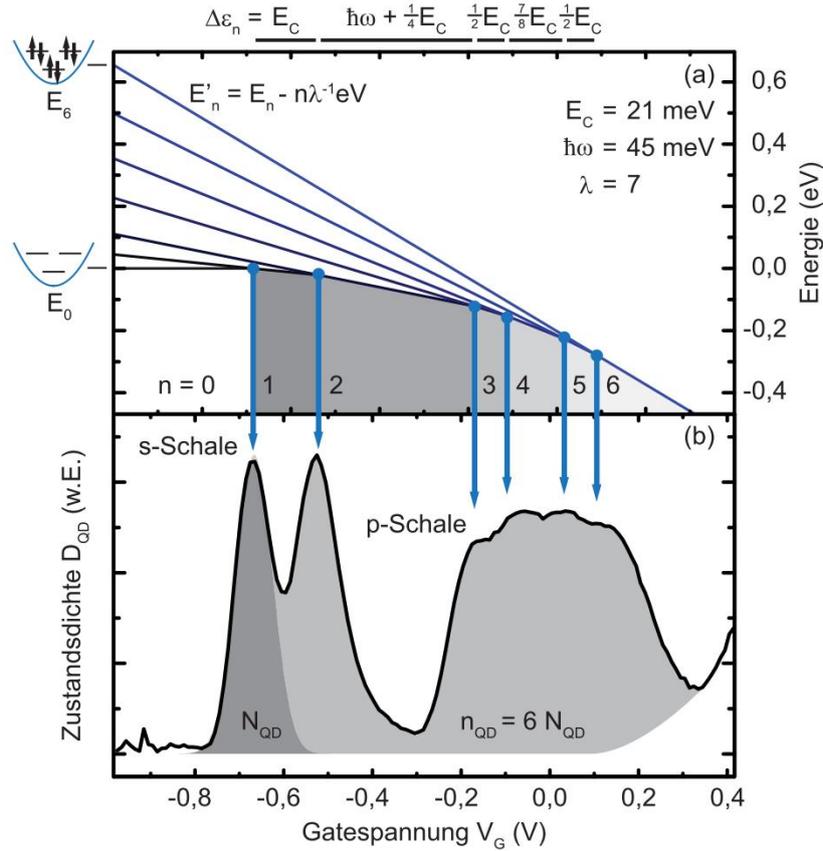


Abbildung 2.7: (a) Energien der Vielteilchen-Zustände unter Berücksichtigung der elektrostatischen Energie am Ort der Quantenpunkte über Spannung $V = V_G - V_0$. Die Besetzung eines Vielteilchen-Zustands kostet mehr Energie, aber der elektrostatische Energiegewinn überwiegt bei höheren Gatespannungen. Die Spannungen an den Schnittpunkten $E'_{n-1} = E'_n$ beschreiben die Übergänge zwischen der Besetzungszahl $n - 1$ und n . Ihre Abstände $\Delta\varepsilon_n$ folgen aus Vielteilchen- und elektrostatischer Energie. (b) Experimentell bestimmte Zustandsdichte über Gatespannung. Eine Größenverteilung der Quantenpunkte bewirkt die inhomogene Verbreiterung als Überlagerung einzelner, scharfer Besetzungsänderungen.

tenpunkt $n \leftrightarrow n + 1$ ist dann energetisch erlaubt, wenn die Energiedifferenz der Besetzungszustände dem chemischen Potential im Reservoir der Elektronen im 2DEG entspricht, wenn also gilt:

$$E'_{n+1} - E'_n = E_F = 0 \quad (2.26)$$

Dies entspricht gerade den Schnittpunkten der durch Gl. (2.25) bestimmten Geraden. Abb. 2.7(a) veranschaulicht dies für die ersten sechs Ladungsträger, die die zwei- und vierfach besetzbare s - bzw. p -Schale sukzessive füllen. Durch die Coulomb-Wechselwirkung der Vielteilchen-Zustände spalten die zwei Schalen der Einteilchen-Zustände nun in sechs diskrete Ladeniveaus $\varepsilon_1 \dots \varepsilon_6$ auf [vgl. Abb. 2.6(b)]. Auch ohne Kenntnis der Quantisierungsenergie $E_{z,\text{QD}}$ in z -Richtung lassen sich nun die in Abb. 2.7 gezeigten Abstände $\Delta\varepsilon_n = \varepsilon_{n+1} - \varepsilon_n$ zwischen den Übergängen der Grundzustände aus den Energien nach Gl. (2.23) berechnen.

Für die Zustandsdichte eines einzelnen Quantenpunktes erhält man damit eine Sum-

me aus Delta-Distributionen: $D_{\text{QD}} = \sum_n \delta(\varepsilon - \varepsilon_n)$. Typischerweise werden Messungen jedoch an einem großen Ensemble von ca. 10^5 Quantenpunkten durchgeführt. Da nicht alle Quantenpunkte exakt identisch sind und eine inhomogene Größenverteilung aufweisen, sind die Übergangsenergien ebenfalls nicht beliebig scharf definiert. Im Ensemble können wir daher die Zustandsdichte der Quantenpunktschicht als Summe von Verteilungsfunktionen $D_{\text{QD}} = \sum_n A(\varepsilon - \varepsilon_n)$ auffassen, wobei wir $A(\varepsilon)$ in erster Näherung als Normalverteilung annehmen wollen. Für die Ladungsträger n_{QD} in einer Schicht mit einer Dichte von N_{QD} selbstorganisierten Quantenpunkten folgt dann:

$$n_{\text{QD}}(\varepsilon) = \int_{-\infty}^{\varepsilon} D_{\text{QD}}(\varepsilon') d\varepsilon' \quad \text{und} \quad N_{\text{QD}} = \int_{-\infty}^{\infty} A(\varepsilon') d\varepsilon'. \quad (2.27)$$

Eine Messung dieser Zustandsdichte zeigt Abb. 2.7(b) als Funktion der Gatespannung V_G . Nach dem oben beschriebenen Modell nach [Warburton98] kann nun aus einer Messung der Spannungsabstände $\Delta V_n = \lambda \Delta \varepsilon_n / e$ zwischen den ersten drei Übergängen ($s \rightarrow ss \rightarrow ssp_{\pm}$, Tab. 2.1) die mittlere Quantisierungsenergie $\hbar\omega$ und Coulomb-Blockade E_C der Quantenpunkte bestimmt werden. Ist die mittlere Halbwertsbreite Δ_b der Verteilung $A(\varepsilon)$ kleiner als die Coulomb-Energien zwischen den Zuständen, können auch in einem großen Ensemble noch einzelne Übergänge aufgelöst werden. Für die hier untersuchte Probe folgen die Werte:

$$\hbar\omega = 45 \text{ meV}, \quad E_C = 21 \text{ meV}, \quad \Delta_b = 19 \text{ meV}. \quad (2.28)$$

Mit der Quantisierungsenergie $\hbar\omega$ ist es nun auch möglich, die Übergänge in angeregte Zustände zu berechnen. Dabei ist die elektrostatische Energie eines n -fach geladenen, angeregten Zustandes lediglich um die Energiedifferenz $E_{n,m} - E_n$ von seinem Grundzustand $m = 0$ verschoben (vgl. Tab. 2.1). Ihre Energie verläuft damit parallel zu den in Abb. 2.7 gezeigten Grundzuständen mit gleicher Besetzung n . Die energetischen Abstände für das Laden eines m -ten angeregten Zustandes von seinem n -Teilchen Grundzustand $\varepsilon_{n,m} - \varepsilon_n = E_{n,m} - E_n$ folgen daher direkt aus Tabelle 2.1. Für die ersten zwei Elemente, QD-Wasserstoff und QD-Helium, folgen die erwarteten Abstände für die untersuchte Probe:

		$s \rightarrow p$ (meV)	$s \rightarrow d$ (meV)	
QD-Wasserstoff:	$\varepsilon_{1,m} - \varepsilon_{1,0} =$	45	89	(2.29)
QD-Helium:	$\varepsilon_{2,m} - \varepsilon_{2,0} =$	34, 39	79, 81, 83	

Bei QD-Helium spalten die Schalen durch die Austauschwechselwirkung in die energetisch niedrigeren Spin-Triplett-Zustände ($S = 1$) und die energetisch höheren Singulett-Zustände ($S = 0$) auf. Für die p -Schale beträgt der Abstand hier $E_C/4 \approx 5$ meV. Im exakteren Modell nach [Merkt91] werden $E_C/2 \approx 10$ meV erwartet. Beide Werte sind jedoch kleiner als die inhomogene Breite des Quantenpunktensembles. Im Rahmen der experimentellen Genauigkeit genügt also das einfachere Modell, das zumindest eine Abschätzung der erwarteten Quantisierungsenergie $\hbar\omega$ der Quantenpunkte erlaubt.

Für eine Messmethode, die nur auf eine Änderung der Gleichgewichtsbesetzung empfindlich ist, sind diese angeregten Zustände nicht zugänglich. Die Kopplung an das 2DEG erlaubt jedoch auch zeitaufgelöste Messungen, bei denen die Quantenpunkte gezielt über die angeregten Zustände geladen werden. Der Detektor ist dabei die Leitfähigkeit des 2DEGs selbst. Diese Methode und die Herstellung, der dafür benötigten Proben, soll im Folgenden beschrieben werden.

Kapitel 3

Zeitaufgelöste Leitfähigkeitsspektroskopie

Quantenzustände über eine Leitfähigkeitsmessung zu detektieren erfordert ein Probendesign, das einem Floating-Gate-Transistor entspricht. Eine Schicht selbstorganisiert gewachsener InAs-Quantenpunkte dient dabei als Floating-Gate zwischen einem Steuergate und dem 2DEG als Leitkanal. In diesem Kapitel soll die untersuchte Probenstruktur und die angewandte Messmethode beschrieben, sowie auf die speziellen Anforderungen an das Transistordesign für zeitaufgelöste Leitfähigkeitsspektroskopie eingegangen werden.

3.1 Probenstruktur - Floating-Gate-Transistor

Ein schematischer Aufbau der Transistoren, wie sie in dieser Arbeit untersucht werden, ist in Abb. 3.1(a) gezeigt. Die einfachste Variante benötigt lediglich zwei Ohmsche Kontakte und ein Schottky-Gate. Zur Bestimmung von Transportparametern lassen sich aber auch weitere Ohmsche Kontakte hinzufügen, um Van-der-Pauw- oder Hall-Bar-Strukturen zu realisieren.

Der Aufbau der Heteroschichten ist noch einmal in Abb. 3.1(b) gezeigt. Im Prinzip handelt es sich dabei um einen HEMT auf AlGaAs-Basis. Damit die Quantenpunkte sich gezielt über das 2DEG laden lassen, wird die Dotierung jedoch invertiert, also anders als üblich, substratseitig vom 2DEG gewachsen. Hergestellt wurde das Schichtsystem mittels MBE-Verfahren auf einem GaAs-Substrat. Nach einer 200 nm GaAs-Pufferschicht und einem 160 nm AlAs/GaAs (2 nm/2 nm) Übergitter, zum Ausgleich von Unebenheiten im Substrat, werden 300 nm $\text{Al}_{0.34}\text{Ga}_{0.66}\text{As}$ gewachsen. Es folgt eine Silizium- δ -Dotierung mit einer Konzentration von $3 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$. Nach der Dotierung wird die $\text{Al}_{0.34}\text{Ga}_{0.66}\text{As}$ -Schicht für 16 nm undotiert als Spacer fortgesetzt. Eine 15 nm Schicht GaAs dient als Quantentopf für das 2DEG, das durch eine Tunnelbarriere aus 10 nm $\text{Al}_{0.34}\text{Ga}_{0.66}\text{As}$ und 5 nm GaAs von den InAs-Quantenpunkten getrennt wird. Die Quantenpunkte wachsen im Stranski-Krastanov-Modus, bei einer Bedeckung von 1,9 ML mit einer nominellen Dichte von $N_{\text{QD}} = 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Sie werden im Anschluss mit 30 nm GaAs überwachsen, auf das zur Isolation ein Übergitter von 116 nm AlAs/GaAs (3 nm/1 nm) folgt, welches an der Oberfläche mit 5 nm GaAs vor Oxidation geschützt wird.

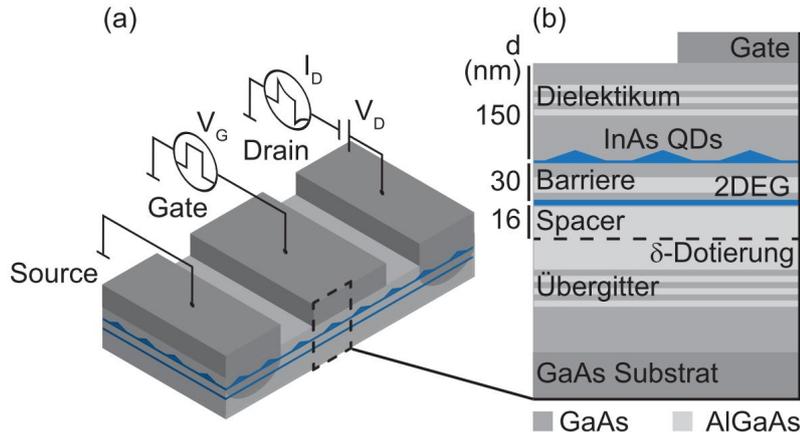


Abbildung 3.1: (a) Schematischer Aufbau einer Transistorstruktur für Leitfähigkeitsdetektion von Quantenzuständen mit Ohmschen Source/Drain Kontakten zum 2DEG und Steuergate. (b) Schichtstruktur des invertierten HEMT. Quantenpunkte und 2DEG sind durch eine 30 nm AlGaAs Barriere getrennt, bei einem Abstand von 150 nm zum Gatekontakt. Die Dotierung liegt substratseitig, so dass die QDs nur über das 2DEG geladen werden.

Die fertigen Wafer werden in Stücke zu ca. $4 \times 4 \text{ mm}^2$ gespalten, auf denen dann die, für die jeweiligen Messungen benötigten, Kontakte definiert werden. Die drei erforderlichen Herstellungsschritte werden mit Standardverfahren der optischen oder auch Elektronenstrahlithografie (EBL) umgesetzt. Die EBL wird dabei nicht nur für kleinere Strukturen, sondern auch wegen ihrer größeren Flexibilität, für die maskenfreie Herstellung kleiner Probenserien verwendet. Der erste Schritt der Lithografie besteht darin, eine Messgeometrie (Mesa) zu definieren, indem Material durch eine Lösung $\text{H}_2\text{SO}_4:\text{H}_2\text{O}_2:\text{H}_2\text{O}$ im Verhältnis 3:1:100 abgetragen wird. Die Ätztiefe beträgt ca. 200 nm, bis unter die Dotierungsschicht. Der nächste Schritt ist die Definition Ohmscher Kontakte als Source und Drain (oder gegebenenfalls auch Spannungsabgriffe). Für die n-Typ Kontakte wird dazu ein Schichtsystem aus Ni/AuGe/Au (10/200/100 nm) mittels physikalischer Gasphasenabscheidung (PVD) an den gegenüberliegenden Enden der Mesa aufgebracht. Im Anschluss wird die metallisierte Probe in einem Ofen unter Formiergasdurchfluss (Ar mit 5% H_2) nach einer Rampe (15 min) für 1 min bei 450°C erhitzt. Hierbei werden Gallium-Atome von dem Gold aufgenommen und das Germanium diffundiert in den Halbleiter, um den Ohmschen Kontakt zum 2DEG herzustellen. Zuletzt wird eine Metallisierung aus Ti/Au (10/200 nm) als Steuer-Gate zwischen die Source- und Drain-Kontakte aufgebracht. Zur elektrischen Verbindung mit dem Aufbau wird das Waferstück auf einen Keramikchipcarrier mit Bondkontakten geklebt. Über einen Aluminium Wedge-Bond (Drahtdurchmesser $25 \mu\text{m}$) werden die Kontakte auf dem Wafer mit den Kontakten auf dem Chipcarrier verbunden. Da der Ultraschallpuls des Wedge-Bonders den Halbleiter lokal schädigt, wird insbesondere bei kleineren Strukturen zusammen mit dem Gate auch ein separater Bondkontakt definiert. Dieser ist zur Vermeidung parasitärer Kapazitäten auf die geätzte Oberfläche aufgebracht.

Alle Messungen werden unter kryogenen Bedingungen bei 4,2 K durchgeführt, wenn nicht explizit eine Temperatur angegeben wird. Die Probe befindet sich dazu unter Helium-Kontaktgasatmosphäre in einem Edelstahlrezipienten mit den entsprechenden elektrischen Durchführungen. Die Kühlung des Rezipienten erfolgt entweder über ein

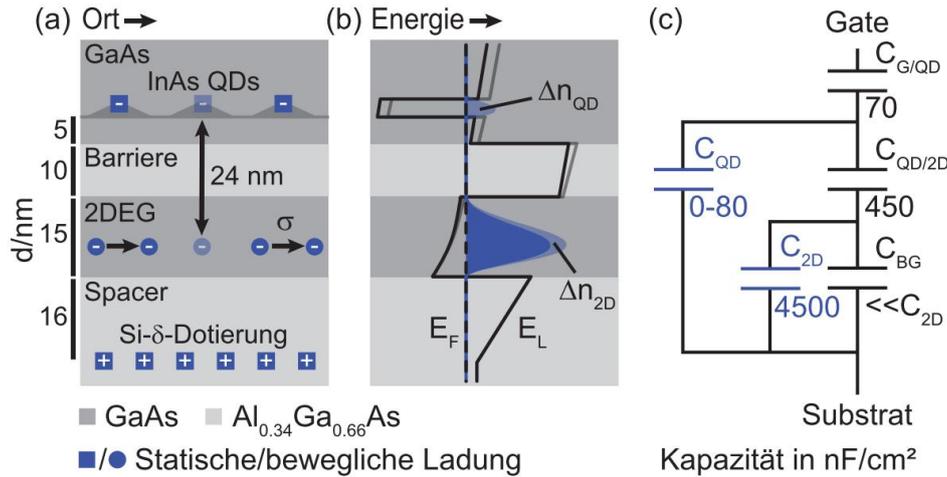


Abbildung 3.2: Vergrößerter Ausschnitt der Heterostruktur (a) lokal und (b) energetisch mit Leitungsbandkantenverlauf E_L . Bewegliche Ladungsträger können sich in dem Quantentopf über der Dotierung sammeln. Wird Ladung in den Quantenpunkten eingefangen, führt die Abschirmung zu einer Verringerung der beweglichen Ladungsträgerdichte. Die Abschirmung kann mit dem Kapazitätsmodell (c) abgeschätzt werden. Geometrische Kapazitäten folgen aus den Abständen der Schichten, die Quantenkapazitäten (blau) aus den jeweiligen Zustandsdichten.

Helium-Bad oder über einen geschlossenen Helium-Gaskreislauf.

3.2 Detektion durch Verarmung

Ein Ausschnitt des elektrisch aktiven Teils der Heterostruktur ist zusammen mit dem Verlauf der Leitungsbandkante in Abb. 3.2 gezeigt. Ladungen innerhalb des Halbleiters können sich auf Quantenpunkte, 2DEG und Dotierung verteilen, um die Ladung zu kompensieren, die auf das Gate aufgebracht wird. Bei typischen Betriebsspannungen liegen die Dotierniveaus energetisch über dem chemischen Potential E_F des 2DEGs, so dass sich ihr Ladungszustand nach dem Abkühlen der Probe nicht mehr verändert. Der Abstand zwischen 2DEG und Quantenpunkten ist jedoch gerade so gewählt, dass sich ihre Zustände je nach Gatespannung oberhalb oder unterhalb des Potentials E_F befinden, wodurch ein Ladungsaustausch ermöglicht wird (vgl. Kap. 2.3).

Wird die Quantenpunktschicht mit Δn_{QD} Elektronen aufgeladen, wird das Potential der Gatespannung effektiv abgeschirmt [siehe Abb. 3.2(b)], so dass die Ladungsträgerdichte im 2DEG um Δn_{2D} verringert wird. Wie effektiv die Abschirmung ist, lässt sich über das in Abb. 3.2(c) gezeigte Ersatzschaltbild abschätzen [Luryi88, Ruß06b]. Verwendet man eine mittlere Dielektrizitätszahl $\epsilon \approx 12$ der Schichten, erhält man die spezifischen, geometrischen Kapazitäten $C = \epsilon\epsilon_0/d$ einfach aus den Abständen¹ zwischen Gate und Quantenpunktschicht zu $C_{G/QD} \approx 70$ nF/cm² bzw. zwischen Quantenpunktschicht und 2DEG zu $C_{QD/2D} \approx 450$ nF/cm². C_{BG} stellt die Hintergrundkapazität dar, da die Spannung auch über Si- und Hintergrunddotierung in das Substrat abfallen kann.

¹Statt einer Berechnung der Permittivität über eine Reihenschaltung aller Schichtkapazitäten wurde hier lediglich der Al-Gehalt gemittelt.

Die in blau gezeigten Quantenkapazitäten [Luryi88] verhalten sich dabei wegen ihrer Energieabhängigkeit nicht wie klassische Kapazitäten. Da die Anzahl ihrer Ladungsträger über die Zustandsdichte mit der Energie (bzw. Spannung) verknüpft ist, muss diese in der Ersatzkapazität berücksichtigt werden. Die 2DEG Kapazität ist in dem für die Messungen relevanten Spannungsbereich konstant und folgt aus der Zustandsdichte für ein einzelnes Subband [Gl. (2.5)] zu $C_{2D} = e^2 D_{2D} \approx 4500 \text{ nF/cm}^2$. Die Ersatzkapazität der Quantenpunktschicht $C_{QD} = e^2 D_{QD}$ lässt sich aus einer Messung der Zustandsdichte D_{QD} abschätzen [Abb. 2.7(b)]. Unter der Annahme einer mittleren Breite der Verteilungsfunktion für die ersten sechs Ladungszustände und ein typisches Spannungsfenster der Messung von 10 mV, findet man, dass maximal 7% der Quantenpunkte ein Elektron aufnehmen bzw. abgeben können. Für die Ersatzkapazität der Schicht folgt: $C_{QD} \approx 0,07 e \lambda N_{QD} / 10 \text{ mV} \approx 80 \text{ nF/cm}^2$. Unter Vernachlässigung der parallelen Hintergrundkapazität $C_{BG} \ll C_{2D}$ lässt sich damit der Einfluss der Quantenpunktladung auf den geometrischen Hebelarm abschätzen:

$$\lambda = [C_{QD/2D} + C_{QD}(\lambda)] \cdot \left[\frac{1}{C_{G/QD}} + \frac{1}{C_{QD/2D} + C_{QD}(\lambda)} \right] = 7,3 \dots 8,6. \quad (3.1)$$

Die energieabhängige Quantenkapazität $C_{QD} \propto D_{QD}$ kann also zu einer spannungsabhängigen Zunahme des Hebelarms führen, der am Maximum der inhomogen verbreiterten Zustandsdichte D_{QD} bis auf 8,6 anwachsen kann. Dies lässt sich anschaulich so verstehen, dass die Ladung in der Quantenpunktschicht zu einem „Knick“ im Leitungsband führt, der sich beim Transfer der Ladung vom 2DEG in die Quantenpunkte bildet. Während dieses Transfers ist der Hebelarm nicht konstant. Für das 2DEG bedeutet die Anhebung des Leitungsbandes am Ort der Quantenpunkte eine effektive Verringerung der Gatespannung und eine damit verbundene Verarmung von Δn_{2D} Ladungsträgern. Diese lässt sich nun ebenfalls aus den Kapazitäten abschätzen zu:

$$\Delta n_{2D} = \left(1 - \frac{1}{\lambda} \right) \Delta n_{QD}. \quad (3.2)$$

Die verbleibende Ladung von $\Delta n_{QD}/\lambda$ verteilt sich dabei auf das Gate, sie wird beispielsweise zur Kapazitätsspektroskopie genutzt. Das 2DEG ist also vergleichsweise sensitiver auf die Ladungsänderung in den Quantenpunkten. Da sich die Änderung des Hebelarms lediglich innerhalb eines kleinen Spannungsfensters am Maximum der Zustandsdichte D_{QD} bemerkbar macht, wollen wir ihn in erster Näherung ($C_{QD} \ll C_{QD/2D}$) als spannungsunabhängig betrachten und im Folgenden den geometrischen Hebelarm $\lambda = 7$ verwenden.

Befindet sich die Ladung in den Quantenpunkten, ist sie nicht beweglich und die Leitfähigkeit des HEMTs ergibt sich allein aus der Leitfähigkeit $\sigma = e n_{2D} \mu$ des 2DEGs. Die Abschirmung durch die geladenen Quantenpunkte kann also direkt über die Leitfähigkeit gemessen werden. Dabei spielt nicht nur die reine Abschirmung eine Rolle, sondern auch die Beweglichkeitsänderung. In früheren Arbeiten konnte gezeigt werden, dass dabei die Beweglichkeitsänderung anteilig die gleiche Wirkung auf die Leitfähigkeitsänderung hat wie die Ladungsträgeränderung selbst [Marquardt11a]. Ursache dafür kann sowohl eine direkte Streuung an den geladenen Quantenpunkten als auch eine indirekte Konsequenz aus der Ladungsträgeränderung durch eine Änderung der Abschirmlänge im Elektronengas sein. Diese Frage soll in Abschnitt 4.1 beantwortet werden. Im Folgenden soll die dafür nötige Messmethode beschrieben werden.

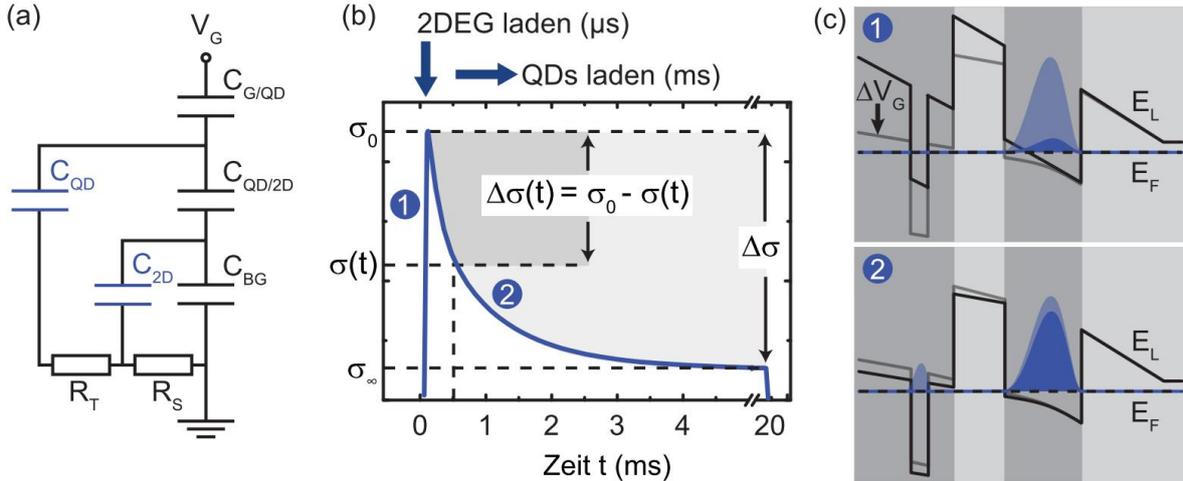


Abbildung 3.3: (a) Ersatzschaltung unter Berücksichtigung von Tunnelwiderstand R_T in die Quantenpunkte und Serienwiderstand R_S des 2DEGs. Eine zeitliche Trennung der Ladeprozesse ist möglich für $R_T C_{QD} \gg R_S C_{2D}$. (b) Reaktion der Leitfähigkeit auf einen Sprung ΔV_G in der Gatespannung und (c) Bandkantenverlauf der zwei entscheidenden Prozesse. Dem Absenken des Leitungsbandes folgt ein schneller ($R_S C_{2D} \sim \mu\text{s}$) Ladevorgang (1) in den Quantentopf des 2DEGs. Der Ladevorgang in die Quantenpunkte (2) führt zu einer Anhebung des Leitungsbandes, das Ladungsträger im 2DEG verarmt. Durch die Tunnelbarriere ist das Laden der Quantenpunkte auf $R_T C_{QD} \sim \text{ms}$ verzögert. Die Leitfähigkeitsänderung $\Delta\sigma(t)$ enthält somit nur die Information vom Tunnelprozess in die Quantenpunkte.

3.3 Messmethode: Dynamische Trennung der Ladevorgänge

Wie in Abb. 3.1 gezeigt, lässt sich die Leitfähigkeit des HEMT durch eine Strommessung I_D bei konstanter Drainspannung V_D bestimmen. Für eine Vierpunktmessung lässt sich aber auch ein konstanter Strom vorgeben, wie z.B. zur Bestimmung der Hall-Spannung. Da auf die Quantenpunkte in Drainnähe eine effektiv geringere Gatespannung wirkt, nimmt die Verbreiterung der Lademaxima in der Ensemblemessung mit der Drainspannung zu. Der Spannungsabfall zwischen Source und Drain (hier typischerweise $V_D \approx 10 \text{ mV}$) sollte daher möglichst klein gehalten werden.

Der Strom wird dann mit einem Impedanzwandler in eine Spannung transformiert und über einen Analog-Digital-Wandler an den Messrechner übergeben. Getriggert wird die Messung über einen Funktionsgenerator, der zusätzlich ein Rechtecksignal mit einer Amplitude ΔV_G auf das Steuergate des HEMTs ausgibt.

Die Reaktion des Systems auf einen positiven Sprung in der Gatespannung ist in Abb. 3.3 gezeigt. Durch den Spannungssprung wird das Leitungsband an der Oberfläche abgesenkt, so dass Ladung in den Quantentopf fließen kann und sich die Leitfähigkeit im 2DEG erhöht. Die Zeitskala für diesen Prozess ist typischerweise $< \mu\text{s}$ und folgt im Kapazitätsmodell [Abb. 3.3(a)] aus dem Produkt $R_S C_{2D}$. Sie lässt sich durch niederohmige (z.B. breite) Kontaktbereiche und ein kurzes Gate verringern, worauf noch einmal genauer in Kapitel 6 eingegangen wird. Die Zeitkonstante $R_T C_{QD}$ der Tunnelprozesse in die Quantenpunktzustände lässt sich über die Länge und Zusammensetzung

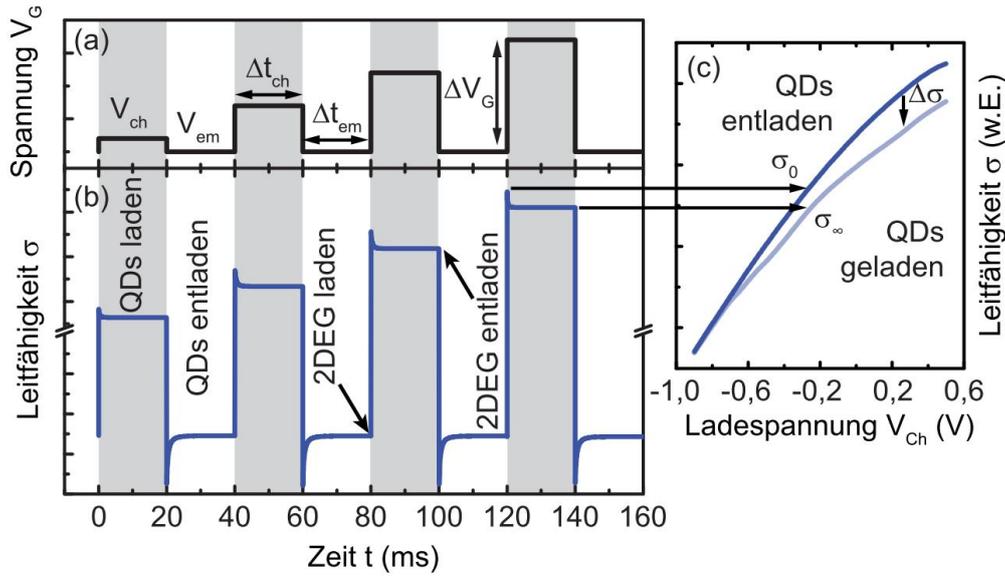


Abbildung 3.4: (a) Pulsschema der Gatespannung und (b) Antwort der Leitfähigkeit des 2DEGs. Auf das Umschalten von V_{em} nach V_{ch} folgt zunächst ein schneller Anstieg der Leitfähigkeit durch das Laden des 2DEGs. Anschließend folgt eine langsamere Abnahme durch das Laden der Quantenpunkte. Die unterschiedlichen Zeitskalen ermöglichen die Trennung (c) der Leitfähigkeit, in einen Anteil mit und ohne Ladung in den Quantenpunkten.

