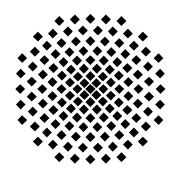
Ladungsträger-Relaxations- und Rekombinationsmechanismen in Halbleiterquantenpunkten

Diplomarbeit von **Mark Rossi**



4. Physikalisches Institut Universität Stuttgart

Dezember 2002

The most exciting phrase to hear in science, the one that heralds new discoveries, is not "Eureka!" (I found it!) but "**That's funny ...**"

— ISAAC ASIMOV

Inhaltsverzeichnis

1	\mathbf{Ein}	leitung	1
	1.1	Einzelne Quantenpunkte	2
	1.2	Überblick	2
2	The	eoretische Grundlagen: Quantenpunkte	5
	2.1	Selbstorganisiertes Wachstum	5
	2.2	Verspannung	6
		2.2.1 Einfluß auf die Bandstruktur	8
	2.3	Coulomb-Wechselwirkung	Ĝ
	2.4	Energieniveaus und Spektren	10
		2.4.1 Einzelne Quantenpunkte	11
		2.4.2 Quantenpunktensemble	12
	2.5		13
		2.5.1 Phononische Relaxation	13
		2.5.2 Pseudoimpuls	15
		2.5.3 Tiefe Störstellen	15
		2.5.4 Intrapunkt-Relaxation	16
		2.5.5 Auger-Relaxation	16
	2.6	Biexzitonen	17
	2.7	Lebensdauer von Exzitonen	18
	2.8	Ladungsträgerdynamik	19
3	Exp	perimentelles	25
	3.1	Die Probe	25
		3.1.1 Strukturierung	28
		3.1.2 Bimodale Größenverteilung	30
	3.2		31
		3.2.1 Dauerstrich-Messungen	32
		3.2.2 Zeitaufgelöste Messungen	34
4	Me	ssungen: Dauerstrich-Photolumineszenz	37
	4.1		37
	4.2	Mesagröße	38

ii	Inhaltsverzeichnis

	4.3 Leistungsserien			
5	Messungen: Zeitaufgelöste Photolumineszenz5.1 Variation der Leistung			
6	Ausblick			
7	Zusammenfassung			
A	Elektronische Struktur InP, Ga.50In.50P			
В	Zeitaufgelöste Spektroskopie: Daten			
\mathbf{St}	ichwortverzeichnis	93		
Li	teraturverzeichnis	97		
Da	anksagung 1	101		

Veröffentlichungen

- "Atomlithographie" Hauptseminar SS2000 "Ultrakalte Atome" (URL: http://www.physik.uni-stuttgart.de/institute/pi/5/lehre/hauptseminar2000 /atomlithographie/atomlithographie_druck.html), Universität Stuttgart (2000)
- M. Jetter, G. Beirne, M. Rossi, J. Porsche, F. Scholz and H. Schweizer. "Optical Investigations on InP and GaInP Quantum Dots" Proceedings of the 14th Indium Phosphide and Related Materials Conference, Stockholm, Sweden (2002)
- G. Beirne, M. Jetter, M. Rossi, J. Porsche, F. Scholz, H. Schweizer and T.J. Glynn. "Optical Characterisation of InP/ GaInP Quantum Dots" Proceedings of OPTO Ireland 2002, Galway, Ireland (2002)
- G. Beirne, M. Jetter, M. Rossi, J. Porsche, F. Scholz, H. Schweizer and T.J. Glynn. "Optical Studies of GaInP/GaP Quantum Dots" Zur Veröffentlichung eingereicht beim Journal of Luminescence (2002)
- M. Jetter, M. Rossi, G. Beirne, J. Porsche, T.J. Glynn, F. Scholz and H. Schweizer. "Time-Resolved and Single Dot Spectroscopy of Type II InP/GaInP Quantum Dots" Zur Veröffentlichung eingereicht bei Phys. Stat. Sol. (2003)
- "Temperatur- und zeitaufgelöste Spektroskopie an roten Quantenpunkten" DPG-Frühjahrstagung Regensburg (2002)
- "Optical Characterisation of InP/ GaInP Quantum Dots" OPTO IRELAND 2000 Galway (2002)
- "Optical Studies of GaInP/GaP Quantum Dots" ICL2002 Budapest (2002)
- "Optical Investigations on InP and GaInP Quantum Dots" IPRM2002 Stockholm (2002)
- "Time-Resolved and Single Dot Spectroscopy of Type II InP/GaInP Quantum Dots" QD2002 Tokyo (2002)
- "Zeitaufgelöste Spektroskopie an einzelnen InP/GaInP-Quantenpunkten" DPG-Frühjahrstagung Dresden (2003)

Abkürzungen

AFM	Atomkraftmikroskop(ie) (engl.: ATOMIC FORCE MICROSKOP(Y))
cw	Dauerstrich (engl.: Continous Wave)
FWHM	Halbwertsbreite (engl.: Full Width Half Maximum)
GS	Grundzustand (engl.: GROUND STATE)
PL	Photolumineszenz
QP	Quantenpunkt(e)
SNOM	Nah-Feld-Mikroskopie (engl.: Scanning Near-Field Optical
	Microscopy)
SNR	Signal-Rausch-Verhältnis (engl.: SIGNAL TO NOISE RATIO)
SQD	einzelne Quantenpunkt(e) (engl.: SINGLE QUANTUM DOT(S))
TEM	Transmissions-Elektronen-Mikroskop(ie)
Typ A-QP	kleine Quantenpunktklasse mit durchschnittlich 5 nm Höhe
Typ B-QP	große Quantenpunktklasse mit durchschnittlich 19 nm Höhe
Typ I-QP	klassische Bandstruktur mit $confinement$ für Elektronen \underline{und} Lö-
	cher
Typ II-QP	nicht-klassische Bandstruktur in der nur ein Ladungsträgertyp
	innerhalb des Quantenpunktes lokalisiert ist
WW	Wechselwirkung

Kapitel 1

Einleitung

Halbleiterquantenpunkte sind leicht in Volumenhalbleiter integrierbare mesoskopische Atome. Diese nulldimensionalen Strukturen haben, als Festkörper mit atomähnlicher Zustandsdichte, größtes Interesse auf sich gezogen. Sie werden als möglicher effizienter Ersatz für andere quantendimensionierte Heterostrukturen in der Anwendung bei optoelektronischen Bauelementen gehandelt.

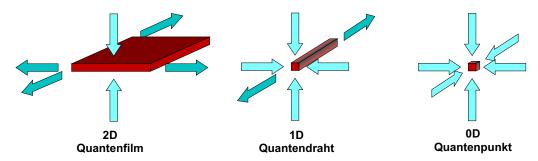


Abbildung 1.1: Die sukzessive Einschränkung der Ladungsträgerbewegungsfreiheit durch Reduzierung der räumlichen Dimensionen.

Niederdimensional heißt, daß durch die Beschränkung der Ladungsträger in mindestens einer Raumrichtung eine deutliche Veränderung der elektronischen Eigenschaften gegenüber dem Volumenhalbleiter eintritt. Als eingeschränkt bezeichnet man einen Ladungsträger, wenn die Halbleiterstruktur Abmessungen in der Größenordnung der de Broglie Wellenlänge oder des Bohrschen Radius' eines Exzitons aufweist:

$$\lambda_{Broglie} = \frac{h}{\sqrt{2m^*k_BT}} \tag{1.1}$$

$$a_B^* = \frac{4\pi\epsilon_0\epsilon_r\hbar^2}{\mu^*e^2} \tag{1.2}$$

Für InP ergibt sich ein für die meisten Halbleiter typischer Wert von $a_B^* = 10 \,\mathrm{nm}$. Durch die dreidimensionale Einschränkung ergeben sich nicht nur vollkommen andere Energieeigenwerte innerhalb der niederdimensionalen Halbleiter und gegen-

über dem Volumenhalbleiter, auch die Zustandsdichte erfährt einen deutlichen Wandel. Während der Volumenhalbleiter noch eine wurzelförmig von der Energie abhängige Zustandsdichte zeigt, erscheinen mit weiterer Reduzierung der Dimensionen, in der sich die Ladungsträger frei bewegen können, zunächst eine stufenförmige (2D, Quantenfilm), dann eine zu $\frac{1}{\sqrt{E}}$ proportionale Zustandsdichte mit deutlicher Überhöhung bei den Eigenenergien (1D, Quantendraht) und für den Fall maximaler Einschränkung (0D, Quantenpunkt) eine δ-förmige Zustandsdichte.

Zu erwarten ist also eine atomähnliche Schalenstruktur der möglichen energetischen Zustände.

1.1 Einzelne Quantenpunkte

In letzter Zeit haben sich Perspektiven auf eine Generation neuartiger Bauelemente aufgetan, die sich der Erforschung der spezifischen Eigenarten einzelner Quantenpunkte (QP's) widmen. Beispiele hierfür sind die Gebiete der Quanten-Kryptographie [1] und des Quanten-Computings [2].

Zur Realisation benötigt man Einzelphotonemitter, also Bauteile, mit deren Hilfe man genau ein Photon definierter Wellenlänge exakt zum gewünschten Zeitpunkt erzeugen kann. Diese Bauelemente basieren auf einzelnen, isolierten Quantenpunkten.

Deshalb konzentrieren sich die Hauptanstrengungen auf dem Gebiet der QP-Forschung auf das Verständnis und die Kontrolle der Einzel-Quantenpunkt (SQD: single quantum dot) -Eigenschaften. Das Studium der Phasenrelaxation [3], der spektralen Diffusion [4] und der Ladungsträger-Ladungsträger-Korrelation [5,6,7,8,9] befindet sich zur Zeit im Aufmerksamkeitsfokus der QP-Grundlagenforschung.

Hinzu kommt, daß die bisher hergestellten, auf Quantenpunkten basierenden Bauelemente, nicht die erwarteten phantastischen Eigenschaften, wie z.B. weitgehende Temperaturunabhängigkeit, aufweisen. Den Grund dafür sieht man in den noch nicht vollständig verstandenen Relaxations- und Rekombinationsmechanismen.

Deshalb richtet sich das Hauptaugenmerk dieser Diplomarbeit auf die Untersuchung der angesprochenen Prozesse. Als geeignetstes Untersuchungsobjekt hierfür bieten sich einzelne, isolierte Quantenpunkte an. So sollten sich die grundlegenden Eigenschaften unverfälscht feststellen lassen.

1.2 Überblick

Die Gliederung dieser Diplomarbeit ist typisch da bewährt:

Im hieran anschließenden Kapitel wird dem Leser ein minimaler, dennoch nötiger Einblick in die dieser Arbeit zugrundeliegenden Theoretische Grundlagen gegeben. Zusammengetragen sind hier Entstehungsweise, sowie erwartete Eigenschaften von Quantenpunkten, soweit auf sie im weiteren Verlauf der Arbeit zurückgegriffen werden muß.

Genaueres zur Probe, auf der die Diplomarbeit basiert, und zum experimentellen Aufbau erfährt man anschließend im Kapitel EXPERIMENTELLES. Es wird dort auf den Grundgedanken und auf trickreiche Details in der Zusammenstellung der Meßapparatur eingegangen.

Der experimentelle Teil der Diplomarbeit läßt sich in zwei Meßtypen separieren. Aufgrund der unterschiedlichen zugrundeliegenden Meßprinzipien und Zielsetzungen werden sie in jeweils eigenen Kapiteln behandelt. Sowohl der Abschnitt Messungen: Dauerstrich-Photolumineszenz als auch der Teil Messungen: Zeitaufgelöste Photolumineszenz sind sinngemäß noch einmal nach der Wahl der Meßparameter untergliedert.

Wie auf diese Diplomarbeit folgende Untersuchungen aussehen könnten, welche Fragen noch offen sind und welche Möglichkeiten sich mit den Ergebnissen dieser Arbeit ergeben, soll das Kapitel AUSBLICK kurz beleuchten.

Eine Essenz der Ergebnisse findet man im Kapitel ZUSAMMENFASSUNG. Es werden die wichtigsten Schlußfolgerungen der beiden Meßkapitel noch einmal aufgegriffen.

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen: Quantenpunkte

2.1 Selbstorganisiertes Wachstum

Eine Möglichkeit Quantenpunkte herzustellen ist die Strukturierung mittels lithographischer Methoden und anschließenden Ätzschritten. Die jedoch weitaus geeignetere Methode ist die des selbstorganisierten Wachstums. Hierbei werden jedoch auch viele Defekte und nichtstrahlende Rekombinationszentren erzeugt, so daß im Hinblick auf optoelektronische Bauteile dieses Verfahren primär nicht in Frage kommt.

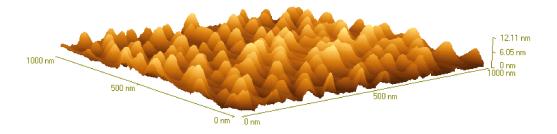


Abbildung 2.1: Atomkraftmikroskopaufnahme von im selbstorganisierten Wachstum hergestellten Quantenpunkten. Die Flächendichte beträgt ca. 10^{10} cm².

Beim selbstorganisierten Wachstum wird auf das Barrierenmaterial - im vorliegenden Falle GaInP - nicht gitterangepaßtes InP in einer nur wenige Monolayer dicken Schicht erzeugt, der sogenannten Benetzungsschicht (engl.: wetting layer). Die Dicke des Monolayers wird durch den Wert der Oberflächendiffusion und durch die Verspannungsenergie bestimmt. Beide sind stark orientierungsabhängig.

Die ECS-Theorie (equilibrium crystal shape $\hat{=}$ Gleichgewichtskristallform) der Thermodynamik macht die Vorhersage, daß ein makroskopischer Einschluß mit festem Volumen im thermodynamischen Gleichgewicht die Form einnimmt, die die freie Oberflächenenergie minimiert ([10]). Dies führt dazu, daß sich ab einer gewis-

sen Schichtdicke aus der Wetting-Layer kleine Erhebungen (Inseln) bilden. Auch die Verspannung innerhalb der Inseln wird durch diesen Vorgang reduziert. Eine weitere Triebfeder zur Agglomeration.

Ebenso wird die Bildung einer Quanteninsel aus einem Film von einer Änderung der elastischen Energie ($\Delta E^{V}_{elastic} < 0$) und der Oberfläche ($\Delta A < 0$) begleitet. An den Grenzflächen zum Volumenfestkörper, dem Barrierenmaterial, besteht aber noch immer eine Zwangsanpassung an die jeweils andere Gitterkonstante, wobei das Barrierenmaterial deutlich weniger verspannt ist, als das des Quantenpunktes (detaillierter in [10] Kapitel 5.1.2.1).

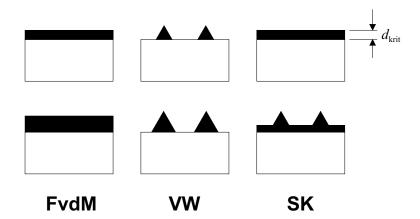


Abbildung 2.2: Schematische Diagramme der drei möglichen Wachstumsmodi: Frank van der Merve (FvdM), Volmer-Weber (VW), Stranski-Krastanov (SK)

Der sogenannte Stranski-Krastanov-Wachstumsmodus ist ein Mischform aus dem Frank van der Merve- (FvdM) und dem Volmer-Weber-Modus (VW). Zunächst erfolg ein Wachstum nach FvdM, bis ab einer bestimmten kritischen Schichtdicke d_{krit} , wenn die Summe aus Grenzflächenenergie und Oberflächenenergie der wetting layer größer als die Oberflächenenergie der Pufferschicht wird, die Ausbildung der Quantenpunkte im VW-Modus beginnt.

Der ausschlaggebende Term ist hierbei die Grenzflächenenergie, in der sich die Verspannung widerspiegelt.

2.2 Verspannung

Ein Vergleich von zwei- bis hin zu nulldimensionalen Strukturen zeigt, daß die Barriere um einen Quantenfilm (2D) herum durchgehend unverspannt ist, während für einen Quantendraht (1D) die Verspannung in der Barriere mit r^{-2} und für einen Quantenpunkt (0D) gar mit r^{-3} abnimmt. Wie man in Abbildung 2.3 anhand des Verlaufes der Linien gleicher Verspannungsenergie gut erkennen kann, befindet sich

die gesamte Störungsenergie für 0D-Systeme außerhalb des Quantenpunktes, während sie für 2D-Systeme innerhalb des Quantenfilmes gespeichert ist. Dieser fundamentale Unterschied wird wichtig, wenn man Strukturen betrachtet, in denen Quantenpunkte immer mit einem Quantenfilm (der wetting layer) koexistieren. Die wetting layer selbst wird nur in unmittelbarer Umgebung des QP beeinflußt.

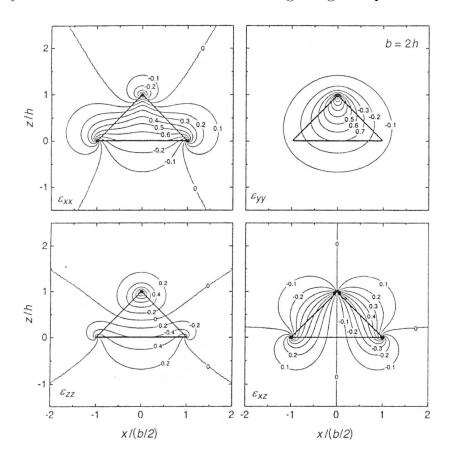


Abbildung 2.3: Simulationen der Verspannung an einem pyramidalen Quantenpunkt (aus [10])

Das Konzept der Minderung der freien Oberflächenenergie erklärt zwar die Ausbildung der Quanteninseln, aber sie kann die Größe dieser nicht vorhersagen. Dazu braucht man die Modelle der intrinsischen Oberflächenverspannung sowie der Kapillareffekte in Festkörpern.

Die Oberflächenverspannung an einem Festkörper besitzt sein Analogon in der Oberflächenspannung einer Flüssigkeit. Der Unterschied besteht darin, daß eine Flüssigkeit, wenn sie gedehnt wird, eine Oberfläche ausbildet, die strukturell der ursprünglichen gleicht: die Atome bzw. Moleküle bewegen sich dementsprechend innerhalb des Volumens. Das Volumen bleibt dabei unverändert. Der Grund hierfür ist die Inkompressibilität von Flüssigkeiten.

Wird jedoch eine Kristalloberfläche gedehnt, ändert sich der Abstand der Atome zueinander und damit die Eigenschaften der Oberfläche selbst. Die linearisierte Änderung der Oberflächenenergie (durch eine Dehnung verursacht) wird als Integral über die Oberfläche geschrieben:

$$\int \tau_{\alpha\beta}(\hat{\mathbf{m}})\varepsilon_{\alpha\beta} dA \tag{2.1}$$

wobei $\tau_{\alpha\beta}$ der intrinsische Oberflächenverspannungstensor ist und nur in der Oberflächenebene ($\alpha, \beta = 1,2$) nichtverschwindende Komponenten hat. Der intrinsische Oberflächentensor kann entweder positive (tensile), oder negative (kompressive) Werte annehmen. Tensile Verspannung entsteht durch Aufweitung der Gitterkonstante und der daraus resultierenden Neigung zur Kontraktion, während kompressive Verspannung durch Verringerung der Gitterkonstanten entsteht. Die Gitterkonstante von InP ist mit 0,587 nm um 3,7% größer als die von GaInP, dem Barrierenmaterial, mit 0,566 nm. Somit wird das InP-Gitter gestaucht; es ist kompressiv verspannt.

Die Änderung der Oberflächenenergie aufgrund der Verspannung (siehe Formel 2.1) weist auf eine Verbindung zwischen Oberflächeneffekten und verspannungsverursachten Phänomenen hin. Die Abhängigkeit der freien Oberflächenenergie von der Verspannung kann als verspannungsinduzierte Renormalisierung der freien Oberflächenenergie betrachtet werden.

2.2.1 Einfluß auf die Bandstruktur

Durch die Verspannung kommt es zu einer Änderung der Gitterkonstanten und zusätzlich zu einer Reduktion der Kristallsymmetrie. Dadurch ergibt sich eine veränderte Bandlücke und die Entartung wird aufgehoben.

Allgemein läßt sich die verspannungsbedingte Änderung der Bandstruktur als Produkt aus den Verspannungskomponenten (ε_{ii}) und dem hydrostatischen Deformationspotential $(a_{C,V}; C$ für Leitungsband und V für Valenzband) schreiben. So gilt zum Beispiel für das Leitungsband:

$$\delta E_H^C = a_c(\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy} + \varepsilon_{zz}) \tag{2.2}$$

Typische Werte für Deformationspotentiale liegen zwischen einem und zehn Elektronenvolt. Durch sie wird der Betrag der Bandstrukturbeeinflussung festgelegt, welcher in die Berechnungen der grundlegenden Materialeigenschaften eingeht [11,12, 13]. Selbst ein Übergang vom direkten zum indirekten Quantenpunkt kann durch Verspannungseffekte hervorgerufen werden ([14]). Wie sich Form und Komposition der Quantenpunkte auf das Spektrum auswirken, wird unter anderem in [15] und in [16] im Detail untersucht.

2.3 Coulomb-Wechselwirkung

Eingeschlossene oder in ihrer Bewegungsfreiheit eingeschränkte (engl.: confined) Ladungsträger, Elektronen wie Löcher, wechselwirken miteinander über die Coulombwechselwirkung:

$$W_{ij}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j) = \frac{1}{4\pi\varepsilon_r\varepsilon_0} \frac{q_i q_j}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|}$$
(2.3)

Für den Fall $q_i = -q_j$, also für ein Elektron-Loch-Paar, wird ein Exziton gebildet und es erfolgt eine Absenkung der Energie des Gesamtsystems. Die Ladungsträgerbewegung beeinflußt durch die Coulombwechselwirkung nicht nur das Energiespektrum des Systems, sondern auch die Oszillatorstärke der Übergänge, so daß sich die Ladungsträgerlebensdauern ändern.

Das elektrische Feld der Ladungsträger reicht weiter in die Barriere hinein als deren Wellenfunktion, so erklärt sich die große Bedeutung der Coulombwechselwirkung vor allem in niederdimensionalen Halbleiterstrukturen. Gerade die Elektron-Elektron-Wechselwirkung innerhalb schwach mit Elektronen bevölkerter Quantenpunkte hat drastische Auswirkungen auf die statischen und dynamischen Transporteigenschaften. Die bekanntesten Beispiele hiefür sind die sogenannte Coulomb-Blockade [17] und die Auger-Relaxation [18,19,20,21,22].

Wenn die Grundzustände eines Quantenpunktes jeweils durch ein Elektron und ein Loch besetzt sind, bildet sich automatisch ein Exziton. Die exzitonische Bindungsenergie in einem QP ist definiert als die Differenz der Eigenenergien der Hamiltonoperatoren mit und ohne Coulombwechselwirkung. Es wird zwischen drei Confinement Regimes unterschieden:

Im Strong Confinement Regime erbringen die Coulombeffekte - also der Einfluß der Coulombwechselwirkung zwischen Elektron und Loch - nur kleine Korrekturen zur normalen Quantisierungsenergie. Wenn E_C die Coulombaustauschenergie und ΔE_e und ΔE_h die Ladungsträgersublevelseparationsenergien sind, gilt: $\Delta E_e \gg E_C$, $\Delta E_h \gg E_C$

Die Elektronen- und Lochwellenfunktionen sind im wesentlichen unkorreliert. Ein typisches Beispiel ist ein kleiner QP, dessen Radius geringer als der Exzitonenradius des Volumenhalbleiters ist.

Die Oszillatorstärke im strong confinement regime f_n^{sc} reicht bei einem durchschnittlichen QP-Zentrum-zu-QP-Zentrumsabstand von etwa $^2/_3$ des exzitonischen Bohrradius [10] nur im Ensemble an die eines Quantenfilmes (f_n^{qw}) heran. Die geringe Oszillatorstärke führt zu langen im Bereich einiger Nanosekunden liegenden Ladungsträgerlebensdauern.