(Aluminium-Anteil) der Tunnelbarriere nahezu beliebig einstellen und liegt hier im Bereich von ms.

Die unterschiedlichen Zeitskalen erlauben es, die Tunneldynamik der Quantenpunkte unabhängig von dem Laden des 2DEGs auszuwerten. Hierzu wird nur die Änderung der Leitfähigkeit betrachtet, unmittelbar nachdem das 2DEG geladen wurde:

$$\Delta\sigma(t) = |\sigma_0 - \sigma(t)|. \quad (3.3)$$

Bis auf Korrekturen durch die Beweglichkeit entspricht diese Änderung direkt dem Tunnelstrom vom 2DEG in die Quantenpunkte, so dass wir schreiben können:

$$\Delta\sigma(t) \propto \Delta n_{QD}(t). \quad (3.4)$$

Die Untersuchung dieser Tunneldynamik ist Gegenstand der folgenden zwei Kapitel. In Verbindung mit der Möglichkeit, durch eine geeignete Folge von Gatespannungen Anfangs- und Endzustände gezielt einzustellen, erhält man mit diesem System ein flexibles Werkzeug zur Untersuchung von Quantenpunktzuständen.

Abb. 3.4(a) zeigt eine typische Folge von Spannungsschritten einer Messreihe. Die Spannung wechselt dabei jeweils zwischen einer Lade- (V_{ch}) und einer Entladespannung (V_{em}). Gehalten werden die Spannungen hier solange, bis alle Ladeprozesse abgeschlossen und das System ohne weitere Leitfähigkeitsänderung im Gleichgewicht ist. Die Ladezeit Δt_{ch} lässt sich aber auch verkürzen, um gezielt eine Teilbesetzung zu präparieren, was in Abschnitt 4.2 ausgenutzt wird.

Beginnt der Spannungssprung immer von einem konstanten V_{em} , beispielsweise aus einer Spannung, bei der alle Quantenpunkte ungeladen sind, so lässt sich aus der Leitfähigkeit $\sigma_0(V_{ch})$ unmittelbar nach dem Umschalten die Charakteristik des 2DEGs ohne

Ladung in den Quantenpunkten ermitteln, während bei der Leitfähigkeit im Gleichgewicht σ_∞ die Quantenpunkte bis zu ihrer energetisch erlaubten Grenze geladen sind [Abb. 3.4(c)]. Nach jedem Sprung zu einer Ladespannung V_{ch} wird so ein sequenzielles Auffüllen ausgelöst, dessen Dynamik die Detektion von angeregten Zuständen erlaubt.

In der Praxis erfordert die Bestimmung von σ_0 sowohl eine hohe Bandbreite der Messtechnik, als auch eine hohe Präzision, da nur kleine Änderungen $\Delta\sigma$ durch das Laden der Quantenpunkte verursacht werden. Anders als in Abb. 3.4 gezeigt, wird daher die Pulsfolge nicht in einer Einzelmessung durchgeführt, sondern für jedes paar V_{ch} und V_{em} ca. 1000 mal gemittelt, bevor zum nächsten paar $(V_{\text{ch}}, V_{\text{em}})$ gewechselt wird. Zusätzlich, insbesondere zur Bestimmung der Ableitung, lassen sich die aufgezeichneten Kurven $\sigma_0(V_G)$ und $\sigma_\infty(V_G)$ entlang der Gatespannung mit einem gleitenden Durchschnittsverfahren nach [Savitzky64] glätten. Das Glättungsfenster liegt dabei üblicherweise im Bereich 50 bis 100 mV, so dass bei diesem polynomiellen Verfahren ein Einfluss auf die inhomogene Ensemblebreite vernachlässigt werden kann.

Anstatt in der Pulssequenz nur die Ladespannung V_{ch} zu variieren, ist es auch möglich, bei kleiner Amplitude ΔV_G , die Entladespannung V_{em} mitzuführen. Auf diese Weise lassen sich Lade- und Entladevorgänge für die Vielteilchen-Grundzustände genauer untersuchen, was Gegenstand des Kapitels 5 ist. Welche Zeitaufösung mit diesen Strukturen erreichbar ist und auf welche Größe sie sich skalieren lassen wird dann abschließend in Kapitel 6 diskutiert.

Kapitel 4

Ladedynamik aus festen Ausgangszuständen

In diesem Kapitel wird die Messmethode angewandt, die es ermöglicht aus einer immer gleichen Anfangssituation (z.B. alle Quantenpunkte sind entladen) zu starten und die sequentielle Befüllung der Quantenpunktzustände zu untersuchen. Im ersten Abschnitt wird der Moment des geladenen 2DEGs bei ungeladenen Quantenpunkten genutzt, um die Streuwirkung, allein aufgrund der Ladung in den Quantenpunkten zu isolieren. Im zweiten Abschnitt wird die Dynamik des sequentiellen Lade- und Entladevorgangs genutzt um angeregte Zustände der Quantenpunkt-Wasserstoff und -Helium Konfigurationen zu untersuchen.

4.1 Abschirmung oder Streuung: Die Rolle der Quantenpunktladung

Mit Hilfe des kapazitiven Modells wurde im vorangegangenen Kapitel gezeigt, wie das Laden der Quantenpunktschicht zu einer Verringerung der Ladungsträger im 2DEG führt. Für eine Leitfähigkeitsmessung $\sigma = en_{2D}\mu$ ist jedoch die Beweglichkeit μ ein ebenso entscheidender Parameter wie die Anzahl der Ladungsträger n_{2D} selbst.

In den Grundlagen hatten wir gesehen, dass eine Verknüpfung zwischen Ladungsträgerdichte und Beweglichkeit besteht, die sich in der Form $\mu \propto n_{2D}^\alpha$ ausdrücken lässt. Allein durch die Verarmung der Ladungsträger im 2DEG wirkt sich also die Ladung der Quantenpunkte bereits indirekt auf die Beweglichkeit aus. Des weiteren ist es möglich, dass die Ladungen in den Quantenpunkten durch Coulomb-Streuung auch direkten Einfluss auf die Beweglichkeit nehmen. In diesem Abschnitt soll daher zunächst der Frage nach der Beweglichkeitsänderung nachgegangen werden, bevor dann im weiteren Verlauf nur noch die Änderung der Leitfähigkeit betrachtet wird. Die hier gezeigten Messungen sind im Rahmen einer Masterarbeit [Kurzmann12] entstanden. Zur Untersuchung der Beweglichkeitsänderung in zweidimensionalen Lochgasen wurde die Methode zum ersten mal im Rahmen einer Diplomarbeit [Wisotzki12] angewandt.

Zur Trennung der Leitfähigkeit in Ladungsträgerdichte und Beweglichkeit wird eine Hall-Messung in einem Magnetfeld $B = 0,5 \text{ T}$ an einer Struktur mit Längs- und Querspannungsabgriffen durchgeführt. Bei einem konstanten Drainstrom $I_D = 3 \mu\text{A}$ werden die Spannungsdifferenzen V_x und V_y zwischen den Kontakten im Abstand $d_x = 380 \mu\text{m}$

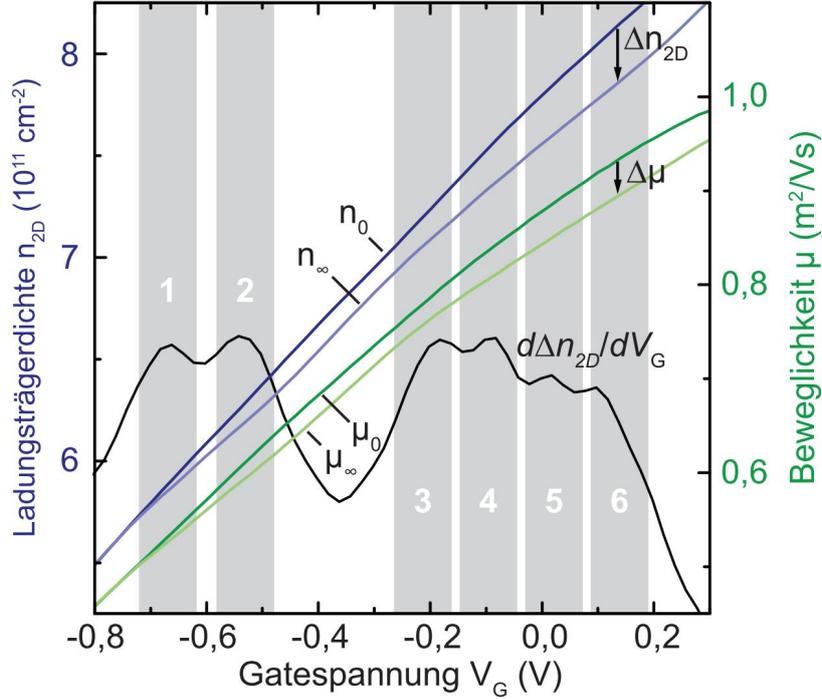


Abbildung 4.1: Ladungsträgerdichte n_0 und Beweglichkeit μ_0 des 2DEGs direkt nach dem Umschalten und im statischen Fall mit n_∞ bzw. μ_∞ . Die Kurven n_0, μ_0 zeigen die 2DEG Parameter ohne Ladung in den Quantenpunkten. Durch Differenzbildung ($\Delta n_{2D}, \Delta \mu$) lässt sich die Auswirkung ihrer Aufladung mit bis zu sechs Elektronen getrennt untersuchen. Die Ableitung $d\Delta n_{2D}/dV_G$ zeigt die Änderung der Besetzung in den Quantenpunkten.

bzw. $d_y = 300 \mu\text{m}$ aufgezeichnet. Ladungsträgerdichte und Beweglichkeit ergeben sich damit aus:

$$n_{2D} = \frac{BI_D}{eV_y}, \quad \mu = \frac{d_x V_y}{d_y V_x B}. \quad (4.1)$$

Die zeitaufgelöste Messtechnik erlaubt eine Trennung der charakteristischen Parameter des 2DEGs für geladene und ungeladene Quantenpunkte (vgl. Abb. 3.4). Die im vorigen Kapitel beschriebene Entladespannung V_{em} ist dabei konstant und unterhalb aller Ladezustände in den Quantenpunkten. Sie wird genügend lange gehalten, um idealerweise alle Quantenpunkte zu entladen.

Abb. 4.1 zeigt Ladungsträgerdichte n_{2D} und Beweglichkeit μ des 2DEGs als Funktion der Gatespannung $V_G = V_{ch}$, jeweils unmittelbar nach dem Umschalten (n_0, μ_0) sowie für den statischen Fall (n_∞, μ_∞). Kurven mit dem Index 0 zeigen somit die Transporteigenschaften des 2DEGs bei ungeladenen Quantenpunkten, während der Index ∞ den Fall einer energieabhängigen Besetzung der Quantenpunkte mit jeweils bis zu sechs Elektronen entspricht.

Die Differenz der Kurven $\Delta n_{2D}, \Delta \mu$ entspricht also gerade dem Beitrag zur Ladungsträger- und Beweglichkeitsänderung im 2DEG durch das Laden der Quantenpunktschicht. Aus dem Kapazitätsmodell nach Gl. (3.2) und der statischen Zustandsdichte D_{QD} folgt:

$$\Delta n_{2D}(V_{ch}) \approx \left(1 - \frac{1}{\lambda}\right) \int_{V_{em}}^{V_{ch}} D_{QD} dV_G. \quad (4.2)$$

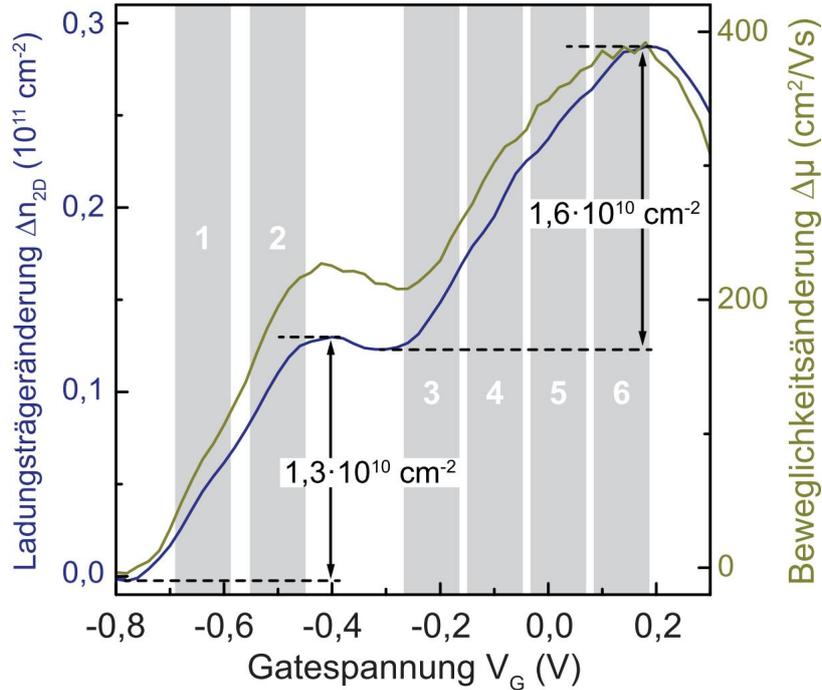


Abbildung 4.2: Änderung in Ladungsträgerdichte und Beweglichkeit durch das Aufladen der Quantenpunkte in Abhängigkeit der Ladespannung. Die typische Schalenstruktur mit einem Plateau ist in beiden Anteilen zu erkennen. Aus der Ladungsträgeränderung lässt sich die Quantenpunktdichte ableiten.

Bei konstanter Entladespannung V_{em} ergibt sich damit die Zustandsdichte aus:

$$d\Delta n_{2D}/dV_{ch} \propto D_{QD}. \quad (4.3)$$

In der Tat zeigt die in Abb. 4.1 eingezeichnete Ableitung die typische Signatur für sechsfach geladene Quantenpunkte mit zwei Zuständen für die s -Schale und vier Zuständen für die p -Schale. Neben der Kapazitätsspektroskopie erlaubt diese Messung also auch die Bestimmung der Zustandsdichte D_{QD} .

Abb. 4.2 zeigt die absolute Änderung Δn_{2D} und $\Delta\mu$. Die Quantisierungslücke zwischen s - und p -Schale zeigt sich hier als Stufe ab $-0,4$ V in beiden Kurven. Tatsächlich bricht das Signal hier sogar leicht ein ($d\Delta n_{2D}/dV_G < 0$), was ebenso ab $0,2$ V, über den Zuständen der p -Schale zu beobachten ist. Mit Gl. (4.3) ist dies nicht zu vereinbaren, stattdessen handelt es sich dabei um ein Artefakt der begrenzten Zeitauflösung der Messung. Im nächsten Abschnitt werden wir die Rolle der Tunnelraten näher untersuchen, die gerade im Bereich $-0,4$ V stark ansteigt, was dazu führt, dass die Quantenpunkte ab dieser Spannung auch bei Messbeginn (n_0, μ_0) nicht mehr als völlig leer angesehen werden können.

Im Bereich der langsamen Tunnelprozesse der s -Schale ist dies jedoch noch in guter Näherung erfüllt. Die Quantenpunktdichte ergibt sich mit Gl. (3.2) und den, in Abb. 4.2 eingezeichneten, Abständen zu $5,5 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ im Bereich der s -Zustände und zu $3,4 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ im Bereich der p -Zustände. Unter der Annahme eines spannungsunabhängigen Hebelarms sind also 60 % der Quantenpunkte bei einer Spannung von $V_G = 0,2$ V vor Messbeginn bereits einfach geladen.

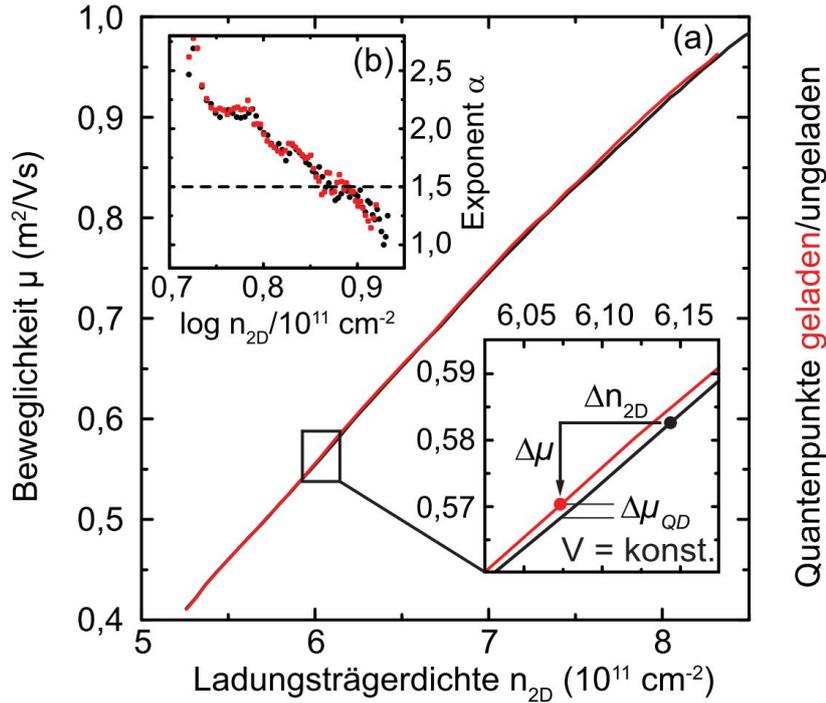


Abbildung 4.3: (a) Beweglichkeit über Ladungsträgerdichte für leere $\mu_0(n_0)$ und bis zum Gleichgewicht aufgeladene $\mu_\infty(n_\infty)$ Quantenpunkte. Der Ausschnitt zeigt, wie sich Ladungsträgerdichte und Beweglichkeit durch das Laden der Quantenpunkte bei einer gegebenen Spannung ändern. (b) Beweglichkeitsexponent α für beide Kurven. Für die Charakteristik des 2DEGs macht es keinen signifikanten Unterschied, ob die Quantenpunkte geladen oder ungeladen sind.

Wenden wir uns der Beweglichkeitsänderung in Abb. 4.2 zu, so zeigt sich auch hier die gleiche Signatur wie in der Ladungsträgeränderung. Das Laden der Quantenpunkte führt also wie erwartet ebenfalls zu einer Änderung der Beweglichkeit. Abb. 4.3(a) zeigt die Beweglichkeit als Funktion der Ladungsträgerdichte für den Fall geladener $\mu_\infty(n_\infty)$ und ungeladener $\mu_0(n_0)$ Quantenpunkte. Es fällt sofort auf, dass beide Kurven nahezu keinen signifikanten Unterschied zeigen. Der vergrößerte Ausschnitt zeigt, wie sich das Laden bei einer festen Spannung im Bereich der s -Zustände in eine Bewegung auf den Kurven übersetzt.

Die Kurve $\mu_0(n_0)$ ist nun unsere Referenz für ungeladene Quantenpunkte. Vergleicht man die Beweglichkeiten bei gleicher Ladungsträgerdichte zeigt sich, dass das 2DEG bei ungeladenen Quantenpunkten sogar eine um $\Delta\mu_{QD} \ll \Delta\mu$ geringere Beweglichkeit aufweist als bei geladenen Quantenpunkten. Würde sich eine Coulomb-Streuung der geladenen Quantenpunkte auf die Beweglichkeit auswirken, würde man aber gerade den gegenteiligen Effekt erwarten. Eine direkte Streuung an den Ladungen der Quantenpunkte spielt also für die beobachtete Beweglichkeitsänderung $\Delta\mu$ keine Rolle. Mit Hilfe der Matthiessenschen Regel lässt sich dies so verstehen, dass die Beweglichkeit von anderen Streuern so stark beeinträchtigt wird (z.B.: Durch Gitterverspannungen, Dotieratome, etc.), dass die Ladungsschicht am Ort der Quantenpunkte keinen signifikanten Einfluss mehr hat.

Die beobachtete Erhöhung $\Delta\mu_{QD}$ durch das Laden der Quantenpunkte hat hier

innerhalb der experimentellen Toleranzen keine ausreichende Signifikanz. Ein derartiger Effekt wurde jedoch an ähnlichen Proben bereits beobachtet [Zhukov03] und konnte dort auf die Abschirmung von Störstellen durch die Ladung in den Quantenpunkten zurückgeführt werden.

Es lässt sich festhalten, dass die Beweglichkeitsänderung aufgrund geladener Quantenpunkte nahezu vollständig auf die Änderung der Ladungsträgerdichte zurückzuführen ist. Beschreibt man diesen Zusammenhang über ein Potenzgesetz $\mu \propto n_{2D}^\alpha$ erhält man den Exponenten aus der Ableitung:

$$\alpha = \frac{d(\log \mu [\text{m}^2/\text{Vs}])}{d(\log n_{2D} [\text{1}/\text{cm}^2])}. \quad (4.4)$$

Abb. 4.3(b) zeigt, dass dieser Exponent zum einen wieder unabhängig von dem Ladestandard der Quantenpunkte ist, zum anderen aber auch von der Ladungsträgerdichte des 2DEGs abhängt. Ein Exponent $\alpha \approx 2$ bei niedrigen Dichten ist dabei ungewöhnlich hoch. In [Hirakawa86] wird ein Exponent von 1,7 auf Inhomogenitäten im 2DEG zurückgeführt, was hier durch das nahe (ungeladene) Spannungsfeld der Quantenpunkte zu dem erhöhten Wert führen kann. Die Abnahme des Exponenten auf $\gtrsim 1$, kann für eine Zunahme der Streuung in höhere Subbänder sprechen. Da hier der Abstand der Subbänder vergleichsweise hoch ist, ist eine wahrscheinlichere Ursache eine zunehmend dominanterer Streuung durch nahe Störstellen [Hwang08], die von dem 2DEG effektiver abgeschirmt werden können und sich durch einen kleineren Exponenten auszeichnen. Segregation von Dotierung [Heiblum85] oder der Barrierenlegierung [Sadeghzadeh12] können dies in der invertierten Struktur begünstigen.

Allgemein gilt für die Leitfähigkeitsänderung aufgrund einer kleinen Ladungsträgeränderung Δn_{2D} :

$$\Delta\sigma \approx \frac{d\sigma}{dn_{2D}} \Delta n_{2D} = e \frac{d(\mu n_{2D})}{dn_{2D}} \Delta n_{2D} = e \left(\mu + n_{2D} \frac{d\mu}{dn_{2D}} \right) \Delta n_{2D}. \quad (4.5)$$

Dieser Ausdruck ist zunächst recht unhandlich, da beide Summanden im Vorfaktor von vergleichbarer Größenordnung und spannungsabhängig sind. Da wir aber für gewöhnlich nur kleine Änderungen durch das Laden der Quantenpunkte erwarten und sich die Ladungsträgerdichte im Spannungsbereich der Quantenpunktzustände nur um ca. 30 % ändert, wollen wir die Spannungsabhängigkeit des Vorfaktors im Folgenden vernachlässigen. In Verbindung mit Gl. (3.2) und im Rahmen der benötigten Genauigkeit¹ können wir schreiben:

$$\Delta\sigma \approx \text{konst.} \cdot \Delta n_{2D} \propto \Delta n_{\text{QD}}. \quad (4.6)$$

Solange keine quantitativen Aussagen benötigt werden, ist die Leitfähigkeitsänderung also ebenfalls ein Maß für den Ladungsfluss in die Quantenpunkte. Anstelle einer Hall-Messung genügt also auch eine reine Zweipunkt-Messung. Diese erlaubt ein einfacheres Probendesign mit lediglich zwei Ohmschen Kontakten. Gegenüber den meist schmalen, hochohmigen Spannungsabgriffen lässt sich hierdurch auch die Zeitauflösung der Messung verbessern. Im Folgenden wird daher nur noch die Leitfähigkeitsänderung des 2DEGs aus der Leitwertsänderung einfacher Transistorstrukturen betrachtet.

¹Im Folgenden werden nur noch relative Änderungen der Besetzung wichtig sein.

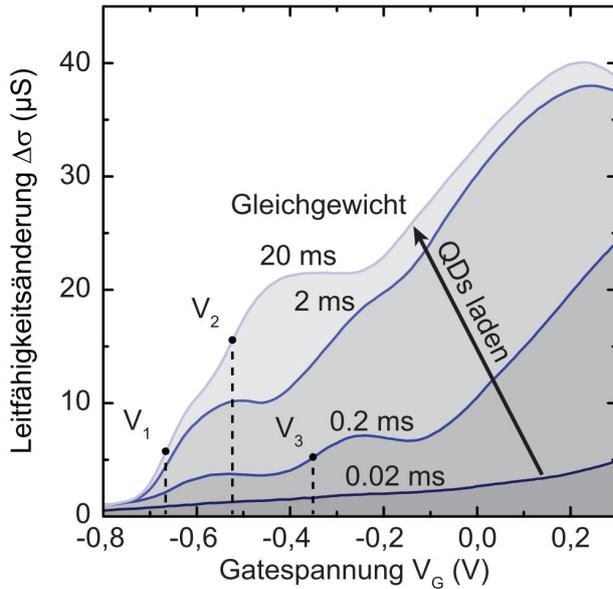


Abbildung 4.4: Zeitentwicklung der Leitfähigkeitsänderung über Gate-spannung. Im Gleichgewicht nach 20 ms zeigt sich die typische Schallensignatur mit bis zu sechsfach besetzten Quantenpunkten. Der Anstieg wird maximal bei den mittleren Ladespannungen der Grundzustände wie bei $V_{1,2}$ für die s -Schale. Bei kürzeren Zeiten zeigen sich Anstiege wie bei V_3 , die keinem Grundzustand zugeordnet werden können.

4.2 Spektrale Entwicklung: Die Rolle angeregter Zustände

Wir betrachten nun die Dynamik des Ladeprozesses etwas genauer [Beckel14b]. Abb. 4.4 zeigt die Leitfähigkeitsänderung $\Delta\sigma$ in ihrer zeitlichen Entwicklung von 20 μs bis zum statischen Gleichgewicht nach 20 ms als Funktion der Gatespannung beim Laden der Quantenpunkte $V_G = V_{\text{ch}}$. Im Gleichgewicht zeigt sich die bereits bekannte, inhomogen verbreiterte Stufenform. Sie folgt aus den in Abschnitt 2.3 beschriebenen Energien ε_n beim Übergang in die Grundzustände der Quantenpunkte, deren s -Schale sich bei den mittleren Ladespannungen V_1 bzw. V_2 mit zwei Elektronen besetzen lässt, bevor zusätzlich die Quantisierungsenergie $\hbar\omega$ aufgebracht werden muss, um weitere Elektronen hinzuzufügen (Stufe bei $V_G = -0,4$ V). Bei kürzeren Ladezeiten (z.B. 0,2 ms) zeigt sich jedoch ein anderes Verhalten. Die Spannung V_3 kennzeichnet einen Anstieg der Besetzung, obwohl hier kein Grundzustand eine Erhöhung der Gleichgewichtsbesetzungszahl erlaubt. Dennoch ist es hier möglich bei gleicher Ladezeit mehr Elektronen in die Quantenpunktschicht zu transferieren. Bei diesen Spannungen kommt es also zu einem Anstieg der Tunnelraten. Für die Tunnelraten ist aber nicht nur die Zustandsdichte D_{QD} der Grundzustände relevant, sondern auch die Wahrscheinlichkeit, mit der ein Übergang erfolgen kann, weswegen wir den Transferprozess nun zunächst etwas genauer beschreiben wollen.

4.2.1 Evolution der Zustandsdichte

Wir betrachten den Ladeprozess für einen einzelnen Quantenpunkt, der bei einer gegebenen Spannung V_G im Gleichgewicht mit n_{GG} Elektronen befüllt werden kann. Ist der Quantenpunkt unmittelbar nach dem Sprung zur Ladespannung noch unbesetzt, stehen für den Transfer des ersten Elektrons zunächst die Einteilchen-Energien des harmonischen Oszillators $\varepsilon_{1,m}$ nach Kap. 2.3 zur Verfügung. Ist der Quantenpunkt nun einfach geladen, hebt die Coulomb-Wechselwirkung die Zustände energetisch an und die Zweiteilchen-Zustände der Energien $\varepsilon_{2,m}$ stehen dem folgenden Elektron zur Ver-

fügung. Die dem Tunnelprozess zur Verfügung stehenden Zustände unterliegen somit während der Füllung einer sequentiellen Evolution.

Die Wahrscheinlichkeit p_i , einen Quantenpunkt *mindestens* im Besetzungszustand i zu finden, ist also mit der vorangegangenen Wahrscheinlichkeit p_{i-1} verknüpft. Dies lässt sich durch einen Satz von Differenzialgleichungen beschreiben, in der Form:

$$\dot{p}_i = \gamma_i(p_{i-1} - p_i), \quad (4.7)$$

wobei der Vorfaktor γ_i die Rate (inverse Zeitkonstante $\tau_i = 1/\gamma_i$) beschreibt, mit der sich die Besetzung von $i - 1$ nach i erhöht. Die Normierungsbedingung lautet hier $p_0 = 1$, denn die Mindestbesetzung des Quantenpunkts ist zu allen Zeiten durch $i = 0$ gegeben.² Mit der Anfangsbedingung für leere Quantenpunkte und $p_{i \geq 1}(0) = 0$ erhält man als Lösung für die einzelnen Wahrscheinlichkeiten:

$$\begin{aligned} p_1(t) &= 1 - e^{-\gamma_1 t} \\ p_2(t) &= 1 - \frac{\gamma_1 e^{-\gamma_2 t} - \gamma_2 e^{-\gamma_1 t}}{\gamma_1 - \gamma_2} \\ p_3(t) &= \dots \end{aligned} \quad (4.8)$$

Da wir nur die Gesamtladung, bzw. die Besetzung n messen können, müssen wir noch die einzelnen Wahrscheinlichkeiten aufsummieren. So erhält man die Zeitentwicklung der mittleren Besetzung über:

$$n(t) = \sum_{i=1}^{n_{\text{GG}}} p_i(t). \quad (4.9)$$

Nach genügend langen Ladezeiten wird sich die Gleichgewichtsbesetzung n_{GG} einstellen, die wir – wie zuvor – ableiten können, um die Zustandsdichte des Quantenpunkts im Gleichgewicht D_{GG} zu erhalten (bzw. D_{QD} für das Ensemble der Quantenpunktschicht). Bei dieser Zustandsdichte ist die Entartung d der Vielteilchen-Zustände irrelevant, sie gibt lediglich Auskunft über die Besetzungsänderung der Quantenpunkte im Gleichgewicht, im Sinne einer Kapazität. Die Tunnelraten γ_i enthalten jedoch auch eine Information aus der schalenabhängigen Entartung der Zustände, also der Zustandsdichte der angeregten Zustände. Je mehr Zielzustände dem tunnelnden Elektron im Energiefenster der Messung zur Verfügung stehen, desto höher die Tunnelwahrscheinlichkeit.³ Allein aufgrund der Entartung der Zielzustände $d_{i,m}$ erwarten wir also:

$$\gamma_i \propto \sum d_{i,m}, \quad (4.10)$$

für alle angeregten Zustände m im untersuchten Energiefenster durch den Sprung in der Gatespannung von V_{em} nach V_{ch} . Hierdurch wird aber auch die Tunnelrate spannungsabhängig, was in der Ableitung d/dV_G berücksichtigt werden muss.

Abb. 4.5 zeigt nun die Ableitung $d\Delta\sigma/dV_G \propto dn/dV_G$ für die Zeitentwicklung des Ladevorgangs in den ersten 10 ms. Bei langen Zeiten zeigt sich wie erwartet die Änderung der Gleichgewichtsbesetzung, ausgedrückt durch die „kapazitive“ Zustandsdichte

²In diesem Modell können die Wahrscheinlichkeiten p_i beim Laden nur zunehmen; anders als bei der Wahrscheinlichkeit, einen Quantenpunkt im Besetzungszustand i zu finden und der Normierungsbedingung $\sum p_i = 1$.

³Hier soll zunächst vereinfachend angenommen werden, dass jeder Zustand die gleiche Übergangswahrscheinlichkeit hat und im Vergleich zur Tunnelzeit unmittelbar in den Grundzustand zerfällt.

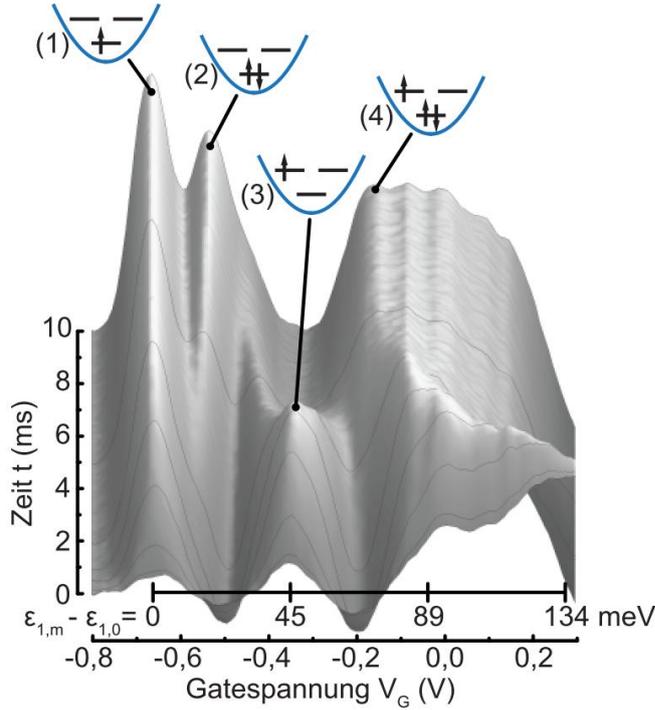


Abbildung 4.5: Ableitung der Leitfähigkeitsänderung $d\Delta\sigma/dV_G \propto dn/dV_G$ nach der Gatespannung für die ersten 10 ms nach dem Laden. Für lange Zeiten zeigt sich die Zustandsdichte der Grundzustände, die der Erhöhung der Gleichgewichtsbesetzung D_{QD} entspricht, mit den ersten drei Elektronen bei (1),(2) und (4). Zu Beginn korreliert das Spektrum mit den berechneten Abständen zwischen den Einteilchen-Energien $\varepsilon_{1,m}$. Besonders deutlich ist das Laden der p -Schale bei (3) zu erkennen.

D_{QD} . Zu Beginn korreliert das Spektrum jedoch mit den Abständen, die in Abschnitt 2.3 hergeleiteten Einteilchen-Energien $\varepsilon_{1,m}$. Um zu sehen, in wieweit wir hier ebenfalls von einer Zustandsdichte sprechen können, entwickeln wir Gl. (4.9) für kurze Zeiten und erhalten:

$$\gamma_1 t + \frac{1}{2} (\gamma_1 \gamma_2 - \gamma_1^2) t^2 + \mathcal{O}(t^3). \quad (4.11)$$

Leiten wir nun Gl. (4.9) unter Berücksichtigung spannungsabhängiger Raten nach der Gatespannung ab, so erhalten wir für die zwei Grenzfälle:

$$\frac{dn}{dV_G} = \begin{cases} \frac{d\gamma_1}{dV_G} t + \mathcal{O}(t^2) & , t \rightarrow 0, \\ \frac{dn_{\text{GG}}}{dV_G} & , t \rightarrow \infty. \end{cases} \quad (4.12)$$

Bei kurzen Zeiten erhält man also einen Beitrag, der sich proportional zur Ratenänderung des ersten Elektrons $d\gamma_1/dV_G$ verhält. Einen Ratenanstieg erwarten wir zunächst immer dann, wenn mehr Zielzustände für den Tunnelvorgang zur Verfügung stehen, also gerade dann, wenn sich auch die Zustandsdichte der angeregten Zustände ändert. Gegenüber den zwei Zuständen der s -Schale erwarten wir daher eine Verdreifachung der Tunnelrate, wenn zusätzlich die vier unbesetzten Zustände der p -Schale energetisch erreichbar werden. Wie wir sehen werden, spielt jedoch auch der energetische Abstand zur Tunnelbarriere und sogar die Impulserhaltung beim Übergang eine Rolle. Zumindest qualitativ lässt sich damit aber Abb. 4.5 als die Evolution einer Zustandsdichte vom Einteilchen- in das Vielteilchen-Spektrum verstehen.

Das einfache Modell hilft dennoch beim Verständnis der spektralen Dynamik in Abb. 4.5, wo sich beispielsweise ein Zustand (2) erst spät entwickelt, während Zustand (3) zu langen Zeiten verschwindet. Einen idealisierten Ladevorgang nach Gl. (4.9) zeigt Abb. 4.6(a) für die Gleichgewichtsbesetzungen $n_{\text{GG}} = 1$ bzw. 2. Als Ladezeit des zweifach entarteten Einelektronen-Grundzustandes wählen wir 1,4 ms. Für den nicht-entarteten Zweielektronen-Grundzustand erwarten wir dann die zweifache Zeitkonstante von 2,8 ms. Für das Spektrum in Abb. 4.5 wurde die Ableitung der Besetzung $n(t)$

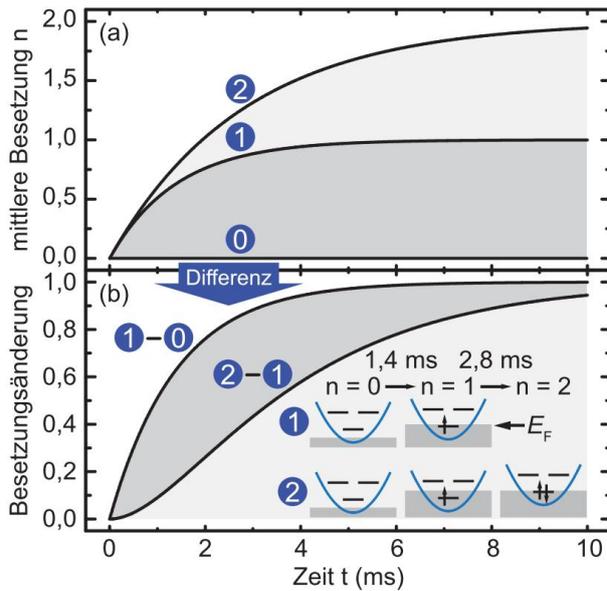


Abbildung 4.6: (a) Besetzung $n(t)$ nach einem Sprung zu einer Energie, bei der der Quantenpunkt $n_{GG} = 1$ bzw. $n_{GG} = 2$ Elektronen aufnehmen kann. Wird der Energiesprung sukzessive erhöht, ist zunächst kein Tunneln erlaubt und $n(t) = 0$, bis der Grundzustand (1) besetzt werden kann. Ein höherer Energiesprung (2) erlaubt auch die Besetzung des Zweielektronen-Grundzustands. Die Differenz (b) zeigt die Besetzungsänderung, anstelle der Ableitung für das Ensemble. Sequenzielles Tunneln und geringere Entartung verzögern den Zweielektronen-Zustand.

nach der Gatespannung gebildet. In der Ensembleverteilung entspricht diese Ableitung der Anzahl der Quantenpunkte dn , die bei einer Erhöhung der Ladespannung um dV_G ein zusätzliches Elektron aufnehmen. Um nun das Verhalten des Spektrums entlang der Gatespannung nachzubilden, müsste also noch die Summe von Gl. (4.9) für alle Quantenpunkte im Ensemble ausgeführt werden. Einfacher lässt sich aber das Verhalten des Spektrums in der Zeit, auch im Bild eines einzelnen Quantenpunktes verstehen. Hierzu betrachten wir anstelle der Summe über das Ensemble lediglich die Ableitung bzw. den Differenzenquotienten $\Delta n / \Delta V_G$ für einen einzelnen Quantenpunkt.⁴ Ist ΔV_G klein gegen die Abstände der Zustände, aber groß gegen die homogene Verbreiterung⁵ der einzelnen Zustände, lässt sich auch direkt die (zum Quotienten proportionale) Differenz der Besetzungsentwicklungen $n(t)$ beim Laden der energetisch aufsteigenden Zustände bilden [Abb. 4.6(b)]. Sowohl durch das sequenzielle Tunneln, als auch die höhere Zeitkonstante wegen der geringeren Entartung, erscheint der Zweielektronen- gegenüber dem Einelektronen-Zustand zu späteren Zeiten verschoben, was wir auch experimentell in Abb. 4.5 beim Vergleich der Zustände (1) und (2) beobachten. Das ideale Ladeverhalten für einen angeregten Zustand zeigt Abb. 4.7(a). Hier nehmen wir vereinfachend an, dass der Quantenpunkt maximal mit einem Elektron ($n_{GG} = 1$) besetzt werden kann, also $E_C \gg \hbar\omega$. Im Gleichgewicht ändert sich damit die Besetzung nicht, sind zusätzlich die angeregten Zustände über den Spannungssprung erreichbar, erhöht sich jedoch die Tunnelrate. In der Differenz [Abb. 4.7(b)] führt dies zu einem Maximum bei kurzen Zeiten, das zu langen Zeiten wieder verschwindet, wie auch im Experiment für den Zustand (3) in Abb. 4.5 beobachtbar.

4.2.2 Dynamik von Quantenpunkt-Wasserstoff

Im Folgenden wollen wir anhand der spektralen Dynamik genauer untersuchen, welche Informationen sich aus dieser Evolution ableiten und wie sich die angeregten von den

⁴Wir ziehen die Ableitung d/dV_G in die Summe über das Ensemble.

⁵Sowohl endliche Temperatur, als auch die Tunnelkopplung (endliche Verweildauer) würden zu einer Verbreiterung auch bei Experimenten an einzelnen Quantenpunkten führen.

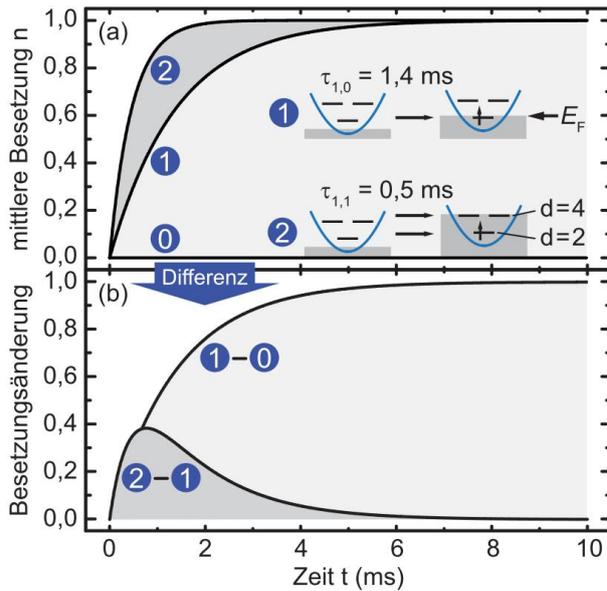


Abbildung 4.7: (a) Zeitentwicklung der Besetzung $n(t)$ für einen idealisierten Quantenpunkt und der Annahme $E_C \gg \hbar\omega$. Im Gleichgewicht kann hier maximal $n_{\text{GG}} = 1$ Elektron aufgenommen werden. Eine Verkürzung der Tunnelzeit ($\tau_{1,0} \rightarrow \tau_{1,1}$) beim Tunneln über angeregte Zustände führt bei kurzen Zeiten zu einer Besetzungserhöhung. (b) Die Besetzungsänderung steigt mit der schnellen Zeit $\tau_{1,1}$ des angeregten Zustands und fällt mit der langsamen Tunnelzeit $\tau_{1,0}$ des Grundzustands wieder ab.

Grundzuständen unterscheiden lassen. Abb. 4.8(a) zeigt Schnitte entlang der Zeitachse des Spektrums aus Abb.4.5 für die vier gekennzeichneten Zustände. Die zugehörigen sequenziellen Übergänge für einen Quantenpunkt mittlerer Größe zeigt Abb. 4.8(b). Zur Bestimmung des Zeitverhaltens werden exponentielle Zerfallsfunktionen an die Daten angepasst. Für das Laden des Grundzustandes $\varepsilon_{1,0}$ bei (1) erhält man so eine Zeitkonstante (inverse Rate) $\tau_{1,0} = 1/\gamma_{1,0} = 1,4$ ms.

Für den Zustand der Energie $\varepsilon_{2,0}$ zeigt der Verlauf (2) jedoch kein einfaches Ansteigen, stattdessen wird das Signal zu Beginn negativ und steigt dann mit einer verhältnismäßig langen Zeitkonstante von 4,6 ms. Dies lässt sich so verstehen, dass die Fermi-Energie unmittelbar nach dem Sprung zur Ladespannung gerade zwischen den Schalen der Einteilchen-Zustände liegt, wie in Abb. 4.8(b) gezeigt. Der Grundzustand mit der Energie $\varepsilon_{2,0}$ ist zwar resonant, kann aber nicht vor dem ersten Elektron befüllt werden, das nur über die Energie $\varepsilon_{1,0}$ geladen werden kann. Diese liegt bei der höheren Ladespannung nun aber unterhalb der verfügbaren 2DEG-Zustände, also unterhalb des Subbandminimums. Die Folge ist eine Ratenabnahme $d\gamma_1/dV_G < 0$, die zu einem anfänglich negativen Signal führt. Das gleiche Verhalten kann für den Zustand (4) beobachtet werden, wenn die Fermi-Energie für den leeren Quantenpunkt zwischen der p - und d -Schale liegt.

Fällt die Fermi-Energie nach dem Umschalten jedoch auf einen angeregten Zustand wie im Fall (3) für die p -Schale, so kann ein Anstieg bei kurzen Zeiten beobachtet werden. Eine Anpassung mit zwei Koeffizienten für Anstieg und Abfall liefert eine Anstiegszeit von $\tau_{1,1} = 0,5$ ms. Das Verhältnis $\tau_{1,0}/\tau_{1,1} = 2,8 \approx 3$ entspricht zwar in etwa dem Gewinn an Entartung, den wir zuvor erwartet hatten, jedoch zeigt der langsame Anstieg (2), dass ein Tunneln in die s -Schale stark unterdrückt wird, weswegen wir nur einen Faktor 2, aufgrund der vier Zustände der p -Schale erwarten würden. Da die effektive Tunnelbarriere für die p -Schale einen Energiebetrag $\hbar\omega$ gegenüber der s -Schale reduziert wird, ist allerdings auch ein zusätzlicher Beitrag zum Ratenanstieg, aufgrund der Quantisierungsenergie des Zustandes zu erwarten. Des weiteren sind die Zustände der p -Schale im k -Raum, im Vergleich zur s -Schale weniger stark lokalisiert, so dass der hohe Fermi-Impuls k_F der Elektronen im 2DEG besser in den Quantenpunkten aufgenommen werden kann (vgl. Kap. 5.2).

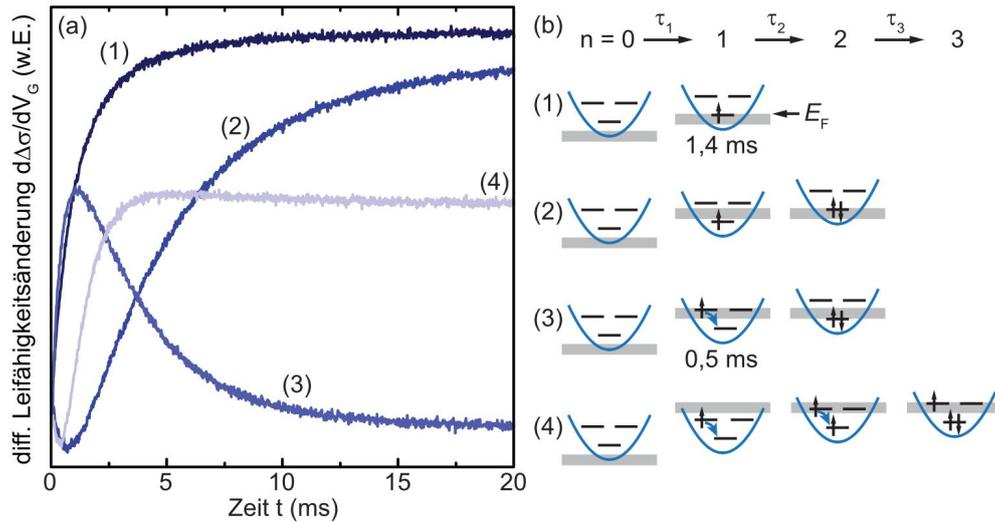


Abbildung 4.8: (a) Schnitte entlang der Zeitachse für die 4, in Abb.4.5 eingezeichneten Zustände mit entsprechender Füllsequenz (b). Vor dem Sprung zur Ladespannung liegt die Fermi-Energie des 2DEGs unterhalb des tiefsten Zustands in den Quantenpunkten. Die Rate, mit der die Zustände von $n = 0$ bis $n = n_{GG}$ gefüllt werden hängt nicht nur von der Entartung, sondern auch von ihrer energetischen Lage zum Reservoir im 2DEG ab.

Unabhängig von der Ursache ist jedoch mit einem Anstieg der Tunnelrate zu rechnen, sobald es nach dem Spannungssprung energetisch möglich wird, die Quantenpunkte über angeregte Zustände zu laden. Dennoch zeigt der Verlauf (3) auch einen abfallenden Anteil. Dies ist durch die Forderung gegeben, dass das Spektrum für $t \rightarrow \infty$ in die Grundzustandsdichte dn_{GG}/dV_G übergehen muss. Da die Coulomb-Energie $E_C = 21$ meV etwa der halben Quantisierungsenergie $\hbar\omega = 45$ meV entspricht, liegen die Einteilchen-Zustände mit der Energie $\varepsilon_{1,1}$ bei Ladespannungen zwischen den Grundzuständen mit der Besetzung $n = 2$ und $n = 3$, die durch die Quantisierungsenergie getrennt werden. Hier ist auch in der Ensemblemessung $dn_{GG}/dV_G = 0$ gut aufzulösen. Die Abfallzeit eines angeregten Zustandes ist dadurch über die Anstiegszeit der Grundzustände bei niedrigerer Ladespannung gegeben, in diesem Fall über den Anstieg (2) im Bereich 4-5 ms. Ein Abklingen zur Gleichgewichtszustandsdichte ist also ebenso ein charakteristisches Merkmal, wie der schnellere Anstieg gegenüber dem Grundzustand.

Höher angeregte Zustände in Abb. 4.5 zeigen das gleiche Verhalten, mit einem schnellen Anstieg, gefolgt von einem Abklingen; jedoch erschwert hier die Überlagerung mit den vier Grundzuständen der p -Schale innerhalb der inhomogenen Ensemblebreite die Trennung schon nach kurzen Zeiten. Durch die Vielteilchen-Zustände ist hier für lange Zeiten gerade $dn_{GG}/dV_G > 0$ wodurch es nicht zu einem so deutlichen Abklingen wie bei der p -Schale kommt. Die Betrachtung der Dynamik des Ladespektrums alleine genügt also noch nicht für eine hinreichende Unterscheidung zwischen Vielteilchen-Grundzuständen und angeregten Zuständen, da das inhomogen verbreiterte Spektrum eine Überlagerung der Signale aus Ratenänderung $d\gamma_1/dV_G$ durch angeregte Zustände und Besetzungsänderung dn_{GG}/dV_G durch Grundzustände enthält.

Eine Modifikation der Messmethode erlaubt jedoch die Trennung dieser zwei An-

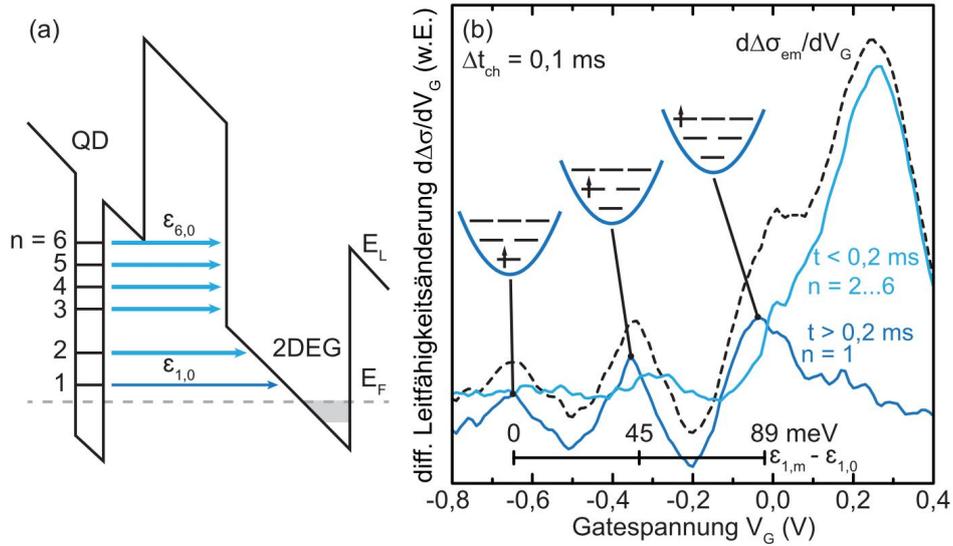


Abbildung 4.9: (a) Leitungsbandkante nach dem Umschalten zur Entladespannung für einen 6-fach geladenen Quantenpunkt. Mit der Besetzungszahl n erhöht sich Anzahl und Energie der Elektronen, was die Emissionsrate besetzungsabhängig erhöht. (b) Gesamtes Emissionsspektrum (gestrichelt) mit Zerlegung in schnelle $t < 0,2$ ms und langsame Prozesse $t > 0,2$ ms. Langsame Prozesse zeigen die reinen Einteilchen-Beiträge $n = 1$ im Gesamtspektrum.

teile. Hierzu wird anstelle der bisher betrachteten Leitfähigkeitsänderung beim Ladevorgang $\Delta\sigma = \Delta\sigma_{\text{ch}}$ die Änderung beim Entladevorgang $\Delta\sigma_{\text{em}}$ betrachtet. Da alle Quantenpunkte nach dem Ladevorgang auch wieder vollständig entladen werden, ist die Gesamtänderung zunächst in beiden Fällen die Gleiche: $\Delta\sigma_{\text{ch}} = \Delta\sigma_{\text{em}}$. In der Dynamik des Entladevorgangs spielen jedoch die angeregten Zustände der Quantenpunkte keine Rolle, die auf den langen Zeitskalen der Tunnelzeit unmittelbar in ihre Grundzustände bei den Energien $\varepsilon_{n,0}$ relaxieren. Für einen sechsfach geladenen Quantenpunkt veranschaulicht Abb. 4.9(a) die Situation nach dem Umschalten zur Entladespannung. Mit jedem Besetzungsgrad n steigt die Energie des Zustandes in Richtung Leitungsband, was die Tunnelwahrscheinlichkeit mit jedem zusätzlichen Elektron anhebt. Gleichzeitig steigt auch die Anzahl der Elektronen, was ebenfalls die Wahrscheinlichkeit eines Übergangs erhöht.

Experimentell finden wir eine starke Abhängigkeit der Emissionsrate von der Besetzungszahl n , so dass der Prozess $n = 6 \rightarrow 1$ innerhalb der ersten 0,2 ms bereits vollständig abgeschlossen ist, während der Prozess $n = 1 \rightarrow 0$ eine Zeitkonstante von ca. 2 ms benötigt. Dies lässt sich ausnutzen, um die gesamte Emission $\Delta\sigma_{\text{em}} = \Delta\sigma_{n=1} + \Delta\sigma_{n \geq 2}$ in einen schnellen $\Delta\sigma_{n \geq 2} = \Delta\sigma_{\text{em}}(t < 0,2 \text{ ms})$ und einen langsamen Anteil $\Delta\sigma_{n=1} = \Delta\sigma_{\text{em}}(t > 0,2 \text{ ms})$ zu zerlegen. Der langsame Anteil enthält nun ausschließlich die spektrale Information der Zustände mit der Besetzung $n = 1$.

Wird das Ensemble bei jeder Ladespannung in die Gleichgewichtsbesetzung gebracht, lässt sich dabei lediglich der Grundzustand detektieren. Als letzte Modifikation muss daher die Ladezeit Δt_{ch} verkürzt werden, so dass bei jeder Ladespannung noch weitere leere Quantenpunkte im Ensemble zur Verfügung stehen, die ein erstes Elektron aufnehmen können. Das Detektionsprinzip ist dann dasselbe wie beim Ladespektrum, dass nämlich bei gleicher Ladezeit durch eine Ratenerhöhung zusätzliche Quanten-

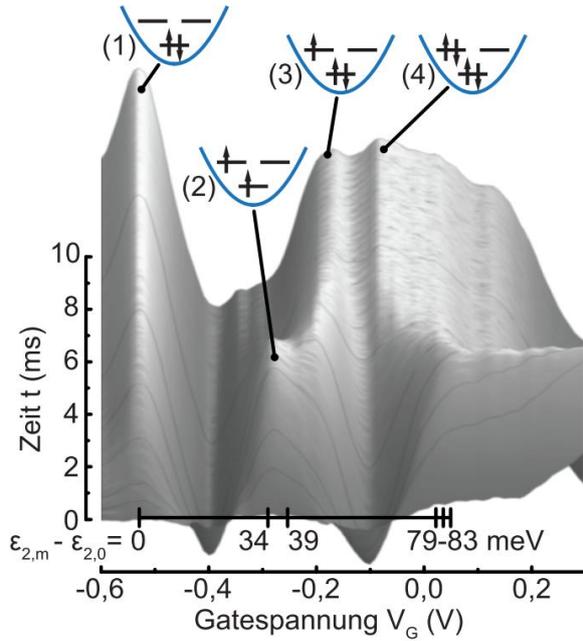


Abbildung 4.10: Ladespektrum aus einem einfach besetzten Initialzustand $n = 1$ bei $V_{em} = -0,6$ V. Das Spektrum der angeregten Zustände bei kurzen Zeiten korreliert mit den durch die Austauschwechselwirkung verringerten Schalenabständen. Eine Feinstruktur lässt sich aufgrund einer Überlagerung der Zustände (2) und (3) nicht eindeutig identifizieren.

punkte im Ensemble besetzt werden. Nun jedoch mit der zusätzlichen Möglichkeit, lediglich die einfach besetzten Zustände, also nur die Einteilchen-Energien $\varepsilon_{1,m}$ der Quantenpunkt-Wasserstoff Konfigurationen herauszufiltern.

Abb. 4.9(b) zeigt das Emissionsspektrum nach einer Ladezeit von $\Delta t_{ch} = 0,1$ ms, also die Ableitung $d\Delta\sigma_{em}/dV_G$ (gestrichelt) und ihre Zerlegung in schnelle $d\Delta\sigma_{n\geq 2}/dV_G$ und langsame Prozesse $d\Delta\sigma_{n=1}/dV_G$. Das Spektrum der langsamen Prozesse zeigt nun die reinen Einteilchen-Energien. Gegenüber den berechneten energetischen Abständen zeigt sich eine leichte Verschiebung zu kleineren Werten mit $\varepsilon_{1,1} - \varepsilon_{1,0} = 43$ meV gegenüber 45 meV und $\varepsilon_{1,2} - \varepsilon_{1,0} = 88$ meV gegenüber 89 meV. Im Vergleich zu dem Ladespektrum aus Abb. 4.5, lässt sich nun also auch die Position der d -Schale eindeutig zuordnen.

Auch gegenüber dem Ladespektrum erscheint die Lage der p -Schale hier zunächst zu niedrigeren Energien verschoben. Das Ladespektrum enthält jedoch auch einen Beitrag des angeregten Zweiteilchen-Spektrums (Quantenpunkt-Helium). Durch den Gewinn an Austauschenergie liegen die Zustände $\varepsilon_{2,1}$ und $\varepsilon_{1,1}$ bei vergleichbaren Ladesspannungen, wodurch sie im Ladespektrum überlagern. Dies lässt sich auch durch ein Emissionsspektrum nach längerer Ladezeit Δt_{ch} zeigen, bei dem das eine Lademaximum in zwei getrennte Maxima aufspaltet für $n = 1$ und $n \geq 2$.

4.2.3 Dynamik von Quantenpunkt-Helium

Eine bessere Möglichkeit die Zweiteilchen-Energien direkt zu messen besteht darin, die Einteilchen-Zustände zu unterdrücken. Hierzu muss lediglich die Entladespannung V_{em} so gewählt werden, dass im Idealfall alle Quantenpunkte beim Sprung zur Ladesspannung V_{ch} bereits mit einem Elektron präpariert sind, sich also im Anfangszustand $n(0) = 1$ befinden. Im Ensemble ist dies am besten gerade zwischen den Ladesspannungen der ersten zwei Grundzustände erfüllt. Bei $V_{em} = -0,6$ V sind 90 % der Quantenpunkte im Gleichgewicht einfach besetzt ($n = 1$), jeweils 5 % entfallen auf leere bzw. schon zweifach geladene Quantenpunkte.

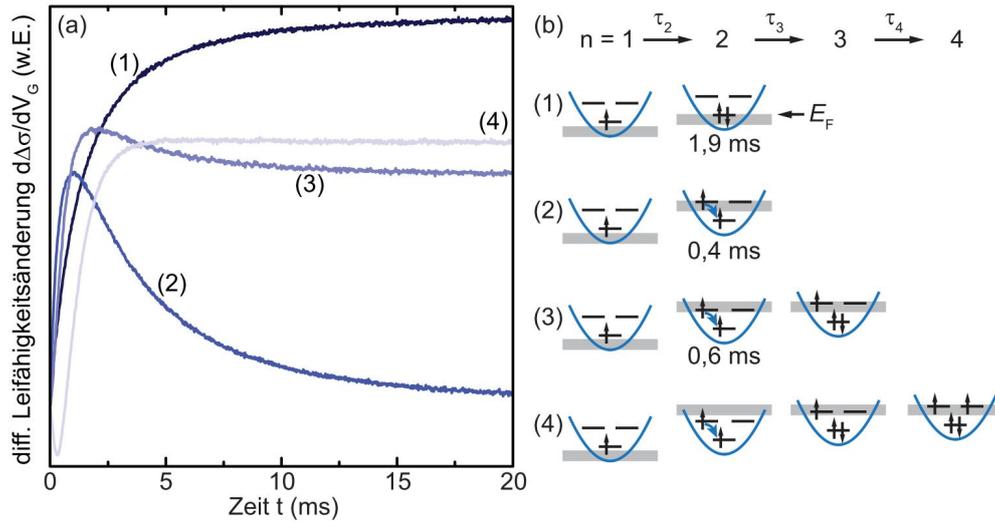


Abbildung 4.11: Zeitentwicklung der in Abb. 4.10 markierten Zustände. Zustand (2) zeigt das typische Verhalten eines angeregten Zustands mit schnellerem Anstieg gegenüber (1) und abklingen. (3) zeigt zwar ebenfalls ein abklingendes Verhalten, jedoch erhöht sich die Anstiegszeit im Vergleich zu (2). (4) zeigt eine Verzögerung durch die Zustandslücke zwischen den Schalen.

Ein derartig präpariertes Ladespektrum zeigt Abb. 4.10. Im Vergleich zu dem Einteilchen-Spektrum aus Abb. 4.5 zeigt sich zunächst eine Verringerung der energetischen Abstände $\varepsilon_{2,m} - \varepsilon_{2,0}$ wie man es durch einen Gewinn an Austauschenergie erwarten würde. Im Bereich der p -Schale zeigt sich zudem eine Feinstruktur, die aber zunächst nicht eindeutig zugeordnet werden kann, da die inhomogene Verbreiterung zu einer Überlagerung der Zustände (2) und (3) führt.