Genau das Gegenteil gilt für das WEAK CONFINEMENT REGIME. Hier ist der Exzitonenradius kleiner als der des QP. In diesem Falle bilden Elektronen und Löcher Paare, deren Massenzentrumsbewegung durch das Einschlußpotential (E_{OC}) quantisiert wird. Die relative Ladungsträgerbewegung wird durch die

langreichweitigere Coulombwechselwirkung (E_{Cou-WW}) dominiert. Die Reichweiten (L_z) verhalten sich wie folgt zu den Energien:

$$E_{QC} \sim \frac{1}{L_z^2} \quad \text{und} \quad E_{Cou-WW} \sim \frac{1}{L_z}$$
 (2.4)

Dann gilt: $\Delta E_e, \Delta E_h \geq E_C$.

Der Zuwachs an Exzitonenbindungsenergie durch die Beschränkung ist marginal; die Bindungsenergie ist durch die Rydbergenergie gegeben:

$$E_R = E_X^b = \frac{\mu}{2\hbar^2} \left(\frac{e^2}{4\pi\varepsilon_r \varepsilon_0} \right) \tag{2.5}$$

Die Oszillatorstärke sinkt für höhere Übergänge, steigt aber mit anwachsender Quantenpunktgröße (im Rahmen der Dipolnäherung). Die resultierenden Lebensdauern verhalten sich, zumindest für die Nährung durch quantum disks, umgekehrt proportional zum Volumen der Scheiben: $\tau^{-1} \propto V$.

Grundsätzlich zeigen Modellrechnungen [10], daß hinreichend dimensionierte Quantenpunkte eine deutlich kürzere strahlende Lebensdauer bei Raumtemperatur haben, als sie mit Quantenfilmen des selben Materials erreicht werden. Zudem ist die Lebensdauer in Quantenpunkten temperaturunabhängig, so lang die Quantisierungseffekte stark genug sind, sprich, der Abstand der QP-Zustände größer als k_BT ist, und zusätzlich die Lokalisierungsenergie hinreichend groß gegen k_BT ist, um einen thermischen Verlust (thermal escape) der Ladungsträger aus dem QP zu vermeiden.

Für den Fall, daß $\Delta E_e \gg E_C \gg \Delta E_h$, wurde das Intermediate Confinement Regime eingeführt. Diese Situation erwächst zumeist aus der Tatsache, daß Elektronen und Löcher unterschiedliche Massen haben. Die Energie der Löcher wird nun durch das elektrostatische Potential der Elektronenorbitale quantisiert.

Typischerweise werden III-V-Verbindungshalbleiter dem *strong confinement regime* zugeordnet, jedoch handelt es sich bei der vorliegenden Probe $(InP/Ga_{0.5}In_{0.5}P)$ um *Typ II*-Quantenpunkte. Die Exzitonen in der vermessenen Probe unterliegen somit dem *weak confinement regime*.

2.4 Energieniveaus und Spektren

Die Lage der Energieniveaus wird durch viele Faktoren beeinflußt. Zusätzlich zur Quantisierung durch die geometrische Einschränkung der Ladungsträger in Nanostrukturen kommen noch Niveauverschiebungen durch Verspannung (strain), durch Coulombwechselwirkungen und natürlich durch die Komposition, wobei diese schon zum Teil in die Verspannung eingeht. Die Lebensdauer eines exzitonischen Zustands wird durch die Oszillatorstärke des Übergangs bestimmt.

2.4.1 Einzelne Quantenpunkte

Das Spektrum eines einzelnen Quantenpunktes definiert sich durch die möglichen Übergänge. Aufgrund seiner δ -förmigen Zustandsdichte erwartet man ein Spektrum mit einzelnen scharfen (diskreten) Linien für jeden erlaubten Übergang. Deren Lage soll von der Quantisierung durch die räumliche Begrenzung in allen Raumrichtungen und eventuellen Verschiebungen durch Verspannung und Wechselwirkung mit anderen Teilchen (z.B. Ladungsträger, Multiexzitonen, geladene Exzitonen) abhängen.

Nun muß man die Dipolschwingung, die zur spektralen Linie führt jedoch als einen gedämpften harmonischen Oszillator mit endlicher Dämpfung verstehen (Abbildung 2.4). Bei der Fouriertransformation der einhüllenden Exponentialfunktion vom Ortsraum in die Frequenzdomäne erhält man eine Lorentzkurve, deren Breite von der Dämpfungskonstante abhängt.

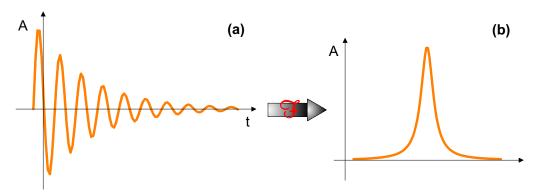


Abbildung 2.4: Der Erwartungswert eines einzelnen Quantenpunktes ist eine Lorentzlinie (b). Diese ist die Fouriertransformierte der einhüllenden Exponentialfunktion (gedämpfter Oszillator (a)). Nähere Erläuterung im Text.

Experimentell spielt die Linienbreite eine große Rolle, da man nur bei energetisch entsprechend gut auflösenden Meßapparaturen die real auftretende Linienbreite bestimmen kann. Sie liegt bei Werten deutlich kleiner als 1 meV (Halbwertsbreite).

Man unterscheidet in homogene Linienverbreiterung und in inhomogene, die ihre Ursache in der Vielzahl der Emitter hat. Ein einzelner Quantenpunkt sollte also ausschließlich homogene Verbreiterungsmechanismen aufweisen.

Als ersten homogener Verbreiterungsmechanismus führe ich die quantenmechanische Energie-Zeit-Unschärfe auf. Durch sie ergibt sich eine prinzipielle Limitierung der Linienbreite Γ über die strahlende Lebensdauer τ :

$$\Gamma \approx \frac{\hbar}{\tau}.$$
 (2.6)

Damit erhält man für eine typische Lebensdauer von $\tau=300\,\mathrm{ps}$ eine relative geringe Linienverbreiterung von $\Gamma\approx2,2\,\mu\mathrm{eV}.$

Gerade im Rahmen dieser Arbeit zeigte sich zudem die Wichtigkeit zweier weiterer Linienverbreiterungsmechanismen. Die Ladungsträger-Exziton-Wechselwirkung und der Einfluß geladener Quantenpunkte auf das Spektrum wird aber an späterer Stelle im Rahmen der Vorstellung der Meßergebnisse detailliert besprochen.

Eine weitere Folge der Beschränkung in allen Raumrichtungen ist das Verschwinden der Temperaturabhängigkeit der Linienbreite, wie man sie für höherdimensionale Systeme (1-3D) beobachtet. Durch das Wegfallen der aus Volumenkristallen bekannten $B\ddot{a}nder$ aufgrund der δ -förmigen Zustandsdichte ist auch eine Variation der Energielage durch Intrabandübergänge gering bzw. nicht vorhanden.

2.4.2 Quantenpunktensemble

In einem Quantenpunktensemble weist jeder einzelne QP unterschiedliche, für die Bandstruktur - und damit für das Spektrum - entscheidende Eigenschaften auf, wie z.B. Größe, Form oder Verspannung. Dies führt zur sogenannten inhomogenen Linienverbreiterung im optischen Spektrum.

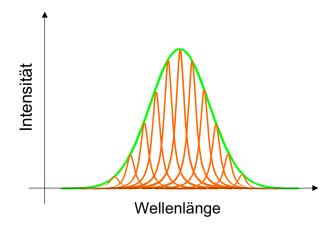


Abbildung 2.5: Die Einhüllende der spektralen Linien in einem Quantenpunktensemble ist eine Gaußfunktion. Diese folgt aus der statistischen Größen- bzw. Volumenverteilung der Quantenpunkte im Ensemble wie sie in Abbildung 3.7 dargestellt ist.

Die inhomogene Linienverbreiterung beruht hauptsächlich auf der Größen- bzw. Volumenverteilung der Quantenpunkte im Ensemble. Man nimmt eine Gaußverteilung um ein Mittelwertsvolumen mit einer Standardabweichung von diesem Volumen an. Diese Annahme kann durch AFM-Bilder ähnlich dem in Abbildung 2.1 bestätigt werden.

Statt der beim einzelnen QP erwarteten Lorentz-förmigen Linie für jeden optischen Übergang im Spektrum, sollte also eine Reihe von Lorentzkurven (Peaks)

zu sehen sein, deren energetische Lage vom QP-Volumen abhängt. In der Envelopefunktion, einer Gaußkurve, spiegelt sich die statistische Größenverteilung wider, wobei das Maximum bei der spektralen Linie des Durchschnittsvolumens liegt (siehe Abbildung 2.5).

Ein weiterer Mechanismus der inhomogenen Linienverbreiterung, der aber unabhängig von den räumlichen Dimensionen des QP ist, ergibt sich durch lokale Fluktuationen in der Materialkomposition. Da sich jedoch hierbei der Betrag der Bandlücke E_g verändert, wird mit dem Grundniveau auch die Lage der angeregten Niveaus parallelverschoben, unabhängig von deren Ordnung n.

Bei großer räumlicher Nähe zweier oder mehrerer Quantenpunkte zueinander kommt es zudem häufig zu elektronischer Kopplung. Dabei kann die Wechselwirkung durch den Wellenfunktionsüberlapp oder durch die Coulombwechselwirkung vermittelt werden.

2.5 Relaxationsmechanismen

Da in typischen optischen Experimenten mit Halbleiter-Quantenpunkten meist eine Anregung von Ladungsträgern in das Quasikontinuum der Barriere (Volumenhalbleiter) oder zumindest in die höheren angeregten Zustände des Quantenpunktes erfolgt, bedarf es verschiedener Relaxationsprozesse, um eine strahlende Rekombination innerhalb des QP's beobachten zu können.

Die Rahmenbedingungen werden dabei von den beiden physikalischen Prinzipien der Energie- und der Impulserhaltung festgelegt. Nur bei Erfüllung beider Forderungen ist eine Relaxation oder auch Rekombination möglich.

Prinzipiell kann man den Relaxationsprozeß in zwei Vorgänge unterteilen: zunächst die Relaxation aus dem Quasikontinuum der Barriere in den QP und danach das Streuen von einem energetisch höhergelegenen Niveau in ein tieferliegendes. Um den zuvor angesprochenen strengen Erhaltungsregeln von Energie und Impuls nachzukommen, muß überschüssige Energie und Impuls an andere Teilchen abgegeben werden. Dies können Phononen oder andere Ladungsträger sein.

Daraus folgt schließlich, daß die Relaxationsrate stark von der Dichte der Endzustände und von der Anzahl der Streupartner im System abhängt.

2.5.1 Phononische Relaxation

In Volumenhalbleitern geht die Relaxation schnell, auf einer Zeitskala von wenigen Pikosekunden, und hauptsächlich unter Emission von Phononen vonstatten, bis die verbliebene Überschußenergie bezüglich des Grundzustandes kleiner als die eines longitudinal-optischen (LO) Phonons ist [23,11]. Erst dann werden andere Relaxationsmechanismen wie Deformationspotential- oder piezoelektrische Streuung benötigt. Deren Relaxationszeiten sind um Größenordnungen länger (\sim 100 ps). Aufgrund

der parabolischen Energiedispersionsrelation ist die Einhaltung der Impulserhaltung in Volumenhalbleitern kein hemmender Faktor.

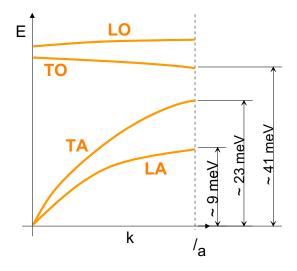


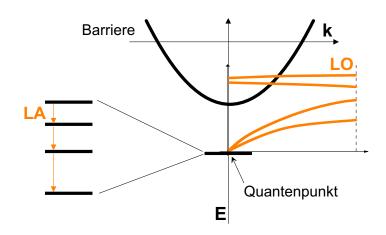
Abbildung 2.6:

Schema der Phononendispersionsrelation des untersuchten Materialsystems mit Werten aus [24].

Aber die Ladungsträger-Phonon-Wechselwirkung ist stark von der Dimensionalität des Systems abhängig, so daß sich für QP aufgrund der geringen Impulsbreite des Zielzustandes im Quantenpunkt (siehe auch 2.5.2) die phononische Relaxationswahrscheinlichkeit erheblich reduziert ([11,23,25]). Zudem muß aufgrund der δ -förmigen Zustandsdichte entweder ein energetisch und den Impuls betreffend genau passendes Phonon oder eine Kombination von Phononen gefunden werden. Diesen Engpaß an passenden Phononen nennt man auch phononischer Flaschenhals (engl.: phonon bottleneck).

Abbildung 2.7:

Relaxation mittels Phononen in den Quantenpunkt sowie Relaxation innerhalb der Quantenpunktzustände. Zum besseren Verständnis sind die Schemata der Elektronen- und der Phononendispersionsrelation übereinandergelegt. Nähere Erläuterungen im Text.



Legt man, wie in Abbildung 2.7 symbolisch dargestellt, die Dispersionsrelation von Elektronen und Phononen (Abb. 2.6) übereinander, zeigen sich die Einschränkungen der Erhaltungssätze. Vor allem der Impulsübertrag spielt bei niederdimen-

sionalen Systemen eine selektive Rolle, welche Phononen überhaupt als Streupartner in Frage kommen. Nicht nur im untersuchten Materialsystem ist es unwahrscheinlich, mittels Streuung an einem akustischen Phonon (LA, TA; siehe auch Abb. 2.7) vom 3-D-Material der Barriere mit seiner parabolischen Energiedispersionsrelation in den im k-Raum gering ausgedehnten Quantenpunkt zu relaxieren. Nach [11] kommen hierfür die optischen und vor allem die longitudinal optischen Phononen in Betracht.

Aufgrund der größeren effektiven Masse sind die Niveauabstände für Löcher deutlich geringer als für Elektronen. Deshalb laufen Relaxationsprozesse im Löchersystem schneller ab, während die Elektronen vorerst noch in angeregten oder höheren Niveaus verbleiben. Eine strahlende Rekombination aus dieser Konstellation heraus ist wegen der strengen Auswahlregel $\Delta n = 0$ trotzdem nicht möglich.

2.5.2 Pseudoimpuls

Die Impulsbreite Δk der Quantenpunktzustände wird durch die Orts-Impuls-Unschärfe

$$\Delta x \cdot \Delta k \ge \hbar \tag{2.7}$$

bestimmt.

Da sich räumliche Ausdehnung und die Breite im Impulsraum zueinander reziprok verhalten, erfährt der Impuls eines Quantenpunktes mit wenigen Nanometern Größe¹ eine 'Verschmierung' (siehe auch Abbildung 2.8). Man erhält mit Gleichung 2.7 und der Annahme eines Quantenpunktes mit 10 nm vertikaler Ausdehnung einen Wert von $\Delta k \approx 3 \cdot 10^6 \, \mathrm{cm}^{-1}$.

Um diesen Wert in Relation zu setzen, betrachtet man die Brioullinzonenbreite π/a , wobei a die Gitterkonstante des Materiales ist. Für das untersuchte Materialsystem ergibt sich hierbei ein Wert von circa 62 · 10⁶ cm⁻¹. Der Pseudoimpuls des Quantenpunktes füllt also etwa 5% der Brioullinzone aus.

2.5.3 Tiefe Störstellen

Als weiteres Modell kann auch eine mehrstufige Relaxation über tiefe Störstellen angenommen werden. Anschaulich ist der Vorgang in Abbildung 2.8 dargestellt: Der Defekt fängt hierbei zunächst den Ladungsträger aus einem der angeregten Zustände im QP ein und gibt ihn über einen Tunnelprozeß oder durch einen weiteren Streuprozeß mit einem Phonon wieder an einen Zustand des Quantenpunktes ab.

Die Relaxationszeiten findet man für tiefe Temperaturen im Bereich von etwa 100 ps. Bei höheren Temperaturen werden die Zeiten entsprechend kürzer, wobei dann aber auch die nichtstrahlende Rekombination zunimmt.

 $^{^1}$ daher ja auch die - vor allem in der englischsprachigen Literatur - übliche Bezeichnung der Quantenpunkte als $\it artificial\ atoms$ - künstliche Atome

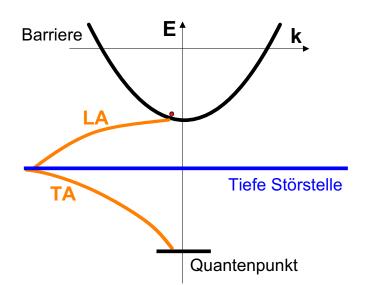


Abbildung 2.8: Relaxation über Tiefe Störstellen und Multiphononenprozesse. Erläuterung im Text.

Durch die geringere Wahrscheinlichkeit von Vielteilchenprozessen, hier Multiphononprozesse, und die reduzierte Ladungsträger-Phonon-Wechselwirkung werden die Relaxationszeiten in Quantenpunkten bis in den Zeitbereich der strahlenden und nichtstrahlenden Rekombinationszeiten hinein verlängert.

Natürlich spielen der energetische Abstand des Grundzustandes vom angeregten sowie der räumliche Abstand des Defektes vom Quantenpunkt ebenso im Zustandekommen der Relaxationsraten eine große Rolle.

2.5.4 Intrapunkt-Relaxation

Die Relaxation innerhalb der Quantenpunktzustände (man siehe auch Abb. 2.7) geschieht aufgrund der geringeren zu überwindenden Energieabstände hauptsächlich über Phononen (vor allem akustische).

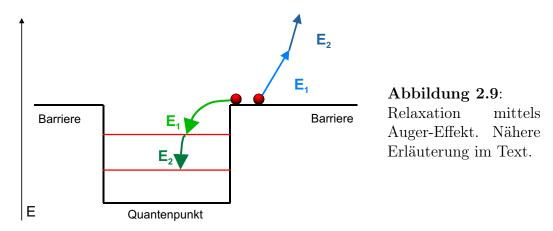
Hemmend sollte sich somit lediglich ein Mangel an zur Verfügung stehenden Phononen auswirken. Gerade bei tiefen Temperaturen müßte ein solcher *phononischer Flaschenhals* also beobachtbar sein.

2.5.5 Auger-Relaxation

Mit obenstehendem wurde der Ladungsträgereinfangprozeß vom Quasikontinuum der Barriere beziehungsweise den Wetting-Layer-Zuständen in die Quantenpunktzustände beschrieben. Die Relaxation innerhalb der Quantenpunkte wiederum geschieht aufgrund der deutlich geringeren Energieabstände der Quantenpunktzustände hauptsächlich über die akustischen Phononen (siehe auch Abbildung 2.7) [24].

Schaut man sich jedoch die Zahlen für das untersuchte Materialsystem ([26]) genauer an, erkennt man, daß die energetische Distanz von 250 meV zwischen Barriere und höchstem QP-Zustand nicht mittels einzelner Phononen überwunden werden

kann. Multiphononenprozesse, wie zum Beispiel die Relaxation über tiefe Störstellen (Abschnitt 2.5.3), sind aber aufgrund ihrer Vielteilchennatur zu stark in ihrer Eintrittswahrscheinlichkeit gehemmt. Vielmehr bedarf es eines anderen, effektiven Einfangprozesses um hinreichend die auftretenden PL-Intensitäten begründen zu können.



Bei der Auger-Relaxation [18,19,20,21,22] wird die Überschußenergie der relaxierenden Ladungsträger an Ladungsträger in der Barriere oder im QP selbst mittels Coulomb-Wechselwirkung abgegeben. Dieser Prozeß geschieht in einer sehr kurzen Zeitspanne. Zudem ist der Übertrag jeglichen Impulses möglich und somit ein effektiver, keinen 'Flaschenhälsen' unterliegender Ladungsträgereinfangprozeß gegeben.

Der Auger-Effekt ist infolge der Ladungsträger-Ladungsträger-Wechselwirkung stark von der Ladungsträgerdichte abhängig.

Über die Coulomb-Wechselwirkung der Ladungsträger im QP mit denen in der Barriere oder anderen im QP befindlichen Ladungsträgern steht den Ladungsträgern zudem ein sehr effizienter Mechanismus für Relaxation innerhalb der QP-Zustände zur Verfügung.

Detaillierter wird die Relaxation über den Auger-Effekt in den oben genannten Quellen besprochen.

2.6 Biexzitonen

Ein Biexziton kann praktisch als ein Molekül, gebildet aus zwei Exzitonen, betrachtet werden. Die Biexzitonenenergie E_{2X} ist dabei gerade die um die molekulare Bindungsenergie E_{mol} erniedrigte Energie zweier Exzitonen $2E_X$:

$$E_{2X} = 2E_X - E_{mol} (2.8)$$

Während ein Biexziton in einem Volumenfestkörper schnell dissoziieren kann, sich beide beteiligten Exzitonen also räumlich sogar so weit voneinander entfernen können, daß kaum noch eine Wechselwirkung besteht, kann dies aufgrund der starken

Lokalisierung in einem Quantenpunkt nicht passieren. Aus dem gleichen Grunde ist es auch wahrscheinlicher, überhaupt Biexzitonen in einem QP zu beobachten. Gleiches gilt für höhere Multiexzitonen bei entsprechender Anregungsleistung.

Die Bindungsenergien liegen im Millivoltbereich und sind stark von der lateralen Ausdehnung des Quantenpunktes abhängig [27]. Zum Beispiel wurden für kegelförmige InAs/GaAs Quantenpunkte mit einem typischen Radius von 8 nm Energien im Bereich um 1,5 meV vorhergesagt [28].

Man kann Biexzitonen im STRONG CONFINEMENT REGIME als zwei unabhängig voneinander rekombinierende Exzitonen betrachten. Dann ist die Lebensdauer τ_{2X} des Biexzitons, ausgedrückt in Einheiten der Lebensdauer τ_X eines Exzitons, gegeben durch:

$$\tau_{2X} = \frac{\tau_X}{2}.\tag{2.9}$$

Spielt jedoch die Coulombwechselwirkung eine tragende Rolle, wie eben gerade bei unseren Typ II-Exzitonen, dann verstärkt sich durch die Bindung die Oszillatorstärke und die Lebensdauer wird verkürzt.

2.7 Lebensdauer von Exzitonen

Für die Lebensdauer, ergibt sich abhängig von der Temperatur für den 2D-Fall, und unter der Annahme freier Exzitonen und einer raschen Thermalisierung der Exzitonen:

$$\tau_{Ex,2D}(T) = \frac{3Mk_BT}{\hbar^2 k_0^2} \tau_0, \tag{2.10}$$

wobei die strahlende Lebensdauer (bei $\mathbf{k}_{Ex}=0$) $\tau_0=1/\Gamma_0,\,M=m_e+m_h$ die Schwerpunktsmasse des Exzitons und $k_0=n\omega/c$ die Wellenzahl des emittierten Photons ist. In Quantenfilmen steigen die beobachtbaren Lebensdauern also linear mit der Temperatur an, jedoch nur bis zu einer "kritischen" Temperatur. Ab dieser dominiert die Streuung der Exzitonen an den optischen Phononen und die Lebensdauern sinken wieder.

Erweitert man nach Citrin [29] diese Theorie auf nulldimensionale Systeme mit der Einschränkung, daß die thermische Energie sehr viel kleiner ist als die Quantisierungsenergie des Exzitons $k_BT \ll \frac{\hbar^2\eta^2}{2M}$, erhält man für die Lebensdauer eines Exzitons in einem Quantenpunkt

$$\tau_{Ex,0D}(T) \approx \frac{3}{2} \frac{\eta^2}{k_0^2} \tau_0.$$
(2.11)

Es ist η^{-1} dabei ein Maß für die Lokalisierung der Schwerpunktsbewegung des Exzitons im Ortsraum. Somit ist die Lebensdauer direkt mit der lateralen, geometrischen Größe des Quantenpunktes verknüpft. Erwartet werden daher temperaturunabhängige Lebensdauern für Exzitonen. Diese hängen aufgrund des endlichen Phasenko-

härenzvolumens von der lateralen Ausdehnung des QP und der Wellenlänge des emittierten Photons ab.

Für den Fall, daß die laterale Quantisierungsenergie sehr viel kleiner als die thermische Energie ist, gibt Citrin die exzitonische Lebensdauer wie folgt an [29]:

$$\tau_{Ex,0D}(T) \approx \frac{3}{2} \left(\frac{2Mk_BT}{\hbar^2 k_0^2} + \frac{\eta^2}{k_0^2} \right) \tau_0.$$
(2.12)

Diese Gleichung entspricht in den Grundzügen Gleichung 2.11, nur daß hier noch ein temperaturabhängiger Term mit zum Tragen kommt. Der Zusatzterm entspricht gerade der Lebensdauer für das 2D-Exziton (Gleichung 2.10).

Unabhängig davon, welche Situation in den Quantenpunkten vorliegt, sollte die Lebensdauer aus den selben Gründen wie bei den Quantenfilmen bei höheren Temperaturen abnehmen.

2.8 Ladungsträgerdynamik

Um Rückschlüsse auf die Ladungsträgerdynamik ziehen zu können, führt man zeitaufgelöste Lumineszenzmessungen durch. Aufgrund der dadurch gewonnenen Daten lassen sich Modelle gewinnen. Das Modell der zufälligen anfänglichen Besetzung (engl: RIO $\hat{=}$ random initial occupation) von Mukai und Sugawara [30,31] eignet sich zum Beispiel, um den Lumineszenzzerfall theoretisch zu beschreiben, und wird im folgenden kurz angesprochen.

Ausgangslage ist, daß alle Ladungsträger bereits kurz nach dem Anregungspuls in die diskreten Zustände des Quantenpunktes relaxiert sind. Ist die Ladungsträgerdichte hoch genug, sei diese Annahme hinreichend, da durch Ladungsträger-Ladungsträger-Wechselwirkung (siehe auch Kapitel 2.5.5) eine schnelle Relaxation in die QP gewährleistet ist. Weiterhin wird angenommen, daß der Ladungsträgereinfang in die Niveaus zufällig ist. Zufällig, was den beim Einfang besetzten QP-Zustand betrifft, sowie die Anzahl und Verteilung der eingefangen Ladungsträger auf die Zustände.

Sowohl Rekombinationszeit (τ_{rek}) als auch Reemissionszeit (τ_{reem}) sind hinreichend lang gegen die Relaxationszeit (τ_{rel}) , um eine Relaxation zu ermöglichen:

$$\tau_{rel} < \tau_{rek}, \tau_{reem} \tag{2.13}$$

Zur Vereinfachung geht man von einem 2-Niveau-System aus: dem Grundzustand und einem angeregten Zustand. Damit ergeben sich folgende Besetzungsmöglichkeiten (vergleiche Abbildung 2.10): A beide Zustände sind gefüllt; B nur der angeregte Zustand ist besetzt; C der Grundzustand ist besetzt; und D beide Niveaus sind leer.

Der Fall **D** stellt zugleich den Endzustand jedes Ladungsträgerprozesses dar. Nach der Rekombination sind bei nicht nachfolgender neuer Anregung alle Niveaus unbesetzt.

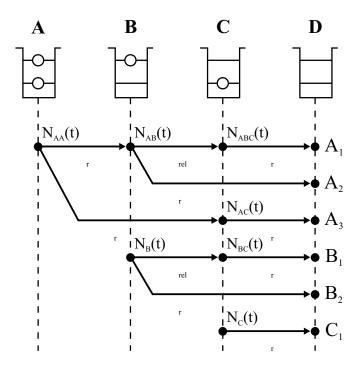


Abbildung 2.10:

Grafik zum RIO-Modell Ladungsträgerdynazur mik nichtgekoppelten Quantenpunkten von Mukai und Sugawara [30,31]. Die Besetzungsmöglichkeiten einem 2-Niveau-System die Zerfallswege: rel und bezeichnet den Relaxationsund den strahlenden Rekombinationsweg.

Wie man in Abbildung 2.10 sehen kann, gibt es, beispielsweise, vom Zustand ${\bf B}$ zwei Wege: einen durch Relaxation ins nächsttiefere Niveau und einen durch direkte Rekombination. Diese Annahme ist erlaubt, wenn man davon ausgeht, daß die Quantisierungsenergien der Löcher aufgrund der höheren Masse geringer und vor allem kleiner $k_B T$ sind.

Sei $N_{AA}(t)$ die Zahl der Ladungsträger im Falle **A** zum Zeitpunkt t und $N_{AB}(t)$ die Zahl der Ladungsträger im Anfangszustand **B**, die durch Rekombination der Grundzustandsladungsträger aus **A** hervorgegangen sind, dann befinden sich im angeregten QP-Zustand (bei Ausgangssituation **A**)

$$N_A(t) = N_{AA}(t) + N_{AB}(t) (2.14)$$

Ladungsträger.

Die Ratengleichung für $N_{AA}(t)$ ergibt sich somit nach dem Schema 2.10 zu

$$\frac{dN_{AA}(t)}{dt} = -\frac{2N_{AA}(t)}{\tau_r} \tag{2.15}$$

mit τ_r als Ladungsträger-Rekombinationslebensdauer, wenn diese für beide QP-Zustände gleich ist. Aus der Betrachtung der "Zerfallskanäle" A_1 und A_2 folgt die Ratengleichung für $N_{AB}(t)$ mit

$$\frac{dN_{AB}(t)}{dt} = \frac{N_{AA}(t)}{\tau_r} - \frac{N_{AB}(t)}{\tau_{rel}} - \frac{N_{AB}(t)}{\tau_r},$$
(2.16)

wobei τ_{rel} die Ladungsträger-Relaxationszeit vom angeregten in den Quantenpunktgrundzustand ist. Als Lösungen von 2.15 und 2.16 erhält man:

$$N_{AA}(t) = N_{A.0}e^{-\frac{2t}{\tau_r}},\tag{2.17}$$

$$N_{AB}(t) = e^{-\left(\frac{1}{\tau_{rel}} + \frac{1}{\tau_r}\right)t} \int_0^t \frac{N_{AA}(s)}{\tau_r} e^{\left(\frac{1}{\tau_{rel}} + \frac{1}{\tau_r}\right)s} ds, \tag{2.18}$$

mit $N_{A,0}$ als anfängliche Anzahl der Fall **A** QP. Ist die Relaxationszeit $\tau_{rel} \ll \tau_r$, so wird $N_{AB}(t)$ Null und die Zerfallszeit von $N_A(t)$ reduziert sich auf $\tau_r/2$.

Fortführend lautet die Ratengleichung für die Anzahl der Ladungsträger im angeregten QP-Zustand $N_B(t)$, mit Ausgangssituation **B**

$$\frac{N_B(t)}{dt} = -\frac{N_B(t)}{\tau_{rel}} - \frac{N_B(t)}{\tau_r} \tag{2.19}$$

mit der Lösung

$$N_B(t) = N_{B,0}e^{-\left(\frac{1}{\tau_{rel}} + \frac{1}{\tau_r}\right)t},$$
 (2.20)

wobei $N_{B,0}$ wiederum die Anzahl der Fall **B** Quantenpunkte zu Beginn bezeichnet. Die Zerfallszeit von $N_B(t)$ nähert sich der Relaxationszeit τ_{rel} für $\tau_{rel} \ll \tau_r$.

Die Gesamtzahl der Ladungsträger im angeregten Zustand definiert sich damit zu

$$N_{ex}(t) = N_A(t) + N_B(t). (2.21)$$

Die Emissionsintensität aus dem angeregten Niveau ist über $\frac{N_{ex}(t)}{\tau_r}$ direkt mit dieser Gesamtzahl der Ladungsträger verknüpft.

Die Anzahl der Ladungsträger im Grundzustand kann nun durch die Betrachtung der Wege A_1 , A_3 , B_1 und C_1 berechnet werden, wobei, laut Abbildung 2.10, $N_{ABC}(t)$, $N_{AC}(t)$, $N_{BC}(t)$ und $N_C(t)$ die Zahl der Ladungsträger in den jeweiligen Anfangszuständen bezeichnen. Es ergeben sich folgende Ratengleichungen für diese vier Situationen:

$$\frac{dN_{ABC}(t)}{dt} = \frac{N_{AB}(t)}{\tau_{rel}} - \frac{N_{ABC}(t)}{\tau_r}$$
 (2.22)

$$\frac{dN_{AC}(t)}{dt} = \frac{N_{AA}(t)}{\tau_r} - \frac{N_{AC}(t)}{\tau_r} \tag{2.23}$$

$$\frac{dN_{BC}(t)}{dt} = \frac{N_B(t)}{\tau_{rel}} - \frac{N_{BC}(t)}{\tau_r}$$
(2.24)

und

$$\frac{dN_C(t)}{dt} = -\frac{N_C(t)}{\tau_r} \tag{2.25}$$

Aus den Gleichungen 2.22 bis 2.25 erhält man die Lösungen

$$N_{ABC}(t) = e^{-\frac{t}{\tau_r}} \int_0^t \frac{N_{AB}(s)}{\tau_{rel}} e^{\frac{s}{\tau_r}} ds$$
 (2.26)

$$N_{AC}(t) = e^{-\frac{t}{\tau_r}} \int_0^t \frac{N_{AA}(s)}{\tau_r} e^{\frac{s}{\tau_r}} ds$$
 (2.27)

$$N_{BC}(t) = e^{-\frac{t}{\tau_r}} \int_0^t \frac{N_B(s)}{\tau_{rel}} e^{\frac{s}{\tau_r}} ds$$
 (2.28)

und

$$N_C(t) = N_{C,0}e^{-\frac{t}{\tau_r}} (2.29)$$

mit der Anfangszahl $N_{C,0}$ der Ladungsträger in der Situation C. Damit folgt die Gesamtzahl der Ladungsträger im Grundzustand der Quantenpunkte zu

$$N_{GS}(t) = N_{ABC}(t) + N_{AC}(t) + N_{BC}(t) + N_{C}(t)$$
(2.30)

Ist $\tau_{rel} \ll \tau_r$, dann werden die Gleichungen 2.26 bis 2.28 vernachlässigbar und man erhält für die Zerfallszeit des Grundzustandes τ_r , während sie sich für den angeregten Zustand auf $\tau_r/2$ reduziert.

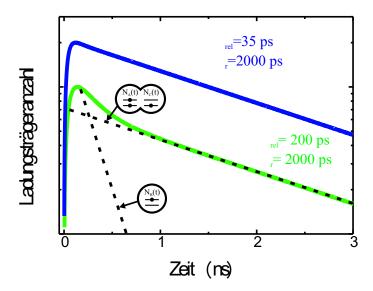


Abbildung 2.11: Simulation des zeitlichen Ladungsträgerzahlverlaufes für einen Quantenpunkt mit zwei Zuständen (aus [31]). Die durchgezogenen Linien stellen N(t) dar, die gestrichelten Linien die Beiträge die von $N_B(t)$ bzw. von $N_A(t)$ und $N_C(t)$ herrühren.

Als Schlußfolgerung aus den vorangegangenen Überlegungen erwartet man für die Zerfallskurven doppeltexponentielle Verläufe. Einen nach dem RIO-Modell für den Grundzustand berechneten Verlauf eines Lumineszenzzerfalls kann man in Abbildung 2.11 sehen. Um der endlichen Besetzungszeit der Anfangszustände Rechnung zu tragen, wurde der Anzahl der Grundzustandsladungsträger noch eine von der Anstiegszeit der Lumineszenz τ_{ans} abhängige Anzahl an Ladungsträgern $N_{Gen}(t)$ hinzuaddiert, so daß

$$N(t) = N_{GS}(t) + N_{Gen}(t). (2.31)$$

In der Simulation (Abb. 2.11) wurde ein $\tau_{ans} = 100 \,\mathrm{ps}$ gewählt, was einer mittleren Anstiegszeit entspricht [11]. Die untere Kurve in Abbildung 2.11 wurde mit

einem $\tau_{rel}=200\,\mathrm{ps}$ und einem $\tau_r=2\,\mathrm{ns}$ als Parameter berechnet. Gut erkennt man die durchgezogene Kurve als Superposition der beiden gestrichelten Kurven, die jeweils dem reinen Relaxations- und Rekombinationsverlauf entsprechen.

Der obere Graph in Abbildung 2.11 hingegen zeigt offensichtlich nur ein monoexponentielles Verhalten. Daraus wird ersichtlich, daß für kurze Relaxationszeiten, hier $\tau_{rel}=35\,\mathrm{ps},$ der Zerfall der Lumineszenz nur von der Rekombinationszeit bestimmt wird.

Kapitel 3

Experimentelles

In diesem Kapitel wird zunächst die detaillierte Struktur der vermessenen Proben und anschließend die verwendete Meßtechnik besprochen.

3.1 Die Probe

Bei der vermessenen Probe handelt es sich um eine von J. Porsche [32] epitaktisch hergestellte Struktur, mit der in Abbildung 3.1 gezeigten Sichtfolge. Es handelt sich um selbstorganisierte Quantenpunkte hervorgegangen aus einem Wachstumsprozeß nach Stranski-Krastanov.

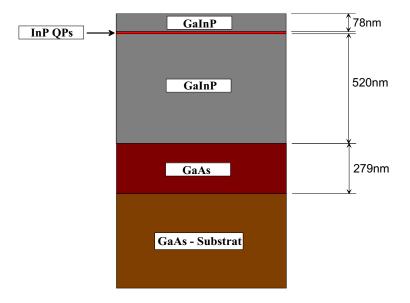


Abbildung 3.1: Die Schichtfolge der verwendeten Proben (nicht maßstabsgetreu).

Auf einem GaAs-Substrat wurde über einer GaAs-Pufferschicht eine erste Schicht des Barrierenmaterials $Ga_{0.5}In_{0.5}P$ mittels Niederdruck MOVPE (metallorganische

Gasphasenepitaxie) erzeugt. Darüber, je nach gewünschter Quantenpunktgröße (siehe auch Kapitel 3.1.2 und 2.1), eine nominell 1,6 oder 4 Monolagen (ML) dicke Schicht InP, in der sich dann die Quantenpunkte bilden.

Ohne Deckschicht, wurden diese Proben zur Geometriecharakterisierung mittels Atomkraftmikroskopie (AFM) eingesetzt, während die für die Transmissions-Elektronen-Mikroskopie (TEM)- und die spektroskopischen Photolumineszenzuntersuchungen vorgesehenen Proben mit einer weiteren dünneren Schicht des Barrierenmaterials abgedeckt wurden. Proben ohne Deckschicht sind für die optischen Untersuchungen notwendig, um nichtstrahlende Rekombination über Oberflächenzustände zu unterdrücken.

Wie bereits in Kapitel 2.1 beschrieben, bleibt beim Stranski-Krastanov-Wachstumsmodus die wetting layer auch nach Ausbildung der QP als Quantenfilm erhalten. Detailliertere Angaben zum Wachstum findet man in [32].

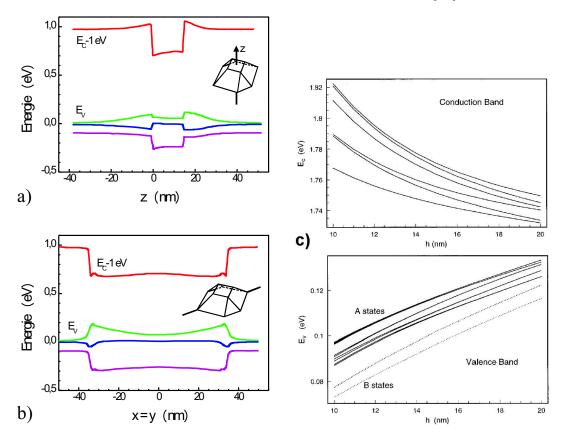


Abbildung 3.2: Modell nach 6-Band-k-p-Bandstrukturrechnung aus [26]. Beschreibung im Text.

 $Ga_{0.5}In_{0.5}P$ weist im Volumenhalbleiter eine Bandlücke von 1,88 eV auf, und InP eine von 1,42 eV. Aber durch die Gitterfehlanpassung von 3,7% ($\varepsilon_{||}$; die Volumenkompression liegt bei -3,2%) und die daraus resultierende Verspannung wird die Bandstruktur beider Materialien stark beeinflußt. Die qualitativen Auswirkungen der Verspannung wurden bereits in Kapitel 2.2.1 besprochen. Um einen Eindruck

von den zu erwartenden elektronischen Verhältnissen zu bekommen, wurden die Deformationspotentiale nach [12,11] mit Daten aus [12,33,34,35,36] bestimmt. Die Ergebnisse kann man im Anhang A Seite 89 einsehen. Damit wurde versucht, ein Modell der herrschenden Bandstruktur zu erstellen. Ein genaueres Modell steht aber seit kurzem für das untersuchte Materialsystem zur Verfügung [26].

In den Abbildungen 3.2 a) und b) ist jeweils der Bandkantenverlauf über den Ort im QP graphisch dargestellt, in der im kleinen Übersichtsbild ausgewiesenen Raumrichtung. In c) sieht man den Bandkantenverlauf in Abhängigkeit von der Größe des Quantenpunktes in Wachstumsrichtung. Die Bezeichnungen A- und B-Zustand bei den Loch-Energien entstehen aus den unterschiedlichen Wellenfunktionen (Detailliert in [26]). Die der Rechnung zugrundeliegenden Daten können in Anhang A eingesehen werden.

Die Charakterisierung der vorliegenden Proben mittels AFM und TEM erfolgte bereits im Rahmen einer Doktorarbeit [32]. Dabei gewinnt man durch die AFM-Bilder genauen Aufschluß über Höhenverteilung und Flächendichte der Quantenpunkte. Ein typisches AFM-Bild zeigt Abbildung 2.1 auf Seite 5. Je nach Quantenpunkttyp (Abschnitt 3.1.2) ergab sich eine gaußähnliche Verteilung um 5 nm und um 19 nm Höhe. Die Flächendichte wurde durch Abzählen zu $1 \cdot 10^{10}$ pro cm² bestimmt.

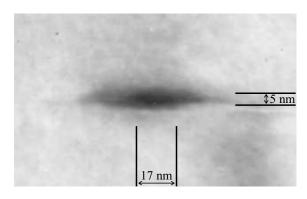


Abbildung 3.3:

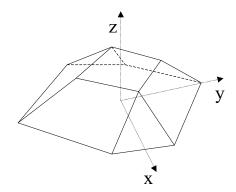
TEM-Bild einer durch Überwachsung in Ga.50 In.50 P eingebetteten InP-Quanteninsel. Es sind keine Versetzungen zu erkennen, dafür aber gut die linsenförmige Struktur des QP.

Zur Analyse von Form und lateraler Ausdehnung der Quanteninseln eignen sich die TEM-Bilder (Abb. 3.3) besser. Außerdem lassen sich durch eine solche Untersuchung eventuelle Versetzungen in und um den untersuchten QP identifizieren. Aufgrund des Funktionsprinzips zeigen die TEM-Bilder in erster Linie den Verlauf von Verspannungsfeldern um die Quanteninseln, da der Bildkontrast hauptsächlich durch Änderungen in der Kristallstruktur (Beugung der Elektronen am Gitter) hervorgerufen wird. Im Gegensatz dazu entsteht bei konventionellen optischen Mikroskopen das Bild durch Transmissionsabschwächung.

Der linsenförmige, homogen dunkle Bereich in der Mitte der TEM-Aufnahme in Abbildung 3.3 kann als der eigentliche Quantenpunkt identifiziert werden. Dies scheint zunächst verwunderlich, da man als Inselform einen Pyramidenstumpf (Abbildung 3.4) erwartet [26]. Ruft man sich aber die Simulation des Verspannungsverlaufes in Abbildung 2.3 wieder in Erinnerung, versteht man das TEM-Bild besser.

Abbildung 3.4:

Die nach [26] vorhergesagte Form der in $Ga_{.50}In_{.50}P$ eingebetteten InP-Quantenpunkte. Eingezeichnet ist auch die Wachstumsrichtung indiziert durch z.



Das Verspannungsfeld weist nämlich gerade dessen linsenförmige Symmetrie auf. Um genauere Aussagen über die geometrische Gestalt zu treffen, müssen hochauflösende TEM-Aufnahmen gemacht werden.

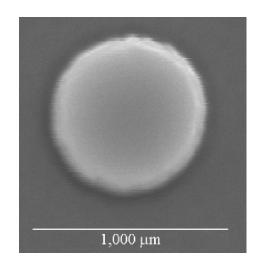
In Abbildung 3.3 kann man keine Anzeichen einer Versetzung erkennen. Dies ist ein Indiz für einen kohärenten Quantenpunkt.

3.1.1 Strukturierung

Die vorliegende Diplomarbeit konzentriert sich auf die Untersuchung einzelner Quantenpunkte. Quantenpunktensembles, wie man sie in den ursprünglich von J. Porsche gewachsenen Proben vorfindet, sind dafür nicht ohne weitere Bearbeitung (Strukturierung) geeignet und wurden, unter anderem auch im gleichen Materialsystem, bereits von M. Jetter im Rahmen seiner Doktorarbeit untersucht [37].

Abbildung 3.5:

Rastertunnelmikroskopaufnahme einer typischen 500nm Mesa in der Aufsicht. Im Inneren befindet sich die wetting layer mit den Quantenpunkten.



Bei einer Dichte von ca. 10^{10} pro cm² werden sich immer genügend Quantenpunkte im Fokus des Anregungslasers befinden, so daß sich die durch inhomogene Verbreiterung bestimmten Ensemblespektren ergeben. Um dem entgegenzuwirken, wurden die Proben strukturiert: es wurden auf jeder Probe vier Felder unterschied-

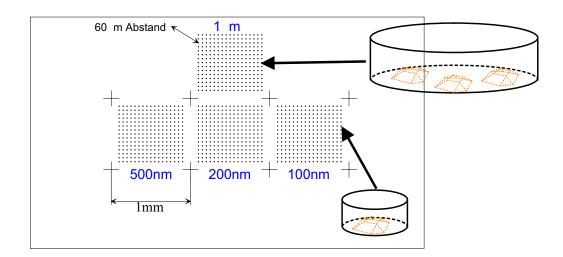


Abbildung 3.6: Strukturierte Probe. Vergrößerte tatsächliche Ansicht. Detailausschnitte zeigen unterschiedlich große, einzelne Mesen mit den darin enthaltenen QP. Beschreibung siehe Text.

lich großer Mesen mittels Elektronenstrahl-Lithographie geschrieben und anschließend geätzt. Eine solche Mesa¹ sieht man in Abbildung 3.5.

Eine vergrößerte Ansicht der tatsächlichen Probensituation mit hervorgehobenen schematischen Detailausschnitten einzelner Mesen zeigt Abbildung 3.6. Je nach Mesendurchmesser erhält man bei fester Flächendichte so eine unterschiedliche Zahl an Quantenpunkten pro Mesa.

Geht man bei vorgegebener Flächendichte der QP von vier verschiedenen Mesendurchmessern aus, ergibt sich folgende Tabelle 3.I:

ø der Mesa in nm	mittlere QP-Zahl
1000	100
500	25
200	4
100	1

Tabelle 3.I: Durchschnittliche erwartete Quantenpunktanzahl für vier Mesendurchmesser.

Wie man in vorstehender Tabelle 3.I sehen kann, sollten Untersuchungen an einem einzelnen Quantenpunkt durch Messung an einer 100 nm-Mesa möglich sein.