Die Dynamik der gekennzeichneten Zustände ist in Abb. 4.11 gezeigt. Für den Zweielektronen-Grundzustand (1) finden wir eine Zeitkonstante $\tau_{2,0} = 1,9$ ms, was gegenüber der Zeit $\tau_{1,0} = 1,4$ ms (vgl. Abb. 4.8) einen Faktor von 1,4 langsamer ist. Diese Verlangsamung ist tatsächlich eine direkte Folge der Multiplizitäten $d_{1,0} = 2$ gegenüber $d_{2,0} = 1$, was in Abschnitt 5.1 genauer untersucht wird. Im Vergleich zum Ladevorgang aus einem leeren Quantenpunkt [Abb. 4.8, (2)] ist der Prozess jedoch deutlich verkürzt. Die dort beobachtete Verlangsamung auf 4,6 ms lässt sich also in der Tat dem Ladevorgang für das erste Elektron zuordnen.

Zustand (2) zeigt ein typisches Verhalten für angeregte Zustände, mit einer Verkürzung der Anstiegszeit auf 0,4 ms und damit vergleichbar zum Auffüllen der leeren p -Schale. Der Verlauf (3) zeigt zwar ein abklingendes Verhalten, wie wir es für einen angeregten Zustand erwarten, die Anstiegszeit sinkt jedoch von 0,4 auf 0,6 ms, was zunächst ungewöhnlich erscheint und für einen Restanteil aus dem verbreiterten Zustand (2) spricht. Die Lücke zwischen den Schalen, die zuvor ein schnelles Laden von (3) verhindert hat, ist nun durch die Coulomb-Energie zu (4) verschoben.

Um die Frage nach dem Überlapp der Zustände (2) und (3) zu klären, können wir das Emissionsspektrum in Abb. 4.12(a) betrachten. Hier wurde das Laden nach $\Delta t_{\text{ch}} = 1$ ms unterbrochen. Selbst nach der vergleichsweise langen Ladezeit, zeigt die Trennung in die Anteile mit $n = 2$ und $n \geq 3$ eine eindeutige Zuordnung der Zustände in einen angeregten Zustand der Zweielektronen-Konfiguration und den Dreielektronen-

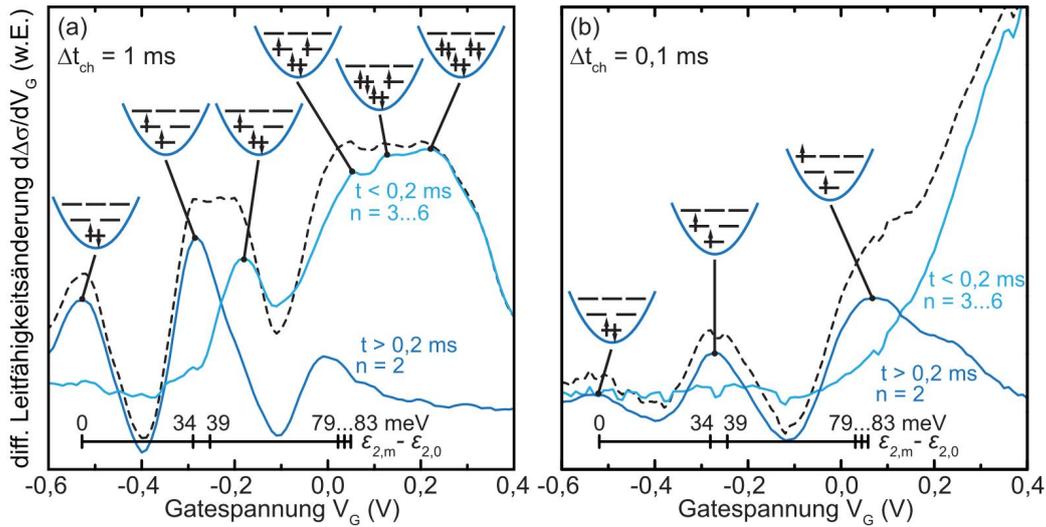


Abbildung 4.12: Entladespektren für im Besetzungszustand $n = 1$ präparierte Quantenpunkte. (a) Nach einer Ladezeit von 1 ms lässt sich der überlagerte Zustand in Anregungs- und Grundzustandsbeitrag trennen. (b) Nach einer Ladezeit von 0,1 ms lassen sich die drei Schalen deutlich identifizieren. p - und d -Schalen zeigen um die Austauschwechselwirkung verringerte Abstände.

Grundzustand. Die angeregten Zustände in der d -Schale erscheinen jedoch abgeschwächt, da bei höheren Spannungen nicht mehr genügend einfach geladene Ausgangszustände zur Verfügung stehen. Nach einer Ladezeit von 0,1 ms, wie in Abb. 4.12(b) gezeigt, ist dies jedoch erfüllt und das Spektrum zeigt eine gute Übereinstimmung mit den erwarteten Schalenabständen, unter Berücksichtigung der Austauschwechselwirkung zwischen den Elektronen. Für den Abstand zur p -Schale finden wir experimentell 37 meV anstatt 34 bzw. 39 meV und für die d -Schale 86 meV anstelle von 79...83 meV.

Dass es im Experiment nicht möglich ist die erwartete Feinstruktur aufzulösen, ist eine Folge der inhomogenen Ensembleverteilung mit einer Halbwertsbreite von 19 meV. Da eine Ratenänderung $d\gamma/dV_G$ benötigt wird, um die angeregten Zustände zu detektieren, ist zu erwarten, dass die hoch entarteten Spin-Triplett-Zustände (vgl. Tab. 2.1) hier einen dominanten Beitrag liefern und die Spin-Singulett-Zustände überlagern. Betrachten wir die ersten drei Zustände der Helium-Konfiguration, also den Grundzustand der s -Schale, sowie Triplett- und Singulett-Zustand der p -Schale, so erwartet man nach Gl. (4.10) ein Verhältnis der jeweiligen Tunnelraten von 1:7:8. Für den Anstieg von 1 auf 7, wenn der Triplett-Zustand durch den Spannungssprung erreichbar wird, erwarten wir ein deutlich stärkeres Signal als für den Anstieg von 7 auf 8, wenn zusätzlich der Singulett-Zustand geladen werden kann. Der Singulett-Zustand wird dann im inhomogen verbreiterten Ensemble lediglich als Schulter detektierbar sein, wie man es in Abb. 4.12 an den Flanken der angeregten Zustände vermuten kann.

Wegen der endlichen Energieverteilung im 2DEG sind jedoch nicht alle Übergänge in die Quantenpunkte nach jedem Spannungssprung resonant möglich und Gl. (4.10) stellt lediglich den idealisierten Fall dar, bei dem alle Zustände die gleiche Übergangswahrscheinlichkeit haben. Aber auch unter Berücksichtigung des energieerhaltenden Tunnelns erwartet man eine Verstärkung der Triplett-Zustände in den Spektren, da sich die effektive Tunnelbarriere vom Grundzustand in den Triplett-Zustand um 34 meV

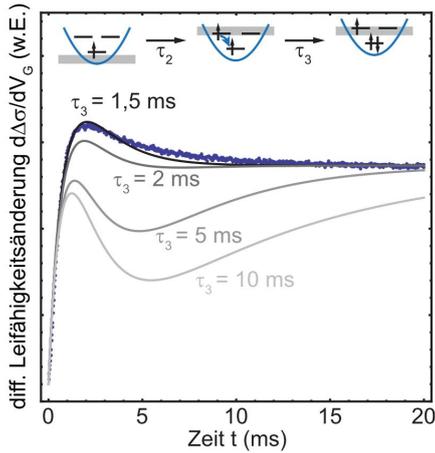


Abbildung 4.13: Zeitentwicklung des Grundzustands der Dreielektronen-Konfiguration aus der Leitfähigkeit (Datenpunkte) im Vergleich zu einer Rechnung für sequenzielles Laden. Wird das Laden höherer Besetzungen (z.B. durch Relaxationsprozesse) verlangsamt, sollte ein Unterschwingen zu beobachten sein.

reduziert, während sie sich vom Triplett- zum Singulett-Zustand lediglich um weitere 5 meV reduziert. In der Ratenänderung $d\gamma/dV_G$ sollten dann auch in diesem Fall wieder die energetisch tieferen Zustände einer höheren Schale (Triplett-Zustände) hohe Beiträge im Spektrum liefern.

Abschließend soll noch eine interessante Konsequenz des sequenziellen Ladens erwähnt werden. Bisher haben wir vorausgesetzt, dass ein angeregter Zustand aus Sicht der langen Tunnelzeiten quasi instantan relaxiert. Für Zustände in einem Spin-Triplett erfordert dies jedoch zunächst eine Spin-Umkehr (Spin-Flip), deren Zeitskala mit der Größenordnung der Tunnelzeiten vergleichbar sein kann. Betrachten wir Prozess (3) in Abb. 4.11, so erwarten wir, dass die Aufnahme eines dritten Elektrons so lange verboten ist, bis der Triplett-Zustand relaxiert ist. Wäre die Relaxationszeit lang genug, würde sie sich in der Dynamik bemerkbar machen, wie Abb. 4.13 veranschaulicht. In der Rechnung nach Gl. (4.9) wurde dabei die Zeitkonstante des dritten Elektrons von $\tau_3 = 1/\gamma_3 = 1,5$ ms auf 10 ms erhöht, was ab etwa 2 ms zu einem charakteristischen Unterschwingen führt. Für diese Probe ist die Spin-Relaxationszeit also höchstens von der Größenordnung der Tunnelzeit. Bei einer Probe mit dünnerer Barriere wäre es aber prinzipiell möglich, hierdurch die Relaxationszeit zu bestimmen.

Zusammenfassend haben wir gesehen, dass die zeitaufgelöste Messtechnik erlaubt, einen Zustand herzustellen, in dem das 2DEG geladen, die Quantenpunkte aber noch ungeladen sind. Dieser Zustand kann als Referenz verwendet werden um den Ladungstransfer in die Quantenpunkte zu untersuchen. Zu Beginn wurde gezeigt, dass sich dabei die Ladung in den Quantenpunkten wie eine Schichtladung verhält, dass also die Elektronen im 2DEG nicht an den lokalisierten Ladungen der Quantenpunkte gestreut werden. Im Weiteren wurden die Mechanismen zur Detektion von angeregten Zuständen am Beispiel der Ein- und Zweiteilchen-Zustände – Quantenpunkt-Wasserstoff bzw. Quantenpunkt-Helium – untersucht und diskutiert. Anhand der spektralen Dynamik wurde gezeigt, dass die Detektion von angeregten Zuständen auf dem zustandsabhängigen Anstieg der Tunnelraten beruht. Eine Erweiterung der Messtechnik, die die Emission anstelle des Ladevorgangs betrachtet, ist zudem in der Lage die Ein- und Zweiteilchen-Zustände gezielt zu isolieren. Die gemessenen Schalenabstände bis zur d -Schale lassen sich in guter Näherung mit dem einfachen Bild, ungestörter Einteilchen-Zustände beschreiben.

Kapitel 5

Dynamik von Vielteilchen-Zuständen

Bisher wurde die zeitaufgelöste Messtechnik genutzt, um die Quantenpunkte mit einer festen Anfangsbedingung zu präparieren. In diesem Kapitel wollen wir die Vielteilchen-Grundzustände genauer untersuchen, wozu wir die Messung leicht modifizieren. Anstatt immer von einer festen Entladespannung V_{em} auszugehen, halten wir nun den Spannungssprung ΔV_G konstant und führen die Entladespannung bei jeder Erhöhung der Ladespannung $V_{\text{ch}} = V_{\text{em}} + \Delta V_G$ nach. Für einen genügend kleinen¹ Sprung von etwa 10 mV, können wir hierdurch auch ohne Ableitung direkt die Gleichgewichtszustandsdichte D_{QD} erhalten, denn nach Gl. (4.2) und (4.6) folgt:

$$\frac{\Delta\sigma(V_G)}{\Delta V_G} \propto \frac{1}{\Delta V_G} \int_{V_{\text{ch}} - \Delta V_G}^{V_{\text{ch}}} D_{\text{QD}} dV_G \approx D_{\text{QD}}. \quad (5.1)$$

Im Folgenden bezeichnen wir als Gatespannung den Mittelwert aus Lade- und Emissionsspannung: $V_G = (V_{\text{ch}} - V_{\text{em}})/2$.

Wie zuvor können wir die Leitfähigkeitsänderung $\Delta\sigma$ durch eine Differenz wie in Abb. 3.3 bestimmen. Um zusätzlich die Tunnelrate γ quantitativ auswerten zu können verwenden wir hier jedoch eine Anpassung der Form: $\Delta\sigma e^{-\gamma t} + \sigma_\infty$. Abb. 5.1 zeigt die hieraus abgeleiteten Größen der Zustandsdichte $D_{\text{QD}} \propto \Delta\sigma/\Delta V_G$ und der Tunnelraten γ in Abhängigkeit der Gatespannung V_G . Energetisch sind die zwei Zustände der s -Schale deutlich von den vier Zuständen in der p -Schale getrennt. In der Tunnelrate γ zeigt sich aber ebenso deutlich ein quantitativer Unterschied zwischen s - und p -artigen Zuständen. Die durchschnittlichen Zeitkonstanten $\tau = 1/\gamma$ für die s -Schale liegen im Bereich von 3 ms, verkürzen sich aber im Bereich der p -Schale auf 0,7 ms. Darüber hinaus zeigt sich eine systematisch alternierende Abweichung zwischen den Lade- und Entladeraten.

In diesem Kapitel sollen die Ursachen dieser Raten und damit die Übergangswahrscheinlichkeiten der Vielteilchen-Zustände untersucht werden. Der direkte Zugriff auf die Übergangswahrscheinlichkeiten durch die zeitaufgelöste Messtechnik, ermöglicht dabei einen neuen Blick auf die Struktur der Zustände. In Abschnitt 5.1 lässt sich so die Entartung der Zustände aufschlüsseln und damit eine Asymmetrie im Potential der Quantenpunkte nachweisen [Beckel14a], während die Asymmetrie in der Wellenfunktion in Abschnitt 5.2 quantitativ untersucht wird. Dabei wird gezeigt, dass bei der Tunnelkopplung zweier in Tunnelrichtung eingeschränkter Systeme der Querimpuls-komponente eine entscheidende Bedeutung zukommt [Beckel12].

¹Bei einem Sprung von 10 mV ist das Energiefenster von 1,4 meV klein gegen die Ensemblebreite.

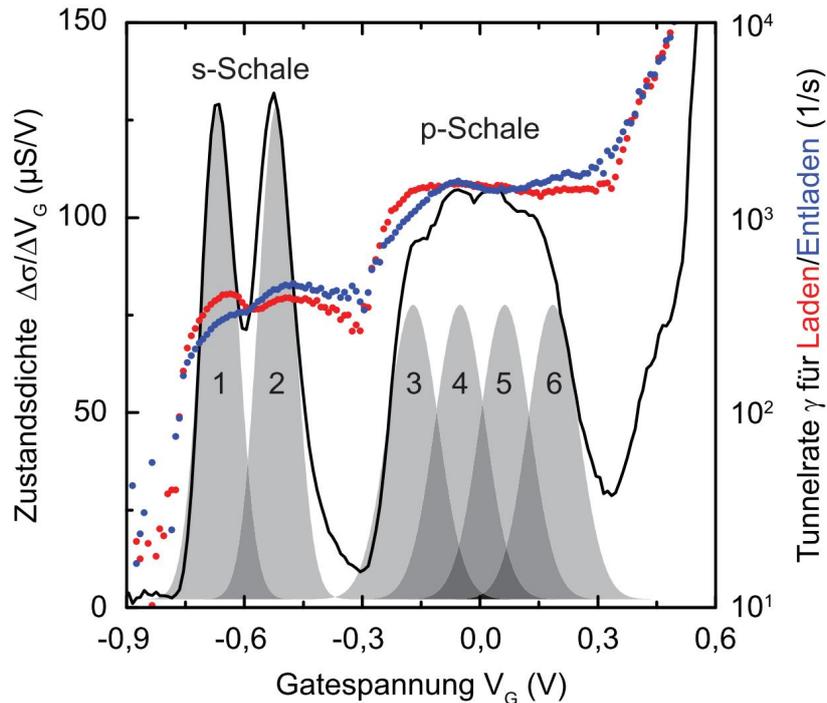


Abbildung 5.1: Zustandsdichte und Tunnelrate der Vielteilchen-Zustände für die Besetzungen $n = 1 \dots 6$. s - und p -Schale sind nicht nur energetisch getrennt, sondern zeigen auch deutlich verschiedene Tunnelraten.

5.1 Asymmetrie der Dynamik: Die Rolle der Entartung

Im Gegensatz zum vorherigen Kapitel betrachten wir nun wesentlich kleinere Spannungssprünge. Ein Sprung von $e\lambda^{-1}\Delta V_G = 1,4 \text{ meV}$ ist nicht nur klein im Vergleich zur Halbwertsbreite des Ensembles ($\Delta_b = 19 \text{ meV}$), sondern auch zu Coulomb- ($E_C = 21 \text{ meV}$) und Quantisierungsenergie ($\hbar\omega = 45 \text{ meV}$) der Quantenpunkte. Für das Ensemble bedeutet dies, dass nach jedem Spannungssprung nur ein Bruchteil der Quantenpunkte jeweils ein einzelnes Elektron aufnimmt bzw. emittiert. Ebenso lässt sich die Änderung im chemischen Potential, die durch einen Ladungstransfer zwischen Quantenpunkten und 2DEG ausgeglichen wird, als eine kleine Störung der Tunnelkopplung H' betrachten. Daher wollen wir in erster Näherung den Spannungssprung ΔV_G in der Tunnelkopplung H' ganz vernachlässigen und die gleiche Kopplung für Lade- wie Entladevorgang bei fester Gatespannung V_G verwenden. Befindet sich ein Quantenpunkt unmittelbar nach dem Sprung im Anfangszustand $|i\rangle$ und geht dann durch Aufnahme oder Abgabe eines Elektrons in den Zustand $|f\rangle$ über, lässt sich die Übergangsrates Γ durch Fermis Goldene Regel [Dirac27, Fermi50] beschreiben:

$$\Gamma_{i \rightarrow f} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f | H' | i \rangle|^2 \rho_f \quad (5.2)$$

Die Zustandsdichte ρ_f des Kontinuums ist hier über die Zustandsdichte des 2DEGs gegeben und damit unabhängig von Energie oder Anfangs- und Endzustand der Quantenpunkte ($\rho_{f/i} = D_{2D} = \text{konst.}$). Für den Umkehrprozess $f \rightarrow i$ erwarten wir also die gleiche Rate, die lediglich von der Energie ε der Zustände abhängt: $\Gamma_{f \rightarrow i} = \Gamma_{i \rightarrow f} = \Gamma(\varepsilon)$.

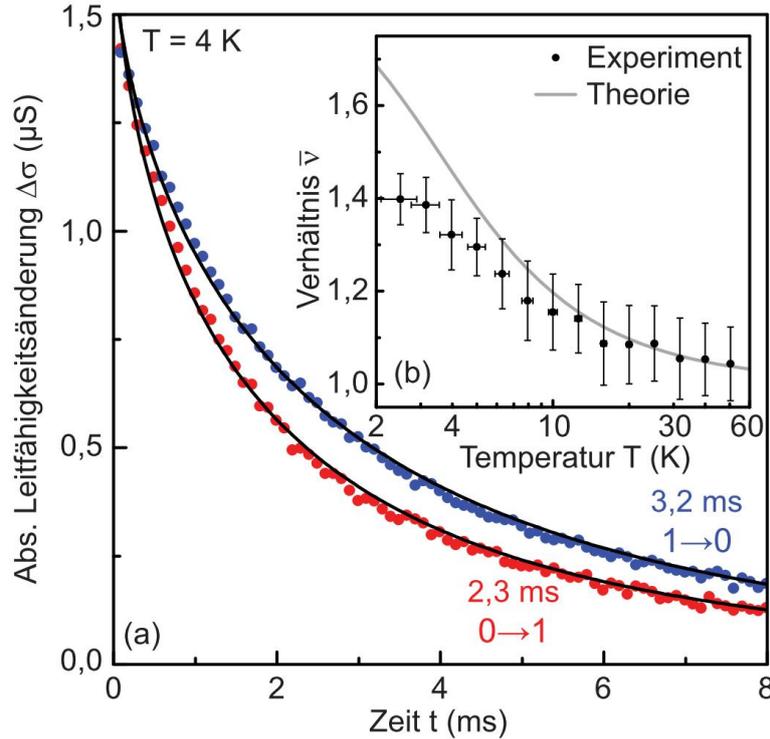


Abbildung 5.2: (a) Leitfähigkeitsänderung (Punkte) und Anpassungsfunktion für das Laden ($0 \rightarrow 1$) bzw. Entladen ($1 \rightarrow 0$) des ersten Elektrons in die s -Schale bei $V_G = -0,67 \text{ V}$. Hin- und Rückprozess zeigen deutlich verschiedene Zeiten. (b) Mittleres Ratenverhältnis $\bar{\nu} = (\nu_1 + 1/\nu_2)/2$ für die s -Schale in Abhängigkeit der Temperatur im Vergleich zur Theorie. Qualitativ zeigen beide Verläufe eine Abnahme mit vergleichbarer Übergangstemperatur. Quantitativ zeigen die Messungen systematisch kleinere Werte.

Abb. 5.2(a) vergleicht den Lade- und Entladevorgang in der Änderung $\Delta\sigma$ für das erste Elektron² bei einer Gatespannung von $V_G = -0,67 \text{ V}$. Hin- und Rückprozess zeigen hier deutlich unterschiedliche Zeiten³ von $\tau_{0 \rightarrow 1} = 2,3 \text{ ms}$ gegenüber $\tau_{1 \rightarrow 0} = 3,2 \text{ ms}$. Um den Unterschied zu quantifizieren führen wir das Verhältnis ν_n ein, aus dem Quotienten der Zeiten:

$$\nu_n = \frac{\tau_{n \rightarrow n-1}}{\tau_{n-1 \rightarrow n}}. \quad (5.3)$$

Für das erste Elektron mit $n = 1$ erhalten wir damit $\nu_1 = 1,4$.

In Gl. (5.2) wurde jedoch noch nicht der Entartungsgrad d_n der Quantenzustände berücksichtigt, der von der Besetzung n abhängt. Die unbesetzte s -Schale der Quantenpunkte ist gerade zweifach spinentartet. Es gibt also $d_1 = 2$ Möglichkeiten ein einzelnes Elektron in der s -Schale anzuordnen. Der leere Quantenpunkt lässt sich jedoch nur auf eine Weise realisieren und damit ist die Anzahl seiner möglichen Konfigurationen $d_0 = 1$. Als Verhältnis für die Tunnelraten würde man also $d_1/d_0 = 2$ anstelle von $\nu_1 = 1,4$ erwarten. Für das zweite Elektron gilt dann gerade der umgekehr-

²Bei $V_G = -0,67 \text{ V}$ liegt das Maximum der Ensembleverteilung. Ein Sprung von 10 mV lädt bzw. entlädt das erste Elektron für 7% der Quantenpunkte.

³Hier wird die mittlere Zeit einer gestreckten Exponentialfunktion verwendet, da sie die Ensembleverteilung am besten reproduziert.

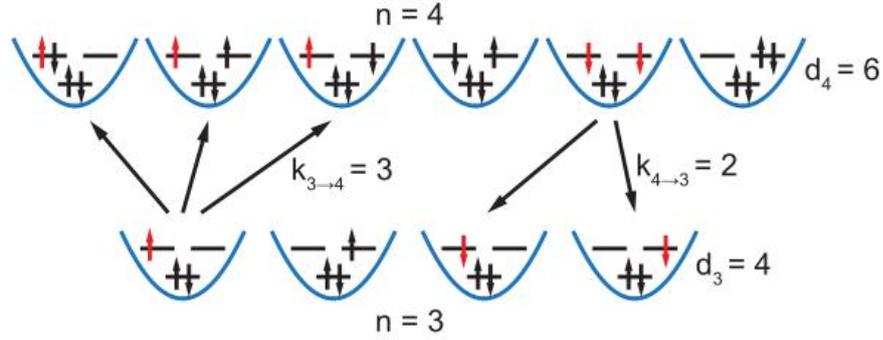


Abbildung 5.3: Entartung d_n und mögliche Übergänge k für den Prozess $n = 3 \leftrightarrow 4$ für eine vollständig entartete p -Schale. Nur Übergänge zwischen gemeinsamen Elektronenkonfigurationen sind erlaubt.

te Fall, da nur eine Anordnung $d_2 = 1$ möglich ist und damit erhält man $d_2/d_1 = 1/2$. Tatsächlich finden wir im Experiment für das zweite Elektron mit $\nu_2 = 0,85$ ein Verhältnis kleiner als 1, was als „Überkreuzen“ der Tunnelraten bei $-0,6$ V in Abb. 5.1 zu erkennen ist. Die Entartung der Zustände scheint also eine qualitative Rolle zu spielen, jedoch gibt es noch eine deutliche quantitative Abweichung zwischen den experimentell bestimmten und den aus der Entartung erwarteten Verhältnissen ν .

Um die quantitative Abweichung zu verstehen, betrachten wir die Mastergleichung [Beenakker91] für den Ladungstransfer zwischen 2DEG und Quantenpunkten:

$$\dot{p}_n = \sum_{n' \neq n} \Gamma_{n' \rightarrow n} p_{n'} - \sum_{n' \neq n} \Gamma_{n \rightarrow n'} p_n. \quad (5.4)$$

Sie beschreibt allgemein die Wahrscheinlichkeit p_n , einen n -fach besetzten Quantenpunkt zu finden für den Prozess $n' \leftrightarrow n$. Für die Goldene Regel (5.2) ist zunächst nur die Energie des Grundzustandes ϵ_n , relativ zur Fermi-Energie, entscheidend. Hier wird nun jedoch durch die Summe über alle möglichen Anfangs und Endzustände auch die Entartung relevant. Da die Coulomb-Energie groß ist im Vergleich zum Energiesprung durch die Spannungsänderung, müssen wir nur den einfachen Ladeprozess mit $n' = n-1$ betrachten und führen die Summe aus. Hierdurch erhalten wir als Gesamtraten für Hin- und Rückprozess:

$$\Gamma_n^+ \equiv \Gamma_{n-1 \rightarrow n} = k_{n-1 \rightarrow n} \Gamma(\epsilon_n) f(\epsilon_n), \quad (5.5)$$

$$\Gamma_n^- \equiv \Gamma_{n \rightarrow n-1} = k_{n \rightarrow n-1} \Gamma(\epsilon_n) [1 - f(\epsilon_n)]. \quad (5.6)$$

Die Fermi-Funktion f berücksichtigt hier, dass ein Zielzustand im 2DEG bereits thermisch besetzt bzw. ein Ausgangszustand unbesetzt sein kann. Der Vorfaktor k gibt dabei im Sinne einer Auswahlregel an, wie viele Zustände von dem $d_{n'}$ -fach entarteten Anfangszustand in den d_n -fach entarteten Endzustand (und umgekehrt) übergehen können. Dabei kann k kleiner als d sein, aber das Verhältnis ξ_n ist konstant:

$$\xi_n = \frac{k_{n-1 \rightarrow n}}{k_{n \rightarrow n-1}} = \frac{d_n}{d_{n-1}}. \quad (5.7)$$

Abb. 5.3 veranschaulicht diesen Zusammenhang am Beispiel des Übergangs $n = 3 \leftrightarrow 4$, für den Fall einer vollständig entarteten (ohne Austausch-Wechselwirkung beliebig besetzbaren) p -Schale.

An dieser Stelle sehen wir also schon eine Asymmetrie in den Raten Γ_n^\pm . Dies sind jedoch noch nicht die Raten, die wir experimentell bestimmen, da die Master-Gleichung (5.4) für Laden wie auch für Entladen jeweils beide Raten enthält. Durch die endliche Temperatur stellt sich im Experiment ein Gleichgewicht ein, das über die Fermi-Funktion bestimmt wird. Wir benötigen also die tatsächliche Zeitentwicklung $N(t) = \sum_n n p_n$ des Transfervorgangs und lösen daher die Master-Gleichung. Mit der Normierungsbedingung $p_{n-1} = 1 - p_n$ folgt:

$$\dot{N}(t) = n\Gamma_n^+ + (n-1)\Gamma_n^- - (\Gamma_n^+ + \Gamma_n^-)N(t). \quad (5.8)$$

Als Lösung erhält man:

$$\Delta N(t) \equiv N(t) - N_{\text{eq}} = (N_0 - N_{\text{eq}}) \exp(-t/\tau), \quad (5.9)$$

mit der Zeitkonstanten τ , gegeben durch:

$$\frac{1}{\tau} = k_{n \rightarrow n-1} [1 + (\xi_n - 1)f(\epsilon_n)] \Gamma(\epsilon_n) \quad (5.10)$$

und der Besetzung im Gleichgewicht:

$$N_{\text{eq}} = n - 1 + \frac{\xi_n f(\epsilon_n)}{1 + (\xi_n - 1)f(\epsilon_n)}. \quad (5.11)$$

Durch das Einführen der Fermi-Funktion entscheidet nun nur noch die energetische Lage des Quantenpunkt-Niveaus ϵ_n im Vergleich zur Fermi-Energie des 2DEGs ob wir einen Lade- oder Entladeprozess betrachten. Der Sprung in der Gatespannung verschiebt die Energie ϵ_n um $\pm\Delta\epsilon = \pm 1,4 \text{ meV}$ und entscheidet damit zwischen Laden [$N_0 = N_{\text{eq}}(\epsilon_n - \Delta\epsilon) > N_{\text{eq}}(\epsilon_n)$] und Entladen [$N_0 = N_{\text{eq}}(\epsilon_n + \Delta\epsilon) < N_{\text{eq}}(\epsilon_n)$].

Wir können also festhalten, dass eine Asymmetrie in den Tunnelraten immer dann auftritt, wenn Besetzungszustände unterschiedlich entartet sind, also immer dann, wenn $\xi_n \neq 1$. Dies ist eine direkte Konsequenz der Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Elektronen, die die unterschiedlich entarteten Vielteilchen-Zustände energetisch voneinander trennt (siehe z.B. auch [Könemann06]). Für Systeme mit vernachlässigbarer Coulomb-Energie wurden andererseits auch symmetrische Lade- und Entladeraten beobachtet [Fève07], da dann für jeden Übergang mehrere Besetzungen n und damit Entartungen d_n zur Verfügung stehen. Neben der hohen Ladungsträgerdichte ist dies auch ein Grund, warum wir die Besetzungsänderung im 2DEG vernachlässigen können. Für den ersten Übergang $0 \leftrightarrow 1$ eines einzelnen Quantenpunktes mit $d_0 = 1$ und $d_1 = 2$ erhalten wir nun eine Rate $\tau^{-1} = \Gamma[1 + f(\epsilon_1)]$, die je nach Lage der Energie ϵ_1 zwischen Γ und 2Γ liegen kann. Hier wird also auch die Wahl des Energiesprungs $\Delta\epsilon$ wichtig. Für einen einzelnen Quantenpunkt oder ein scharfes Ensemble folgt dann im Grenzfall $\Delta\epsilon \gg k_B T$ ein Verhältnis von 2. Hier haben wir aber gerade den Fall einer breiten Verteilung von Energien im Vergleich zu $\Delta\epsilon$. Daher müssen wir noch Gl. (5.11) über alle Quantenpunkte im Ensemble integrieren. Für eine breite Verteilung $A(\epsilon) \approx \text{konst.}$ erhält man so die spannungsunabhängige Zeitentwicklung der transferierten Elektronen:

$$\Delta N(t) \propto \int d\epsilon [N_{\text{eq}}(\epsilon \pm \Delta\epsilon) - N_{\text{eq}}(\epsilon)] e^{-t/\tau(\epsilon)}. \quad (5.12)$$

Da sowohl $\Delta\epsilon$ als auch $k_B T$ wesentlich kleiner sind als die Verteilung des Ensembles, tritt nun die Differenz der Gleichgewichtsbesetzungen $N_{\text{eq}}(\epsilon \pm \Delta\epsilon)$ vor und $N_{\text{eq}}(\epsilon)$ nach

dem Umschalten an die Stelle einer Verteilungsfunktion. Die tatsächlich gemessene Zeitkonstante ist also das Resultat einer gewichteten Mittelung der energieabhängigen Zeitkonstanten nach Gl. (5.10), mit den energetisch zugänglichen⁴ Quantenpunkten im Ensemble.