Der Vorteil der angewendeten Strukturierung liegt auf der Hand: Durch sukzessives Ausdünnen ist man zudem in der Lage den Übergang von Quantenpunk-

¹Als Mesen (singular: Mesa) werden die durch Erosion freigestellten monumentalen Tafelberge im amerikanischen Südwesten bezeichnet. Typisches Beispiel sind die aus der Werbung bekannten Berge im *Monument Valley*.

tensembles hin zu einzelnen Quantenpunkten zu beobachten. Diese Vorgehensweise ermöglicht dem Experimentator wirksame Spektroskopiemethoden zu entwickeln. Letzteres erweist sich schon bei einer Mesengröße von 200 nm als notwendig, da lediglich die größten Mesen mit einem Mikrometer Durchmesser genügend Licht emittieren, um den Anregungslaserfokus ausschließlich mit Hilfe des Mikroskops (siehe Abbildungen 3.8 und 3.9 zum Versuchsaufbau) optimal auf der Mesa zu positionieren.

Klare, in den Experimenten bestätigte Nachteile ergeben sich durch die während der Strukturierung entstandenen Ätzdefekte, die den Ladungsträgern als nichtstrahlende Rekombinationszentren dienen und darüber hinaus durch einen im nächsten Kapitel detaillierter beschriebenen Mechanismus über die Ladungsträger-Exziton-Wechselwirkung (L-E-WW) die Lumineszenzausbeute schmälern. Die L-E-WW wurde bereits wegen ihrer wichtigen Rolle bei der homogenen Linienverbreiterung im vorigen Kapitel erwähnt.

3.1.2 Bimodale Größenverteilung

Wie bereits in Kapitel 2.1 erwähnt, ist die Oberflächendiffusion bei der Bildung der Quanteninseln aus der wetting layer orientierungsabhängig. Durch Verkippung des Substrates wird die Größe der QP voreingestellt. Für die großen, Typ B Quantenpunkte (siehe auch das Höhenhistogramm in Abbildung 3.7) stellt man die Wachstumsrichtung parallel zur 001-Richtung des GaAs-Substrates (Abbildung 3.1) ein. In diesem Fall ist natürlich die Oberflächendiffusion maximal und der Ostwald'sche Reifeprozeß optimal. Die wetting layer ist im Schnitt vier Monolagen (ML) dick.

Bei Verkippung des Substrates aus der 001-Richtung weist die Kristalloberfläche Monolagenstufen auf. Je stärker die Verkippung des Substrates, desto geringer wird der Abstand der Stufen. Daher ist mit einer deutlichen Reduzierung der Oberflächendiffusion bzw. reduzierten Diffusionslänge bei stärkerer Verkippung zu rechnen.

Mit 15° Verkippungswinkel erreicht man ein gezieltes Wachstum der Typ A-Quantenpunkte [32]. Die Oberflächendiffusion ist stark eingeschränkt, der Ostwald'sche Reifeprozeß wird nicht vollständig durchlaufen. Es wächst nur eine durchschnittlich 1,6 ML dicke Benetzungsschicht. Die Dicke der wetting layer kann man anhand von PLE-Spektren (PHOTO LUMINESCENCE ECXITATION ⇒ Anregungsspektroskopie) über die Absorption der WL aufgrund der Quantisierung berechnen.

Stellt man einen Substratverkippungswinkel von 6° ein, ergibt sich ein Mischzustand. Man erhält sowohl Typ A- als auch Typ B-Quantenpunkte auf der gleichen Probe. Um die Eigenschaften beider Typen sowie das Verhalten bei Mischung möglichst einfach studieren zu können, wurden drei Probenstücken strukturiert: jeweils eine reine Typ A- bzw. B-Probe sowie eine gemischte.

Ergebnisse hierzu findet man in den beiden anschließenden Meß-Kapiteln.

In Abbildung 3.7 sieht man rechts oben das AFM-Bild, auf dem das im Diagramm sichtbare Höhenhistogramm basiert. Gut zu erkennen sind verschiedene Grö-

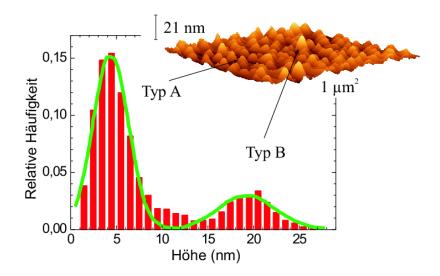


Abbildung 3.7: Höhenhistogramm der von J. Porsche [32] gewachsenen Quantenpunktproben auf Grundlage der ebenfalls gezeigten AFM-Aufnahme. Zu sehen sind die zwei Quantenpunktklassen: Typ A (klein) und Typ B (groß).

ßen/Höhen der QP. Deren Verteilung ist gaußförmig um ein Maximum, den wahrscheinlichsten Wert herum. Für die kleinen, Typ A-Quantenpunkte findet man Höhen von 2 bis 8 nm mit einem Maximum bei 5 nm, während die Größenverteilung für die großen Typ B-QP breiter ist - von 15 bis 24 nm - und ein Maximum bei 19 nm aufweist. Mischformen kann man im Histogramm zwischen den beiden Gaußglocken um 11 nm sehen. Man kann sie als nicht vollkommen ausgereifte Typ-B-QP betrachten.

3.2 Die Meßapparatur

Die optischen Eigenschaften der beschriebenen Proben wurden mittels Photolumineszenzspektroskopie (PL) untersucht. Dies geschah einmal durch Anregung mit einem Laser im Dauerstrich (cw = continue con

Im cw-Fall wird der Quantenpunkt beständig und kontinuierlich mit neuen Ladungsträgern befüllt. Im Gegensatz dazu wird dem Experimentator durch den gepulsten Laser in der Anregungspause (Laser aus) die Möglichkeit gegeben, die Relaxationswege auch über die nun zeitlich veränderliche Population der QP-Zustände zu beobachten. Mit dem nächsten Laserpuls wird der Quantenpunkt dann wieder

mit Ladungsträgern befüllt.

Beiden Aufbauten gemeinsam waren die Probenhalterung und -kühlung sowie die Optik zur Kollimation des Emissionslichtes. Der angeschlossene Computer wurde durch Wahl eines anderen Programmteiles der Meßsoftware den geänderten Meßbedingungen angepaßt.

Zur Voreinstellung einer gegebenen Temperatur wurde der Probenhalter in einem Durchflußkryostaten montiert. Mit dem zur Kühlung verwendeten flüssigen Helium konnten so Temperaturen von etwa 5 K bis zu 300 K eingestellt werden. Zur Stabilisierung der Temperatur und zum Erreichen höherer Werte konnte über eine Regelelektronik der Probenhalter gegengeheizt werden.

Der Kryostat ist über Mikrometerschrauben in der Probenebene in seiner Position verstellbar angebracht. Damit ist sichergestellt, daß Laserstrahl, Probe und Monochromatoreingang immer in einer optischen Ebene sind und die Justierarbeit wird deutlich erleichtert.

Das reemittierte Licht wurde über eine Linsenkombination in Mikroskopaufbau senkrecht zur Probenebene in einen Monochromator fokussiert und die Intensität des Lichtes der selektierten Wellenlänge mittels eines Photomultipliers detektiert.

Das Ergebnis des Einzel-Photonen-Zählvorgangs wurde über einen angeschlossenen Meßcomputer eingelesen, mittels einer Empfindlichkeitseichkurve des Monochromators in seiner Intensität korrigiert und zur späteren Auswertung gespeichert. Zusätzlich wurden von diesem Computer die Schrittmotoren des Monochromators gesteuert.

3.2.1 Dauerstrich-Messungen

Zur Erzeugung einer cw-Anregung wurde ein Helium-Neon-Laser mit einer maximalen Ausgangsleistung von etwa 10 mW bei 632,8 nm benutzt. Der Vorteil dieses Lasers bestand in seiner vergleichsweisen thermischen Stabilität, seiner relativ scharfen Laserlinie und seiner guten Fokussierbarkeit. Nachteilig wirkten sich, wie bei vielen Gaslasern, die Vielzahl an Plasmalinien der beteiligten Gase, hier hauptsächlich des Neons, aus.

Damit ergibt sich der in Abbildung 3.8 aufgezeigte Meßaufbau: Der Laser, nachdem er direkt am Resonatorausgang einen Interferenzfilter zur Unterdrückung der Plasmalinien durchläuft, wird über ein Spiegelsystem durch einen Neutraldichtefilter zur Abschwächung der Anregungsleistung und ein Blendensystem durch eine Linse auf die hinter dem Kryofenster angebrachte Probe fokussiert.

Das Blendensystem wurde in den Aufbau eingefügt, nachdem sich zeigte, daß sich durch Ändern des Neutraldichtefilters die Position des Fokus' auf der Probe verschoben hatte. Schuld daran sind unterschiedliche Dicken, nicht planparallele Oberflächen und leichte Verkippungen des Filters in seiner Halterung. Durch die Irisblenden beschränkt man den *Pfad* des Laserstrahls in seiner Variabilität. Aber auch diesem Verfahren sind Grenzen gesetzt: werden die Blenden zu weit geschlos-

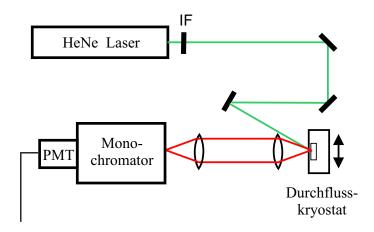


Abbildung 3.8: Schematischer Meßaufbau zur Messung mit Dauerstrichanregung. Der Interferenzfilter (IF) sollte die lasereigenen Gasemissionslinien unterdrücken.

sen, kommt es zu Beugungseffekten und damit zur Aufweitung des Strahles. Da diese Aufweitung zudem noch ein nichtgaußsches Intensitätsprofil aufweist, kann der resultierende Strahl nicht mehr sauber fokussiert werden.

Ein weiterer Vorteil dieses Blendensystems ist, daß in beschränktem Maße Intensitätsänderungen vorgenommen werden können. Es läßt sich so in der Regel mit nur einem Filter und der Irisblende ein Intensitätsbereich abdecken, für den man ohne die Blende bis zu vier Neutraldichtefilter benötigt hätte, mit dem Vorteil der besseren Skalierbarkeit beziehungsweise den zusätzlichen Möglichkeiten durch die stufenlose Intensitätsdämpfung.

Besonders wichtig wird dieser Punkt, wenn man Leistungsserien aufnehmen möchte. Gerade bei geringen Anregungsleistungen ist es nicht mehr möglich visuell oder mit Hilfe des Mikroskopes den Laserfokus auf immer die selbe bzw. überhaupt eine Mesa zu justieren. Deshalb versucht man mit einem Neutraldichtefilter höchstmöglicher Abschwächung auf die gewünschte Mesa zu fokussieren und regelt dann, ohne den Strahlgang weiter zu beeinflussen, mit der Iris der Blende nach.

Gerade bei den lichtschwachen kleinen Mesen mit 200 und 100 nm Durchmesser konnte nicht garantiert werden, daß man wirklich während einer Serie immer die gleiche Mesa vermaß. Deshalb wurde folgende Vorgehensweise entwickelt: Um maximal Licht einkoppeln zu können, wurden die Spalte des Monochromators auf eirea den dreifachen Wert (50 μ m) des normalen Meßwertes (20 μ m) geöffnet. Damit geht zwar die hohe energetische Auflösung verloren, aber die ist zu Justierzwecken auch nicht nötig. Ein weiterer Vorteil des Spaltöffnens ist, daß die Meßanlage nun ein breiteres Energieband mit in die Zählung einbezieht.

Bis zu einer Spaltbreite von $40 \,\mu\text{m}$ behält der Monochromator dabei seine Auflösung von $0.04 \,\text{nm}$ bzw. ca. $0.1 \,\text{meV}$ [38]. Da nur zu Justierungszwecken die Spalte überhaupt so weit geöffnet wurden, ansonsten aber nie eine Spaltbreite von $30 \,\mu\text{m}$

überschritten wurde, kann man davon ausgehen, die maximal mögliche Auflösung erreicht zu haben.

Der Monochromator wird per Meßrechner auf eine Wellenlänge/Energie gefahren, in deren näherer Umgebung man die Emission erwartet. Wenn man nun den Fokus auf der Probe lateral verschiebt, kann durch Beobachtung des Photonenzählers auf den Ort maximaler Intensität justiert werden. Anschließend wird die Spaltbreite wieder reduziert und zunächst einmal ein Spektrum aufgenommen. Nun kennt man sozusagen den Fingerabdruck der Mesa, ihre charakteristische Emission.

Man stellt im nächsten Schritt den Monochromator auf die Wellenlänge der maximalen Emissionsintensität und justiert vorsichtig den Probenhalter erneut auf maximale Intensität. Sollte man im weiteren die Mesa verlieren, ist es zumindest möglich sie - und genau sie - wiederzufinden. Denn maximale Emission bei der eingestellten Wellenlänge haben nur wenige der Mesen auf der Probe.

3.2.2 Zeitaufgelöste Messungen

Das zuvor besprochene Justierverfahren konnte auch erfolgreich bei den zeitaufgelösten Messungen angewandt werden.

Prinzipiell unterscheidet sich der Aufbau zur zeitaufgelösten Messung (siehe Abbdilung 3.9) nur in Details vom cw-Aufbau. Um den gewünschten ultrakurzen Laserpuls zur Generation eines Ladungsträgerüberschuß' zu erzeugen, bedient man sich eines Titan-Saphir (Ti:Sa)-Kristalls. Kurz heißt hier: kurz gegen die typische Ladungsträgerrekombinationslebensdauer.

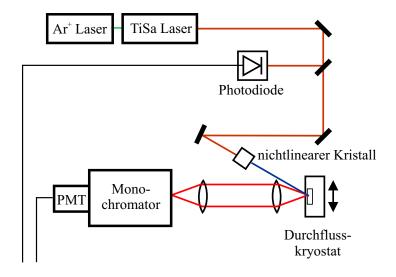


Abbildung 3.9: Schematischer Meßaufbau zur zeitaufgelösten Messung mit gepulsten Anregungslaser.

Ein Argon-Ionen (Ar^+) -Laser pumpt den Kristall des Ti:Sa optisch mit einer Leistung von 10 W. Dieser Kristall erzeugt dann aufgrund seiner nicht-linearen Ei-

genschaften (Kerr-Effekt) ultrakurze Pulse mit einer Pulsbreite von $100\,\mathrm{fs}$ und einer Wiederholrate von $82\,\mathrm{MHz}$ [39]. Die Ausgangsleistung liegt bei etwa 10% der Eingangsleistung, also etwa bei $1\,\mathrm{W}$. Der Laser ist durchstimmbar von $720\,\mathrm{nm}$ bis $850\,\mathrm{nm}$.

Natürlich kann die Probe über die im Infraroten liegenden Laserwellenlängen nicht optisch angeregt werden, denn man erwartet die Emissionslinien der Quantenpunkte im roten Spektralbereich. Dazu wird kurz vor dem Kryostaten die Frequenz des Laserstrahls mit Hilfe eines nicht-linearen Kristalls verdoppelt. Man erhält nun einen durchstimmbaren Bereich von 360 nm bis 425 nm, wobei es zu verhindern gilt, daß der direkt am Verdopplerkristall gefilterte unverdoppelte Laser aufgrund seiner hohen Intensität das QP-Signal überdeckt. Deshalb wird ein Rot-Filter dem Verdopplerkristall nachgestellt.

Die Anregungsleistung des UV- bzw. blauen Lasers liegt bei etwa $1^{\,0}/_{00}$ der Eingangsleistung, also bei circa 1 mW. Dabei heizt sich der Verdopplerkristall stark auf. Es kommt zu thermischen Schwankungen in der Anregungsleistung auf der Probe. Dies ist jedoch nicht der einzige Nachteil. Das Intensitätsprofil weicht aufgrund des Durchlaufs durch den nicht-linearen Kristall stark von der gaußschen Idealform ab, was erschwert, ihn auf das benötigte Mindestmaß zu fokussieren. Dieses Mindestmaß wird durch den Abstand der Mesen zueinander definiert, da man möglichst nur eine einzige Mesa anregen möchte.

Ebenso treten im Ti:Sa-Kristall selbst Instabilitäten durch thermische Effekte auf, die den Pulsbildungsprozeß stören [39].

Um zeitaufgelöst messen zu können, bedient man sich der Methode des zeitkorrelierten Einzelphotonenzählens. Dazu wird in den Strahlengang des Anregungslasers, noch vor dem Verdopplerkristall, ein halb durchlässiger Spiegel (beamsplitter) eingebracht, der einen Teil des Strahls auf eine Photodiode lenkt, deren Signal zur Triggerung der Messung benutzt wird. Damit erreicht man eine Zeitauflösung von 70 ps. Weitere Details zum Aufbau findet man in [23].

Kapitel 4

Messungen:

Dauerstrich-Photolumineszenz

Dauerstrich(cw)-Messungen werden zur allgemeinen Charakterisierung der Probe vorgenommen. Die Analyse der Lumineszenz-Linien erlaubt Aussagen über die Größe der Quanteninseln, ihre Einfang- und Rekombinationseffizienz sowie über Linienverbreiterungsmechanismen.

4.1 Ensemblemessungen

Um den Unterschied zwischen einer großen Zahl (Ensemble) von Quantenpunkten und einzelnen herausarbeiten zu können, sollten zunächst einmal die Photolumineszenz(PL)-Eigenschaften des Ensembles [37] untersucht und besprochen werden.

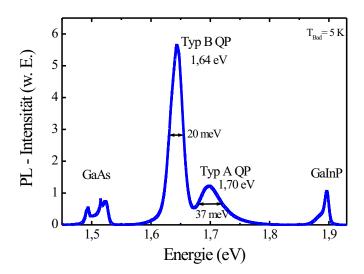


Abbildung 4.1: Typisches Spektrum eines Quantenpunktensembles gemessen von M. Jetter [37]. Deutlich sind die zwei verschiedenen QP-Größen zu erkennen, ebenso die PL von Substrat (bei 1,5 eV) und Barriere (bei 1,9 eV).

In Abbildung 4.1 sieht man ein typisches Spektrum einer gemischten (Typ B und A-QP; siehe auch Kapitel 3.1.2) Probe. Es kann um 1,5 eV das Signal des GaAs-

Substrates und bei etwa 1,9 eV das der GaInP-Barriere identifiziert werden.

Dazwischen liegt bei 1,64 eV das starke Signal der großen, Typ B-QP und bei 1,70 eV das deutlich schwächere der kleinen, Typ A-QP. Durch die stärkere Quantisierung sind die kleineren Quanteninseln zu höheren Energien verschoben. Wie erwartet sind auch die Spektren beider Typen vor allem durch die statistische Größenverteilung stark inhomogen verbreitert, wobei sich die Schwankungen in der Inselgröße, mit $\pm 1,8$ nm, bei den kleinen Quantenpunkten mit einer Verbreiterung um 37 meV (FWHM), gegenüber der Verbreiterung um 20 meV bei den großen, infolge der Quantisierung viel stärker bemerkbar macht.

Die hohe Intensität der PL der beiden Quantenpunktklassen deutet darauf hin, daß sie keine Versetzungen enthalten und vermutlich vollständig pseudomorph verspannt sind (kohärente Quantenpunkte). Eigentlich erwartet man auch ein Signal, welches von der Benetzungsschicht herrührt. Daß man keine Anteile dieses Quantenfilmes in Spektrum 4.1 findet, zeigt, daß der Ladungsträgereinfang des Quantenpunktensembles sehr effektiv ist. Dadurch wird das PL-Signal der wetting layer in seiner Intensität stark reduziert und vom Hochenergieausläufer des Typ A-QP-Spektrums überdeckt.

Die Existenz der wetting layer kann aber über PLE-Messung bestätigt werden [37].

4.2 Mesagröße

In Abbildung 4.2 sieht man für jede der vier Mesagrößen ein Spektrum. Als Anregungsleistung wurde aus den Erfahrungen mit den QP-Ensembles $43 \frac{W}{cm^2}$ gewählt (Abb. 4.2 (b)). Wie deutlich sichtbar wird, reicht diese Anregungsleistung bereits bei den größten Mesen aus, um selbst die angeregten Zustände der Quantenpunkte zu besetzen. Schön zu sehen ist das partielle Auffüllen der Niveaus durch die Abstufungen zu höheren Energien hin, das sogenannte state filling. Gerade bei den Mesengrößen von $1 \mu m$ und 500 nm.

Erwartet wird, daß ein klarer Übergang von gauß-förmigen Lumineszenzlinien wie in Abbildung 4.1 zu einer einzelnen, scharfen (im Rahmen der homogenen Linienverbreiterungsmechanismen, wie z.B. die Begrenzung durch die Energie-Zeit-Unschärfe) lorentzförmigen Linie im Einzelpunktspektrum erfolgt. Die Spektren zeigen jedoch bis hinunter zu den 200 nm großen Mesen noch stark verbreiterte Linien, wie die aus den Ensemble-Messungen bekannten Gaußkurven nur mit vereinzelten Peaks darauf. Doch warum ist das so?

Als ein wichtiger (weiterer) homogener Verbreiterungsmechanismus hat sich gerade bei geringer QP-Dichte die Ladungsträger-Exziton-Wechselwirkung erwiesen. Bei relativ schwach gebundenen Exzitonen können in der Nähe befindliche freie Ladungsträger mit ihrem elektromagnetischen Feld Einfluß auf den Exzitonenradius

 $^{^1\}text{Es}$ gilt $\Delta E\sim\frac{1}{W^2},$ wobei ΔE der energetische Abstand der Niveaus und W die räumliche Ausdehnung des Quantenpunktes ist.

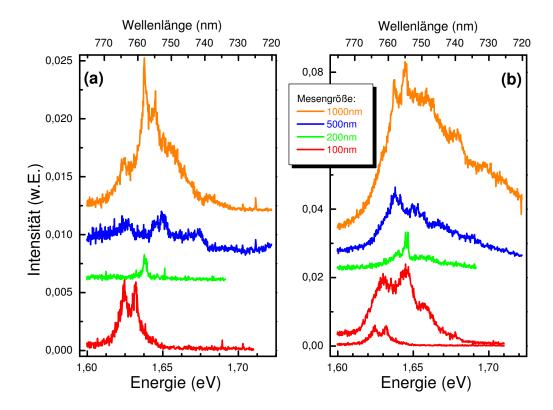


Abbildung 4.2: Ein Überblick über die typischen Spektren bei verschiedener Mesengröße, (a) bei geringer $(3 \frac{W}{cm^2})$ sowie (b) für hohe Anregungsleistung $(43 \frac{W}{cm^2})$. Ganz untern in (b) wurde zum besseren Vergleich die unterste Kurve des linken Bildes (a) übernommen.

und damit die Lage der quantisierten Zustände nehmen.

Eine - in dieser Zeitskala - längere Einflußdauer kann ein an eine Störstelle gebundener Ladungsträger aufweisen, eine sogenannte geladene Störstelle. Wie in Abbildung 4.3 schematisch für drei verschiedene Entfernungen dargestellt, hängt die Intensität der Beeinflussung von der räumlichen Nähe der Störstelle² zum Quantenpunkt ab. Entscheidend für die Übergangswahrscheinlichkeit und damit für die Lumineszenzintensität ist der Wellenfunktionsüberlapp von Elektron und Loch. Abbildung 4.3 zeigt auch, wie stark der Überlapp durch die Ladungsträger-Exziton-Wechselwirkung reduziert wird.

Besonders stark äußert sich der Einfluß durch die elektromagnetischen Felder bei Typ II-Quantenpunkten. Als vom Typ II bezeichnet man Quantenpunkte, wenn ein Ladungsträger im QP selbst lokalisiert ist, und der andere sich in der Barriere aufhält beziehungsweise, wenn sich im Ortsraum das Elektronenpotentialminimum entgegengesetzt zum Lochpotentialminimum befindet.

 $^{^2}$ Im Falle der vorliegenden Proben handelt es sich zumeist um Defekte, die im Laufe der Strukturierungsmaßnahmen in das Material eingebracht wurden.

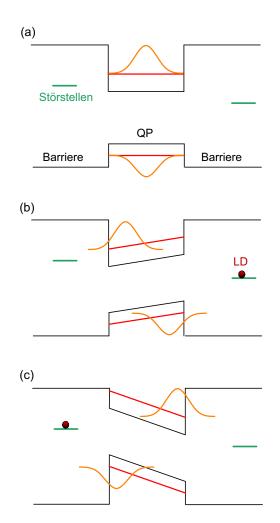


Abbildung 4.3:

Ein Typ I-Quantenpunkt mit Störstellen in drei verschiedenen Entfernungen zum Quantenpunkt:

- (a) der in einer Störstelle gebundene Ladungsträger (LD) befindet sich außerhalb der beeinflussenden Reichweite der Coulombwechselwirkung
- (b) eine nahe, geladene Störstelle verschiebt die QP-Niveaus
- (c) extreme Änderungen in der elektronischen Struktur des QP bei noch größerer Nähe. Es existiert nur noch ein geringer Wellenfunktionsüberlapp.

Das Exziton wird nicht durch den Einschluß aufgrund der räumlichen Größe (size confinement) örtlich an den QP gebunden sondern allein durch die Coulombwechselwirkung. Dabei verschiebt die Wellenfunktion des Ladungsträgers innerhalb des QP, wie man in Abbildung 4.4 sehen kann, in die Nähe des Quantenpunktrandes. Einen detaillierteren Übersichtsartikel findet man in [14] und Vergleiche mit anderen Materialsystemen in [40,41].

Die größere Ladungsträger-Exziton-Wechselwirkung bei Typ II-Quanteninseln erklärt sich nicht nur dadurch, daß die Exzitonen dem WEAK CONFINEMENT RE-GIME angehören, also schwach und fast ausschließlich über die Coulombwechselwirkung aneinander gebunden sind. Man muß sich zudem eine Bewegung vorstellen, die das Loch um das Quantenpunktpotential herum im Barrierenpotential ausführt. Hier ist es natürlich viel anfälliger für Störungen durch andere Ladungsträger und es kommt zu komplexen Bewegungen des Loches um das Elektron und damit, aufgrund des veränderten Exzitonenradius', zu einer ständigen Modifikation der Energie des Exzitons.

Die resultierende "Taumelbewegung" um den ursprünglichen Exzitonenradius

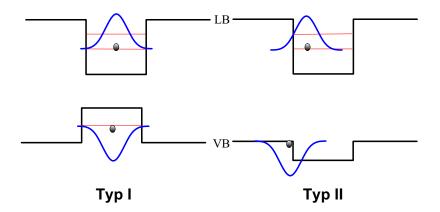


Abbildung 4.4: Der Bandkantenverlauf für Typ I- und Typ II-Quantenpunkte. Stilisiert eingezeichnet auch Energielevel für Elektronen und Löcher sowie die Ladungsträger selbst und deren Wellenfunktion.

verursacht eine Verbreiterung um die Linie für den statistischen Mittelwert. Dieser Effekt sollte um so stärker auftreten, je höher die Ladungsträgerdichte im System ist.

Schaut man sich deshalb in Abbildung 4.2 (a) die nachfolgend aufgenommenen Messungen mit weniger Anregungsleistung an, fallen einem zumindest bei den Spektren der 1000 und 200 nm-Mesen die deutlich schmaleren Emissionslinien auf: von 10 meV auf etwa 2-3 meV (nicht FWHM³).

Auffällig in der Serie mit geringerer Leistung, die man in Abbildung 4.2 (a) sieht, ist das Spektrum der 500er Mesa. Ihre Lumineszenz ist geringer und seltsam verbreitert. Dies führen wir auf einen Defekt in relativer Nähe des Quantenpunktes zurück. Das elektrische Feld eines eingefangenen Ladungsträgers blockiert, unterdrückt (quenched) und verschiebt die Emission aus der Mesa [42,43] (siehe hierzu auch Abbildung 4.3). Zusätzlich wirken diese Defekte noch als nichtstrahlende Rekombinationszentren, welche die Anzahl der am strahlenden Übergang beteiligten Ladungsträger deutlich mindern. Trotz der Reduzierung der Intensität kann man noch deutlich die Emissionslinien von Grundzustand und den ersten beiden angeregten Zuständen erkennen. Sie befinden sich, in guter Übereinstimmung mit dem theoretischen Modell für 'ungestörte' Emission [44] und den Ensemblemessungen [37], etwa 20 meV voneinander entfernt.

Des weiteren stellt sich die Frage, warum die Spektren so 'verrauscht' sind. Dafür gibt es eine ganze Anzahl von Erklärungen und Modellen, die sich zum Teil in ihren Auswirkungen überlagern und so schwer zuzuordnen sind.

Da wäre zunächst das Phänomen des blinkings: Defekte in relativ naher Um-

 $^{^3}$ Aufgrund der schlechten Trennbarkeit der einzelnen Emissionslinien auf Höhe der halben Maximalamplitude wurde im Sinne der Vergleichbarkeit die Linienbreite bei etwa 80% der Maximalamplitude bestimmt.

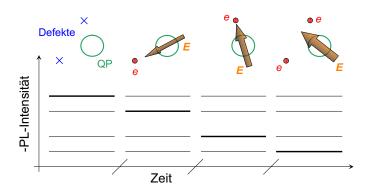


Abbildung 4.5: Modell für die zeitlich schwankende PL-Intensität, genannt blinking ([43]). Mehrere Defekte in der näheren Umgebung eines Quantenpunktes beeinflussen die PL-Intensität. Die Entfernung zur Quanteninsel bestimmt die Stärke der Einflußnahme. Durch Kombination der Defektbesetzungszustände kommen unterschiedliche Intensitätslevel zustande.

gebung (bis zu 20 nm) eines Quantenpunktes stören bzw. unterdrücken die Lumineszenz durch das elektrische Feld eines aufgenommenen Ladungsträgers [45,46,47,42,43] (Abbildung 4.5). Dieser Vorgang ist vergleichbar mit dem zeitlich konstanten quenching. Nach einiger Zeit wird der Ladungsträger wieder freigegeben und die Lumineszenz der Quanteninsel erscheint wieder unbeeinflußt. Die Blinkingraten reichen dabei von $\tau \ll 1\,\mathrm{s}$ bis hin zu mehreren Tagen. Zudem sind sie anregungsleistungsund temperaturabhängig

$$\tau_{off,T} = \frac{\tau_{off}(0)}{1 + a \cdot e^{-E/k_B T}},\tag{4.1}$$

wobei $\tau_{off}(0)$ die Zeit im 'Aus' (off)-Zustand bei einer Temperatur von 0 K sein soll. Abhängig von der Anregungsleistung findet man $\tau_P \sim P^{-\eta}$, wobei η die Anzahl der elementaren Anregungen ist, die das Wechseln zwischen den Helligkeitsstufen (switching) auslösen.

Da die Proben zur Strukturierung geätzt wurden, ist mit vielen Defekten zu rechnen und somit mit einer hohen Wahrscheinlichkeit bzw. Tendenz zum 'Blinken'. Durch das *blinking* kommt es zu einer zeitlichen Fluktuation des gesamten Spektrums.

Aufgrund der Lichtschwäche des Signals, gerade bei den kleinen Mesen, müssen aber Meßdauern von bis zu 10 s pro Wellenlänge in Kauf genommen werden, was zu einer Mittelung des Signals führt.

Zusätzlich kommt es zu einer Kopplung der Zustände in z-(also Höhen- bzw. Wachstums-) Richtung mit Zuständen aus der Quantisierung in der Ebene (vgl. Abbildung 3.4). Deren energetischer Abstand ist aufgrund des deutlich schwächeren confinement kleiner als die bereits erwähnten 20 meV für die z-Zustände der Typ B-QP.

Oberflächenzustände spielen ebenso mit schwachen, aufmodulierten Intensitäts-

maxima in kurzen Abständen beim Zustandekommen der Spektrumsgestalt eine Rolle.

Letztlich bleibt natürlich noch tatsächliches Rauschen, wie es prinzipiell bei jedem Experiment (Rauschen in der Meßapparatur), und bei diesem Experimentalaufbau im Speziellen vorkommt. Schließlich handelt es sich um einen Aufbau zur Detektion einzelner(!) Photonen. Und trotz abgedunkeltem Labor, läßt sich ein Restniveau an Umgebungslicht nicht vollständig unterdrücken.

Sowohl für die homogene Linienverbreiterung als auch für das Rauschen konnte zuletzt ein weiterer Mechanismus aufgedeckt werden [48].

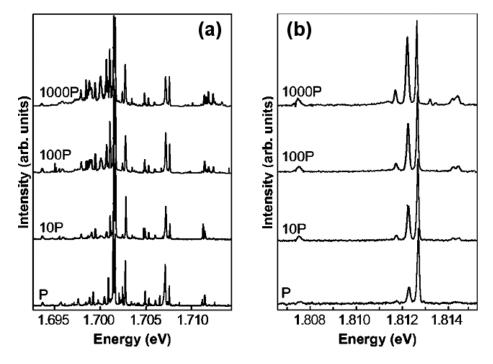


Abbildung 4.6: Emissionsspektren zweier Ensembles aus kleinen Typ A-QP. Die Vielzahl der Linien in (a) kann geladenen Exzitonen zugeordnet werden. Bei höheren Energien (respektive kleineren Quantenpunkten) fallen diese plötzlich weg (b). Erklärung im Text. (aus [48])

In Abbildung 4.6 sieht man die Emissionsspektren zweier QP-Ensembles. Die Vielzahl an scharfen Linien wird geladenen Exzitonen zugeordnet. Die Lage des Fermilevels (E_F) in Relation zum Grundzustand (GS) bestimmt darüber, ob ein Quantenpunkt als geladen bezeichnet wird, oder nicht.

Liegt das Ferminiveau, wie in Abbildung 4.7 im rechten Teilbild zu sehen ist, energetisch über dem Grundzustand, ist dieser immer besetzt. Abhängig von der Position des besetzenden Ladungsträgers im QP kommt es zu einer Deformation der Potentialverläufe in und um den Quantenpunkt herum. Mit zeitlich veränderlicher Besetzungsdichte resultiert daraus eine Vielzahl von möglichen Emissionslinien.

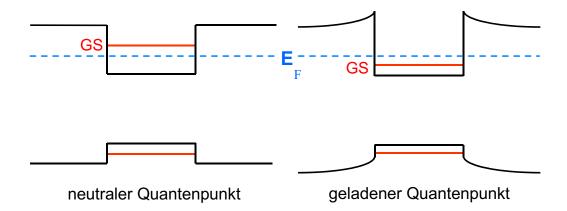


Abbildung 4.7: Durch Verschieben des Grundzustandes hin zu höheren Energien (von rechts nach links), kann ein Quantenpunkt 'entladen' werden. Erläuterung im Text.

Die Wechselwirkung läßt sich beschreiben durch einen Vielteilchen-Hamiltonian (\mathcal{H}_{viel}) , der sich aus dem Hamiltonoperator für ein Einteilchenproblem (\mathcal{H}_{ein}) , für die direkte Coulomb-Wechselwirkung $(\mathcal{H}_{Direkt-C-WW})$ und für die Austauschwechselwirkung $(\mathcal{H}_{Austausch-WW})$ zusammensetzt:

$$\mathcal{H}_{viel} = \mathcal{H}_{ein} + \mathcal{H}_{Direkt-C-WW} + \mathcal{H}_{Austausch-WW}$$
 (4.2)

Verantwortlich für die Vielzahl an spektralen Linien bei geladenen QP ist eine Aufspaltung der exzitonischen Niveaus durch die kurzreichweitige Austausch-Coulombwechselwirkung [48]. Hierbei können sogar Emissionslinien von sogenannten dark states, also verbotenen Übergängen beobachtet werden⁴.

Mit geringer werdender Größe der Quanteninseln jedoch verschiebt sich aufgrund der stärkeren Quantisierung der Grundzustand energetisch immer höher. Mit Überschreiten des Ferminiveaus wechselt der Quantenpunkt in einen neutralen Zustand, vergleichbar der schematischen Darstellung im linken Teilbild der Abbildung 4.7.

Persson et al konnten in [48] eine deutliche Abhängigkeit der Wahrscheinlichkeit für das Auftreten von geladenen Quantenpunkten gegenüber der Größe und damit der Position der Emissionslinie im Spektrum belegen. Nach den Werten aus [48] erwartet man⁵ also gerade für die von uns untersuchten beinahe ausschließlich geladene Quantenpunkte und hiermit stark verrauschte bzw. emissionslinienreiche Spektren.

Diesen Effekt kann man in allen in dieser Arbeit gezeigten Dauerstrichspektren sehen. Selbst bei den Spektren der Typ A-Quantenpunkte finden sich noch die scharfen Linien der Übergänge von geladenen Exzitonen.

⁴Für mehr Details sei an dieser Stelle auf [48] verwiesen.

⁵Es handelt sich um das gleiche Materialsystem und gleiche Wachstumsbedingungen. Zudem sind die Mechanismen weitgehend unabhängig von der betrachteten QP-Anzahl und somit übertragbar.

Beim Versuch eine Vergleichsserie von der Typ A-Quantenpunktprobe zu erstellen, überraschte zunächst, daß man auf dieser Probe, deren Substrat mit 15° Verkippungswinkel eigentlich ausschließlich Quantenpunkte vom Typ A aufweisen sollte, auch ein deutliches Signal von den größeren QP erhielt. Um dies zu belegen, sowie zum direkten Vergleich, wie sich Typ A- und Typ B-QP in einer gemeinsamen Mesa verhalten, wurden alle Spektren in Abbildung 4.8 in einem größeren Energiebereich aufgenommen.

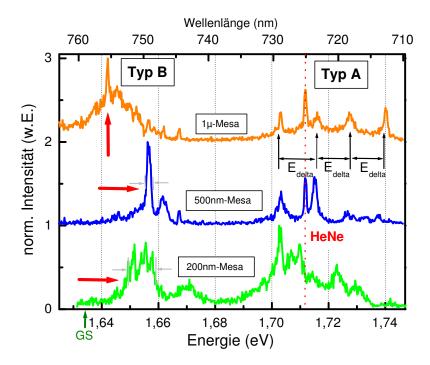


Abbildung 4.8: Der Einfluß der Mesengröße bei Typ A-Quanteninseln. Während die Badtemperatur bei allen Messungen 5 K betrug, mußte bei der 200 nm-Messung die Anregungsleistung von $0.4 \frac{W}{cm^2}$ auf $16 \frac{W}{cm^2}$ gesteigert werden, da das Signal sonst zu schwach wäre. Eine genauere Beschreibung der Spektren ist im Text zu finden.

Auffallend ist die Tatsache, daß sich zumindest für die kleineren Mesen die mittlere Typ B-QP-Größe verkleinert hat, erkennbar an der Lage der Grundzustandsemission (olivefarbener Pfeil ind Abb. 4.8), die nach Tabelle 4.I bei 1,636 eV zu erwartet gewesen wäre. Die Einhüllende der Typ B-Linien erfährt eine Blauverschiebung vom eigentlichen Grundzustand hin zu höheren Energien, genauer 1,655 eV (siehe auch rote Pfeile in Abb. 4.8), in die Nähe der Emissionslinien der kleinen, Typ A-Punkte, so daß, wie man im Spektrum der 200 nm-Mesa sehen kann, die angeregten Zustände der großen Punkte in die Flanke des Typ A-Grundzustandes übergehen. Offensichtlich durchlaufen die Typ B-QP den Ostwald'schen Reifeprozeß nicht vollständig, da

durch das verkippte Wachstum die Ausbildung kleiner Quantenpunkte energetisch bevorzugt wird.

Weiterhin ergibt sich ein erster Hinweis darauf, daß der Ladungsträgereinfang bei den großen Quanteninseln effektiver und die PL-Effizienz größer zu sein scheint. Denn, obwohl man von einer spürbar geringeren Quantenpunktdichte bzw. -anzahl gegenüber den kleinen Punkten ausgehen muß, da das Wachstum dieser unter den gewählten Bedingungen bevorzugt wird, ist die Intensität der Typ B-Punkte beinahe doppelt so groß. Um das zu verstehen, muß man sich die Existenz des *phonon bottleneck* in Erinnerung bringen. Durch den größeren Level-Abstand in den kleinen Quantenpunkten aufgrund des stärkeren *confinements* bedarf es Mehrteilchenprozesse, um von einem Niveau in das nächsttiefere zu relaxieren. Diese Prozesse haben aber eine geringere Wahrscheinlichkeit.

Die Vermutung bestätigt sich darin, daß gerade bei der $1000\,\mathrm{nm}$ -Mesa trotz relativ schwacher Anregungsleistung vier Niveaus mit einer ähnlichen Besetzungsdichte zu erkennen sind. Vier schwarze Pfeile mit einer Distanzangabe von E_{delta} dokumentieren dies in der Graphik 4.8. Stünden ausreichend und effektive Relaxationskanäle zur Verfügung, sollte der Grundzustand im Spektrum der Typ A-Punkte dominant sein, ähnlich dem Typ B-Spektrum im gleichen Graphen.

Durch die schwarzen Markierungen ist der Abstand der elektronischen Niveaus E_{delta} von etwa 13 meV hervorgehoben. Auf den ersten Blick widerspricht dies der Theorie, da doch der Abstand aufgrund des stärkeren confinements größer als bei den Typ B-QP sein sollte. Hier waren es etwa 20 meV. Doch muß man auch die Quantisierung in der x- und y-Richtung betrachten. Da hier die räumliche Ausdehnung der Quanteninsel größer als in z-Richtung ist⁶, liegen auch die entstehenden elektronischen Niveaus enger beisammen. Bei den großen QP lag der Abstand der x-/y-Zustände bei 5 bis 6 meV. Da die kleinen Quanteninseln ebenso in lateraler Richtung geringere räumliche Dimensionen haben, befinden sich die abgelesenen 13 meV durchaus im Rahmen des mit diesem Wissen Erwarteten.

Leider ist, trotz im Aufbau eingebrachter Bandfilter, eine Linie des Helium-Neon(*HeNe*)-Anregungslasers bei 1,7118 eV zu sehen, die das Spektrum nicht nur durch seine Anwesenheit stört (Abbildung 4.8: gepunktete rote Linie). Vielmehr werden in der Nähe befindliche Niveaus mehr oder weniger *resonant* angeregt, was zu einer überproportionalen Überhöhung derer Intensität führen kann.

Aufgrund des zu schwachen Signales mußte bei der 200 nm Mesa die Anregungsleistung gesteigert werden. Durch die gesteigerte Ladungsträgerdichte kompensieren die zuvor besprochenen homogenen Linienverbreiterungsmechanismen den Effekt der schwächeren Einfluß ausübenden inhomogenen Verbreiterungsmechanismen. Beobachtet man beim Schritt von 1000 nm zu 500 nm noch Linienbreiten von etwas über 3 meV hin zu 2 meV, so gewinnt man aus dem Spektrum der 200 nm Mesa Linienbreiten von über 4 meV (die unteren beiden Graphen in Abb. 4.8 tragen an den interessanten Stellen graue Distanzmarkierungen). Auch erscheint dieses Spektrum

⁶man rufe sich die Abbildung 3.4 auf Seite 28 in Erinnerung

mehr verrauscht, da ein Großteil der zuvor besprochenen "Verrauschungsmechanismen" ebenso leistungsabhängig ist.

Wie genau nun die Charakteristik der Quantenpunkte von der Anregungsleistung abhängt, wird im nächsten Kapitel detaillierter untersucht.

4.3 Leistungsserien

Das Ziel von Leistungsserien ist, Ladungsträgerkanäle aufzudecken und das Auffüllen der atomähnlichen Zustände zu beobachten. Es wird die elektronische Struktur des QP sichtbar. Zudem verhalten sich die verschiedenen Teilchen (z.B. Ladungsträger, Multiexzitonen, geladene Exzitonen) bei steigender Anregungsleistung respektive Ladungsträgerdichte im Quantenpunkt unterschiedlich. Der Einfluß der räumlichen Begrenzung ist ebenfalls von Interesse und wird durch das Ausnutzen der bimodalen Größenverteilung (siehe auch Kapitel 3.1.2) untersucht.

Die beschriebenen Effekte und Verhaltensweisen kann man am besten, weil unbeeinflußt, an einzelnen Quantenpunkten untersuchen.

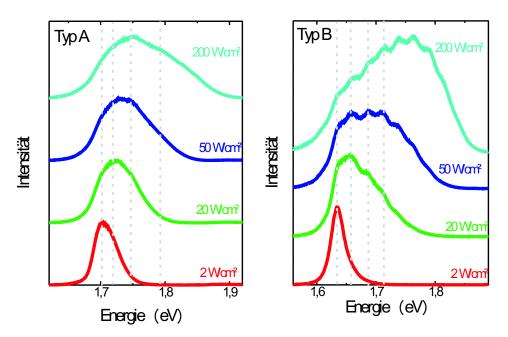


Abbildung 4.9: Typ A und Typ B Quantenpunktensemblespektren bei verschiedenen Anregungsleistungen ($T_{Bad} \approx 5 K$). Die gestrichelten Linien dienen der Führung des Auges und markieren die vermuteten QP-Zustände.

Dabei trifft man auf folgendes Problem: nachdem man den Neutraldichtefilter in den Strahlgang gebracht hat, kann man nicht mit Sicherheit sagen, ob man noch immer auf der selben bzw. überhaupt auf einer Mesa "sitzt". Schon ein minimaler Versatz durch die Brechung des Laserstrahls im Filter führt über den weiteren Weg bis zur Probe zu Lageveränderungen auf der Probe im Maßstab mehrerer Mikrometer. Da die Mesen aber nur einen Durchmesser von maximal einem Mikrometer aufweisen und man davon ausgeht, daß die photoinduzierten Ladungsträger nur über eine Entfernung von circa einem Mikrometer eingefangen werden können, führen solche Lageveränderungen des Fokus' meistens zu einem Verlust des Signals. Dieses muß dann in einer zeitraubenden, weil kritischen, Prozedur wiedergefunden werden. Hierzu wird die Lage des Kryostats über die Mikrometerschrauben verändert.

Nun liegen aber die Mesen selbst nur $60\,\mu\mathrm{m}$ voneinander entfernt, so daß man mit dem etwa 20 bis $30\,\mu\mathrm{m}$ durchmessenden Fokus relativ schnell in den Einfangbereich einer Nachbarmesa gerät. Damit verändern sich Lage und Intensität der wichtigsten Merkmale im Spektrum bereits ohne den Einfluß der Anregungsleistungsänderung.

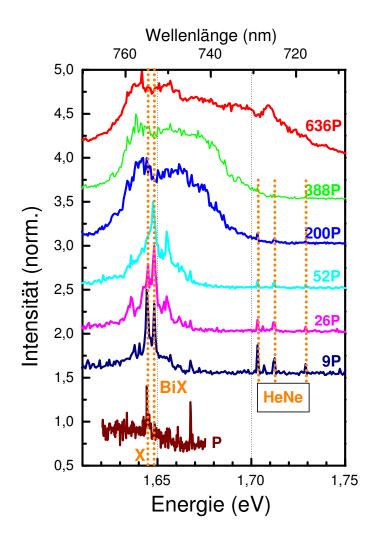


Abbildung 4.10:

Eine Leistungsserie an einer 200 nm-Typ B-Mesa. Alle Spektren wurden bei T=5K aufgenommen. Pentspricht einer Anregungsleistung von nur $0.25 \frac{W}{cm^2}$. Mit X wird die Lage des Exzitons und mit BiX die des Biexzitons bezeichnet. Detaillierter im Text.

Da sich das Auffinden einer 100 nm Mesa mit intaktem Quantenpunkt aus zuvor genannten Gründen extrem schwierig gestaltete, wurden die meisten "Einzelpunkt-

messungen" an einer 200 nm Mesa durchgeführt⁷.