Durch die Gewichtung lässt sich der Transfer nicht mehr mit einer einzelnen Zeitkonstante beschreiben. Wir lösen daher Gl. (5.12) numerisch für Lade bzw. Entladevorgang und entnehmen die jeweilige Zeitkonstante aus einer Anpassung, wie auch bei den gemessenen Daten. Hieraus lässt sich eine Vorhersage für das Verhältnis ν_n nach Gleichung (5.3) bestimmen. Abb. 5.2(b) zeigt das Ergebnis der Rechnung als Linie für das erwartete Verhältnis ν_1 des ersten Elektrons. Nach der Rechnung erwarten wir für das zweite Elektron gerade den umgekehrten Fall: $\nu_2 = 1/\nu_1$. Experimentell finden wir aber eine leichte Abweichung, die wir auf eine Energieabhängigkeit der Tunnelrate $\Gamma(\varepsilon)$ zurückführen. Diese hatten wir der Einfachheit halber in den Rechnungen als konstant angenommen. Um dies zu kompensieren, mitteln wir die gemessenen Verhältnisse für die zwei Elektronen der s -Schale zu $\bar{\nu} = (\nu_1 + 1/\nu_2)/2$. Abb. 5.2(b) vergleicht die gemessenen Mittelwerte $\bar{\nu}$ bei Temperaturen von 2,5 bis 50 K mit der Vorhersage für ν_1 . In qualitativer Übereinstimmung finden wir das Abklingen der Asymmetrie für hohe Temperaturen $\nu \rightarrow 1$. Quantitativ ist die Asymmetrie in der Messung weniger stark ausgeprägt als vorhergesagt und die gemessenen Werte $\bar{\nu}$ liegen näher bei 1. Im Experiment kann es durch den Drainstrom zu einer Erhöhung der Elektronentemperatur gegenüber der gemessenen Gittertemperatur kommen. Zudem ist die gemessene Verteilung der Tunnelraten größer als es Gl. (5.12) vorhersagt, was in der Mittelung über eine Anpassungsfunktion ebenfalls zu einer Abweichung gegenüber der Theorie führen kann. Im Ensemble kann die Verteilung der Tunnelraten aus Schwankungen der Tunnelabstände und Energien der nicht völlig homogenen Quantenpunkte entstehen. Schließlich ist auch das 2DEG in Wachstumsrichtung nicht beliebig scharf lokalisiert, was zu einer statistischen Schwankung der Tunnelabstände führen kann.

Bis jetzt haben wir nur die zweifach spinentarteten Zustände der s -Schale betrachtet. Da wir nun gezeigt haben, dass sich die Methode zum Austasten der Entartung der Zustände nutzen lässt, wollen wir uns auch der Füllung der p -Schale zuwenden. Ohne externes Magnetfeld wurde für Elektronensysteme bereits häufig gezeigt, dass die p -Schale vor dem Besetzen der d -Schale vollständig gefüllt wird [Drexler94, Fricke96, Bimberg98, Cockins10]. Die Reihenfolge der Zustände innerhalb der p -Schale ist jedoch noch nicht völlig geklärt, da hier zwei Energiebeiträge vergleichbarer Größe miteinander konkurrieren. Für völlig rotationssymmetrische Quantenpunkte führt der Gewinn an Austauschenergie bei halb besetzter p -Schale ($n = 4$) zu einer Minimierung des Gesamtdrehimpulses L und einer Maximierung des Gesamtspins S . Dies entspricht der Hundschen Regel bei Quantenpunkten und wurde bereits früh in Experimenten zur Zeeman-Aufspaltung der p -Zustände gezeigt [Tarucha96, Miller97, Warburton98]. Andererseits kann bereits eine leichte Asymmetrie im Potential des Quantenpunkts zu einer energetischen Aufspaltung der p -Schale mit unterschiedlichen Energien für ihre Kartesischen Komponenten p_x, p_y führen, was in Experimenten zugänglich war, die eine direkte Abbildung der Wellenfunktion erlauben [Wibbelhoff05, Lei10]. Die Asymmetrie kann sowohl eine Folge der Facettierung [Marquez01] und damit auch bei freistehenden Quantenpunkten auftreten. Sie kann aber auch erst als Folge der morphologischen

⁴Sowohl Spannungssprung $\Delta\varepsilon$, als auch Fermi-Verteilung $f(\varepsilon)$ wählen ein energetisch passendes Subensemble der Quantenpunkte.

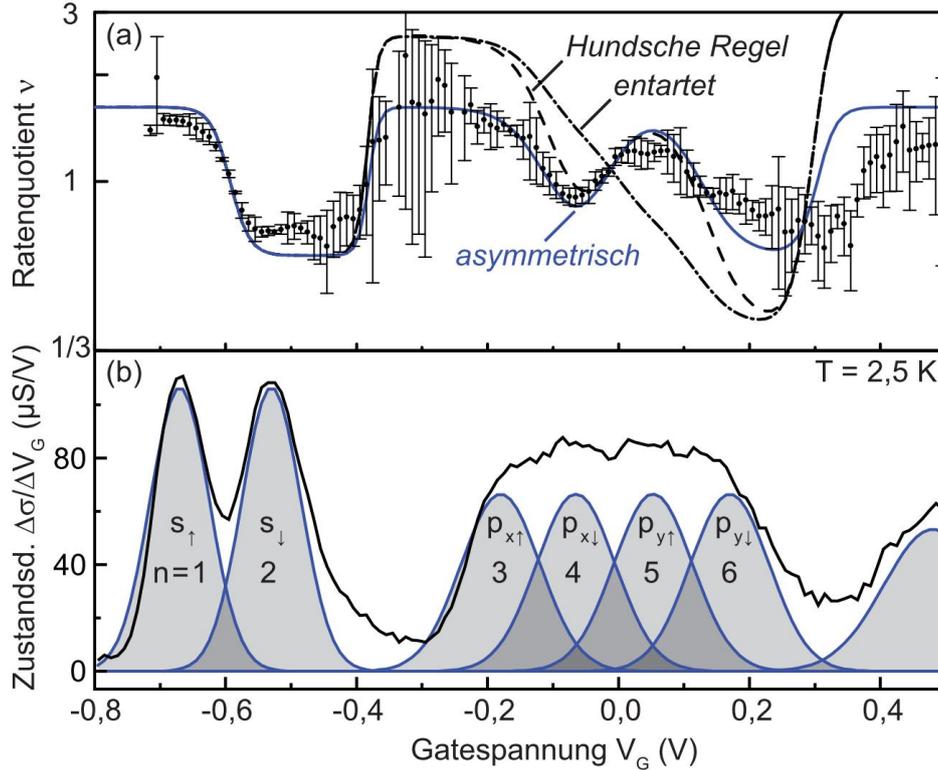


Abbildung 5.4: (a) Ratenverhältnis ν über Gatespannung – experimentell ermittelte Werte (Punkte) im Vergleich zu drei Modellen für die Besetzung der p -Schale nach Tabelle 5.1. (b) Entsprechende Zustandsdichte mit Entfaltung in die Besetzungszustände mit $n = 1 \dots 6$. Der Vergleich in (a) erlaubt die Zuordnung der Zustände in die Kartesischen Funktionen $p_{x/y}$ für asymmetrische Quantenpunkte.

Veränderungen [Lin94] beim Überwachsen auftreten. In einer Untersuchung an einzelnen, unüberwachsenen Quantenpunkten, die ebenfalls empfindlich auf die Entartung der Vielteilchen-Zustände ist, konnte keine Anisotropie der p -Schale beobachtet werden [Cockins10]. Dort wurde die Entartung aus der Verschiebung der Übergänge mit der Temperatur bestimmt, was hier wegen der breiten Verteilung im Ensemble nicht auflösbar wäre. Mit der zeitaufgelösten Messung haben wir hier aber den Vorteil, die Entartung ohne Variation der Temperatur bestimmen zu können, wodurch die Auflösung einer Aufspaltung bei tiefen Temperaturen lediglich durch den Energiesprung $\Delta\varepsilon = 1,4$ meV beschränkt ist.

Die Datenpunkte in Abb. 5.4(a) zeigen das experimentell bestimmte Verhältnis ν als Funktion der Gatespannung bei $T = 2,5$ K. Dem gegenübergestellt sind die nach Gl. (5.12) berechneten Werte für ν_n nach drei Modellen zur Füllung der p -Schale. Für ein isotropes Potential, ohne Berücksichtigung von Austauschenergie, erhält man für die Entartung der Besetzungszustände der p -Schale (d_3, d_4, d_5, d_6) die höchstmöglich entartete Sequenz (4, 6, 4, 1). Unter Berücksichtigung der *Hundschen Regel* ergibt sich (4, 2, 4, 1) und für ein *asymmetrisch* deformiertes Potential folgt die geringste Entartung lediglich durch den Spin der Elektronen (2,1,2,1). Hieraus lassen sich die ξ_n und schließlich die, bei 2,5 K erwarteten ν_n berechnen, die in Tabelle 5.1 zusammengefasst sind.

Da die Abstände der Zustände innerhalb der p -Schale vergleichbar mit der inho-

mogenen Ensemblebreite ist, treten hier verschiedene Besetzungsübergänge innerhalb eines Spannungssprungs auf. Dies zeigt die Überlappung der entfalteten Zustandsdichte, als schattierte Flächen in Abb. 5.4(b). Zur Berücksichtigung dieser Überlagerung wird daher das berechnete Verhältnis ν_n noch mit der Anzahl der Quantenpunkte im Ladungszustand n bei der jeweiligen Gatespannung mit Hilfe der gezeigten Entfaltung gewichtet und gemittelt. Das Ergebnis sind die in Abb. 5.4(a) eingezeichneten Linien für die drei Modelle. Das Modell für ein asymmetrisches Potential zeigt eine gute Übereinstimmung mit den Daten, während die anderen Modelle eindeutig ausgeschlossen werden können. Dies bestätigt die experimentell beobachteten elliptischen Wellenfunktionen in selbstorganisierten Quantenpunkten [Vdovin00, Wibbelhoff05, Vdovin07].

Prinzipiell ist es mit der zeitaufgelösten Messtechnik auch möglich, die energetische Aufspaltung der p -Schale $\Delta E_{p_x/y}$ (als Folge des asymmetrischen Potentials) auszumessen. Hierzu ließe sich beispielsweise die Temperatur erhöhen. Eine geeignetere Methode ist jedoch die Erhöhung des Energiesprunges $\Delta\varepsilon$, bis eine Erhöhung der Entartung im Ratenverhältnis sichtbar wird. Am geeignetsten wäre hierfür eine Probe mit energetisch hoher Tunnelbarriere (also hohem Al-Gehalt), damit die Energieabhängigkeit der Tunnelrate $\Gamma(\varepsilon)$ auch für große $\Delta\varepsilon$ noch vernachlässigt werden kann. Für die untersuchte Probe können wir eine Untergrenze der Aufspaltung abschätzen mit $\Delta E_{p_x/y} > \Delta\varepsilon = 1,4 \text{ meV}$.

Modelle	ξ_1	ν_1	ξ_2	ν_2	ξ_3	ν_3	ξ_4	ν_4	ξ_5	ν_5	ξ_6	ν_6
<i>entartet</i>	2	1.6	$\frac{1}{2}$	0.6	4	2.6	$\frac{3}{2}$	1.3	$\frac{2}{3}$	0.8	$\frac{1}{4}$	0.4
<i>Hundsche Regel</i>	2	1.6	$\frac{1}{2}$	0.6	4	2.6	$\frac{1}{2}$	0.6	2	1.6	$\frac{1}{4}$	0.4
<i>asymmetrisch</i>	2	1.6	$\frac{1}{2}$	0.6	2	1.6	$\frac{1}{2}$	0.6	2	1.6	$\frac{1}{2}$	0.6
Messung		1.5		0.7		1.6		0.7		1.5		0.7

Tabelle 5.1: Verhältnisse der Entartungen $\xi_n = d_n/d_{n-1}$ und erwartete Ratenverhältnisse ν_n bei $T = 2,5 \text{ K}$. Verglichen werden drei Modelle der Schalenfüllung mit einer Anpassung an die Messdaten aus Abb. 5.4. Die beste Übereinstimmung zeigt das Modell eines *asymmetrischen* Potentials.

Zusammenfassend wurde gezeigt, dass sich die zeitaufgelöste Messtechnik auf die Grundzustände der Quantenpunkte anwenden lässt um Be- und Entladeprozesse getrennt zu untersuchen. Eine Asymmetrie in den Raten der zwei Prozesse ist eine direkte Folge der starken Coulomb-Wechselwirkung und ermöglicht die Untersuchung des Entartungsverhältnisses der Ladezustände. Hierdurch kann eine Aufspaltung der p -Schale und damit eine Asymmetrie im Potential der Quantenpunkte eindeutig nachgewiesen werden, selbst in einem großen Ensemble. Im Folgenden soll die Asymmetrie der Quantenpunkte mit Hilfe der Methode des Magnetotunnels [Vdovin00] genauer untersucht werden.

5.2 Magnetotunneln: Die Rolle der Impulserhaltung

Bisher wurde gezeigt, welchen Einfluss die Entartung der Zustände auf die Tunnelraten hat. In diesem Abschnitt wird gezeigt, welche Rolle der Impulserhaltung beim Tunnelvorgang zwischen null- und zweidimensionalen Systemen zukommt [Beckel12]. Hierzu verwenden wir die Technik der Magnetotunnelspektroskopie (MTS), wobei hier

im Gegensatz zu früheren Arbeiten [Vdovin00, Wibbelhoff05, Vdovin07] die Quantenpunkte nicht an ein in alle Raumrichtungen freies Elektronengas gekoppelt sind. Vielmehr ist der Freiheitsgrad des 2DEGs in Wachstumsrichtung eingeschränkt, was gerade der Richtung des Tunnelstroms in die Quantenpunkte entspricht. Experimentell wurde MTS schon früher an gekoppelten 2D-2D-Systemen angewandt [Smoliner89, Eisenstein91], wobei gezeigt wurde, dass der Querimpuls beim Tunneln erhalten bleibt. Dies hat die Konsequenz, dass vergleichbare Zustandsdichten im k -Raum senkrecht zur Tunnelrichtung wesentlich effektiver koppeln und damit schneller Ladungen austauschen können. Für das Tunneln von einem 2DEG in einen Quantenpunkt – insbesondere für die stark lokalisierte s -Schale – erwarten wir also eine wesentlich schlechtere Kopplung, aufgrund der stark unterschiedlich lokalisierten Zustandsdichten [Chuang02].

Wir betrachten nun den Ladevorgang des ersten Elektrons in die s -Schale der Quantenpunkte bei einer Gatespannung von $V_G = -0,67$ V (vgl. Abb. 5.1). Der Tunnelstrom des Ladevorgangs verläuft entlang der Wachstumsrichtung (001). Wie oben beschrieben betrachten wir die Tunnelraten τ^{-1} , legen dabei aber zusätzlich ein Magnetfeld \mathbf{B} entlang der Kristallachsen $\mathbf{B} \parallel (110)$ bzw. $\mathbf{B} \parallel (1\bar{1}0)$ an, also quer zur Tunnelrichtung. Die zwei Orientierungen entsprechen den Hauptsymmetrieachsen der elongierten Quantenpunkte [Wibbelhoff05, Wibbelhoff06]. Im Folgenden bezeichnen wir die Tunnelrichtung als \mathbf{z} und die Symmetrieachsen als \mathbf{x} und \mathbf{y} .

Die Datenpunkte in Abb. 5.5 zeigen die experimentell ermittelte Tunnelrate τ^{-1} in Abhängigkeit des Magnetfeldes \mathbf{B} für die Orientierungen entlang der zwei Symmetrieachsen $\mathbf{B} \parallel \mathbf{x}$ und $\mathbf{B} \parallel \mathbf{y}$. Im Gegensatz zu Experimenten, die die Tunnelkopplung zwischen 0D- und 3D-Systemen untersuchen [Vdovin00, Wibbelhoff05], finden wir hier selbst für den Grundzustand zunächst einen Anstieg in den Raten und damit eine Verbesserung der Tunnelkopplung, bis zu einem Maximum bei $B \approx 4,5$ T. Im Folgenden soll diese Beobachtung näher untersucht und gezeigt werden, wie sich hieraus der Fermi-Impuls k_F des 2DEGs und die Anisotropie der Quantenpunkte ableiten lassen.

Durch das Magnetfeld erfahren die in z -Richtung tunnelnden Elektronen eine Lorentzkraft [Smoliner89, Eisenstein91, Beton95]. Dies entspricht einer Verschiebung des Impulses um Δk nach einer zurückgelegten Wegstrecke Δz durch den Tunnelvorgang:

$$\Delta k_{x/y} = \frac{e\Delta z}{\hbar} B_{y/x}. \quad (5.13)$$

Ein zur x -Richtung paralleles Magnetfeld B_x verschiebt also die Zustandsdichten von Quantenpunkten und 2DEG im k -Raum zueinander um einen Betrag Δk_y . Als Tunnelstrecke verwenden wir den Abstand zwischen dem Maximum der 2DEG-Wellenfunktion und der Basis der Quantenpunkte $\Delta z = 24$ nm (vgl. Abb. 3.2). Analog zu [Patanè02, Lei10] beschreiben wir die Tunnelwahrscheinlichkeit $\tau^{-1} \propto |\langle \psi_{\text{QD}} | \psi_{\text{2D}} \rangle|^2$ über das Überlappintegral der Wellenfunktionen in Quantenpunkt ψ_{QD} und 2DEG ψ_{2D} nach Gl. (2.16) bzw. (2.3). Da wir nur ein kleines Energiefenster betrachten, müssen wir für die Wellenfunktion des Quantenpunkts lediglich den Grundzustand ψ_s (vgl. Abb. 2.5) berücksichtigen. Für das Potential der Quantenpunkte verwenden wir die parabolische Näherung, modifizieren aber Gl. (2.16) um zwei charakteristische Längen $l \rightarrow l_{x/y}$ zu:

$$\psi_{\text{QD}} = \sqrt{\frac{1}{\pi l_x l_y}} e^{-\frac{1}{2} \left(\frac{x^2}{l_x^2} + \frac{y^2}{l_y^2} \right)}. \quad (5.14)$$

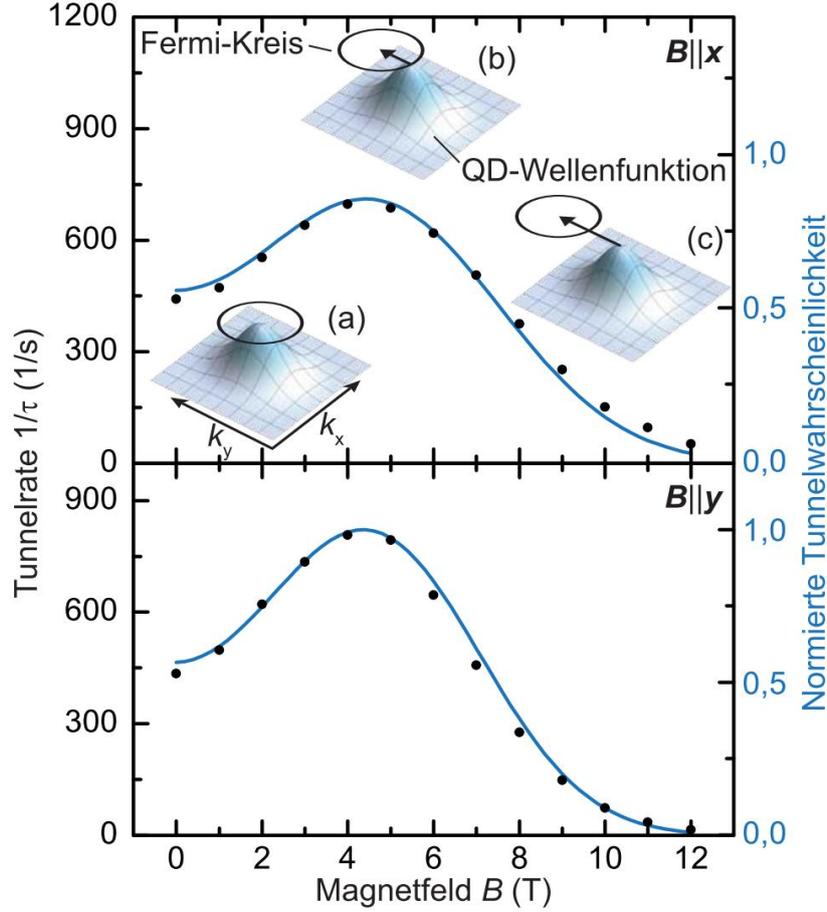


Abbildung 5.5: Tunnelrate τ^{-1} (Punkte) und erwartete Wahrscheinlichkeit $|\langle \psi_{\text{QD}} | \psi_{2\text{D}} \rangle|^2 \propto \tau^{-1}$ für einen Quantenpunkt der Dimensionen $l_x = 8,0 \text{ nm}$ bzw. $l_y = 6,8 \text{ nm}$ und einen Fermi-Kreisradius von $k_F = 0,19 \text{ nm}^{-1}$ in Abhängigkeit des Magnetfeldes B entlang der Hauptsymmetrieachsen x, y der Quantenpunkte.

In dieser Darstellung wird bereits implizit die in Kap. 5.1 diskutierte Asymmetrie im Potential des Quantenpunktes angenommen, was bei $l_x \neq l_y$ zu einer anisotropen Ausdehnung der Wellenfunktion ψ_{QD} entlang der zwei Kristallachsen führt.

Auch in der Darstellung über Gl. (5.14) beschreibt die Wellenfunktion ein im Ortsraum bei $x, y = 0$ lokalisiertes Elektron, das gleichermaßen im Impulsraum „lokalisiert“ ist. Da das Maximum der Wahrscheinlichkeit $|\psi_{\text{QD}}|^2$ auch im k -Raum bei $k_x, k_y = 0$ liegt, ist zunächst unverständlich, warum die Messung dennoch ein Maximum bei $B \neq 0$ zeigt. Dieses Verhalten muss also eine Folge der Zustände im 2DEG sein.

Zunächst betrachten wir den Effekt des Magnetfeldes auf die Wellenfunktion des 2DEGs $\psi_{2\text{D}}$. In der Schrödinger-Gleichung (2.2) müssen wir dazu den kinetischen Impulsoperator durch den generalisierten Operator ersetzen: $\hat{p} \rightarrow \hat{p} - q\mathbf{A}$. Mit der Landau-Eichung erhalten wir für ein Magnetfeld entlang der x -Richtung $\mathbf{B} = (B, 0, 0)$ das Vektorpotential $\mathbf{A} = (0, -Bz, 0)$. Wir verwenden einen Separationsansatz $\psi_{2\text{D}} = \psi_x \psi_y \psi_z$ mit ebenen Wellen in x und y -Richtung ($\psi_x = e^{ik_x x}, \psi_y = e^{ik_y y}$) und erhalten für die z -Komponente ψ_z die Eigenwertgleichung:

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial z^2} + \frac{e^2 B^2 z^2}{2m} - \frac{\hbar k_y e B z}{m} + V(z) - E_z \right) \psi_z = 0. \quad (5.15)$$

Wir nähern nun das Potential des 2DEGs durch ein harmonisches Potential: $V(z) = \frac{1}{2}m\omega_z^2 z^2$ und erhalten damit für die Gesamtenergie:

$$E = E_x + E_y + E_z = \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m} + \frac{1}{1 + \frac{\omega_c^2}{\omega_z^2}} \frac{\hbar^2 k_y^2}{2m} + \left(n + \frac{1}{2}\right) \hbar\omega, \quad (5.16)$$

mit $\omega_c = eB/m$ und $\omega = \sqrt{\omega_z^2 + \omega_c^2}$. Im Grenzfall hoher Quantisierungsenergie des 2DEGs im Vergleich zur magnetischen Energie gilt: $\omega_c \ll \omega_z$, und der Ausdruck vereinfacht sich zu:

$$E \approx \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m} + \frac{\hbar^2 k_y^2}{2m} + \left(n + \frac{1}{2}\right) \hbar\omega_z. \quad (5.17)$$

Für ein einzelnes Subband entspricht der rechte Term gerade dessen Quantisierungsenergie in unserer Näherung bzw. E_z in Gl. (2.4). Gleichung (5.17) beschreibt damit eine durch das Magnetfeld ungestörte Bewegung der Elektronen im 2DEG und wir wollen den Einfluss des Magnetfeldes auf seine Zustandsdichte zunächst vernachlässigen. In erster Näherung verschiebt das Magnetfeld also nur die zwei (ungestörten) Systeme zueinander im k -Raum nach Gl. (5.13).

Da wir für das Laden der Quantenpunkte nur einen kleinen Spannungssprung verwenden, sind für den Tunnelprozess nur die Elektronen im 2DEG relevant, die energetisch nahe an der Fermi-Energie E_F liegen. Durch den Einschluss in Tunnelrichtung muss dabei für ihren Impuls gelten: $k_x^2 + k_y^2 = k_F^2$. Im k -Raum liegen sie also auf dem Fermi-Kreis (vgl. Abb. 2.1), senkrecht zur Tunnelrichtung z . Hierin liegt gerade der entscheidende Unterschied zu früheren Experimenten mit 3D-Systemen, bei denen die Bedingung $k_x^2 + k_y^2 + k_z^2 = k_F^2$ erfüllt werden muss. In diesem Fall ist der Übergang für Zustände mit hohem Anteil in Tunnelrichtung $k_z \approx k_F$ wesentlich wahrscheinlicher, wodurch die Querkomponenten k_x, k_y unterdrückt werden. Das 3D-System entspricht durch diese Auswahl einer „scharfen Sonde“ im k -Raum, während das 2D-System einem Ring entspricht.

Die numerische Lösung des verschobenen Überlappintegrals $|\langle\psi_{\text{QD}}|\psi_{\text{2D}}\rangle|^2$ in Abhängigkeit des Magnetfeldes zeigt Abb. 5.5 als Linie in Form der normierten Tunnelwahrscheinlichkeit. Dabei wurden $k_F = 0,19 \text{ nm}^{-1}$ und die charakteristischen Längen $l_x = 8,0 \text{ nm}$ bzw. $l_y = 6,8 \text{ nm}$ für die Quantenpunkte als Anpassungsparameter verwendet. Der Fermi-Impuls entspricht dabei einer Ladungsträgerdichte von $n_{\text{2D}} = k_F^2/2\pi = 5,7 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, in guter Übereinstimmung mit dem Wert von $5,9 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ aus einer Hall-Messung des gleichen Materials und gleicher Gatespannung $V_G = -0,67 \text{ V}$ (vgl. Abb. 4.1). Das Maximum der Tunnelrate in Abb. 5.5 folgt damit aus der Tatsache, dass auch die Impulse quer zur Tunnelrichtung erhalten bleiben müssen. Für das 2DEG liegen diese gerade auf dem Fermi-Kreis, wie im Einsatz zu Abb. 5.5 gezeigt. Bei kleinen Magnetfeldern und kleiner Verschiebung Δk ist es gerade sehr unwahrscheinlich, dass ein derart großer Impuls von der stark lokalisierten Wellenfunktion des Quantenpunkt-Grundzustandes aufgenommen werden kann. Bei einer Verschiebung um $\Delta k \approx k_F$ ist aber die Wahrscheinlichkeit für einen Teil der Zustände im 2DEG deutlich erhöht, was zu dem Maximum führt. Eine weitere Verschiebung verschlechtert die Übereinstimmung wieder und kann das Tunneln sogar deutlich unterdrücken. Im vorherigen Abschnitt hatten wir bereits aus der Aufhebung der Entartung in der p -Schale auf eine Anisotropie im Potential der Quantenpunkte geschlossen. Aus den zwei deutlich verschiedenen charakteristischen Längen l_x bzw. l_y können wir nun auch direkt die

Streckung der Wellenfunktion quantitativ ermitteln. Im Vergleich zu früheren Untersuchungen [Wibbelhoff05] an 3D-Systemen mit der Annahme $k_z = k_F$ und $k_{x,y} = 0$ bestimmen wir hier eine insgesamt geringere lokale Ausdehnung der Wellenfunktion, in besserer Übereinstimmung mit theoretischen Vorhersagen [Bester07]. Verwendet man als Quantisierungsenergie $\hbar\omega_x$ einen Wert von 45 meV findet man jedoch eine ungewöhnlich große energetische Aufspaltung der p -Schale von $\Delta E_{p_{x/y}} \approx 17$ meV als Folge der gemessenen Anisotropie $l_{x/y}$. Daher ist es wahrscheinlich, dass die Anisotropie durch die Messung überschätzt wird.

Bisher wurde eine Deformierung des Fermi-Kreises durch das Magnetfeld vernachlässigt, wie sie Gl. (5.16) beschreibt. In Rechnungen [Smrcka94] und Experimenten [Ohtsuka98] wurde jedoch gezeigt, dass ein Magnetfeld von $B = 6$ T zu einer Deformierung im Bereich von 5-10 % führen kann. Durch die zusätzliche AlGaAs Tunnelbarriere (vgl. Abb. 2.2) erwarten wir in der hier untersuchten Probe eine geringere Abweichung als für eine Probe mit reinem Dreieckspotential. Dennoch kann die Asymmetrie im Fermi-Kreis zu einer Überschätzung der beobachteten Anisotropie in den Quantenpunkten führen.

Insgesamt bestätigen die Messungen die bereits theoretisch nach [Chuang02] diskutierte Abhängigkeit der Tunnelwahrscheinlichkeit vom Radius des Fermi-Kreises k_F . Der Radius ist dabei über die Ladungsträgerdichte im 2DEG bestimmt nach: $k_F = \sqrt{2\pi n_{2D}}$. In der untersuchten Probe, mit einem einzigen Steuergate, ist die Ladungsträgerdichte dabei fest über die angelegte Gatespannung vorgegeben, die auch gleichzeitig die Energien der Quantenpunktzustände zum 2DEG einstellt. Durch einen zusätzlichen, beispielsweise substratseitigen Gatekontakt ließe sich jedoch Ladungsträgerdichte und damit der Fermi-Kreis unabhängig von der Energie einstellen. Hierdurch ließe sich die Tunnelkopplung unabhängig vom Besetzungszustand der Quantenpunkte variieren, was zum einen für Speicheranwendungen interessant ist, zum anderen eröffnet dies neue Perspektiven zur Spektroskopie angeregter Zustände (vgl. Kapitel 4). Dadurch, dass angeregte Quantenpunktzustände im k -Raum weniger stark lokalisiert sind, lässt sich k_F gerade so einstellen, dass das Tunneln in angeregte Zustände bevorzugt wird, was ihre Detektion verbessert. Wählt man stattdessen den Grenzfall $k_F \ll l_{x,y}^{-1}$ wird die „Sonde“ im k -Raum wieder scharf, so dass sich MTS wie zuvor zum Austasten der reinen Quantenpunkt-Wellenfunktion nutzen lässt.

Abschließend wurde in diesem Kapitel gezeigt, wie sich die zeitaufgelöste Messtechnik zur Untersuchung von Vielteilchen-Grundzuständen nutzen lässt. Zunächst wurde die Entartung der Zustände beim Be- und Entladevorgang untersucht. Die vier Zustände der p -Schale zeigten dabei lediglich zweifache Spinartung, was mit einer Asymmetrie im Potential der Quantenpunkte erklärt wurde. Anschließend wurde die Asymmetrie mittels MTS auch quantitativ nachgewiesen, wobei die zwei Achsen der gestreckten Wellenfunktion in den Quantenpunkten mit 8,0 zu 6,8 nm bestimmt wurden.