In Abbildung 4.10 sieht man eine Leistungsserie von nur $0.25 \frac{W}{cm^2}$ bis hin zum 636-fachen Wert $(159 \frac{W}{cm^2})$ gewonnen an einer $200 \, \text{nm-Typ}$ B-Mesa. Sie zeigt deutlich, die Feinstruktur der Spektren zunächst einmal vernachlässigend, mit steigender Anregungsleistung das Entstehen zusätzlicher Emissionslinien hin zu höheren Energien. Dieses Verhalten kennen wir von den Ensemblespektren, wie man sie z.B. in Abbildung 4.9 sehen kann. Es handelt sich dabei um einen Auffüllungsprozeß der Quantenpunktzustände, das sogenannte state filling. Deutlich zu erkennen ist, daß nach Sättigung eines Zustandes jeweils an der Hochenergieseite ein neues Emissionsmaximum (peak) entsteht und bei weiterer Steigerung der Leistung sogar dominant wird.

Wirklich interessant wird es aber, wenn man in Abb. 4.10 die Feinstruktur in den Spektren der schwächsten vier Anregungsleistungen betrachtet, für die gilt: $P_{anr} \leq 52\,P_0(\hat{=}13\,\frac{\rm W}{\rm cm^2})$. Bei der geringsten Leistung ist primär nur eine Linie bei 1,644 eV auszumachen. An den Flanken findet man eine Vielzahl von Linien, die ich als Emissionslinien eines geladenen Quantenpunktes deute. Zusätzlich zur Tatsache, daß die untersuchten Quanteninseln vom Typ B sind und damit nach [48] aufgrund ihrer Größe und des damit einhergehenden schwächeren confinements mit höchster Wahrscheinlichkeit das Ferminiveau über dem Grundzustand liegt, ist die Ähnlichkeit zu Abbildung 4.6 (a) ein starker Beleg für vorige Aussage.

Steigert man die Ladungsträgerdichte über die Anregungsleistung $P_0 = 0, 25 \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$, entsteht 4 meV weiter auf der Hochenergieseite dieser Linie eine zweite. Eine weitere Steigerung der Leistung läßt die zuvor dominante Niederenergielinie langsam in der Flanke des neuen Peaks verschwinden. Aufgrund dieses Verhaltens kann davon ausgegangen werden, daß es sich bei der ersten gestrichelten Linie in Abb. 4.10 um die exzitonische Grundzustandsemission \mathbf{X} und bei der energetisch folgenden um die Emissionslinie eines Biexzitons \mathbf{BiX} handelt.

Die Frage, die sich nun stellt, ist: Warum erscheint die Biexzitonsemission energetisch höher als die des Exzitons? Nach dem klassischen Bild (Abbildung 4.11) senkt sich die Energie des Biexzitons durch die Bildung des Quasimoleküles gerade um die Bindungsenergie unter den Wert eines Exzitons (siehe auch Kapitel 2.6). Dann müßte sich aber die **BiX**-Emissionslinie links (zu niederen Energien hin) von der Exzitonenlinie (**X**) befinden.

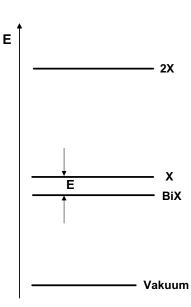
In [48] fanden *Persson et al*, daß die Lage der Biexzitonenemissionslinie relativ zur exzitonischen Grundzustandsemission von der Quantenpunktgröße abhängt. Ist ein QP groß genug, erscheint die **BiX**-Linie auf der Hochenergieseite der **X**-Linie. Der genau ermittelte Zusammenhang zwischen Quantenpunktgröße und Lage des Biexzitons ist in Abbildung 4.12 dargestellt. Demnach sind *negative Bindungsenergien* explizit möglich.

Dem Diagramm 4.12 kann man auch entnehmen, daß negative Bindungsenergien

⁷Natürlich mit der Einschränkung, daß sich statistisch gesehen mehr als ein QP innerhalb der Mesa befindet. Vergleiche mit Einzelpunktspektren aus Arbeiten anderer Gruppen (z.B. *Pryor et al* [26,48]) am gleichen Materialsystem zeigen, daß diese Näherung vertretbar ist.

Abbildung 4.11:

Das klassische Exzitonen-Biexzitonen-Bild. Bei der Bildung eines Biexzitones wird gerade die 'Bindungsenergie' $\Delta \mathbf{E}$ frei. Mit \mathbf{X} ist die energetisch Lage der exzitonischen Grundzustandsemission, mit $\mathbf{2X}$ die zweier schwach wechselwirkender Exzitonen und mit \mathbf{BiX} die Emission eines Biexzitonenüberganges bezeichnet. Die Bindungsenergie ist positiv für positive Werte von $E_X - E_{BiX}$ definiert.



für alle QP mit einer Höhe von mehr als etwa 3,5 nm in Wachstumsrichtung zu erwarten sind. Da nach dem Höhenhistogramm 3.7 auf Seite 31 ausschließlich für sehr kleine Exemplare der Typ A-QP eine solche Höhe zu erwarten ist, kann man die Lage des Biexzitons in Abbildung 4.10 durchaus als stellvertretend für (zumindest) die Typ B-Proben sehen.

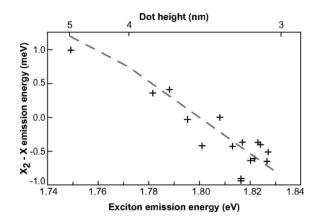


Abbildung 4.12:

Der von $Persson\ et\ al\ ermittelte$ Zusammenhang zwischen Quantenpunktgröße und Abstand der exzitonischen Linie X zur Biexzitonenlinie (in dieser Graphik X_2). Positive Werte bedeuten, daß die Biexzitonenemission zu höheren Energien hin liegt, als die Exzitonenlinie (aus [48]).

Die Biexzitonenbindungsenergie, die man an der energetischen Entfernung des Biexzitonenpeaks zur exzitonischen Grundzustandslinie ablesen kann (siehe auch Formel 2.8), kann mit Abbildung 4.10 zu -4 meV bestimmt werden.

Aufgrund der geringen Linienbreite mit 1 bis 2 meV kann davon ausgegangen werden, daß sich innerhalb der 200 nm Mesa nur ein intakter Quantenpunkt oder aber mehrere gleich große befunden haben. Die Linienbreite ist deutlich geringer als bei einem Ensemble mit dem 10 bis 37-fachen Wert (vgl. Abbildung 4.9) und daher hauptsächlich auf homogene Linienverbreiterungsmechanismen zurückzuführen. Nimmt man nun die Exzitonenenergie von 1,648 eV und vergleicht sie mit den

Berechnungen in [26], kann man die Größe (in z-Richtung) des bzw. der Quanteninseln bestimmen. Demnach besaß der vermessene Quantenpunkt eine Höhe von circa 12 nm.

An der Niederenergieflanke der Exziton-Biexziton-Linie ist bei einer Ladungsträgerdichte, die einer Anregungsleistung vom 26-fachen des Startwertes entspricht, um etwa 1,636 eV eine weitere Linie am Entstehen. Vermutlich handelt es sich um die ersten Multiexzitonen und bzw. oder geladenen Exzitonen überlagert von einer Phononenreplik⁸ des auf der Hochenergieseite entstehenden Lumineszenzpeaks.

Noch höhere Anregungsleistungen zeigen den Multiexzitonenanteil auf der Niederenergieseite des exzitonischen Grundzustandes dominanter, so daß dieser sogar in der Hochenergieflanke der neuen Emissionslinie verschwindet und führen zu starker Linienverbreiterung bis in eine Größenordnung von $10\,\mathrm{meV}$ und mehr. Zudem erkennt man ein leichtes Verschieben der Spektrumsmerkmale durch den nun auftretenden Einfluß der Exziton-Exziton-Wechselwirkung (zur Orientierung sei die linke gestrichelte Linie zur Markierung der Exzitonemission \mathbf{X} in Abbildung 4.10 empfohlen).

Ansonsten kann, so lange noch die Auflösung einzelner Emissionslinien möglich ist, keine wie von den Ensembles her bekannte Blauverschiebung der Einhüllenden ausgemacht werden. Daher ist weitgehend von einer Leistungsunabhängigkeit der Lage der energetischen Niveaus auszugehen, wenn man von den leistungsabhängigen homogenen Linienverbreiterungsmechanismen und etwaigen Exziton-Exziton-Wechselwirkungseffekten einmal absieht.

Die Linien in Abbildung 4.10 bei 1,703 eV und bei 1,712 eV gehen auf Anregungslinien des HeNe-Gasplasmas im Anregungslaser zurück.

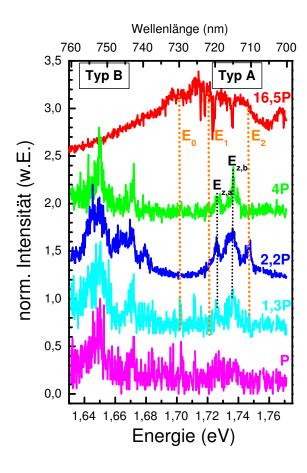
Zum Vergleich wird die Leistungsserie einer Typ A-200 nm-Mesa in Abbildung 4.13 dargestellt. Was zunächst ins Auge fällt, ist, daß bei geringen Anregungsleistungen primär die PL der großen QP gefüttert wird. Wieder einmal zeigt sich die bessere Einfang- und/oder Rekombinationseffizienz des großen Quanteninseltypes. Dieses Verhalten wurde auch von [49] speziell für bimodale Größenverteilungen, wie wir sie hier vorliegen haben, untersucht.

Prinzipiell ist die höhere Effizienz aber schon aus thermodynamischen Überlegungen heraus zu verstehen: Besteht zwischen den Quantenpunkten eine ausreichend große Wechselwirkung, wird sich ein thermodynamisches Gleichgewicht einstellen. Das heißt, es erfolgt eine thermische Besetzung der Energieniveaus der QP. Letztlich wird also der Prozeß bevorzugt, dessen Endzustand energetisch tiefer liegt. Aufgrund des schwächeren confinements ist dies genau bei den Typ B-Quantenpunkten der Fall (vgl. auch Abbildung 4.14). Auch findet sich hier wegen der geringeren Niveauabstände eher ein "passendes" Phonon, unter dessen Emission der Ladungsträger weiter relaxieren kann.

Betrachtet man in Abbildung 4.13 den Graphen für die niedrigste Anregungsleistung (magentafarben) mit $P=9,5\,\frac{\rm W}{\rm cm^2}$, findet man bei etwa 1,650 eV den Grund-

⁸Phononenrepliken entstehen durch phononenassistierte, strahlende Exzitonenübergänge.

Abbildung



Eine Leistungsserie an einer $200\,\mathrm{nm}\text{-}\mathrm{Mesa}$ auf der Typ A-Probe. Alle Spektren wurden bei $T=5\mathrm{K}$ aufgenommen.

P entspricht einer An-

4.13:

regungsleistung von nur $9.5 \frac{W}{cm^2}$. Eine genauere Beschreibung findet man im Text.

zustand der Typ B-QP und bei 1,670 eV kann man die Andeutung eines ersten angeregten Niveaus erkennen. Dafür läßt sich die Präsenz der kleinen Quantenpunkte nur an einem schwachen, stark verbreiterten Signal zwischen 1,72 eV und 1,74 eV erahnen. Ein ähnliches Bild ergab sich in Abbildung 4.8 auf Seite 45 im untersten (grünen) Graphen auch für eine 200 nm-Typ B-Mesa. Damit scheint die im vorigen Absatz aufgestellte These belegt.

Bei Erhöhung der Anregungsleistung kann man in Abb. 4.13 vor allem bei den großen QP ein Auffüllen der angeregten Zustände erkennen, deren Emissionslinien bei der Messung mit der höchsten Anregungsleistung $16,5P = 157 \frac{W}{cm^2}$ mit dem Signal der Typ A-Punkte übereinanderfallen.

Schon bei Verdopplung der Anregungsleistung vom Startwert aber formt sich im energetischen Bereich der kleinen Quanteninseln um 1,73 eV nun zum ersten Mal ein deutliches Signal heraus, welches man bei Erhöhung der Leistung um 30% schon erahnen konnte. Nichtsdestotrotz bleibt das PL-Signal der Typ B-QP zunächst dominant.

Die drei erkennbaren Emissionslinien bei $1,725\,\mathrm{eV},\ 1,735\,\mathrm{eV}$ und $1,746\,\mathrm{eV}$ können folgendermaßen zugeordnet werden. Aus den Ensemblemessungen [37] vermutet man bei $1,746\,\mathrm{eV}$ das zweite angeregte Niveau E_2 der Typ A-Punkte (siehe Tabelle 4.I aus [37]). Mit einem energetischen Abstand von 10 bis $11\,\mathrm{meV}$ lassen sich die

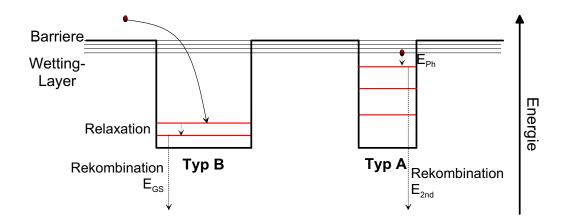


Abbildung 4.14: Die verschiedenen Einfang- und Relaxationsprozesse bei Typ B und Typ A-QP. Während letztere ihre Ladungsträger fast ausschließlich aus der wetting layer durch Relaxationsprozesse bezieht, erhält der Typ B Quantenpunkt seine Ladungsträger hauptsächlich aus der Barriere [37]. Zudem muß der energetische Abstand, den es durch Relaxation zu überbrücken gilt, mit einer im Gitter möglichen Phononenergie E_{Ph} übereinstimmen. Die Energien E_{GS} und E_{2nd} entsprechen den Photonenergien des PL-Signals des Grund- und des zweiten angeregten Zustandes.

davor liegenden Linien als aus der lateralen Quantisierung folgende Niveaus $E_{z,a}$ und $E_{z,b}$ festlegen. Erst bei den höchsten Anregungsleistungen erkennbar, liegen auf der Niederenergieflanke der ersten starken Typ A-Linie noch schwache Anteile des Grundzustandes E_0 und des ersten angeregten E_1 aufmoduliert. Zur Besseren Verfolgung und Führung des Auges sind in Abbildung 4.13 zwei gestrichelte Linien an deren Energien eingetragen.

Zustand	E_0	E_1	E_2	E_3
Typ A	$1,701\mathrm{eV}$	$1,718\mathrm{eV}$	$1,746\mathrm{eV}$	$1,792\mathrm{eV}$
Тур В	$1,636\mathrm{eV}$	$1,658\mathrm{eV}$	$1,687\mathrm{eV}$	$1,713\mathrm{eV}$

Tabelle 4.I: Die Energien des Ensemblegrundzustandes und der ersten drei angeregten Quantenpunktzustände an den in Abbildung 4.9 markierten Stellen (aus [37]).

Doch warum ist das zweite angeregte Niveau das dominante in z-Richtung? Auch hier macht sich der *phonon bottleneck* vor allem an den Typ A-Punkten bemerkbar. Die meisten Ladungsträger werden zunächst, wie in Abbildung 4.14 schematisch dargestellt, direkt in der Barriere angeregt und gelangen durch eine sehr schnel-

 $^{^9}$ Aufgrund der geringeren Quantisierung senkrecht zur Wachstumsrichtung (siehe Abbildung 3.4 auf Seite 28: Wachstumsrichtung bezeichnet mit z) liegen die Energieniveaus hier deutlich dichter.

le Relaxation in die wetting layer [49]. Eine weitere Relaxation kann aufgrund der starken Quantisierung der z-Richtung¹⁰ nur mit geringer Wahrscheinlichkeit erfolgen und äußert sich in einem schwachen PL-Signal der Ziel-Zustände¹¹ des Relaxationsprozesses. Ausgenommen sind die Relaxationsprozesse, für die es gerade ein "passendes" Phonon mit E_{Ph} gibt (siehe Abbildung 4.14); bzw. bei denen der energetische Abstand wetting layer zu elektronischem Quantenpunktzustand "in Resonanz" mit einem Phonon des Gitters liegt.

4.4 Temperaturserien

Die meisten der bisherigen Untersuchungen, wie Typenvergleich und Leistungsserien, wurden bei sehr tiefen Temperaturen $(T=5\mathrm{K})$ vorgenommen. Relativ geringe Anregungsleistungen vorausgesetzt, befindet sich so ein Großteil der Ladungsträger im Grundzustand der Quantenpunkte. Durch sukzessive Erhöhung der Temperatur ist es möglich, konkurrierende Prozesse sowie Relaxations- und Rekombinationskanäle aufzudecken, sowie über Umrechnung von Temperatur auf Energie Aktivierungsenergien zu determinieren.

Um diese Arbeit auf das Wesentliche bzw. das eigentliche Ziel, nämlich die Untersuchung von einzelnen Quantenpunkten, zu beschränken, wird im Folgenden nur auf die kleinen und kleinsten Mesen mit stark reduzierter QP-Zahl eingegangen. Die ebenfalls gewonnenen Ergebnisse aus Messungen an den großen Mesen bringen keine neuen Erkenntnisse und seien aus diesem Grunde hier vernachlässigt. Dieser Punkt ist insofern von großer Bedeutung, als daß damit gezeigt wird, daß es bei durchschnittlichem Quantenpunktabstand keine wesentliche Wechselwirkung von QP zu QP gibt.

Die beiden Abbildungen 4.15 zeigen ein Energie-Temperatur-Diagramm mit farbkodierter Intensität. Wobei dunkelblau die niedrigste und rot die höchste Intensität widergibt. Teilbild 4.15 (a) enthält die temperaturabhängige PL einer Typ B-200 nm-Mesa mit hoher Anregungsleistung $(23 \frac{W}{cm^2})$, während diese in (b) weniger stark angeregt wurde $(2.8 \frac{W}{cm^2})$.

In Abbildung 4.15 (a) sind die Emissionsgebiete der jeweiligen Quantenpunkt-Typen bezeichnet. So kann man die Hauptemissionsbereiche von 1,63 eV bis hin zu 1,68 eV den Typ B-QP zuordnen, während die zwischen fünf und 25 Kelvin sichtbare Emission von 1,70 eV bis 1,72 eV von Typ A-Quanteninseln stammt.

Der relativ gleichmäßigen Intensitätsverteilung bis 25 K über die Energie nach zu schließen, stehen bei tiefen Temperaturen zwar noch genügend Phononen als Streupartner in tiefere Zustände zur Verfügung, aber die Relaxatioszeit $\tau_{rel,intra}$ innerhalb des QP scheint gegenüber $\tau_{rel,WL}$ von der Barriere bzw. der wetting layer

¹⁰Die z-Richtung ist nach Abbildung 3.4 (S. 28) die Wachstumsrichtung des Quantenpunktes.

¹¹Die Zielzustände sind, wie zuvor erwähnt, durch das thermodynamische Gleichgewicht definiert. Die thermische Besetzungswahrscheinlichkeit für den Grund- oder den ersten angeregten Zustand ist demnach höher als die des zweiten angeregten Zustandes.

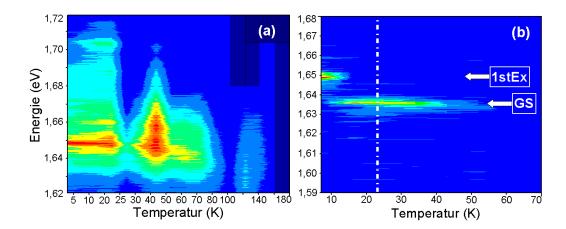


Abbildung 4.15: Energie-Temperatur-Diagramme für (a) hohe Anregungsleistung $(23 \frac{W}{cm^2})$ und für (b) geringe $(2.8 \frac{W}{cm^2})$ an einer Typ B-200 nm-Mesa. Die Intensität ist farbkodiert: dunkelblau entspricht der niedrigsten Intensität und rot der höchsten. Beide Abbildungen zeigen unterschiedliche Energiebereiche. Die Erklärung der Zusatzgraphiken ist im Text zu finden.

groß zu werden. Wichtiger jedoch ist, daß die Relaxationszeit die Dimension der Rekombinationszeit τ_{rek} erreicht. Die Ladungsträger können rekombinieren bevor der Relaxationsprozeß beendet ist. Dies führt im PL-Spektrum zu einem mehr oder minder gleichmäßigen Auffüllen der Zustände.

Sehr auffällig ist der komplette Zusammenbruch der Photolumineszenz über das gesamte Spektrum bei 25 K (orangener Pfeil in Abb. 4.15 (a)). Dieses zunächst unerwartete Ergebnis wurde durch ein wiederholtes Messen¹² bestätigt und es kann davon ausgegangen werden, daß nicht etwa eine unbeabsichtigte Dejustage des Strahlengangs der Grund für das ausbleibende Signal ist.

Ursache des PL-Zusammenbruchs bei circa 25 K ist die thermische Aktivierung eines nichtstrahlenden Konkurrenzprozesses. Dafür kommt mit hoher Wahrscheinlichkeit ein Defektzustand in Frage. Von diesem werden bei ausreichender 'Wärmezufuhr' Ladungsträger eingefangen, deren Felder die Photolumineszenz unterdrücken (quenchen; Abb. 4.3) oder sogar rot-verschieben können [50]. Dieser Prozeß ist ähnlich dem zuvor (Kap. 4.2 auf S.41) bereits beschriebenen blinking [42,43]. Die Aktivierungsenergie des Defekt-Zustandes liegt demnach bei $E_{akt}(T=25K)=k_BT\approx 2,2\,\mathrm{meV}$.

Unter einer Temperatur von 25 K ist, wie bereits erwähnt, bei einer spektralen Position von 1,70 eV Lumineszenz zu sehen, die man einem Typ A-QP zuordnet. Bei höheren Temperaturen fällt diese weg, da die Emission der kleinen Punkte, wie bereits aus den Ensemblemessungen bekannt ist, früher zusammenbricht und außer-

 $^{^{12}\}mathrm{Erst}$ beim Wiederauftauchen der Lumineszenz wurde Verdacht geschöpft und zur Überprüfung die Temperatur wieder gesenkt und ein weiteres mal erhöht. Das Ergebnis der ersten Messung konnte bestätigt werden.

dem die thermische Reemission (*thermal escape*) in die wetting layer und/oder die Barriere eintritt. Anders bei den Typ B-QP, deren PL wird dominanter, weil sowohl Relaxationsprozesse als auch Einfangprozesse effektiver werden. Zudem stehen nun zusätzlich die Ladungsträger zur Verfügung, die durch thermische Aktivierung aus den Typ A-Punkten emittiert wurden.

Bei weiterer Erhöhung der Temperatur kommt es zur Sättigung des Verlustzustandes und die PL-Intensität nimmt mit niederen Energien beginnend wieder zu.

Aber nach der Auslöschung der PL fehlen die höchsten angeregten Zustände. Es sind mehr phononische Relaxationskanäle offen. Die angeregten Ladungsträger haben nun die Möglichkeit, in die energetisch günstigsten, weil tiefsten Zustände zu relaxieren. Das erklärt auch deren höhere Lumineszenz-Intensität (schwarze Ellipse). Daß auch die angeregten Zustände trotz besserer Relaxationsmöglichkeiten mehr Intensität aufweisen als unter 25 K sowie die allgemeine Verbreiterung der PL¹³, läßt sich durch die zusätzliche thermische Energie ($E_{th} = k_B T$) erklären, die nun die Größenordnung der Niveauaufspaltung erreicht und eine Besetzung höherer Niveaus auch ohne stärkere Anregung ermöglicht.

Bei etwa 45 K erreicht die PL-Intensität dann ihr lokales Maximum und mit weiter steigender Temperatur entleeren sich die höheren Typ B-Zustände aufgrund von thermischer Reemission in die Barriere. Der nahezu exponentielle Verlauf¹⁴ der Intensitäts-Hüllkurve (gelbe gestrichelte Linie) in Abbildung 4.15 (a) belegt zuvor getroffene Aussagen gut.