Kapitel 6

Perspektiven

In diesem Kapitel soll auf die technischen Möglichkeiten der untersuchten Strukturen eingegangen werden. Zunächst wird dabei am Beispiel typischer Speicheroperationen auf die erreichbaren Schaltzeiten eingegangen. Diese sind zum einen wesentlich für die Eignung von Quantenpunkten als zukünftige Informationsspeicher, zum anderen ist die damit verknüpfte Zeitauflösung bei der Untersuchung schneller Relaxationsprozesse (z.B. Spinrelaxation) von entscheidender Bedeutung. Auszüge dieses Abschnittes wurden bereits in [Nowozin14] veröffentlicht. Im Anschluss wird die räumliche Skalierbarkeit der Strukturen untersucht. Dabei steht die Reduktion der Ensemblegrößen mit dem Ziel der Spektroskopie von wenigen oder sogar einzelnen Quantenpunkten im Vordergrund.

6.1 Operationszeiten für Speicheranwendungen

Das einschließende Potential selbstorganisierter Quantenpunkte als Informationsspeicher zu nutzen, ist eine naheliegende Anwendungsmöglichkeit. Eingebettet in eine HEMT-Struktur, übernehmen die Quantenpunkte die Aufgabe des Floating-Gates, in Analogie zur Technologie des Flash-Speichers [Marent11]. Zu dem hier untersuchten Materialsystem InAs auf GaAs finden sich bereits viele Arbeiten mit diesem technologischen Hintergrund [Balocco04, Nataraj05, Muller08]. In letzter Zeit sind dabei ebenfalls Quantenpunkte aus GaSb [Marent11, Cui13] von erhöhtem Interesse, bei denen der hohe energetische Einschluss von Lochzuständen [Marent07, Nowozin13] auch bei Raumtemperatur die Realisierung nicht-flüchtiger Speicher verspricht. Die schon erreichten Schreibzeiten im Bereich einiger ns [Geller08] machen dabei Speicher denkbar,

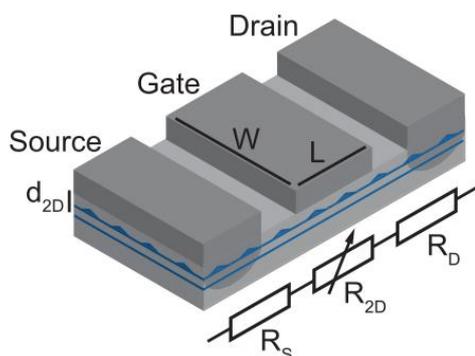


Abbildung 6.1: Geometrie der Transistoren mit Gate- bzw. Kanalbreite W und Länge L . Die RC-Charakteristik und damit die Schaltzeiten folgen aus Gatekapazität $C \propto W \times L$, Kanalwiderstand $R_{2D} \propto L/W$ und den Kontaktwiderständen R_S und R_D zu Source und Drain.

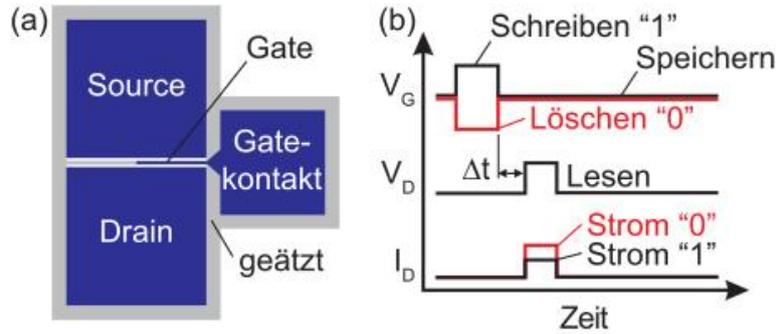


Abbildung 6.2: (a) Transistoraufbau mit breitem Aspektverhältnis von $W/L = 100 \mu\text{m}/5 \mu\text{m}$. (b) Schaltsequenz zum Auslesen der Ladungsinformation der Quantenpunkte. Zunächst wird der Ladezustand durch einen Schreib- bzw. Löschpuls V_G präpariert. Nach einer Zeit $\Delta t = 1 \mu\text{s}$ wird ein Spannungspuls V_D auf den Drainkontakt gegeben und der Strom I_D gemessen.

die Schaltgeschwindigkeiten von DRAM mit Speicherzeiten der Flash-Technologie vereinen. Die in diesem Kapitel betrachteten Heterostrukturen sind nominell identisch zu den zuvor untersuchten, lediglich die Struktur der Transistoren wurden der jeweiligen Anwendung angepasst. Wegen des verhältnismäßig geringen Einschlusses der Elektronenzustände (ca. 300 meV), werden auch hier alle gezeigten Messungen unter kryogenen Bedingungen durchgeführt. Für Messungen bei Raumtemperatur sind die Speicherzeiten, die diese Heterostruktur ermöglicht, zu gering; hierzu ist der Wechsel zu höheren Tunnelbarrieren (höherer Al-Gehalt) oder GaSb-Quantenpunkten nötig.

In den untersuchten Proben ist die Speicherzeit über die (spannungsabhängige) Tunnelzeit der Heterostruktur, insbesondere durch die Tunnelbarriere vorgegeben. Auf die Geometrie der untersuchten Transistorstrukturen wurde bisher noch nicht detailliert eingegangen, sie bestimmt aber die erreichbaren Schaltgeschwindigkeiten für Lese- und Schreiboperationen. In erster Näherung lässt sich dies durch das einfache RC-Glied¹ der Probe beschreiben. Abb. 6.1 zeigt noch einmal den Aufbau der hier verwendeten Transistoren. Das Gate der Breite W und Länge L steuert den *aktiven* Widerstand $R_{2D}(V_G) = L/W\sigma$ des 2DEGs in der Tiefe d_{2D} . Gleichzeitig definiert die Fläche aber auch eine parasitäre Gatekapazität $C = \epsilon\epsilon_0 WL/d_{2D}$. Bei einer Ladungsträgerdichte² von $6 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ und einer Beweglichkeit von $5000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ folgt damit eine lediglich von der Gatelänge L abhängige Zeitkonstante $R_{2D}C \approx 1 \frac{\text{ps}}{\mu\text{m}^2} L^2$. Tatsächlich müssen jedoch auch die *passiven* Kontaktwiderstände R_S und R_D berücksichtigt werden. Sie beschreiben sowohl den Kontakt zwischen dem 2DEG und den einlegierten Ohmschen Kontakten, wie auch die Lücke zwischen Ohmschen Kontakten und Gatemetallisierung. Ihr Skalierungsverhalten ist dabei invers zur Breite W mit $R_{S,D} \propto 1/W$. Dies führt zu den üblicherweise sehr breiten Aspektverhältnissen $W/L \gg 1$ bei Transistoren für Hochfrequenzanwendungen. Abb. 6.2(a) zeigt den lithografischen Aufbau, der im Folgenden untersuchten Probe, mit einer Gatebreite $W = 100 \mu\text{m}$ und einer Länge von $L = 5 \mu\text{m}$. Trotz der großflächigen Ohmschen Kontakte liegt der Kontaktwiderstand für tiefe Temperaturen bei ca. 800Ω , was für die RC-Konstante eine theoretische Grenze

¹Hier wird nur Gatekapazität und Source-Drain-Widerstand berücksichtigt. Für komplexere Ersatzschaltungen siehe z.B. [Minasian77, Curtice84] und darauf aufbauende Literatur.

²Bezogen auf die Gatespannung, bei der die Quantenpunkte das erste Elektron aufnehmen.

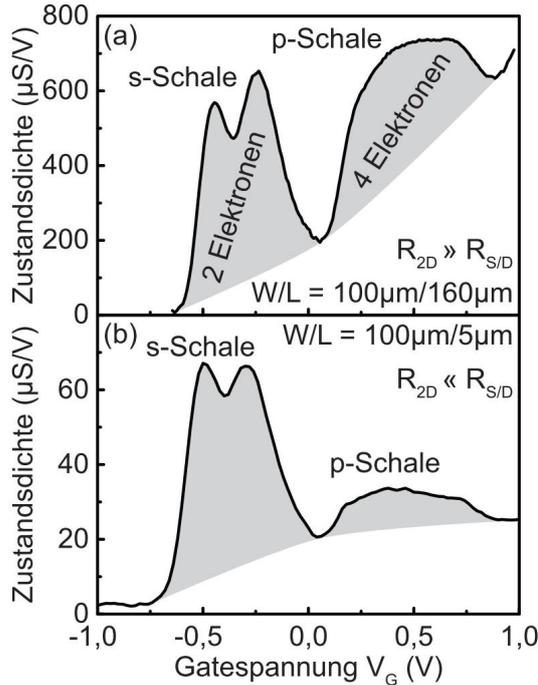


Abbildung 6.3: Zustandsdichte aus der Leitwertsänderung $G \propto \sigma$ für Transistoren mit unterschiedlichem Aspektverhältnis. (a) Bei langem Aspektverhältnis dominiert R_{2D} ; ein ansteigender Untergrund folgt aus $\mu(n)$. (b) Bei kurzem Aspektverhältnis dominiert der Kontaktwiderstand $R_{S/D}$, was das Signal zu hohen Gatespannungen dämpft.

von 0,2 ns bedeutet.

Um die reale Lesegeschwindigkeit zu bestimmen, verwenden wir das, in Abb. 6.2(b) gezeigte Schema [Nowozin14]. Dabei wird zunächst eine Information „0“ oder „1“ mit einem Gatepuls V_G (Tektronix AFG3251) präpariert, indem die Quantenpunkte entweder geladen (Schreiben) oder entladen (Löschen) werden. Das Auslesen des jeweiligen Zustands erfolgt in beiden Fällen bei der Speicherspannung (Speichern). Zum Auslesen der Information wird $\Delta t = 1 \mu\text{s}$ nach dem Umschalten zur Speicherspannung ein Lesepuls V_D mit einer Amplitude von 80 mV bei einer Flankensteilheit von 200 ps (HP 8131A) auf den Drainkontakt gelegt. Der resultierende Drainstrom I_D wird mit einem an Source angeschlossenen Stromverstärker (Femto DHP-CA-100) bei einer Bandbreite von 200 Mhz in eine Spannung konvertiert und über einen 100 Mhz A-D-Wandler (NI PCI-5122) bei einer äquivalenten³ Abtastrate von 2 Ghz aufgezeichnet.

Um die Gatespannungen V_G für die jeweilige Präparation auszuwählen, wird die zeitaufgelöste Messtechnik zur Detektion der Grundzustandsdichte D_{QD} , wie im vorangegangenen Kapitel verwendet. Das hieraus ermittelte Spektrum in Abb. 6.3(b) zeigt die typische Schalensignatur der Quantenpunkte, die in ihrer s- und p-Schale zusammen bis zu 6 Elektronen aufnehmen können. Im Gegensatz zu einer Probe des gleichen Materials, aber schmalem Aspektverhältnis $W/L < 1$ [Abb. 6.3(a)], wirken hier die höheren Beladungszustände der p-Schale deutlich unterdrückt, was eine Folge der neuen Geometrie ist. Durch das breite Aspektverhältnis $W/L \gg 1$ ist der aktive Widerstand R_{2D} deutlich reduziert, während der Kontaktwiderstand $R_S + R_D$ nicht gesunken ist. Bei niedrigen Gatespannungen dominiert der aktive Widerstand R_{2D} wegen der niedrigen Ladungsträgerdichte im 2DEG. Seine Änderung ist daher in der Reihenschaltung gut detektierbar. Bei hohen Gatespannungen dominiert aber der passive Kontaktwiderstand $R_S + R_D$, was das Spektrum unterdrückt, da die Änderung in R_{2D} keine wesentliche Rolle für den Gesamtwiderstand mehr spielt.

³Aufgebaut aus Unterabtastungen bei 100 Mhz.

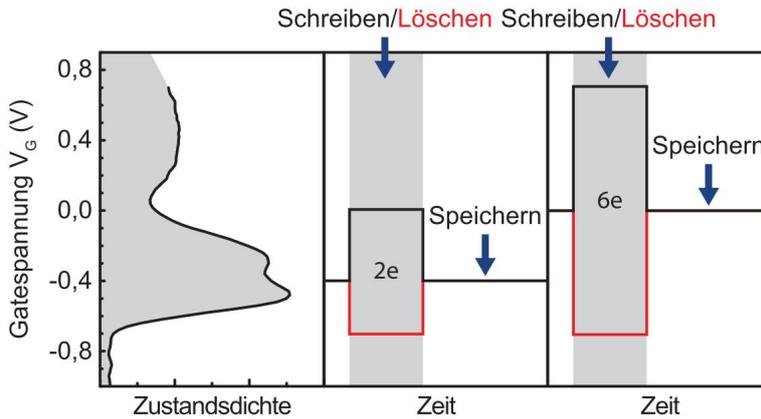


Abbildung 6.4: Schreib-, Löschen- und Speicherspannungen für den Betrieb mit (2e) zwei und (6e) sechs Elektronen.

Das Spektrum genügt jedoch zur Bestimmung der geeigneten Schreib- und Löschespannungen (Abb. 6.4). Wir betrachten nun zwei Sequenzen, bei denen der Zustand „1“ mit unterschiedlicher Besetzung der Quantenpunkte realisiert wird: **2e** – Die Quantenpunkte werden maximal mit zwei Elektronen geladen, Schreib- und Speicherspannung betragen jeweils 0 und -0,4 V. **6e** – Die Quantenpunkte werden mit sechs Elektronen geladen, Schreib- und Speicherspannung betragen 0,7 bzw. 0 V. Die Löschespannung beträgt in beiden Fällen -0,7 V.

Abb. 6.5 zeigt den Drainstrom I_D einer Einzelpunktmessung für Lesepulse mit einer Dauer von 1 bis 10 ns für die Sequenzen (2e) und (6e). Ab einer Pulsdauer von 3 ns sind die unterschiedlichen Zustände „0“ bzw. „1“ durch eine Differenz ΔI_D deutlich von der Rauschamplitude $\delta I_{RMS} \approx 1 \mu A$ zu unterscheiden. Entgegen der Erwartung macht es dabei jedoch kaum einen Unterschied, ob 2 oder 6 Elektronen in den Quantenpunkten gespeichert werden, da die relative Differenz lediglich von 7 auf 10 % ansteigt. Hierfür lassen sich zwei Gründe benennen: Zum einen ist die Speicherzeit der Elektronen in der p -Schale sehr kurz, so dass nach einer Wartezeit von $\Delta t = 1 \mu s$ schon ein Teil der Elektronen emittiert wurde. Zum anderen liegt die Speicherspannung der 6e-Sequenz bei höheren Gatespannungen, bei denen das aktive Signal (hier ΔI_D) aufgrund der passiven Kontaktwiderstände reduziert wird. Bei einer Probe mit längeren Speicherzeiten ließe sich diese Problematik umgehen, indem man als Speicherspannung eine Spannung wählt, bei dem das 2DEG mit geladenen Quantenpunkten nahezu vollständig verarmt wird. Bei dieser Spannung würde man die prozentual größte Differenz zwischen den Präparationen „0“ und „1“ erwarten.

Wir können festhalten, dass die untersuchte Probengeometrie eine Auslesezeit von 3 ns, unabhängig von der Beladung der Quantenpunkte zulässt. Dies ist in etwa eine Größenordnung schlechter, als oben abgeschätzt wurde. Der Einsatz in Abb. 6.5 zeigt die Differenz ΔI_D für Pulse bis zu einer Dauer von 50 ns. Eine 50-prozentige Dämpfung des Signals zeigt sich bei der beobachteten Lesezeit von ≈ 3 ns. Dies entspricht in etwa der Grenzfrequenz⁴ des verwendeten A-D-Wandlers, mit einer Zeitkonstante $\frac{1}{2\pi \cdot 100 \text{ Mhz}} \approx 2$ ns. Die beobachteten 3 ns sind also wahrscheinlich durch den Aufbau begrenzt und stellen lediglich eine obere Abschätzung der tatsächlich erreichbaren Lesezeit dar.

Wir wenden uns nun den erreichbaren Schreibzeiten zu, also wie schnell es möglich ist von der Information „0“ auf eine „1“ zu schalten. Für den Betrieb mit zwei Elektronen ist die Speicherzeit der untersuchten Probe über die Tunnelzeit von ca. 1 ms in die

⁴Bezogen auf -3 dB Dämpfung, wenn das Signal auf einen Faktor $1/\sqrt{2}$ abklingt. Bei der hohen Probenimpedanz wird aber auch der Stromverstärker nicht die volle Bandbreite von 200 Mhz erreichen.

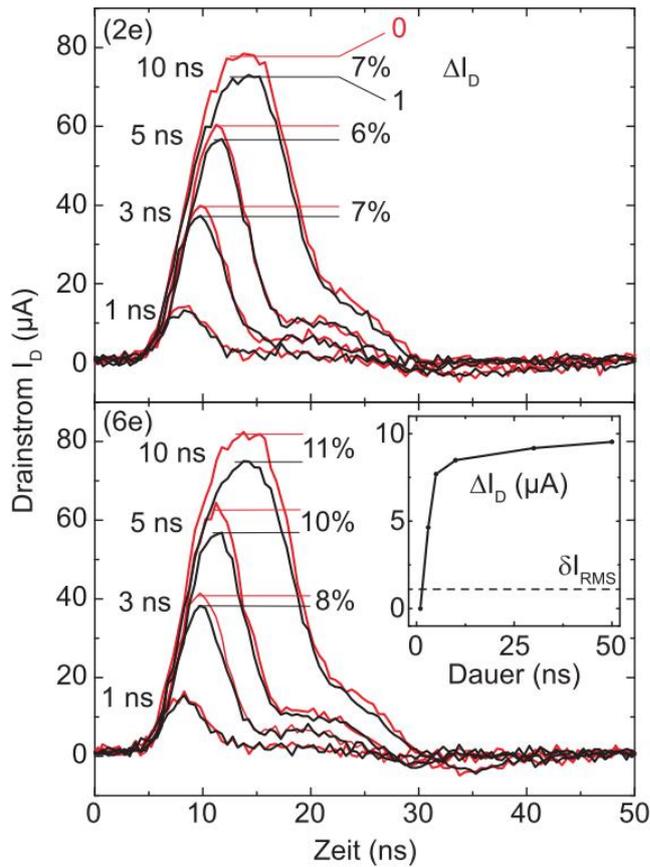


Abbildung 6.5: Drainstrom für Lese-pulse $V_D = 80 \text{ mV}$ mit einer Dauer von 1 ns bis 10 ns für 2 bzw. 6-fach geladene Quantenpunkte ($2e/6e$). Der Einsatz zeigt die Signaldifferenz ΔI_D über Pulsdauer. Eine Dämpfung von 50 % tritt bei einer Dauer von 3 ns auf. Bei 3 ns ist noch eine Unterscheidung der Information 0/1 ohne Mittelung möglich.

Grundzustände der s -Schale vorgegeben. Dies wurde durch das Einfügen einer 10 nm dicken Schicht $\text{Al}_{0,34}\text{Ga}_{0,66}\text{As}$ in die Tunnelbarriere erreicht. Nun stellt sich die Frage, ob diese Barriere auch die erreichbaren Schreibzeiten begrenzt. Zum Testen der Schreibgeschwindigkeit verwenden wir eine Methode, die der Emissionsmessung in Abschnitt 4.2.2 entspricht. Wir geben hierzu einen Spannungspuls von 1,7 V (in Durchlassrichtung) mit einer Flankensteilheit von 3 ns auf den Gatekontakt, dessen Dauer sukzessive verkürzt wird. Gemessen wird die Änderung im Drainstrom ΔI_D , aufgrund der aus den Quantenpunkten zurücktunnelnden Elektronen. Abb. 6.6(a) zeigt die Amplitude $\Delta I_D/V_D$ für verschiedene Drainspannungen V_D als Funktion der Schreibpulsdauer. Aus der Leitwertsänderung lässt sich das Plateau von $\Delta I_D/V_D \approx 50 \mu\text{S}$ bei ca. 20 ns mit der Beladung der Quantenpunkte durch jeweils zwei Elektronen identifizieren. Wird die Pulsdauer auf 9 ns reduziert, bricht die Emission für den Betrieb mit zwei Elektronen pro Quantenpunkt auf 50 % ein. Durch eine Erhöhung der Schreibspannung auf 2 V lässt sich auch der Betrieb mit sechs Elektronen bei gleicher Schreibzeit von 9 ns realisieren [Abb. 6.6(b)]. Unabhängig von der Höhe der angelegten Durchlassspannung zeigen alle Messungen eine Begrenzung bei ca. 9 ns, was sich auch hier auf den Aufbau zurückführen lässt, aufgrund der Anstiegszeit des Schreibpulses von 3 ns.

Zusammenfassend wurde hier gezeigt, dass sich mit den untersuchten HEMT-Strukturen Lesezeiten $\leq 3 \text{ ns}$ und Schreibzeiten $\leq 9 \text{ ns}$ erreichen lassen. Optimierung ist sowohl in der Messtechnik als auch der Probengeometrie noch möglich um diese Zeiten weiter zu verbessern. Prinzipiell werden für die III-V-Halbleitertechnik wegen der höheren Beweglichkeiten bessere Schalt- und Lesezeiten erwartet, als für vergleichbare Bauelemente auf Silizium-Basis [delAlamo11]. Ein großes Problem stellen dabei der-

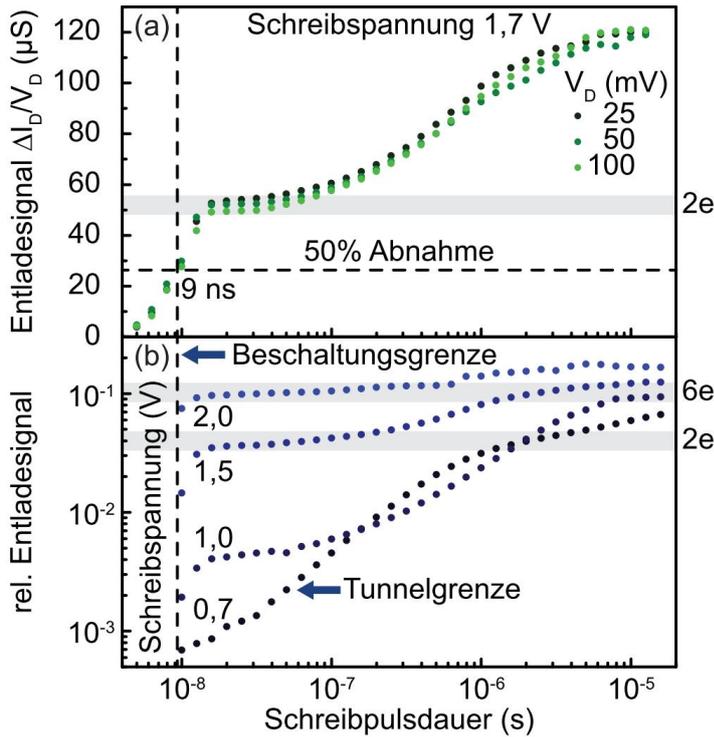


Abbildung 6.6: Entladesignal in Abhängigkeit der Schreibpulsdauer, aus einer Messung der Stromänderung ΔI_D durch die reemittierten Elektronen aus den Quantenpunkten. (a) Bei einer Pulsdauer von 9 ns sinkt das Signal auf 50% für den Betrieb mit zwei Elektronen pro Quantenpunkt. (b) Die Grenze von 9 ns ist unabhängig von der Schreibspannung und durch den Aufbau begrenzt.

zeit noch die hohen Kontaktwiderstände dar, insbesondere wenn Strukturgrößen im Bereich einiger nm realisiert werden sollen. Für InGaAs-Heterostrukturen ließen sich jedoch schon Ohmsche Kontakte erreichen, die für Thz-Anwendungen geeignet sind [Singiseti08] und die Lücke zwischen Gate und Ohmschen Kontakten lässt sich mit selbstaushrichtender Lithografie minimieren [Kim10].

6.2 Jenseits des Ensembles: Skalierungseigenschaften

Eine Reduktion der Gategröße erlaubt nicht nur schnellere Schaltzeiten, aufgrund geringerer Kapazitäten. Mit einer kleineren Gatefläche verringert sich auch die Anzahl der aktiven Quantenpunkte im Ensemble. Besonders interessant sind hier Flächen mit nur wenigen und ultimativ einem einzelnen Quantenpunkt. Derartige Strukturen sind nicht nur von technologischem Interesse, zur Erhöhung der Integrationsdichte in möglichen Speicherzellen. Bereits bei einer Reduktion auf wenige Quantenpunkte sollten Energieauflösungen jenseits der inhomogenen Breite des Ensembles erreichbar sein (siehe z.B. [Cockins10]). In Verbindung mit der zeitaufgelösten Messtechnik verspricht der Gewinn an Energieauflösung neue Einblicke in die Ladungs- und Spindynamik angeregter Zustände.

Mit der Technik der Kapazitäts-Spannungsspektroskopie [Drexler94] ließen sich bereits Ensemblegrößen von ca. 1000 Quantenpunkten realisieren [Miller97]. Eine weitere Verringerung der Ensemblegrößen stellt jedoch extrem hohe Anforderungen an die Messung der notwendigerweise kleinen Probenkapazitäten, bei vergleichsweise hohen parasitären Kapazitäten von Aufbau und Messtechnik. Bei den hier untersuchten Proben ist daher der entscheidende Vorteil, dass sich anstelle der Kapazität ein Widerstand messen lässt. Dieser Widerstand sollte bei konstantem Aspektverhältnis der Strukturen invariant gegenüber einer Skalierung sein und wäre damit unabhängig von parasitären

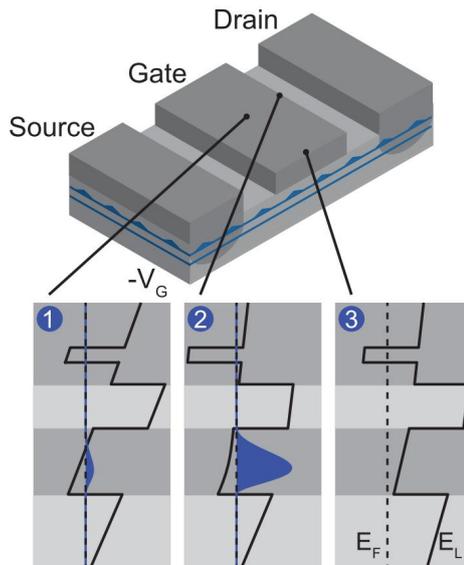


Abbildung 6.7: Durch Randeffekte wird das Potential in der Heterostruktur ortsabhängig. Nur in der Gatemitte (1) kann maximal die angelegte Spannung V_G abfallen. Entlang der Stromrichtung beeinflussen die freien Flächen das Potential (2), in der Nähe der Ätzkante können ungesättigte Oberflächenzustände zu einer Anhebung des gesamten Leitungsbandes führen (3).

Effekten.⁵

Mit den typischen Quantenpunktdichten von $100 \mu\text{m}^{-2}$, der hier untersuchten Proben, würde man einzelne Quantenpunkte bereits bei Gateflächen im Bereich von $100 \times 100 \text{ nm}^2$ erwarten. Lithografisch sind dies durchaus realisierbare Größenskalen, die bereits von kommerziellen Flash-Speichern unterboten werden. Ein Speicher erfordert jedoch lediglich die Existenz einer Hysterese, d.h. es genügt eine Verschiebung der Einsatzspannung des Transistors zur Unterscheidung in einen geladenen bzw. einen ungeladenen Zustand des Floating-Gates bzw. der Quantenpunkte. Weder der Besetzungsgrad, noch die genaue Spannung, bei der die Quantenpunkte beladen werden ist dabei wesentlich. Um die Transistoren auch für (zeitaufgelöste) Leitfähigkeitsspektroskopie nutzen zu können sind jedoch höhere Anforderungen nötig. Dies wird bereits bei der einfachen Forderung deutlich, die Gatespannung über einen konstanten Hebelarm mit der Energie der Zustände zu assoziieren. Strenggenommen gilt dies nur für einen großen Gatekontakt, bei dem Randeffekte vernachlässigt werden können. Wie Abb. 6.7 veranschaulicht, wird der Verlauf der Leitungsbandkante E_L an den Rändern des Gates beeinflusst und damit ortsabhängig. An den unbedeckten Flächen wird das Leitungsband durch Oberflächen- oder Defektzustände angehoben [Spicer80, Scarrozza09]. Welche Längenskalen hier relevant sind lässt sich einfach über die Abschirmlänge $\epsilon \times d_{2D} \approx 12 \times 180 \text{ nm} \approx 2 \mu\text{m}$ abschätzen. Durch das verhältnismäßig tiefe 2DEG erwarten wir hier Randeffekte also schon im μm -Bereich. Da die Quantenpunkte beliebig unter dem Gatekontakt angeordnet sind, wäre die Konsequenz eines lokalen Potentials, dass jedem Quantenpunkt ein eigener Hebelarm zugeordnet werden müsste, was die Interpretation von Spektren mit mittleren Ensemblegrößen von 10 bis 100 Quantenpunkten erschwert. Wie wir später sehen werden, hilft hierbei die zeitaufgelöste Messtechnik, um zusätzliche Informationen der Schalenstruktur zu erhalten. Zunächst soll jedoch auf die untersuchten Probengeometrien eingegangen werden.

Abb. 6.8 zeigt zwei mögliche Realisierungen für Proben mit kleiner Gatefläche. Teilabbildung (a) zeigt die Mesa einer Probe für ca. 1000 Quantenpunkte in kleeblatt-

⁵Dies gilt zumindest für Strukturgrößen über der Fermi-Wellenlänge, also im klassischen, diffusivem Transportregime.

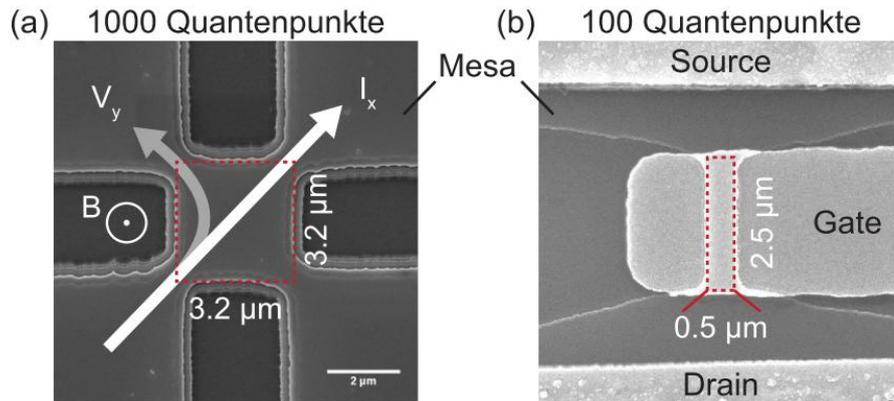


Abbildung 6.8: REM-Aufnahmen für die zwei betrachteten Probengeometrien. (a) Mesa vor dem Aufbringen des Gates für eine Probe in van der Pauw-Geometrie. Die aktive Fläche enthält ca. 1000 Quantenpunkte und ermöglicht sowohl kontaktwiderstandsfreie als auch Hall-Messungen. (b) Schmalen Transistorkanal für 2-Punkt-Messungen enthält ca. 100 Quantenpunkte, nach [Zhou].

förmiger van der Pauw-Geometrie, mit vier Ohmschen Kontakten zum aktiven Zentrum von ca. $3 \times 3 \mu\text{m}^2$, das später von einem Gate bedeckt wird. Teil (b) zeigt einen Transistor für ca. 100 aktive Quantenpunkte mit zwei Ohmschen Kontakten (Source und Drain), aber im Gegensatz zum vorherigen Abschnitt schmalen Aspektverhältnis von $W/L = 0,5 \mu\text{m}/2,5 \mu\text{m}$. Die Kleeblattform der van der Pauw-Geometrie ermöglicht eine kontaktwiderstandsfreie Messung der Ladungsträgerdichte. Verglichen mit anderen 4-Punkt-Geometrien erlaubt sie allerdings die Realisierung verhältnismäßig großer Ohmscher Zuleitungen. Da die laterale Auflösung nasschemisch definierter Strukturen durch die Ätztiefe (hier 200 nm) begrenzt ist, ist diese Struktur, ohne Umstellung auf alternative Verfahren (z.B.: trockenes Ätzen) jedoch weniger geeignet für aktive Flächen unterhalb von $1 \mu\text{m}^2$. Bei diesen Strukturen zeigten die schmalen Zuleitungen zu hohe Einsatzspannungen, was eine Spektroskopie der Quantenpunkte bei tiefen Temperaturen verhinderte. Ein besseres Skalierungsverhalten zeigt der einfache Transistor mit zwei Ohmschen Kontakten. Die schmalste Einschnürung des 2DEGs stellt hier der untersuchte Kanal selbst dar. Hier wurde ein schmales Aspektverhältnis $W/L < 1$ gewählt, um den Beitrag der Kontaktwiderstände zu verringern und damit die Empfindlichkeit der Messung zu verbessern. Dies führt allerdings auch hier wieder zu dem Nachteil, dass zum Erreichen kleiner Gateflächen ein verhältnismäßig schmaler Kanal benötigt wird.