Die Photolumineszenz bricht zwischen 80 und 100 K ein weiteres, letztes Mal zusammen. Auch hier finden wir nichtstrahlende Verlustprozesse als Erklärung.

Verfolgt man den in Abbildung 4.15 (a) (gestrichelt) skizzierten Bandkantenverlauf über die Temperatur hinweg (gestrichelte schwarze Linie), so kann man schon qualitativ eine Absenkung der Bandkante feststellen. Aber dazu später mehr.

Zur Ergänzung der Erkenntnisse aus den Meßergebnissen war es nötig einen Temperaturverlauf des Spektrums ohne das "störende" state filling aufzunehmen. Dazu wurde die Anregungsleistung in etwa geachtelt und, aufgrund der geringen Lumineszenzausbeute, in Langzeitmessungen von bis zu 15 Minuten Dauer pro Energieschritt entstand Abbildung 4.15 (b). Auch sie zeigt ein Energie-Temperatur-Diagramm mit farbkodierter Intensität, jedoch wegen der besseren Darstellung in einem engeren Energiebereich. Wie in Teilbild (a) ist die Intensitätskodierung zur optimalen Darstellung des Sachverhaltes willkürlich normiert.

Deutlich ist in Teilbild (b) zu erkennen, wie bei etwa 10 K, was einer thermischen Energie von $E_{th} = 0,9$ meV entspricht, ein Relaxationskanal vom ersten angeregten Zustand in den Grundzustand erschlossen wird. Schaut man sich aber die Liste (Tabelle 4.II) der verfügbaren Phononen des Materialsystems InP/GaInP an, findet man kein passendes Phonon. Der Wert von E_{th} ist jedoch mit einem relativ großen Fehler belegt. Durch die 5 K-Schrittweite ergeben sich 0,4 meV und durch meßaufbaube-

¹³vgl. auch Abbildung 4.16; Teilbild (a) ist ein Schnitt durch 4.15 (a) bei ca. 45 K

¹⁴Man beachte den nicht vollständig linearen Verlauf der Abszissenskala.

dingte Fehler (Spaltbreite) etwa 1 meV an Spielraum. Gesucht ist also ein Phonon der Energie von 0 bis zu 2,3 meV.

		GaP	InP	GaInP
	ГА	10,7	6,8	8,8
I	JA	26,4	20,7	23,7
Γ	O	45,4	37,7	40,9

Tabelle 4.II: Die Energien der möglichen TA-, LA- und TO-Phononen in Millielektronenvolt in diesem Materialsystem unter Berücksichtigung des Phänomens des *orderings* (aus [24]). Erklärung im Text.

Ein solches stellt das Materialsystem aber nicht zur Verfügung (Tabelle 4.II). Zieht man jedoch Multiphononprozesse, also Linearkombinationen der verfügbaren Phononen, mit in Betracht, kommt man in die Größenordnung der Relaxationsenergie. So sind folgende Kombinationen möglich, wobei Energien mit positivem Vorzeichen der Emission und Energien mit negativem Vorzeichen der Absorption eines Phonons entsprechen:

 $E_{relax,1} = E_{TA,GaInP} - E_{TA,InP} = 2 \,\text{meV}$ und $E_{relax,2} = E_{TA,GaP} - E_{TA,GaInP} = 1,9 \,\text{meV}$. Und wenn man zusätzlich Prozesse einbezieht, die unter Beteiligung von mehr als zwei Phononen stattfinden, steigt die Zahl der Möglichkeiten steil an, wobei jedoch die Wahrscheinlichkeit des Eintretens einer solchen Prozeßkombination rapide sinkt, z.B.: $E_{relax,3} = E_{TO,InP} - E_{TA,GaP} - E_{LA,GaP} = 0,6 \,\text{meV}$ oder $E_{relax,4} = E_{LA,InP} - 3 \cdot E_{TA,InP} = 0,3 \,\text{meV}$.

Mit ordering bezeichnet man Anordnungen eines Untergitters im eigentlichen Gitteraufbau, also ein Supergitter. So bilden sich z.B. beim ternären Meßmaterialsystem GaInP statt eines homogenen Gitters häufig Lagen einer reinen GaPbzw. InP-Schicht aus. Es entsteht eine Ortsabhängigkeit der spezifischen Materialdaten wie Gitterkonstante, Bandlücke, Phononen usw. [24]. Aufgrund des Ordering-Phänomens steigt die Zahl der möglichen verschiedenen Phononen, die dem System zur Relaxation zur Verfügung stehen.

Durch die Möglichkeit der Multiphononenprozesse muß man also die zuvor aufgestellte These umformulieren: Im Bereich bis 10 K findet keine Relaxation vom ersten angeregten in den Grundzustand statt, da zu wenige passende Phononen zur Verfügung stehen. Die Relaxationszeit erreicht die Dimension der Rekombinationszeit und übersteigt diese sogar: $\tau_{rekomb} < \tau_{relax}$. Das System unterliegt einem Relaxationsflaschenhals bzw. einem phonon bottleneck. Mit steigender Temperatur stehen mehr passende Phononen als Streupartner zur Verfügung und ermöglichen so die Relaxation. Hier gilt: $\tau_{rekomb} > \tau_{relax}$.

Nun stellt sich die Frage, warum man in Abbildung 4.15 (a) keinen derart ausgeprägten Relaxationsflaschenhals sieht. Die Messungen zu diesem Bild wurden mit

¹⁵Es gilt Energie- und Impulserhaltung!

achtfacher Anregungsleistung durchgeführt und es stehen deshalb entsprechend viele Ladungsträger zur Verfügung. Zudem erhöht sich die Ladungsträgertemperatur erheblich. Beides zusammen macht die Relaxation über den Auger-Effekt effektiver, so daß sich die geringe Badtemperatur von $T_{Bad} = 5~K$ nicht in einem Relaxationsflaschenhals äußert, obwohl dem System dadurch zu wenig passende Phononen zur Verfügung stehen.

Bei weiterer Erhöhung der Temperatur erlischt um 50 K herum jegliche Lumineszenz aus den Quantenpunkten. Der Grund hierfür liegt in der thermischen Reemission der wenigen eingefangenen Ladungsträger, die aufgrund der geringen Ladungsträgerdichte in Barriere und wetting layer ab einem bestimmten Wert nicht mehr kompensiert werden kann.

Zur Visualisierung weiterer in den Abbildungen 4.15 enthaltener Daten und zur Energieniveauanalyse wurden für jede Temperatur Gaußkurven an die einzelnen Spektren angefittet. Die beiden Abbildungen 4.16 zeigen exemplarisch zwei Schnitte an den in den Abbildungen 4.15 hervorgehobenen Positionen (weiße, gestrichelte vertikale Linie). Das Anpassen mittels Gaußkurven ist aber nur bei der Hochanregungsmessung zulässig (Teilbild (a)). Das Teilbild (b) weist schon deutlich die für Einzelpunkte erwartete Lorentzform der Emissionslinie auf, weshalb hier eine Lorentzkurve angepaßt wurde.

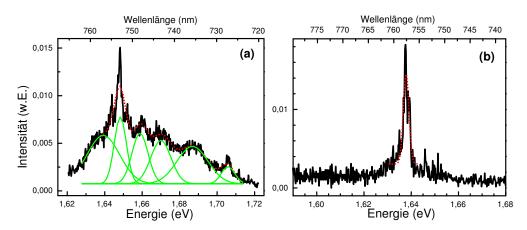


Abbildung 4.16: Die Spektren wurden an in den Abbildungen 4.15 durch eine weiße, gestrichelte Linie eingezeichneten Schnitten mit Multi-Gaußkurven gefittet. Hier am Beispiel und zum prinzipiellen Vergleich zwischen stärkerer Anregung (a) $(23 \frac{W}{cm^2})$ und geringerer Anregung (b) $(2.8 \frac{W}{cm^2})$ durch den ungepulsten Laserstrahl (200 nm-Mesa, Typ B).

Dabei gibt man dem Datenvisualisierungs- und Verarbeitungsprogramm Anzahl und ungefähre Lage der einzelnen Gaußkurven vor. Die gewonnenen Anpassungsparameter dienen als Grundlage zur weiteren Verarbeitung. Aus energetischer Lage des Maximums, Halbwertsbreite, Intensität und integraler Intensität können unter An-

wendung der entsprechenden mathematisch-physikalischen Modelle weitergehende Zusammenhänge abgeleitet werden.

Zunächst werfen wir einen Blick auf die Daten aus den Hochanregungsmessungen in Abbildung 4.15 (a). In Abbildung 4.16 (a) kann man den energetischen Verlauf des Grundzustandes über der Temperatur abgetragen sehen. Obwohl sechs Emissionslinien in ihrem Verlauf über die Temperatur beobachtet wurden, wie man in Abb. 4.16 anhand der grünen Anpassungskurven feststellen wird, ist diese Reduktion der Datenmenge nötig. Durch Schwankungen beim Anpassen kommen zum Teil zu starke, uncharakteristische Variationen der Werte zustande, die zu nicht vertrauenswürdigen und unphysikalischen Ergebnissen führen.

Allgemein wird angenommen, daß die Energieniveaus des Quantenpunktes dem Verlauf der Bandkante folgen. Bei Erhöhung der Temperatur kann man eine Absenkung der Bandkante beobachten, den sogenannten Varshni-Shift, was sich in der Beobachtung einer Rotverschiebung der Lumineszenz äußert. Die Verschiebung beruht auf der Ladungsträger-Phonon-Wechselwirkung, die eine Renormalisierung der Energien Σ zur Folge hat. Dabei setzt sich der Realteil dieser Energie $\Re(\Sigma)$ aus der temperaturunabhängigen Komponente der Bandkantenenergie $E_{g,T=0}$ um eine temperaturabhängige $E_g(T)$ korrigiert zusammen:

$$\Re(\Sigma) = E_{g,T=0} - E_g(T) \tag{4.3}$$

O'Donnel und Chen verfeinerten die ursprünglich empirische Formel von Varshni [51], fanden folgende Abhängigkeit für $E_q(T)$ [52]:

$$E_g(T) = E_{g,T=0} - S \langle E_{Ph} \rangle \left[\coth \left(\frac{\langle E_{Ph} \rangle}{2k_B T} \right) - 1 \right]$$
 (4.4)

mit $E_{g,T=0}$ als Energielücke bei 0 K, S als dimensionslose Kopplungskonstante und $\langle E_{Ph} \rangle$ als mittlere Phononenenergie. Durch Anpassung von $\langle E_{Ph} \rangle$ in Diagramm 4.17 (a) kann das mittlere Phonon bestimmt werden, an welches das elektronische System des Quantenpunktes koppelt.

Durch Anpassen der Parameter in Formel 4.4 an die Meßdaten aus Abbildung 4.17 (a) wurden folgende Werte gewonnen: das System koppelt an ein mittleres Phonon $\langle E_{Ph} \rangle$ von 12,2 meV mit einem $E_{g,T=0}$ von 1,648 eV. Damit ist das mittlere Phonon nur circa halb so groß, wie der für ein Typ B-QP-Ensemble gemessene Wert von 26 meV bei einem $E_{g,T=0}$ von 1,636 eV. Dieses Verhalten läßt sich einerseits durch die höhere Anregungsleistung bei den Ensembleexperimenten (etwa 1 mW) erklären, aber vor allem ist diese Feststellung ein Hinweis auf Wechselwirkung der Quantenpunkte untereinander.

Es stellt sich nun die Frage, an welches der im Materialsystem verfügbaren Phononen das elektronische System des Quantenpunktes koppelt. In Tabelle 4.II bietet sich auf den ersten Blick keines an. Lediglich ein TA-Phonon des GaP oder zwei des InP kommen bei den einfachsten Kombinationen in Betracht. Besser paßt folgende Kombination: LA_{InP} - TA_{GaInP} .

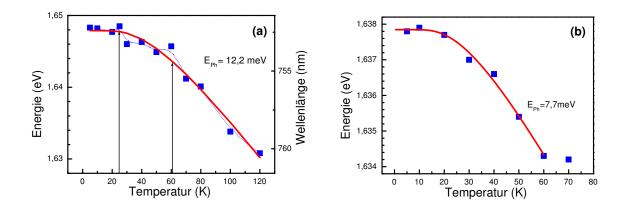


Abbildung 4.17: Die Beobachtung des Grundzustandes bei hoher $(23 \frac{W}{cm^2};$ Teilbild (a)) und geringer Anregungsleistung $(2,8 \frac{W}{cm^2};$ Teilbild (b)) zur Bestimmung des mittleren Phonons $\langle E_{Ph} \rangle$ nach O'Donnel (Formel 4.4) erbrachte die in die Abbildungen eingetragenen Werte (200 nm-Typ B-Mesa).

Paßt man die Parameter in Formel 4.4 an die Daten der Niedriganregungsmessung in Abbildung 4.17 (b) an, erhält man einen wiederum geringeren Wert für das mittlere Phonon $\langle E_{Ph} \rangle = 7,7 \,\text{meV}$ (mit einem $E_{g,T=0}$ von 1,6378 eV). Mit hoher Wahrscheinlichkeit koppelt das System an die TA-Phononen von InP bzw. GaInP.

Es stellt sich nun die Frage: Warum wird das mittlere Phonon mit sinkender Anregungsleistung kleiner? Bei hohen Leistungen werden viele Ladungsträger in der Barriere induziert. Die Badtemperatur heizt sich durch diese heißen Ladungsträger auf. Die mittlere Phononenenergie wird größer.

Die Linienbreite weist ebenso wie auch der Verlauf der Bandkante eine Abhängigkeit von der Elektron-Phonon-Wechselwirkung auf. Da die Linienbreite dem Imaginärteil der Renormalisierungsenergie $\Im(\Sigma)$ entspricht, kann man sie auch als Dämpfung verstehen. Sie setzt sich aus einem konstanten Γ_1 und einem additiven temperaturabhängigen Teil $\Gamma(T)$ zusammen:

$$\Im(\Sigma) = \Gamma(0) + \Gamma(T) \tag{4.5}$$

Nach L. Viña [53] kann dabei die Zunahme der Linienbreite in $\Gamma(T)$ über einen Bose-Einstein-Faktor für die Phononenemission beschrieben werden:

$$\Gamma(0) = \Gamma_0 \left(1 + \frac{2}{e^{\Theta/T} - 1} \right) + \Gamma_1. \tag{4.6}$$

Es sind Γ_1 und Γ_0 Normierungsfaktoren und Θ ist die effektive Temperatur, welche mit der Anregung der Phononen verknüpft ist, die mit den elektronischen Zuständen wechselwirken und Parameter zur Anpassung des Modells an die Daten. $\Gamma_1 + \Gamma_0$ ergibt hierbei die Linienbreite bei T = 0 K.

In den Abbildungen 4.18 sieht man die Linienbreite über der Temperatur aufgetragen. Die gestrichelte Linie folgt der Anpassung mit den ermittelten Daten für Θ die ebenfalls eingetragen sind.

Die Linienbreite in Teilbild 4.18 (a) folgt scheinbar nicht der allgemeinen Erwartung aus der Theorie [53] und den Ensemblemessungen und steigt nicht exponentiell an.

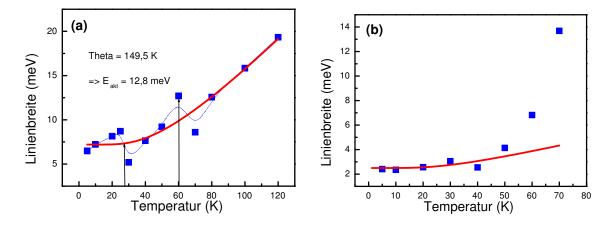


Abbildung 4.18: Die Temperaturabhängigkeit der Linienbreite für (a) hohe Anregungsleistung $(23 \frac{W}{cm^2})$ und für (b) niedrige $(2.8 \frac{W}{cm^2})$. In (b) zusätzlich mit Simulation der Formel 4.6 und einem Θ -Wert von circa 90 K, was einer Phononenergie von 7,7 meV entspricht). Die Messung stammt von einer 200 nm-Typ B-Mesa.

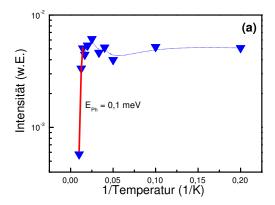
Betrachtet man nun aber Abbildung 4.18 (a), so erkennt man vielmehr einen mehr oder minder monotonen, tendenziell linearen Anstieg mit der Temperatur. Fittet man jedoch die Meßkurve mit Formel 4.6 an, bekommt man innerhalb der Fehlergrenzen ein Θ , welches einem Kopplungs-Phonon von etwas über 12 meV entspricht. Genau diesen Wert haben wir zuvor auch über die Bandkantenverschiebung bestimmt. Unsere Daten sind konsistent.

Sogar, wenn man vermeintliche Meßtoleranzen betrachtet, überrascht die Übereinstimmung. Die starken Resonanzeffekte bei 20 K und bei 60 K aus Abbildung 4.18 (a) findet man auch in Abbildung 4.17 (a) als kleine Erhebungen aber deutlich sichtbar wieder (siehe Pfeile in beiden Abbildungen). Sie treten bei Aktivierungsenergien von 2,07 meV und 5,17 meV auf. Ihr Ursprung ist unklar.

Versucht man den Linienbreitenfit nach L. Viña (Formel 4.6) auch auf die Ergebnisse aus der Temperaturserie bei geringer Ladungsträgerdichte (Abb. 4.18 (b)) anzuwenden, ist es trotz des scheinbar gut passenden exponentiellen Äußeren des Verlaufes nicht möglich, adäquate Fitparameter zu finden. Hier scheint das Modell nach Viña zu versagen. Eine Simulation mit dem erwarteten Wert von 7,7 meV, was ungefähr einer Temperatur $\Theta = 90 \, \text{K}$ entspricht, konnte zumindest die Meßwerte bis 50 K erklären. Spätestens aber ab dieser Temperatur, die einer thermischen Energie von ca. 4,6 meV entspricht, werden die Löcher in höhere, angeregte Zustände aktiviert. Diese liegen bandartig nah beieinander, so daß die Löcher mehr (energetische) Bewegungsfreiheit genießen und - von Intrabandübergängen her bekannte -

Verbreiterungen auf die von Viña vorhergesagte Linienverbreiterung aufmodulieren.

Trotz allem erkennt man gut das Anwachsen der Linienbreite mit Zunahme der Ladungsträgerdichte infolge der größeren Ladungsträger-Ladungsträger-Wechselwirkung. Zudem spielen bei geringer Anregung Oberflächenzustände, Zustände in lateraler Richtung und Multiexzitonen noch keine bzw. keine so große Rolle bei der Ausbildung des Spektrums.



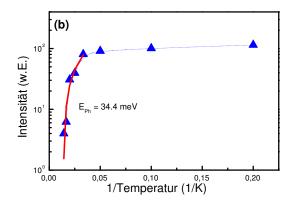


Abbildung 4.19: Arrheniusplot (a) für hohe Anregungsleistung $(23 \frac{W}{cm^2})$ und (b) für geringe $(2.8 \frac{W}{cm^2})$ (200 nm-Typ B-Mesa). Gut zu sehen ist die Auswirkung der zwei konkurrierenden Prozesse, wie sie im Text beschrieben werden, erkennbar an der 'Einbuchtung' kurz vor dem Abfall in (a).

Das Zusammenbrechen der PL bei höheren Temperaturen und dem davor liegenden Bereich relativer Konstanz ist typisch für das Eintreten thermisch aktivierter, nichtstrahlender Rekombinationskanäle. Die energetische Distanz zwischen dem Grundzustand des QP und dem des nichtstrahlenden Zentrums kann aus der Steigung des Intensitätsverlaufs in den Abbildungen 4.19 bei höheren Temperaturen gewonnen werden.

Bei höherer Anregungsleistung (Abb. 4.19 (a)) offenbart sich ein leicht komplexeres Temperaturverhalten. Die Intensität sinkt bis circa $20 \, \text{K}$ etwas ab, steigt dann bis $40 \, \text{K}$ wieder an, um dann endgültig bis etwa $100 \, \text{K}$ auf ein kaum mehr detektierbares Niveau abzusinken.

Die Konkurrenz zweier Mechanismen kann ein solches Verhalten erklären: (i) die thermisch aktivierte, nichtstrahlende Rekombination der im Grundzustand gefangenen Ladungsträger, die zu einer Reduktion der PL-Intensität führt und (ii) der Wiedereinfang der Ladungsträger ab Temperaturen um $20\,\mathrm{K}$, der eine Steigerung der Photolumineszenzintensität zur Folge hat.

Ein Modell, basierend auf den Ratengleichungen in [49] und der dort formulierten allgemeinen Annahmen, führt zu einer Fitfunktion für den Sonderfall in

(Abb. 4.19 (a)):

$$I_1(T) = I_1(0) \frac{1}{\left[1 + a_1 \cdot e^{-\frac{e_1}{kT}}\right]^2} \cdot \left(1 + A \frac{a_2 \cdot e^{-\frac{e_2}{kT}}}{1 + a_2 \cdot e^{-\frac{e_2}{kT}}}\right). \tag{4.7}$$

Leider war diese Funktion für das verwendete Visualisierungs- und Simulationsprogramm zu komplex. Es konnten keine weiteren Erkenntnisse aus der Anpassung an das Konkurrenz-Modell gewonnen werden.

Wendet man auf die Hochtemperaturflanke in den Diagrammen 4.19 (a) und (b) einen simplen Arrheniusfit der Form

$$lg(I(T)) = \frac{E_{Ph}}{k_B T} + s \tag{4.8}$$

an, bei dem E_{Ph} die Energie des Phonons, an welches das elektronische System des Quantenpunktes koppelt, I die Intensität der Photolumineszenz und s eine Normierungskonstante ist, erhält man für geringe Anregungsleistungen einen Wert von $E_{Ph} = 34 \,\text{meV}$. Dies entspricht ungefähr dem TO-Phonon von InP.

Auf der Typ B-Quantenpunktprobe gelang nach aufwendiger und zeitraubender Sucharbeit letztlich noch die Photolumineszenzaufnahme einer Temperaturserie an einer 100 nm-Mesa. Die stärkste der Emissionslinien in Abbildung 4.20, bei circa 1,64 eV, kann dem ersten angeregten Niveau E_1 des Quantenpunktes in der Mesa zugeordnet werden.

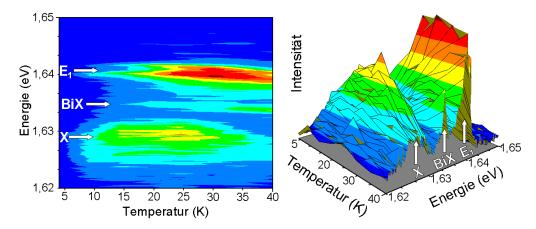


Abbildung 4.20: Das Energie-Temperatur-Diagramm einer 100 nm-Typ B-Mesa in zwei verschiedenen Darstellungsweisen. Die Intensität ist farbkodiert, wobei dunkelblau die geringste und rot die höchste Intensität ist. Die Einzelspektren wurden bei einer Anregungsleistung von nur $0.16 \frac{W}{cm^2}$ gewonnen. Beschreibung im Text.

Den Grundzustand findet man bei etwa 1,63 eV. Der Abstand zwischen Grundzustand X und erstem angeregten Zustand E_1 beträgt in etwa 12 meV und findet sich

auch in den Leistungsserien wieder. Dazwischen ist die 1,635 eV-Linie, ab 15 K nur schwach und von 30 K an besser, erkennbar, die mit dem auf Seite 49 dargestellten und einer Interpolation von Abbildung 4.12 als Biexziton BiX identifiziert werden kann. Der energetische Abstand zur Grundzustandsemission beträgt demnach circa $(4,5\pm1,5)\,\mathrm{meV}$.