Um zu sehen, welche Spannungs- bzw. Energieauflösung die Transistorstrukturen erlauben, betrachten wir zunächst die, in Abb. 6.9 gezeigte, Messung an einer Struktur mit 1000 Quantenpunkten, wie in Abb. 6.8(a) gezeigt. Hierzu wird ein effektiver Wechselstrom $I_x = 500 \text{ nA}$ angelegt und dabei die Querspannung $V_y \propto 1/n$ in einem Magnetfeld von $B = 1 \text{ T}$ mittels Lock-In-Technik gemessen. Aufgetragen wird die relative Änderung der Ladungsträgerdichte mit der Gatespannung, bzw. die relative Verarmung $-\frac{1}{n} \frac{dn}{dV_G}$ durch das Laden der Quantenpunkte. Zum Test der Reproduzierbarkeit werden zwei Messungen bei den Frequenzen 100 bzw. 300 Hz verglichen. Die erreichbare Auflösung ist hier durch die Schrittweite der Gatespannungsquelle und den zur Bestimmung der Ableitung verwendeten Filteralgorithmus mit einer Fensterbreite von 1 mV

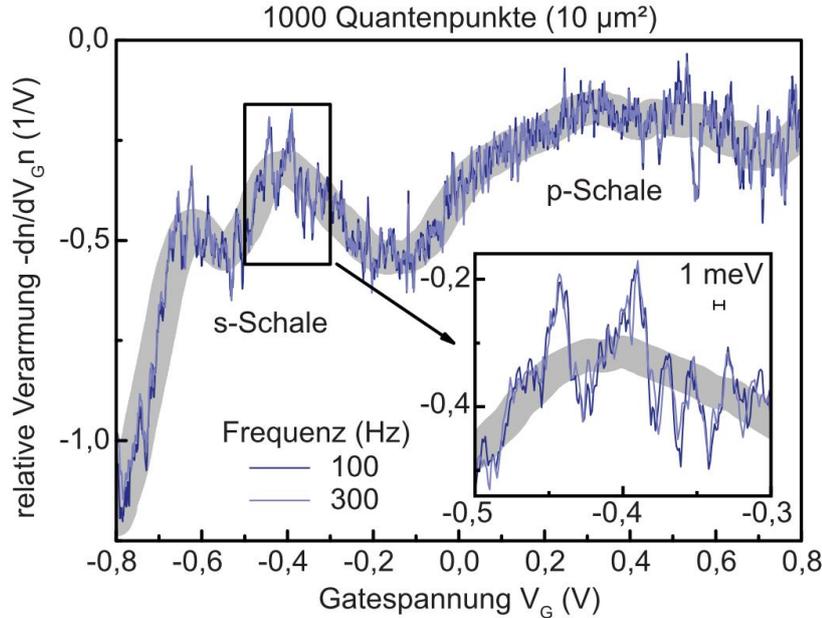


Abbildung 6.9: Relative Änderung der Ladungsträgerdichte $\frac{1}{n} \frac{dn}{dV_G}$ über Gatespannung V_G . Die mit Lock-In-Technik gemessene Querspannung $V_y \propto 1/n$ ($B = 1$ T) erlaubt die Auflösung reproduzierbarer Maxima mit Halbwertsbreiten im Bereich 1 meV, deutlich unter der inhomogenen Breite des Ensembles.

gegeben. Die einhüllende, graue Kurve⁶ zeigt wieder die typische Schalensignatur mit zwei deutlich trennbaren Ladezuständen für die s -Schale und stärker überlappenden Zuständen in der p -Schale. Bei maximaler Auflösung sind jedoch reproduzierbare Maxima mit Halbwertsbreiten im Bereich von 1 meV erkennbar. Diese Feinstruktur kann zunächst zwei Ursachen haben: 1. Das Laden in ein zufällig verteiltes Subensemble der Quantenpunkte und 2. das Laden von Defekt- oder Randzuständen der geätzten Mesa. Da wir jedoch die Tunnelraten der Quantenpunkte kennen, können wir nun die zeitaufgelöste Messtechnik nutzen, um einen Hinweis auf die Ursache der Feinstruktur zu erhalten.

Abb. 6.10 zeigt zunächst das Ergebnis einer zeitaufgelösten Messung für eine Probe des gleichen Materials mit 10^5 Quantenpunkten bei einer aktiven Fläche von $1000 \mu\text{m}^2$. Analog zu Abbildung 5.1 sind Lade- und Entladeraten als Funktion der Gatespannung, sowie die entsprechende Zustandsdichte aufgetragen.⁷ Im Gegensatz zu dem zuvor untersuchten Material ist die Tunnelrate hier insgesamt ca. eine Größenordnung höher, jedoch zeigt sich ein ebenso charakteristischer Anstieg beim Schalenwechsel. Die Tunnelraten steigen hier im Mittel etwa um einen Faktor 5, beim Wechsel von der s - zur p -Schale mit 2 bzw. 10 kHz. Wie bei der statischen Messung mittels Lock-In-Technik ist auch die, aus der zeitaufgelösten Messung ermittelte, Zustandsdichte zunächst eine Folge der Ladungsträgeränderung im 2DEG. Bei kleineren Proben wäre daher denkbar, dass neben dem Laden der Quantenpunkte auch Defekte oder Oberflächenzustände – insbesondere an den freigelegten Rändern der Mesa – zu einer Änderung der Leitfähigkeit im 2DEG führen. Bei großflächigen Proben sind derartige Randeffekte jedoch

⁶Gleitender Filter [Savitzky64] der Messdaten mit einer Fensterbreite von 200 mV.

⁷Statt einer Strommessung wurde hier die Querspannung V_y in van der Pauw-Geometrie zeitaufgelöst gemessen.

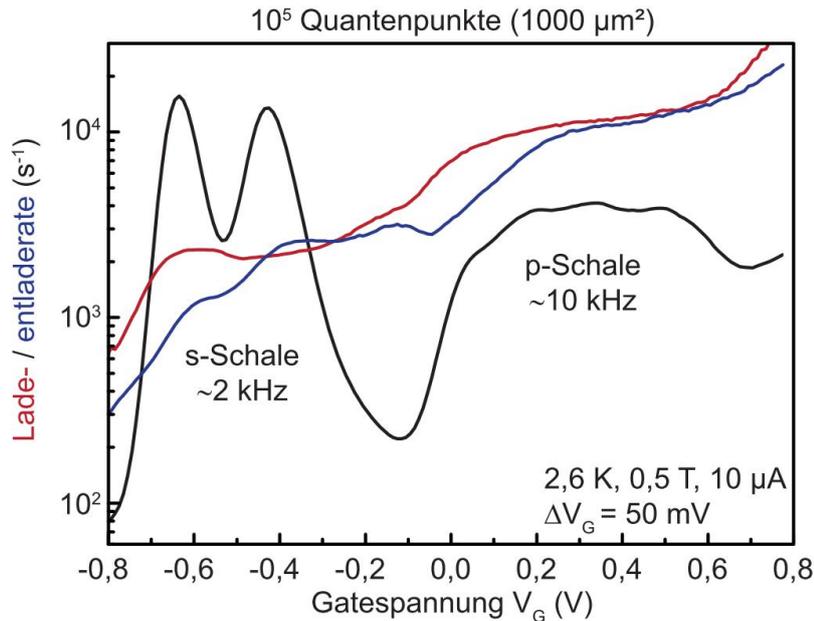


Abbildung 6.10: Lade- (rot) und Entladeraten (blau) über Gatespannung einer Probe mit 10^5 Quantenpunkten. Ein Vergleich mit der Zustandsdichte D_{QD} (schwarz) zeigt wie die Raten von 2 kHz auf 10 kHz beim Wechsel von der s - zur p -Schale anwachsen.

vernachlässigbar und wir können die Raten in Abb. 6.10 dem Tunnelvorgang in die Quantenpunkte zuordnen. Da die Tunnelraten hauptsächlich über die Barriere der Heterostruktur vorgegeben sind, sollten diese bei einer Verringerung der Strukturgröße vergleichbar sein. Die Zeitskalen für das Laden von Defekt bzw. Oberflächenzuständen sind zunächst unbekannt und es ist nicht auszuschließen, dass sie auf der gleichen Zeitskala wie die Quantenpunkte geladen werden. Dennoch ist eine Übereinstimmung von Zustandsdichte *und* Tunnelrate ein starker Hinweis, dass die beobachtete Ladungsträgeränderung im 2DEG tatsächlich auf das Laden der Quantenpunkte und nicht auf das Laden von Defekten zurückgeht.

Abb. 6.11 zeigt nun das Ergebnis einer Probe mit einer aktiven Fläche von $10 \mu\text{m}^2$ und damit 1000 Quantenpunkten. Im Vergleich zur Messung derselben Probe mittels Lock-In-Technik (Abb. 6.9), scheint hier die spektrale Auflösung geringer zu sein, was eine Folge der Pulshöhe von $\Delta V_G = 10 \text{ mV}$ im Vergleich zu den kleinen Spannungsschritten von 1 mV bei der Lock-In-Messung ist.⁸ Die Doppelstruktur auf den zwei Maxima der s -Zustände ist jedoch in beiden Messungen eindeutig reproduzierbar. Gleichzeitig können wir nun aber die Zustandsdichte Prozessen mit einer Rate von 1 bzw. 5 kHz zuordnen. Quantitativ hat sich die Tunnelrate nun zwar verringert, qualitativ zeigt sich aber ebenso deutlich der erwartete Anstieg von der s - zur p -Schale der Quantenpunkte. Dies ist ein starkes Indiz, dass es sich bei der, in Abb. 6.9 und 6.11 gezeigten Feinstruktur tatsächlich um eine Aufspaltung in Subensemble der Quantenpunkte handelt. Beide Abbildungen zeigen jeweils zwei Datensätze für die Zustandsdichte. Dass die abgebildeten Messungen auch bei gleicher Methode nicht völlig übereinstimmen, ist allerdings auch ein Zeichen dafür, dass Ladungsfluktuationen (z.B.

⁸Durch den schmalen Bandpass bietet die Lock-In-Technik ein stark verbessertes Signal-zu-Rausch-Verhältnis.

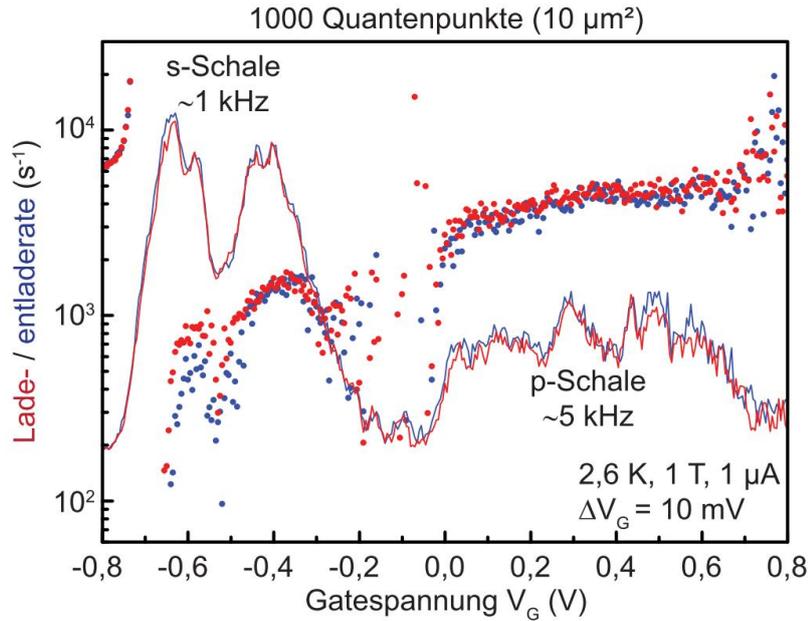


Abbildung 6.11: Datenpunkte zeigen Lade- (rot) und Entladeraten (blau) über Gatespannung für eine Probe mit 1000 Quantenpunkten. Linien zeigen die entsprechenden Zustandsdichten aus der Ladungsträgeränderung beim Laden (rot) und Entladen (blau). Die Feinstruktur der Dichte zeigt sich sowohl im Lade- als auch im Entladeanteil. Im Vergleich zu Abb. 6.10 sind die Raten verringert, qualitativ bleibt die Signatur der Schalen erhalten.

durch Defektzustände) die Energien der Struktur verschieben. Eine chemische Passivierung der Oberflächenzustände [Sandroff87, Ohno91, Wang10] kann hier möglicherweise die Spannungsstabilität verbessern, insbesondere für noch kleinere Größenskalen.

Da 4-Punkt-Messungen an Gateflächen kleiner als ca. $10 \mu\text{m}^2$ sehr kleine Zuleitungen erfordern, ist hier wieder die einfachere 2-Punkt-Geometrie im Vorteil. Bei der Einschnürung des 2DEGs sind dabei zwei Effekte nachteilig: Bereits im Bereich μm kommt es zu einem Anstieg der Einsatzspannung. Im schlimmsten Fall ist dann das 2DEG im Spannungsbereich der Quantenpunkte noch ungeladen. In Dimensionen $< \mu\text{m}$ kann zudem der aktive Kanal so weit eingeschnürt werden, dass Effekte der Leitwertquantisierung auftreten. Ein eindimensionaler Kanal wird zwar bei lithographisch definierten Quantenpunkten als hochempfindlicher Detektor verwendet [Elzerman04a, Elzerman04b], er erfordert jedoch die Möglichkeit, Energien in Kanal und Quantenpunkten getrennt einstellen zu können. Dadurch lässt sich eine Leitwertstufe im Kanal in Resonanz zu einem Niveau eines Quantenpunkts bringen, wodurch der Kanal empfindlich auf eine Ladungsänderung des Quantenpunkts reagiert. Ist allerdings ein Plateau resonant zu einem Niveau des Quantenpunkts, ist der Kanal unempfindlich. Die hier untersuchten Proben haben jedoch lediglich ein einzelnes Steuergate und die Energiebeziehung zwischen Kanal und Quantenpunkten ist damit fest vorgegeben. Ein eindimensionaler Kanal erfordert also eine neue Probengeometrie und ließe sich mit weiteren Gateelektroden realisieren, z.B. substratseitig oder durch (eingegrabene) Seitenkontakte, die stärker auf den Kanal als auf die Quantenpunkte wirken. Bei den hier untersuchten Proben lässt sich der Effekt lediglich durch eine Verschiebung der Einsatzspannung unterdrücken. Hierzu kann entweder der persistente Photoeffekt [Ruß06a]

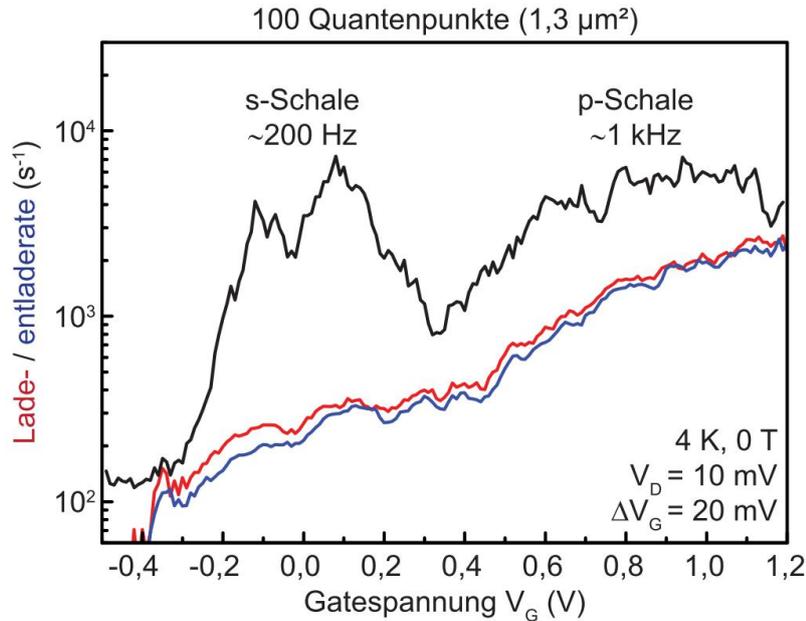


Abbildung 6.12: Lade- (rot) und Entladeraten (blau) über Gatespannung einer Probe mit ca. 100 Quantenpunkten und entsprechende Zustandsdichte. Ein Vergleich zu den Raten größerer Proben zeigt eine Verringerung um etwa eine Größenordnung. Der Wechsel von 200 auf 1 kHz entspricht jedoch dem bereits beobachteten Verhältnis zwischen s - und p -schale. [Zhou]

genutzt werden, oder es wird eine negative Gatespannung beim Abkühlen der Probe angelegt. Beides kann die Einsatzspannung des 2DEGs in der kalten Umgebung dauerhaft verringern, ohne die Ladespannungen der Quantenpunkte zu verschieben [Ruf06a].

Abb. 6.12 zeigt das Ergebnis der zeitaufgelösten Messung an einer Probe wie in Abb. 6.8(b). Hier wurde wieder der Drainstrom $I_D(t)$ bei konstanter Spannung V_D gemessen, wie in den vorherigen Abschnitten. Die aktive Gatefläche überdeckt ca. 100 Quantenpunkte. Die Zustandsdichte zeigt zunächst eine vertraute Signatur, mit den zwei Maxima der s -Schale und einer weniger gut auflösbaren p -Schale. Bei Betrachtung der Spannungsachse fällt jedoch auf, dass die Niveaus zu deutlich höheren Spannungen verschoben sind. Das erste Maximum tritt hier erst bei $-0,1$ V auf, anstelle von $-0,6$ V (vgl. Abb. 6.10, 6.11). Die Abstände der ersten zwei Maxima entsprechen jedoch weiterhin einem Abstand von ca. 30 meV, für das in diesem Kapitel verwendete Ausgangsmaterial. Während der Hebelarm erhalten bleibt, werden durch die Randeffekte nun positivere Spannungen zum Laden der Quantenpunkte benötigt. Allein die Positionen der Spannungen sind daher kein zuverlässiges Kriterium für die Zuordnung der Zustände. Zusätzlich zeigen aber die Raten ein qualitativ ähnliches Verhalten wie zuvor. Der Gewinn an Tunnelrate von 200 Hz zu 1 kHz entspricht wieder in etwa dem zuvor beobachteten Faktor 5. Dass die Tunnelraten hier insgesamt so gering ausfallen, kann die Folge einer erhöhten Ladungsträgerdichte durch den persistiven Photoeffekt sein, der hier genutzt wurde, um das 2DEG nach dem Abkühlen zu „reaktivieren“. Eine Erhöhung der Ladungsträgerdichte n_{2D} führt zu einem höheren Fermi-Impuls $k_F = \sqrt{2\pi n_{2D}}$, der von den Quantenpunkten schlechter aufgenommen werden kann (vgl. Kap. 5.2). Auch hier unterstützt der Vergleich mit den Tunnelraten die Annahme, dass es sich bei den beobachteten Prozessen tatsächlich um das Tunneln in die Quantenpunkte handelt,

das Abb. 6.12 also eine spektrale Überlagerung von 100 Quantenpunkten darstellt.

Abschließend zeigen die Ergebnisse, dass sich die Leitfähigkeitsmessung eines 2DEGs zur Detektion weniger Quantenpunkte besser eignet, als kapazitive Methoden und die zeitaufgelöste Technik darüber hinaus eine bessere Zuordnung der Zustände bei verringerten Ensemblegrößen ermöglicht. Dass eine einfache Verringerung der Strukturgröße bereits bei mesoskopischen (μm) Skalen auf Schwierigkeiten stößt, ist möglicherweise eine Folge des Herstellungsverfahrens. Hier wären unter anderem Oberflächenpassivierung, alternative Ätzverfahren oder elektrische Mesadefinition durch zusätzliche Gatekontakte zu prüfen. Zudem zeigt sich in der hohen Auflösung der Messung mittels Lock-In-Technik (Abb. 6.9), dass die Empfindlichkeit der Leitfähigkeitsmessung auch für reduzierte Ensemblegrößen ausreicht. Dies lässt sich ausnutzen, um bei Proben mit geringerer Quantenpunktdichte die benötigte Strukturgröße für einzelne oder wenige Quantenpunkte zu erhöhen. Mit diesen Ansätzen sollte die Detektion an einzelnen Quantenpunkten auch zeitaufgelöst möglich sein.

Kapitel 7

Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurde die Methode der zeitaufgelösten Leitfähigkeitsspektroskopie [Marquardt09, Marquardt11b], zur Untersuchung der Tunnelkopplung zwischen selbstorganisierten Quantenpunkten und einem zweidimensionalen Elektronengas angewandt. Über eine einfache Gateelektrode lässt sich dabei sowohl die Ladungsträgerdichte und damit die Leitfähigkeit im 2DEG als auch der Beladungszustand der Quantenpunkte einstellen. Als Floating-Gate verringern die geladenen Quantenpunkte wiederum die Ladungsträgerdichte im 2DEG. Die zeitaufgelöste Technik nutzt die schwache Tunnelkopplung zwischen Quantenpunkten und 2DEG, die das Laden der Quantenpunkte gegenüber dem Laden des 2DEGs deutlich verlängert. Durch einen Sprung in der Gatespannung lässt sich damit ein Nicht-Gleichgewicht erzeugen, bei dem das 2DEG bereits den Ladevorgang abgeschlossen, aber noch kein Tunneln in die Quantenpunkte stattgefunden hat. Der Tunnelstrom in die Quantenpunkte (oder wieder heraus) kann dann in der Zeitdomäne an der Leitfähigkeit des 2DEGs gemessen werden. Eine geeignete Abfolge von Gatespannungen macht es damit möglich, gezielt von einem Ausgangszustand der Quantenpunktbesetzung in einen Endzustand zu wechseln. Über die Zeitinformation erhält man damit direkten Zugriff auf die Dynamik dieses Übergangs. Andererseits lässt sich dadurch auch die Charakteristik des 2DEGs mit und ohne Ladung in den Quantenpunkten untersuchen. Die Methode bietet eine Vielzahl neuer experimenteller Möglichkeiten, von denen einige in dieser Arbeit untersucht wurden.

Streuung

Aus dem Vergleich der Transportparameter des 2DEGs, mit und ohne Ladung in den Quantenpunkten, konnte gezeigt werden, dass die Ladung in den Quantenpunkten bei der untersuchten Probe tatsächlich nur über den Abschirmungseffekt, analog zu einem Floating-Gate, auf die Ladungsträger des 2DEGs wirkt. In einer zeitaufgelösten Hall-Messung konnte die Beweglichkeitsänderung, die bei einem Wechsel der Ladungsträgerdichte im 2DEG auftritt, auf die charakteristische Beziehung aus Beweglichkeit und Ladungsträgerdichte im 2DEG zurückgeführt werden. Der Einfluss von Coulomb-Streuung auf die Hall-Beweglichkeit im 2DEG ist dabei zu vernachlässigen. Eine weiterführende Untersuchung der Beweglichkeit wäre vor allem unter dem Gesichtspunkt zweier Fragestellungen interessant: 1. Wie wirken die Impulskomponenten der Wellenfunktionen im Quantenpunkt in der Ebene des 2DEGs auf dessen Streuwahrscheinlichkeit? 2. Welche Rolle spielt der Spinzustand der Quantenpunkte, bzw. lässt sich eine

Kopplung der Spins im 2DEG an einen Nettospin in den Quantenpunkten nachweisen (Lokalisierung oder Kondo-Effekt)?

Für beide Punkte wären Proben mit einem geringeren Abstand zwischen Quantenpunkten und 2DEG und einem größeren Abstand zur Dotierung geeignet. Für die erste Fragestellung ließe sich neben der klassischen Hall-Messung aber auch eine Quanten-Hall-Messung durchführen. Aus dieser lässt sich die Quantenstreuzeit [Harrang85] ableiten, die im Gegensatz zur klassischen Streuzeit auch auf kleine Streuwinkel empfindlich ist. Um korrelierte Quantenpunkt- und 2DEG-Zustände zu beobachten sind jedoch wesentlich stärkere Tunnelkopplungen als bei den hier untersuchten Proben nötig. Da diese stark gekoppelten Systeme wesentlich kürzere Tunnelzeiten aufweisen, kann die zeitaufgelöste Technik hier an ihre Grenzen stoßen. In diesem Fall müsste auf statischem Wege die Ladungsträgerdichte im 2DEG getrennt von der Besetzung der Quantenpunkte eingestellt werden. Dies kann beispielsweise durch Beleuchtung [Ruf06a] oder besser durch eine zusätzliche Gateelektrode geschehen [Zhukov03], da im letzteren Fall keine DX-Zentren als zusätzliche Streuer aktiviert werden.

Angeregte Zustände

Es wurde die spektrale Evolution beim Beladen der Quantenpunkte in angeregte Ein- bzw. Zweiteilchen-Zustände untersucht (Quantenpunkt-Wasserstoff und -Helium). Eine Untersuchung der Dynamik beim Ladevorgang ermöglichte eine erste Einordnung in Anregungs- und Grundzustände, wobei die angeregten Zustände durch einen schnellen Anstieg, gefolgt von einem Abklingen ausgezeichnet sind. Das Abklingen kann jedoch nur unter der Voraussetzung beobachtet werden, dass kein Grundzustand bei gleicher Spannung im Gleichgewichtsspektrum liegt. Durch die Emissionsspektroskopie ließen sich jedoch eindeutig die Anregungen von Quantenpunkt-Wasserstoff und -Helium aus dem spektralen Gemisch der Vielteilchen-Zustände herausfiltern.

Hierbei sind insbesondere die Helium-Zustände von großem Interesse, die ein Spin-Triplett bilden, da diese Anregungen zunächst die Spin-Umkehr eines Elektrons erfordern, bevor ein Relaxationsprozess möglich ist. Ist die Lebensdauer dieses Triplett-Zustandes länger als die Tunnelzeit in die Quantenpunkte, ließe sich seine Lebensdauer mithilfe der zeitaufgelösten Messmethode bestimmen.¹ In der Emission sollte der angeregte Triplett-Zustand schneller Tunneln als der Grundzustand. Zum einen liegt er energetisch über dem Grundzustand und muss damit eine geringere Tunnelbarriere überwinden, zum anderen ist seine Wellenfunktion im k -Raum, parallel zum 2DEG weniger stark lokalisiert, was besser zu den unbesetzten 2DEG-Zuständen passt. Hierdurch würde man nach einer genügend kurzen Ladezeit in den Triplett-Zustand einen Anstieg der Emissionsrate erwarten, wenn der Triplett-Zustand noch keine Gelegenheit hatte zu relaxieren. Die schnellen Emissionsprozesse müssten dann eine quantitative Bestimmung der nicht-relaxierten Triplett-Zustände erlauben. Als weitere Möglichkeit lässt sich das Laden des 3-Elektronen-Zustands betrachten. In einem sequentiellen Ladevorgang kann dieser erst nach der Relaxation des Triplett-Zustands besetzt werden, was sich in der spektralen Evolution bemerkbar machen sollte, wie in Abschnitt 4.2.1 beschrieben.

¹Denkbar (allerdings aufwendiger) wäre auch eine Detektion von Photonen (ca. 50 meV) durch den Relaxationsvorgang nach der Erzeugung des Triplett-Zustandes.

Coulomb-Wechselwirkung

Es wurde gezeigt, dass die Tunnelraten der Vielteilchen-Grundzustände, selbst im resonanten Fall, eine Richtungsabhängigkeit zeigen, dass also Lade- und Entladevorgang unterschiedlich schnell stattfinden. Verantwortlich dafür ist die Aufhebung der Entartung der Grundzustände durch die Coulomb-Wechselwirkung, die eine mehrfache Besetzung der unterschiedlich entarteten Vielteilchen-Zustände blockiert. Durch die zeitaufgelöste Technik war es möglich, das Verhältnis dieser Vielteilchen-Entartungen direkt abzubilden. Dabei konnte zum ersten Mal, ohne zusätzliche Magnetfelder, eine Elongation im Potential der Quantenpunkte nachgewiesen werden, was sich in einer Aufhebung der Entartung innerhalb der p -Schale zeigt.

Durch eine Variation des Spannungssprungs oder der Temperatur, kann nun in folgenden Messungen versucht werden, die Energiedifferenz zu quantifizieren, die zu der Aufspaltung der p -Schale führt. Die Untersuchung solcher asymmetrischer Quantenpunkte, bei denen der Bahndrehimpuls keine „gute“ Quantenzahl darstellt, ist unter Umständen sehr interessant, da der Spin-Bahn-Kopplung eine dominante Rolle bei Spin-Relaxationsprozessen zukommt [Woods02, Kroutvar04].

Impulserhaltung

Mit Hilfe des Magnetotunnels wurde die lokale Anisotropie der Wellenfunktion der Quantenpunkte ausgemessen. Dabei wurde gezeigt, dass die Impulszustände an der Fermi-Kante des 2DEGs nur schlecht von den im Impulsraum lokalisierten Grundzuständen der Quantenpunkte aufgenommen werden können. Dies kann ebenfalls ein Grund für die höheren Tunnelraten bei den weniger stark lokalisierten, angeregten Quantenpunktzuständen sein. Experimentell ließe sich dies durch eine Messung der Anregungszustände für verschiedene Ladungsträgerdichten im 2DEG überprüfen (z.B. durch Beleuchtung). In weiteren Experimenten wäre auch denkbar, die Dispersion des 2DEGs durch die Emission eines Elektrons aus dem s -artigen Grundzustand der Quantenpunkte auszutasten.

Zeitauflösung

Mit einem Operationsschema für Speicheranwendungen wurde gezeigt, dass der hier betrachtete Aufbau in der Lage ist, einen Ladungszustand der Quantenpunkte über das 2DEG innerhalb von 3 ns auszulesen und 9 ns benötigt für eine Schreiboperation. Für eine denkbare Anwendung als Ladungsspeicher sind damit die Grundvoraussetzungen konkurrenzfähiger Schaltgeschwindigkeiten erfüllt. Aber Lesezeiten sind ebenso von fundamentalem Interesse, da Relaxationsprozesse angeregter Zustände auf sehr kurzen Zeitskalen zu erwarten sind. Selbst die durch Spin-Umkehrprozesse als langsam erwarteten Triplett-Relaxationen sind hier schnell gegen die Tunnelzeiten. Gleichzeitig würde ihre Detektion oder sogar Manipulation mit einem geeigneten elektrischen Pulsschema aber eine Vielzahl neuer Möglichkeiten eröffnen. Der erste Schritt, zu zeigen, dass das 2DEG prinzipiell in der Lage ist, diese schnellen Prozesse zu detektieren wurde hier getan. Im Folgenden können nun Proben mit schnelleren Tunnelzeiten gezielt auf Relaxationsprozesse untersucht werden. Für das Anwendungskonzept als Speicherzelle ist besonders die Analogie zum Flash-Speicher interessant, der in der Lage ist, Informationen nicht-flüchtig zu speichern, diese aber dennoch schnell abrufen kann. Hier sind vor

allem Quantenpunkte auf GaSb-Basis von Interesse, deren tiefer Einschluss, Anwendungen bei Raumtemperatur verspricht. Dass auch mit einer AlGaAs-Tunnelbarriere schnelle Schreibzeiten möglich sind wurde hier demonstriert, jedoch besteht ein ähnliches Problem wie beim Flash-Speicher, beim anschließenden Löschen der Information durch Elektronenemission aus den Quantenpunkten. Hier sind resonante Tunnelbarrieren denkbar, mit abwechselnden Schichten aus AlGaAs und InGaAs, in analogem Aufbau zum Quantenkaskadenlaser [Kazarinov71, Faist94]. Ein einzelnes Niveau in einem InGaAs-Topf, umgeben von zwei AlGaAs-Schichten, ließe sich zum schnellen Laden der Quantenpunkte in Resonanz mit dem 2DEG bringen, zum schnellen Entladen in Resonanz mit den Zuständen im Quantenpunkt. Außerhalb der Resonanzen wären dann dennoch lange Speicherzeiten möglich.

Skalierung

Es wurde gezeigt, dass das 2DEG nicht nur schnelle Leseoperationen ermöglicht, sondern auch sensibel genug ist, um Subensembles innerhalb einer Größenordnung von 100 Quantenpunkten zu detektieren. Hier müssen vor allem neue Herstellungsverfahren erprobt werden, da die Defektzustände bei der nasschemischen Prozessierung bei kleinen Strukturen zu dominanten Beeinträchtigungen führen. Wichtig scheint hier vor allem die Passivierung von Oberflächenzuständen. Beim Ätzen von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ können zudem Aluminiumoxide die Leistung der Strukturen beeinträchtigen, weswegen auch eine elektrostatische Definition in Frage kommt. Schließlich ist auch eine Verringerung der Quantenpunktdichte ein denkbarer Ansatz, um das 2DEG nicht zu stark einschränken zu müssen.

Literaturverzeichnis

- [Alsmeier90] Alsmeier, J., Batke, E. und Kotthaus, J. P., *Voltage-tunable quantum dots on silicon*, Physical Review B **41**, 1699 (1990).
- [Balocco04] Balocco, C., Song, A. M. und Missous, M., *Room-temperature operations of memory devices based on self-assembled InAs quantum dot structures*, Applied Physics Letters **85**, 5911 (2004).
- [Beckel12] Beckel, A., Zhou, D. M., Marquardt, B. et al., *Momentum matching in the tunneling between 2-dimensional and 0-dimensional electron systems*, Applied Physics Letters **100**, 232110 (2012).
- [Beckel14a] Beckel, A., Kurzmann, A., Geller, M. et al., *Asymmetry of charge relaxation times in quantum dots: The influence of degeneracy*, EPL (Europhysics Letters) **106**, 47002 (2014).
- [Beckel14b] Beckel, A., Ludwig, A., Wieck, A. D. et al., *Time-resolved transconductance spectroscopy on self-assembled quantum dots: Spectral evolution from single- into many-particle states*, Physical Review B **89**, 155430 (2014), zum Vergleich mit numerischen Rechnungen wurde hier der Hebelarm $\lambda = 6$ gewählt.
- [Beenakker91] Beenakker, C. W. J., *Theory of Coulomb-blockade Oscillations In the Conductance of A Quantum Dot*, Physical Review B **44**, 1646 (1991).
- [Bester07] Bester, G., Reuter, D., He, L. et al., *Experimental imaging and atomistic modeling of electron and hole quasiparticle wave functions in InAs/GaAs quantum dots*, Physical Review B **76**, 075338 (2007).
- [Beton95] Beton, P. H., Wang, J., Mori, N. et al., *Measuring the probability density of quantum confined states*, Physical Review Letters **75**, 1996 (1995).
- [Bimberg97] Bimberg, D., Kirstaedter, N., Ledentsov, N. et al., *InGaAs-GaAs quantum-dot lasers*, Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of DOI - 10.1109/2944.605656 **3**, 196 (1997).
- [Bimberg98] Bimberg, D., Grundmann, M. und Ledentsov, N., *Quantum Dot Heterostructures*, Wiley, New York (1998).

- [Blossey02] Blossey, R. und Lorke, A., *Wetting droplet instability and quantum ring formation*, Physical Review E **65**, 021603 (2002).
- [Cho75] Cho, A. und Arthur, J., *Molecular beam epitaxy*, Progress in Solid State Chemistry **10, Part 3**, 157 (1975).
- [Chuang02] Chuang, S. L. und Holonyak, N., *Efficient quantum well to quantum dot tunneling: Analytical solutions*, Applied Physics Letters **80**, 1270 (2002).
- [Cockins10] Cockins, L., Miyahara, Y., Bennett, S. D. et al., *Energy levels of few-electron quantum dots imaged and characterized by atomic force microscopy*, Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America **107**, 9496 (2010).
- [Cui13] Cui, K., Ma, W., Zhang, Y. et al., *540-meV hole activation energy for GaSb/GaAs quantum dot memory structure using AlGaAs barrier*, Electron Device Letters, IEEE **34**, 759 (2013).
- [Curtice84] Curtice, W. und Camisa, R., *Self-consistent GaAs fet models for amplifier design and device diagnostics*, IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques **32**, 1573 (1984).
- [Davies98] Davies, J. H., *The physics of low-dimensional semiconductors: an introduction*, Cambridge University Press (1998).
- [delAlamo11] del Alamo, J. A., *Nanometre-scale electronics with III-V compound semiconductors*, Nature **479**, 317 (2011).
- [Dingle78] Dingle, R., Stormer, H. L., Gossard, A. C. et al., *Electron mobilities in modulation-doped semiconductor heterojunction superlattices*, Applied Physics Letters **33**, 665 (1978).
- [Dirac27] Dirac, P., *The Quantum Theory of Emission and Absorption of Radiation*, Proc. Roy. Soc. London A **114**, 243 (1927).
- [DiVincenzo05] DiVincenzo, D. P., *Double quantum dot as a quantum bit*, Science **309**, 2173 (2005).
- [dosSantos11] dos Santos, E. C., Gobato, Y. G., Brasil, M. J. S. P. et al., *Spin effects in InAs self-assembled quantum dots*, Nanoscale Research Letters **6**, 115 (2011).
- [Drexler94] Drexler, H., Leonard, D., Hansen, W. et al., *Spectroscopy of quantum levels in charge-tunable InGaAs quantum dots*, Physical Review Letters **73**, 2252 (1994).
- [Eisele08] Eisele, H., Lenz, A., Heitz, R. et al., *Change of InAs/GaAs quantum dot shape and composition during capping*, Journal of Applied Physics **104**, 124301 (2008).

- [Eisenstein91] Eisenstein, J. P., Gramila, T. J., Pfeiffer, L. N. et al., *Probing a two-dimensional Fermi surface by tunneling*, Physical Review B **44**, 6511 (1991).
- [Elzerman04a] Elzerman, J. M., Hanson, R., van Beveren, L. H. W. et al., *Excited-state spectroscopy on a nearly closed quantum dot via charge detection*, Applied Physics Letters **84**, 4617 (2004).
- [Elzerman04b] Elzerman, J. M., Hanson, R., van Beveren, L. H. W. et al., *Single-shot read-out of an individual electron spin in a quantum dot*, Nature **430**, 431 (2004).
- [Esaki70] Esaki, L. und Tsu, R., *Superlattice and negative differential conductivity in semiconductors*, IBM Journal of Research and Development **14**, 61 (1970).
- [Faist94] Faist, J., Capasso, F., Sivco, D. L. et al., *Quantum Cascade Laser*, Science **264**, 553 (1994).
- [Fermi50] Fermi, E., *Nuclear Physics*, University of Chicago Press (1950).
- [Fève07] Fève, G., Mahé, A., Berroir, J.-M. et al., *An on-demand coherent single-electron source*, Science **316**, 1169 (2007).
- [Foreman95] Foreman, B. A., *Exact effective-mass theory for heterostructures*, Physical Review B **52**, 12241 (1995).
- [Frank02] Frank, D. J., *Power-constrained CMOS scaling limits*, IBM Journal of Research and Development **46**, 235 (2002).
- [Fricke96] Fricke, M., Lorke, A., Kotthaus, J. P. et al., *Shell structure and electron-electron interaction in self-assembled InAs quantum dots*, Europhysics Letters **36**, 197 (1996).
- [Geller08] Geller, M., Marent, A., Nowozin, T. et al., *A write time of 6 ns for quantum dot-based memory structures*, Applied Physics Letters **92**, 092108 (2008).
- [Giddings11] Giddings, A. D., Keizer, J. G., Hara, M. et al., *Composition profiling of InAs quantum dots and wetting layers by atom probe tomography and cross-sectional scanning tunneling microscopy*, Physical Review B **83**, 205308 (2011).
- [Granger12] Granger, G., Taubert, D., Young, C. E. et al., *Quantum interference and phonon-mediated back-action in lateral quantum-dot circuits*, Nature Physics **8**, 522 (2012).
- [Hanson08] Hanson, R. und Awschalom, D. D., *Coherent manipulation of single spins in semiconductors*, Nature **453**, 1043 (2008).

- [Harrang85] Harrang, J. P., Higgins, R. J., Goodall, R. K. et al., *Quantum and classical mobility determination of the dominant scattering mechanism in the two-dimensional electron gas of an AlGaAs/GaAs heterojunction*, Physical Review B **32**, 8126 (1985).
- [Hawrylak93] Hawrylak, P. und Pfannkuche, D., *Magnetoluminescence from correlated electrons in quantum dots*, Physical Review Letters **70**, 485 (1993).
- [Heiblum85] Heiblum, M., *Doping effects in AlGaAs*, Journal of Vacuum Science & Technology B **3**, 820 (1985).
- [Hirakawa86] Hirakawa, K. und Sakaki, H., *Mobility of the two-dimensional electron gas at selectively doped n-type $Al_xGa_{1-x}As$ /GaAs heterojunctions with controlled electron concentrations*, Physical Review B **33**, 8291 (1986).
- [Hwang08] Hwang, E. H. und Das Sarma, S., *Limit to two-dimensional mobility in modulation-doped GaAs quantum structures: How to achieve a mobility of 100 million*, Physical Review B **77**, 235437 (2008).
- [Ibach09] Ibach, H. und Lüth, H., *Festkörperphysik - Einführung in die Grundlagen*, Springer Berlin Heidelberg, 7 Auflage (2009).
- [Igarashi07] Igarashi, Y., Jung, M., Yamamoto, M. et al., *The Kondo resonance in a single InAs quantum dot probed by nanogap electrodes*, Journal of Physics: Conference Series **61**, 463 (2007).
- [Kanai10] Kanai, Y., Deacon, R. S., Oiwa, A. et al., *Electrical control of Kondo effect and superconducting transport in a side-gated InAs quantum dot Josephson junction*, Physical Review B **82**, 054512 (2010).
- [Kastner93] Kastner, M. A., *Artificial atoms*, Physics Today **46**, 24 (1993).
- [Kazarinov71] Kazarinov, R. und Suris, R., *Possibility of amplification of electromagnetic waves in a semiconductor with a superlattice*, Sov. Phys. Semicond. **5**, 707 (1971).
- [Kim10] Kim, T.-W., Kim, D.-H. und del Alamo, J., *60 nm self-aligned-gate InGaAs HEMTs with record high-frequency characteristics*, in *Electron Devices Meeting (IEDM), 2010 IEEE International*, Seiten 30.7.1–30.7.4 (2010).
- [King13] King, S. W., Simka, H., Herr, D. et al., *Research Updates: The three M's (materials, metrology, and modeling) together pave the path to future nanoelectronic technologies*, APL Materials **1**, 040701 (2013).

- [Kirstaedter94] Kirstaedter, N., Ledentsov, N., Grundmann, M. et al., *Low threshold, large TO injection laser emission from (InGa)As quantum dots*, Electronics Letters **30**, 1416 (1994).
- [Kittel02] Kittel, C., *Einführung in die Festkörperphysik*, Oldenbourg Verlag München Wien (2002).
- [Kleemans10] Kleemans, N. A. J. M., van Bree, J., Govorov, A. O. et al., *Many-body exciton states in self-assembled quantum dots coupled to a Fermi sea*, Nat. Phys. **6**, 534 (2010).
- [Koenraad11] Koenraad, P. M. und Flatte, M. E., *Single dopants in semiconductors*, Nat Mater **10**, 91 (2011).
- [Könemann06] Könemann, J., Kubala, B., König, J. et al., *Tunneling resonances in quantum dots: Coulomb interaction modifies the width*, Physical Review B **73**, 033313 (2006).
- [Krastanow38] Krastanow, L. und Stranski, I. N., *Short notifications and notes. On the crystallisation of alkali halogenide crystals on fluorite.*, Zeitschrift für Physik Kristallographie **99**, 444 (1938).
- [Kroutvar04] Kroutvar, M., Ducommun, Y., Heiss, D. et al., *Optically programmable electron spin memory using semiconductor quantum dots*, Nature **432**, 81 (2004).
- [Kurzmann12] Kurzmann, A., *Transportspektroskopie an Halbleiter-Quantenstrukturen*, Diplomarbeit, Universität Duisburg-Essen (2012).
- [Labud14] Labud, A., P. Ludwig, A., Wieck, D., A. et al., *Direct Quantitative Electrical Measurement of Many-Body Interactions in Exciton Complexes in InAs Quantum Dots*, Physical Review Letters **112**, 046803 (2014).
- [Ladd10] Ladd, T. D., Jelezko, F., Laflamme, R. et al., *Quantum computers*, Nature **464**, 45 (2010).
- [Lambe69] Lambe, J. und Jaklevic, R. C., *Charge-quantization studies using a tunnel capacitor*, Physical Review Letters **22**, 1371 (1969).
- [Ledentsov96] Ledentsov, N. N., Grundmann, M., Kirstaedter, N. et al., *Ordered arrays of quantum dots: Formation, electronic spectra, relaxation phenomena, lasing*, Solid-State Electronics **40**, 785 (1996).
- [Lei10] Lei, W., Notthoff, C., Peng, J. et al., *“Artificial Atoms” in Magnetic Fields: Wave-Function Shaping and Phase-Sensitive Tunneling*, Physical Review Letters **105**, 176804 (2010).
- [Leonard94] Leonard, D., Pond, K. und Petroff, P. M., *Critical layer thickness for self-assembled InAs islands on GaAs*, Physical Review B **50**, 11687 (1994).

- [Lin94] Lin, X. W., Washburn, J., Lilientalweber, Z. et al., *Morphological transition of InAs Islands on GaAs(001) upon deposition of a GaAs capping layer*, Applied Physics Letters **65**, 1677 (1994).
- [Lorke02] Lorke, A., Blossey, R., Garcia, J. M. et al., *Morphological transformation of $In_yGa_{1-y}As$ islands, fabricated by Stranski-Krastanov growth*, Materials Science and Engineering B-solid State Materials For Advanced Technology **88**, 225 (2002).
- [Loss98] Loss, D. und DiVincenzo, D. P., *Quantum computation with quantum dots*, Physical Review A **57**, 120 (1998).
- [Luryi88] Luryi, S., *Quantum capacitance devices*, Applied Physics Letters **52**, 501 (1988).
- [Marent07] Marent, A., Geller, M., Schliwa, A. et al., *10^6 years extrapolated hole storage time in GaSb/AlAs quantum dots*, Applied Physics Letters **91**, 242109 (2007).
- [Marent11] Marent, A., Nowozin, T., Geller, M. et al., *The QD-Flash: a quantum dot-based memory device*, Semiconductor Science and Technology **26**, 014026 (2011).
- [Marquardt09] Marquardt, B., Geller, M., Lorke, A. et al., *Using a two-dimensional electron gas to study nonequilibrium tunneling dynamics and charge storage in self-assembled quantum dots*, Applied Physics Letters **95**, 022113 (2009).
- [Marquardt11a] Marquardt, B., Beckel, A., Lorke, A. et al., *The influence of charged InAs quantum dots on the conductance of a two-dimensional electron gas: Mobility vs. carrier concentration*, Applied Physics Letters **99**, 223510 (2011).
- [Marquardt11b] Marquardt, B., Geller, M., Baxevanis, B. et al., *Transport spectroscopy of non-equilibrium many-particle spin states in self-assembled quantum dots*, Nature Communications **2**, 209 (2011).
- [Marquez01] Marquez, J., Geelhaar, L. und Jacobi, K., *Atomically resolved structure of InAs quantum dots*, Applied Physics Letters **78**, 2309 (2001).
- [Medeiros-Ribeiro95] Medeiros-Ribeiro, G., Leonard, D. und Petroff, P. M., *Electron and hole energy levels in InAs self-assembled quantum dots*, Applied Physics Letters **66**, 1767 (1995).
- [Merkt91] Merkt, U., Huser, J. und Wagner, M., *Energy-spectra of 2 electrons in a harmonic quantum dot*, Physical Review B **43**, 7320 (1991).
- [Miller97] Miller, B. T., Hansen, W., Manus, S. et al., *Few-electron ground states of charge-tunable self-assembled quantum dots*, Physical Review B **56**, 6764 (1997).

- [Minasian77] Minasian, R., *Simplified GaAs m.e.s.f.e.t. model to 10 GHz*, Electronics Letters **13**, 549 (1977).
- [Moison94] Moison, J. M., Houzay, F., Barthe, F. et al., *Self-organized growth of regular nanometer-scale InAs dots on GaAs*, Applied Physics Letters **64**, 196 (1994).
- [Moore65] Moore, G. E., *Cramming more components onto integrated circuits*, Electronics **38**, 114 (1965).
- [Muller08] Muller, C. R., Worschech, L., Heinrich, J. et al., *Room temperature memory operation of a single InAs quantum dot layer in a GaAs/AlGaAs heterostructure*, Applied Physics Letters **93**, 063502 (2008).
- [Nataraj05] Nataraj, D., Ooike, N., Motohisa, J. et al., *Fabrication of one-dimensional GaAs channel-coupled InAs quantum dot memory device by selective-area metal-organic vapor phase epitaxy*, Applied Physics Letters **87**, 193103 (2005).
- [Nowozin13] Nowozin, T., Bonato, L., Högner, A. et al., *800 meV localization energy in GaSb/GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As quantum dots*, Applied Physics Letters **102**, 052115 (2013).
- [Nowozin14] Nowozin, T., Beckel, A., Bimberg, D. et al., *3 ns single-shot read-out in a quantum dot-based memory structure*, Applied Physics Letters **104**, 053111 (2014).
- [Ohno91] Ohno, T., *Sulfur passivation of GaAs surfaces*, Physical Review B **44**, 6306 (1991).
- [Ohtsuka98] Ohtsuka, K., Takaoka, S., Oto, K. et al., *Distortion of Fermi surface induced by parallel magnetic field in a two-dimensional electron gas*, Physica B: Condensed Matter **249–251**, 780 (1998).
- [Patanè02] Patanè, A., Hill, R. J. A., Eaves, L. et al., *Probing the quantum states of self-assembled InAs dots by magnetotunneling spectroscopy*, Physical Review B **65**, 165308 (2002).
- [Pehlke96] Pehlke, E., Moll, N. und Scheffler, M., *The Equilibrium Shape of InAs Quantum Dots Grown on a GaAs(001) Substrate*, in *Proceedings of the 23rd International Conference on the Physics of Semiconductors*, Seite 1301 (1996).
- [Pfannkuche93] Pfannkuche, D., Gerhardts, R. R., Maksym, P. A. et al., *Theory of quantum-dot helium*, Physica B **189**, 6 (1993).
- [Pfeiffer91] Pfeiffer, L., Schubert, E. F., West, K. W. et al., *Si dopant migration and the AlGaAs/GaAs inverted interface*, Applied Physics Letters **58**, 2258 (1991).

- [Reuter04] Reuter, D., Schafmeister, P., Kailuweit, P. et al., *Frequency-dependent $C(V)$ spectroscopy of the hole system in InAs quantum dots*, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures **21**, 445 (2004), proceedings of the Eleventh International Conference on Modulated Semiconductor Structures.
- [Rontani11] Rontani, M., *Artificial atoms: Shape the wave*, Nature Materials **10**, 173 (2011).
- [Ruß06a] Ruß, *Wechselwirkung von selbstorganisierten Quantenpunkten mit zweidimensionalen Elektronengasen*, Dissertation, Universität Duisburg-Essen (2006).
- [Ruß06b] Ruß, M., Meier, C., Lorke, A. et al., *Role of quantum capacitance in coupled low-dimensional electron systems*, Physical Review B **73**, 115334 (2006).
- [Ruß06c] Ruß, M., Meier, C., Marquardt, B. et al., *Quantum dot electrons as controllable scattering centers in the vicinity of a two-dimensional electron gas*, Phase Transitions: A Multinational Journal **79**, 765 (2006).
- [Sadeghzadeh12] Sadeghzadeh, M. A. und Azizi, S. M., *Interfacial Al segregation limiting electron mobility at the inverted interface of AlGaAs/GaAs quantum well*, Semiconductor Science and Technology **27**, 105009 (2012).
- [Sakaki95] Sakaki, H., Yusa, G., Someya, T. et al., *Transport properties of two-dimensional electron gas in AlGaAs/GaAs selectively doped heterojunctions with embedded InAs quantum dots*, Applied Physics Letters **67**, 3444 (1995).
- [Sandroff87] Sandroff, C. J., Nottenburg, R. N., Bischoff, J.-C. et al., *Dramatic enhancement in the gain of a GaAs/AlGaAs heterostructure bipolar transistor by surface chemical passivation*, Applied Physics Letters **51**, 33 (1987).
- [Savitzky64] Savitzky, A. und Golay, M. J. E., *Smoothing and Differentiation of Data by Simplified Least Squares Procedures*, Analytical Chemistry **36**, 1627 (1964).
- [Scarrozza09] Scarrozza, M., Pourtois, G., Houssa, M. et al., *A theoretical study of the initial oxidation of the GaAs(001)- β 2(2×4) surface*, Applied Physics Letters **95**, 253504 (2009).
- [Shibata08] Shibata, K. und Hirakawa, K., *High Kondo temperature ($T_K \sim 80$ K) in self-assembled InAs quantum dots laterally coupled to nanogap electrodes*, Applied Physics Letters **93**, 062101 (2008).
- [Shockley48] Shockley, W. und Pearson, G. L., *Modulation of conductance of thin films of semi-conductors by surface charges*, Physical Review **74**, 232 (1948).

- [Shor97] Shor, P., *Polynomial-Time Algorithms for Prime Factorization and Discrete Logarithms on a Quantum Computer*, SIAM Journal on Computing **26**, 1484 (1997).
- [Sikorski89] Sikorski, C. und Merkt, U., *Spectroscopy of electronic states in InSb quantum dots*, Physical Review Letters **62**, 2164 (1989).
- [Simmons11] Simmons, C. B., Prance, J. R., Van Bael, B. J. et al., *Tunable Spin Loading and T_1 of a Silicon Spin Qubit Measured by Single-Shot Readout*, Physical Review Letters **106**, 156804 (2011).
- [Singiseti08] Singiseti, U., Wistey, M. A., Zimmerman, J. D. et al., *Ultra-low resistance in situ Ohmic contacts to InGaAs/InP*, Applied Physics Letters **93**, 183502 (2008).
- [Smoliner89] Smoliner, J., Demmerle, W., Berthold, G. et al., *Momentum conservation in tunneling processes between barrier-separated 2D-electron-gas systems*, Physical Review Letters **63**, 2116 (1989).
- [Smrcka94] Smrcka, L. und Jungwirth, T., *In-plane magnetic-field-induced anisotropy of 2D Fermi contours and the field-dependent cyclotron mass*, Journal of Physics: Condensed Matter **6**, 55 (1994).
- [Spicer80] Spicer, W. E., Lindau, I., Skeath, P. et al., *Unified defect model and beyond*, Journal of Vacuum Science & Technology **17**, 1019 (1980).
- [Stoleru02] Stoleru, V.-G., Pal, D. und Towe, E., *Self-assembled (In,Ga)As/GaAs quantum-dot nanostructures: Strain distribution and electronic structure*, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures **15**, 131 (2002).
- [Tarucha96] Tarucha, S., Austing, D. G., Honda, T. et al., *Shell filling and spin effects in a few electron quantum dot*, Physical Review Letters **77**, 3613 (1996).
- [Vdovin00] Vdovin, E. E., Levin, A., Patané, A. et al., *Imaging the Electron Wave Function in Self-Assembled Quantum Dots*, Science **290**, 122 (2000).
- [Vdovin07] Vdovin, E. E., Khanin, Y. N., Makarovskiy, O. et al., *Magneto-anisotropy of electron-correlation-enhanced tunneling through a quantum dot*, Physical Review B **75**, 115315 (2007).
- [Wang10] Wang, W., Lee, G., Huang, M. et al., *First-principles study of GaAs(001)- $\beta_2(2 \times 4)$ surface oxidation and passivation with H, Cl, S, F, and GaO*, Journal of Applied Physics **107**, 103720 (2010).
- [Warburton98] Warburton, R. J., Miller, B. T., Dürr, C. S. et al., *Coulomb interactions in small charge-tunable quantum dots: A simple model*, Physical Review B **58**, 16221 (1998).

- [Warburton13] Warburton, R. J., *Single spins in self-assembled quantum dots*, Nature Materials **12**, 483 (2013).
- [Wibbelhoff05] Wibbelhoff, O. S., Lorke, A., Reuter, D. et al., *Magnetocapacitance probing of the many-particle states in InAs dots*, Applied Physics Letters **86**, 092104 (2005).
- [Wibbelhoff06] Wibbelhoff, O. S., Lorke, A., Reuter, D. et al., *Erratum: "Magnetocapacitance probing of the many-particle states in InAs dots" [Appl. Phys. Lett. 86, 092104 (2005)]*, Applied Physics Letters **88**, 129901 (2006).
- [Wisotzki12] Wisotzki, S., *Transportmessungen an niedrigdimensionalen Lochsystemen*, Diplomarbeit, Universität Duisburg-Essen (2012).
- [Wojs96] Wojs, A., Hawrylak, P., Fafard, S. et al., *Electronic structure and magneto-optics of self-assembled quantum dots*, Physical Review B **54**, 5604 (1996).
- [Woods02] Woods, L. M., Reinecke, T. L. und Lyanda-Geller, Y., *Spin relaxation in quantum dots*, Physical Review B **66**, 161318 (2002).
- [Yakunin04] Yakunin, A. M., Silov, A. Y., Koenraad, P. M. et al., *Spatial Structure of an Individual Mn Acceptor in GaAs*, Physical Review Letters **92**, 216806 (2004).
- [Zhou] Zhou, D., *unveröffentlichte Arbeiten, übernommen mit freundlicher Genehmigung von Daming Zhou*.
- [Zhukov03] Zhukov, A., Weichsel, C., Beyer, S. et al., *Transport properties of a two-dimensional electron gas in the vicinity of quantum dots in the limit of strong disorder*, Physical Review B **67**, 125310 (2003).

Anhang A

Probendaten

Die in dieser Arbeit untersuchten Heterostrukturen wurden molekularstrahlepitaktisch an der Ruhr Universität Bochum (BO) am Lehrstuhl von Prof. Dr. A. D. Wieck (Kapitel 4, 5) sowie in Dortmund (DO) von Innolume¹ (Kapitel 6) hergestellt. Die nominell identischen Schichten finden sich in Tabelle A.1. Coulomb- und Quantisierungsenergien der untersuchten Proben sind in Tabelle A.2 zusammengefasst.

Oberfläche	
5 nm	GaAs
116 nm	AlAs/GaAs (3nm/1nm) Übergitter
30 nm	GaAs
	InAs Quantenpunkte
5 nm	GaAs
10 nm	Al _{0.34} Ga _{0.66} As
15 nm	GaAs
16 nm	Al _{0.34} Ga _{0.66} As
	Si- δ -Dotierung, $N_D = 3 \cdot 10^{12} \text{cm}^{-2}$
300 nm	Al _{0.34} Ga _{0.66} As
160 nm	AlAs/GaAs (2nm/2nm) Übergitter
200 nm	GaAs
GaAs Substrat	

Tabelle A.1: Nominelle Schichtfolge der untersuchten Wafer.

	BO (meV)	DO (meV)
Coulomb-Blockade E_C	21	31
Quantisierungsenergie $\hbar\omega$	45	56
mittlere Halbwertsbreite Δ_b	19	27

Tabelle A.2: Daten der Quantenpunkte zu den abgebildeten Proben aus den Abständen der Ladespannungen der Vielteilchen-Zustände (vgl. Kap. 2.3).

¹Innolume GmbH, Konrad-Adenauer-Allee 11, 44263 Dortmund, www.innolume.com

Danksagung

An aller erster Stelle möchte ich mich bei Prof. Dr. Axel Lorke für seine Betreuung und das Ermöglichen dieser Arbeit bedanken. Durch seine Unterstützung war es mir nicht nur möglich an diesem faszinierenden Thema zu arbeiten. Sein Rat und Beistand hat diese Arbeit maßgeblich gestaltet und war mir stets Perspektive und Motivation.

Für die Betreuung möchte ich mich auch bei Paul Geller bedanken, dessen offenes Wesen zu einer Vielzahl wertvoller Diskussionen beigetragen hat, die ebenso wesentlich für das Gelingen dieser Arbeit waren.

Innerhalb der Arbeitsgruppe möchte ich zunächst meinen Mitstreitern in Sachen Quantenpunkten danken. Insbesondere Daming Zhou für die Zusammenarbeit an den Experimenten zum Magnetotunneln und die Überlassung von Bildern und Messdaten, sowie bei Annika Kurzmann, aus deren Masterarbeit ich hier ebenfalls Daten verwenden durfte. Außerdem möchte ich Simon Wisotzki und Cynthia Pillich danken, deren Abschlussarbeiten mit wertvollen Erkenntnissen beim Erstellen dieser Arbeit beitrugen.

Bei Prof. Dr. Andreas D. Wieck und Arne Ludwig bedanke ich mich für die Herstellung und die Überlassung des Probenmaterials, das die Grundlage dieser Arbeit bildet. Abgesehen von den hier gezeigten Proben möchte ich mich ebenfalls bei allen bedanken, die mir im Verlauf meiner Arbeit Probenmaterial zur Verfügung gestellt haben, insbesondere bei Robert Young und Manus Hayne im Rahmen des Projekts QD2D, Prof. Dr. Henning Fouckhardt, Johannes Straßner und Johannes Richter im Rahmen des HOFUS-Projekts sowie bei Prof. Dr. Wolfgang Hansen.

Für viele gemeinsame Projekte und die immer gute und erfolgreiche Zusammenarbeit danke ich Prof. Dr. Dieter Bimberg und Tobias Nowozin.

Für die Unterstützung beim Verständnis der Dynamik der Vielteilchen-Zustände möchte ich Prof. Dr. Jürgen König danken. Für weitere Diskussionen die mir beim Verständnis der spektralen Dynamik geholfen haben danke ich Benjamin Baxevanis und Charles Guo.

Prof. Dr. Yohei Yamamoto und Kenichi Tabata möchte ich für das herzliche Willkommen während meines Aufenthaltes in Tsukuba danken sowie Prof. Dr. Abdelmajid Mesli während meiner Zeit in Marseille.

Nathalie Reckers danke ich u.a. für Ratschläge zur Elektronenstrahlolithografie und

Jürgen Krusenbaum für die Hilfe bei mechanischen Problemen und Werkstattaufträgen.

Nicht unmaßgeblich hat auch die angenehme Atmosphäre innerhalb der Arbeitsgruppe zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen. An dieser Stelle möchte ich mich daher auch für die nicht-physikalischen Diskussionen über das Leben, das Universum und den ganzen Rest bei der gesamten Gruppe bedanken, insbesondere bei Jens Theis, Daniel Braam und Mathias Bartsch.

Für die viele Unterstützung während meiner Arbeit möchte ich mich bei allen bedanken und bei denjenigen entschuldigen, deren Namen ich hier nicht nenne.

Zu guter Letzt möchte ich mich bei meiner Mutter Sofia bedanken, die mich während meiner gesamten Studienzzeit nach allen Kräften unterstützt hat.

Erklärung

Ich versichere, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig und nur mit den angegeben Hilfsmitteln verfasst habe, sowie alle wörtlich oder inhaltlich übernommenen Stellen als solche kenntlich gemacht habe.

Mit der Vorlage dieser Arbeit strebe ich den Grad eines Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.) an.

Ich habe weder diese noch eine andere Arbeit in einem weiteren Promotionsverfahren eingereicht.

Duisburg, den 4. Juli 2014