Interessant ist das Zusammenbrechen des X-Signals bei etwa 35 K. Dies entspricht einer thermischen Energie von 3 meV. Es stellt sich die Frage, welcher Verlustprozeß oder welcher nichtstrahlende Rekombinationskanal wird durch eine thermische Energie von 3 meV aktiviert? Ein tiefer Defektzustand hätte vermutlich auch das quenching des gesamten PL-Signals zur Folge, welches aber nicht beobachtet wird.

Wahrscheinlicher zieht die bei etwa der selben Temperatur an Intensität gewinnende Biexzitonenlinie BiX die Ladungsträger ab. Die energetische Distanz würde in etwa jene 3 meV der thermischen Aktivierung, wie man sie in den Abbildungen 4.20 und 4.21 ablesen kann, betragen.

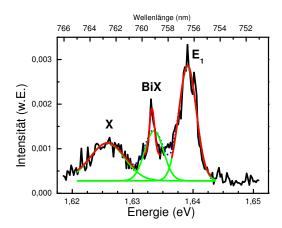


Abbildung 4.21: Spektrum einer Typ B-100 nm-Mesa bei 40 K Badtemperatur und einer Anregungsleistung von nur $0.16 \frac{W}{cm^2}$ mit den eingezeichneten Gauß- und Lorentzanpassungen. PL-Signal X stammt vom Grund- und E₁ vom ersten angeregten Zustand, während BiX die Emissionslinie eines Biexzitones ist.

In Abbildung 4.21 ist die blau-gepunktete Linie die Superposition der einzelnen, grünen Gaußkurven (Multigauß-Fit) wie sie zur Anpassung bei Quantenpunktensemblespektren verwendet wird. Aber sie gibt nicht den tatsächlichen Verlauf und vor allem nicht die tatsächlichen Linienbreiten wieder. Dieses Verhalten entspricht dem in der Theorie vorhergesagten (Kapitel 2.4.1). Deshalb wurde jede Emissionslinie im Spektrum separat und unabhängig von den anderen mit einer Lorentzkurve angepaßt. Durch Wiederholung des Anpassungsverfahrens für jede Temperatur und Auftragung über dieser erhält man die Abbildungen 4.22.

Die Bestimmung der Phononen, an welche das elektronische System des Typ B-Punktes koppelt, nach O'Donnel [52] in der Abbildung 4.22 (a) läßt folgende Abhängigkeiten erkennen. Der Grundzustand, mit einer Bandlücke bei T=0 von 1,628 eV, koppelt an ein mittleres Phonon, welches durch eine Kombination aus einem TA-Phonon des InP mit einem TA-Phonon des GaInP dargestellt werden kann zu $\langle E_{Ph,X} \rangle = 15,6$ meV. Dahingegen lassen sich die mittleren Phononen des Biexzitones $(E_{g,BiX,T=0}=1,634\,\mathrm{eV})$ sowie des ersten angeregten Zustandes $(E_{g,E_1,T=0}=1,640\,\mathrm{eV})$ mit jeweils $\langle E_{Ph,BiX} \rangle = 13,6$ meV und $\langle E_{Ph,E_1} \rangle = 18$ meV aus zwei TA-Phononen des InP bzw. aus einem TA-Phonon des InP plus dem des GaP

darstellen. Die Ergebnisse stimmen erstaunlich genau mit den im System möglichen Phononen überein.

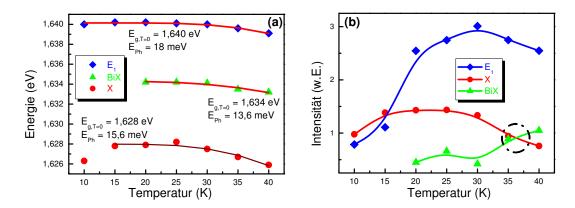


Abbildung 4.22: Die Graphische Auftragung der Ergebnisse (100 nm-Typ B-Mesa) aus den Einzelanpassungen: (a) energetische Lage des Linienmaximums und (b) Intensität über der Temperatur.

Betrachtet man sich den Verlauf der PL-Intensitäten in Abbildung 4.22 (b), so fällt zunächst die schon ab 15 K dominierende Linie des ersten angeregten Zustandes auf. Das stetige Ansteigen dessen Intensität läßt sich durch thermische Aktivierung erklären. In dieser Darstellung bestätigt sich auch recht gut die Vermutung, daß der neu hinzukommende biexzitonische Zustand mit aus dem Grundzustand thermisch aktivierten Ladungsträgern gefüttert wird. Die Überkreuzung der beiden Intensitätsverläufe bei 35 K dient als weiteres Indiz dieser Theorie [54].

Interessant ist jetzt noch ein Vergleich mit den Typ A-Quantenpunkten deren Energie-Temperatur-Diagramm man in Abbildung 4.23 sehen kann. Auffällig ist, daß zwischen 60 und 80 K jegliche Lumineszenz zusammenbricht. Nicht nur aus den Ensemblemessungen ist der frühere Kollaps der Lumineszenz bei steigenden Temperaturen gegenüber der Typ B-PL ein vertrautes Phänomen. Diese Beobachtung ist ebenso ein Indikator für die stärkere Quantisierung und/oder die räumliche Lokalisierung der Ladungsträger in den Typ A-Quantenpunkten, denn das stärkere size confinement führt, wie man in Abbildung 4.14 gut sehen kann, zu einer Verschiebung der Quantenpunktzustände hin zu höheren Energien in die Nähe der Barrierenenergie. Da die injizierten Ladungsträger nicht direkt in den Grundzustand relaxieren, sondern zunächst über die angeregten Niveaus in den Quantenpunkt gelangen, reicht bei hohen Temperaturen die thermische Energie aus, um einen thermischen Escape in die Zustände der wetting layer oder der Barriere auszulösen.

Außerdem ist trotz geringer Anregungsleistung $(0.16 \frac{W}{cm^2})$ von vornherein außer dem Grundzustand bei circa $1.70 \, \text{eV}$ auch der erste angeregte Zustand etwas oberhalb von $1.72 \, \text{eV}$ mit Unterbrechungen über den gesamten Temperaturbereich der Grundzustandsemission besetzt. Zwischen beiden Signalen, etwas unterhalb von

1,71 eV, sieht man deutlich die Emissionslinien der B-Zustände¹⁶ nach Pryor et al [26]. Grund dafür dürfte der bereits bekannte Relaxationsbottleneck sein, der sich gerade bei den Typ A-QP mit ihrem stärkeren confinement ausgeprägter zeigen sollte. Zudem fehlt aufgrund der Wellenfunktionslokalisation der Zustände A_n und B_0 ein direkter Relaxationsweg.

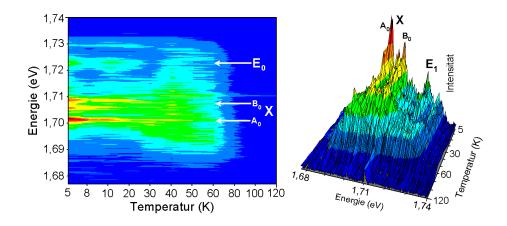


Abbildung 4.23: Das Energie-Temperatur-Diagramm eines Typ A-QP-Spektrums (200 nm-Mesa) in zwei verschiedenen Darstellungsweisen. Die Intensität ist farbkodiert wie bisher. Die Einzelspektren wurden bei einer Anregungsleistung von $0.16 \frac{W}{cm^2}$ gewonnen.

Ab etwa 25 K tritt eine Verbreiterung der PL-Linie des Grundzustandes hin zu geringeren Energien ein. Diese könnte, zusätzlich zu den temperaturabhängigen Linienverbreiterungsmechanismen, durch das Entstehen von Bi- und Multiexzitonen erklärt werden.

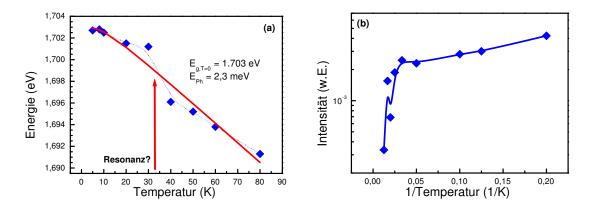


Abbildung 4.24: (a) O'Donnel- und (b) Arrheniusfit an einer 200 nm-Mesa mit Typ A-Quantenpunkten.

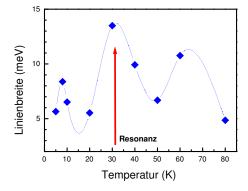
¹⁶siehe dazu auch Kapitel 5.1 auf Seite 76

Das PL-Signal eines höheren angeregten Niveaus bei etwa 1,723 eV zeigt mehrfach Intensitätsschwankungen. Die Lumineszenz bricht das erste Mal bei 8 K und ein zweites Mal bei 30 K zusammen, um dann bei etwa 55 K für immer zu verschwinden. So scheint es in der näheren Umgebung des oder der vermessenen Quantenpunkte mindestens einen Defektzustand zu geben, der oder die thermisch mit 0,7 meV bzw. 2,6 meV aktiviert wird bzw. werden. Ist dieser besetzt, quencht er über das elektrische Feld der gefangenen Ladungsträger die Lumineszenz des gesamten Spektrums, wie man auch an den tiefer gelegenen QP-Niveaus sehen kann. Besonders betroffen ist der von vornherein schon schwache angesprochene Peak. Er blinkt als Funktion der Temperatur [42,43].

Der Versuch, über eine Anpassung nach O'Donnel die mittlere Phononenenergie zu finden, an die das elektronische System koppelt, führt zu einem unbefriedigenden Ergebnis (Abbildung 4.24 (a)). Die ermittelten 2,3 meV liegen deutlich zu niedrig und dürften ihre Ursache im Auftreten der Multiexzitonen haben, die die genaue Lage des Grundzustandes kaschieren. Eventuell liegt auch ein Resonanzeffekt bei $T=35\,\mathrm{K}$ vor, der sich sogar über die temperaturabhängige Linienbreite in Abbildung 4.25 validieren läßt.

Abbildung 4.25:

Bei ca. 35 K findet man den in Abb. 4.24 (a) vermuteten Resonanzeffekt auch in der Linienbreite wieder.



Bei Quantenpunktensembles ergaben sich die folgenden Werte für Typ A-QP [37]: eine Bandlücke von 1,701 eV bei einer Temperatur von 0 K mit einem $\langle E_{Ph} \rangle$ von 26 meV.

Der Intensitätsverlauf in Abbildung 4.24 (b) zeigt nur eine kleine Abweichung von den bereits aus den Messungen an den Typ B-Punkten bekannten Daten (vgl. hierzu Abb. 4.22 (b) und Abb. 4.19 (b)). Statt eines beinahe konstant bleibenden PL-Niveaus bis hin zu einer Temperatur, bei der die Lumineszenz mehr oder weniger komplett verschwindet, sieht man hier eine von Anfang an exponentiell fallende Intensität mit steigender Temperatur. Laut Abbildung 4.14 geschieht der Ladungsträgereinfang eines Typ A-Quantenpunktes über Relaxation aus der wetting layer. Aber schon bei geringer Temperaturerhöhung können durch die energetische Nähe die ersten Ladungsträger in die Zustände der wetting layer entkommen. So stehen weniger Ladungsträger im Quantenpunkt selbst zur Verfügung. Das thermische Verteilung zwischen Quantenpunktzuständen und Barriere bei thermodynamischen Gleichgewicht verschiebt sich zugunsten des PL-Verlustmechanismus'. Als

Folge sinkt die Rekombinations- und damit die Photolumineszenzausbeute aus dem Quantenpunkt.

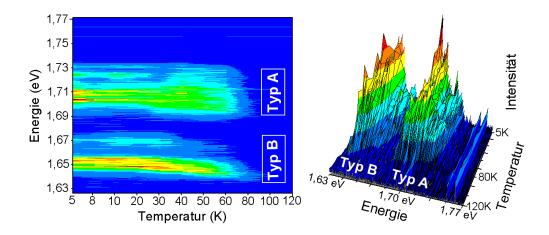


Abbildung 4.26: Das Energie-Temperatur-Diagramm eines gemischten (Typ A- und Typ B-QP in einer Mesa) Spektrums in zwei verschiedenen Darstellungsweisen. Die Intensität ist farbkodiert, wie bisher. Die Einzelspektren wurden bei einer Anregungsleistung von $0.16 \frac{W}{cm^2}$ gewonnen.

Aufgrund der Tatsache, daß auch unter den für Typ A-Punkte optimalen Wachstumsbedingungen die großen Typ B-QP wachsen, ist es möglich, beide Quantenpunkttypen direkt miteinander zu vergleichen. Ein solches Photolumineszenzspektrum über die Temperatur sieht man in Abbildung 4.26.

Während die großen Quanteninseln mit der gegebenen Leistung nur ein angeregtes Niveau bei ca. 1,67 eV aufzeigen, und dieses auch noch spärlich besetzt, kann man bei den kleinen QP bis zu drei angeregte Niveaus ausmachen (siehe Abb. 4.26). Der Grund dafür ist der Relaxationsflaschenhals für kleine Quantenpunkte. Deshalb ist die Intensität des Typ B-Grundzustandes auch deutlich höher, als die der kleinen Quanteninsel (erkennbar an dem höheren Rot- und Gelbanteil der Intensitätskodierung bei den Typ B-Punkt-Emissionen in Abb. 4.26).

Das Spektrum des Typ A-Punktes wurde bereits zuvor im Detail beschrieben¹⁷. Auffällig ist aber, daß trotz des anfänglich hohen Intensitätsniveaus selbst das Typ B-Spektrum abrupt bei ca. 80 K zusammenbricht. Theorie und Ensemblemessungen [37] ließen eine bessere Temperaturstabilität erwarten. Auch vorhergehende Messungen an einzelnen Typ B-QP ergaben Meßergebnisse bis deutlich über 100 K.

Wahrscheinlich wird mit Überschreiten der 6,9 meV thermischer Energie ein Defektzustand in unmittelbarer Nähe beider in der Mesa enthaltener Quantenpunkte aktiviert. Dieser nichtstrahlende Rekombinationskanal dominiert dann bei höheren Temperaturen bzw. sorgt für die Unterdrückung der Photolumineszenz aus der Mesa.

 $^{^{17}}$ Es ist ein Ausschnitt aus Abb. 4.26, da ein einzelner Typ A-Punkt nicht zu isolieren war.

Kapitel 5

Messungen: Zeitaufgelöste Photolumineszenz

Zeitaufgelöste Photolumineszenzspektroskopie betreibt man um zu klären, durch welche Relaxationsmechanismen die Ladungsträger in die Quantenpunkte gelangen. Zusätzliche Variation der Temperatur bzw. der Anregungsleistung ermöglicht dar- über hinaus die Unterscheidung von Zerfalls- und Rekombinationskanälen.

Es wird der Zerfall von optisch angeregten Nichtgleichgewichtsladungsträgern bis zur Wiederherstellung des thermodynamischen Gleichgewichts verfolgt. Diese Zerfallsprozesse können durch Ratengleichungen (siehe Kapitel 2.8) mathematisch beschrieben werden. Bei der Auswertung wird versucht, die Parameter des mathematischen Modells an die Meßdaten anzupassen, um so Aufschluß über die ablaufenden Prozesse zu erlangen. Zusätzlich kann man die stationären Lösungen mit den zeitaufgelösten Lösungen vergleichen [54].

Zur Einarbeitung in die Apparatur sowie zum direkten Vergleich mit den Quantenpunktensembles und dem Übergang zum einzelnen Quantenpunkt hin, wurden die ersten Messungen an den großen 1 Mikrometer- und an den 500 nm-Mesen vorgenommen. Die dabei gewonnenen Zerfallszeiten kann man in Abbildung 5.1 (a) und (b) sehen.

In den Abbildungen 5.1 wiederholen sich die Tendenzen, die bereits bei den Ensemblemessungen [37] beobachtet wurden: Es zeichnet sich deutlich eine sukzessive Verlängerung der Zerfallszeiten mit geringer werdender Energie im Quantenpunktspektrum ab. Beim Grundzustand ist die längste Zerfallsdauer mit 1,4 bzw. 1,7 ns erreicht. Unter dieser Energie sinken die Zeiten wieder¹. Gehen die Quantenpunktzustände in das Quasikontinuum der Barriere bzw. zunächst der wetting layer über, steigen die Zerfallszeiten auf bis zu 2 ns und mehr.

Diese Zahlenwerte sowie die folgenden wurden durch Anpassen nach Sugawara [31] auf der Grundlage des in Kapitel 2.8 besprochenen Modells gewonnen. Prinzipiell wird in diesem Modell von einem doppelt exponentiell verlaufenden Zerfall ausgegangen. Geht jedoch die Relaxation zum nächsttieferen Zustand sehr viel schneller

¹zu sehen in Abb. 5.1 (b) bei Energien kleiner als 1,63 eV

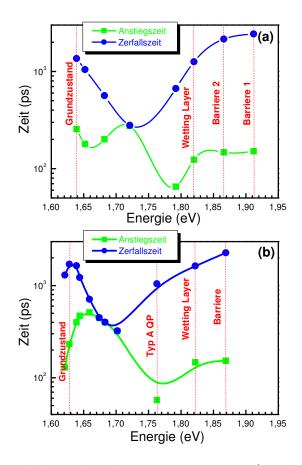


Abbildung 5.1:

Die aufgenommenen Anstiegs- und Zerfallszeiten

- (a) einer 1000 nm-Mesa (Daten aus Tabelle B.I in Anhang B) und
- (b) einer 500 nm-Mesa (Tabelle B.II) Einige markante Punkte im Spektrum sind zur besseren Orientierung benannt worden. Die Verbindungslinien dienen nur der Führung des Auges.

als die Rekombination vonstatten (es gilt: $\tau_{rel} \gg \tau_{rek}$), ist ein monoexponentieller Fit hinreichend².

Das Ergebnis einer einfach exponentiellen Anpassung besteht aus einer Anstiegsund einer Zerfallszeit. Während sich die Zerfallszeit ausschließlich durch die Rekombinationsdauer der Ladungsträger definiert, setzt sich die Anstiegszeit aus mehreren Komponenten zusammen. Da ist zunächst die Zeitspanne, in welcher der Ladungsträger erzeugt und in die Barriere angeregt wird. Dieser Wert sollte bei gleichen Meßbedingungen über alle Messungen konstant sein.

Die nächste Komponente ist variabel und charakteristisch für die gewählten Bedingungen wie Anregungsleistung, Badtemperatur und Detektionsenergie. Sie setzt sich zusammen aus den Relaxationszeiten von der Barriere in den QP (Typ B-QP) bzw. von der Barriere in die wetting layer (Typ A-QP) sowie der Gesamtzeit für alle Relaxationsvorgänge von energetisch höher liegenden Quantenpunktniveaus in jenes, auf dessen Wellenlänge man detektiert.

In Abbildung 5.2 sind exemplarisch die verschiedenen aufgenommenen Zerfallsverläufe mit dem jeweils daran angepaßten RIO-Modell (rote Kurve) dargestellt. Abb. 5.2 (C) zeigt sogar einen doppelt exponentiellen Zerfallsverlauf, wie er in Kapitel 2.8 beschreiben ist und in der Simulation 2.11 auf Seite 22 zu sehen ist.

Man sieht in diesen Zerfallsspektren auch sehr gut, wie stark, trotz extremer In-

²vgl. Abbildung 2.11 und die Beispiele aus den eigenen Messungen in den Abbildungen 5.2

tegrationszeiten von bis zu 960 s, die Spektren verrauscht sind. Durch Erhöhung der Integrationszeit kann man normalerweise den Verlauf von Integrationsspektren, zu denen die Zerfallsspektren gehören, glätten. Aufgrund der relativ geringen Photolumineszenzausbeute eines einzelnen Quantenpunktes in dem zur Messung gewählten, schmalen Wellenlängenband (single photon counting) wirkt sich das schlechte SNR³ auf die Qualität der Messung aus. Außerdem geht durch die verwendeten Optiken zum Sammeln des Emissionslichtes auch ein gewisser Teil des PL-Signales verloren.

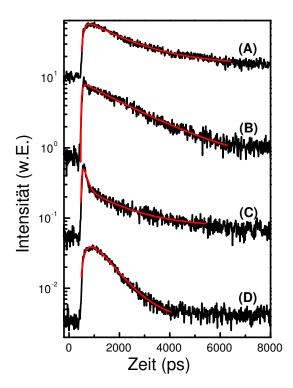


Abbildung 5.2:

Die verschiedenen Zerfallszeittypen mit Simulation (rote Kurve) auf Grundlage des Fits nach Sugawara [31] am Beispiel der 200 nm-Mesa aus Abbildung 5.3 (a):

- (A) lange Zerfallszeit von 1733 ps der wetting layer;
- (**B**) lange Zerfallszeit von 2222 ps beim Grundzustand;
- (C) mehrstufiger Rekombinationsmechanismus mit zwei Zerfallszeiten von zunächst 121 ps und dann 1559 ps an der Niederenergieflanke des Grundzustandes;
- (**D**) lange Anstiegszeit von 263 ps und kürzer werdende Zerfallszeit um 831 ps für ein angeregtes Niveau.

Beim direkten Vergleich der großen Mesen in den Abb. 5.1 mit dem Spektrum und den Zerfallszeiten einer 200 nm-Mesa des Types B, wie man es in Abbildung 5.3 (a) sehen kann, fällt zunächst die Ähnlichkeit der Zeit-Kurvenverläufe auf.

Der Grundzustand weist die längsten Zerfallszeiten auf, die zu höheren Energien bzw. Zuständen kürzer werden. Ebenso findet man wieder sehr lange Zerfallszeiten für die wetting layer und für die Barriere. Daraus läßt sich in einer ersten Vermutung schließen, daß die Anzahl der Quantenpunkte keine oder nur geringe Auswirkungen auf die Dynamik innerhalb der QP hat.

Die Vermutung, daß sich eventuell die reduzierte Kopplung der QP untereinander aber auch gerade in den verringerten Zerfallszeiten des Grundzustandes äußert, kann wie folgt widerlegt werden: Der einzelne Quantenpunkt zeigt nur noch Beiträge der Wellenfunktion bzw. des Wellenfunktionsüberlapps. Eine Einschränkung kann nur von der Mesa-Ätzung (bei der Prozessierung) kommen, also durch Ätzdefekte. Die Mesagröße sollte sich aber nicht auf die Kopplung der QP auswirken.

 $^{^3}$ siqnal to noise ratio $\hat{=}$ Signal-Rausch-Verhältnis

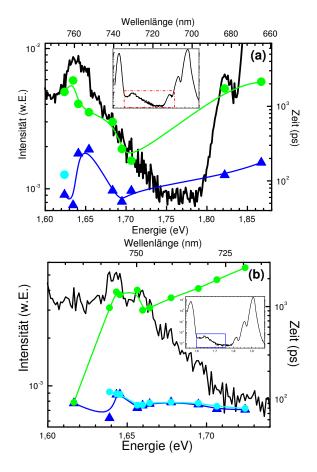


Abbildung 5.3:

Spektren und Zerfallszeiten

- (a) einer $200 \,\mathrm{nm}$ und
- (b) einer 100 nm-Typ B-Mesa.

Eingetragen sind die Anstiegs-(Dreiecke) und Zerfallszeiten (Kreise) als Funktion der Energie bzw. Wellenlänge. Die Verbindungslinie dient nur zur Führung des Auges. Darüber eine Übersicht vom Gesamtspektrum Barriere und $_{
m mit}$ Anregungslaser sowie Hervorhebung des "gezoomten" Bereiches. Deutlich zu erkennen: die erhöhten Zerfallszeiten.

Zur Eruierung dieser These ist es nötig, einen Blick auf die Messungen an einer 100 nm-Mesa zu werfen. Statistisch gesehen sollte sich im Mittel genau ein Quantenpunkt in einer solchen Mesa befinden.

Das Ergebnis in Abbildung 5.3 (b) überrascht: Praktisch alle Rekombinationszeiten (Zerfallskurve) liegen über einer Nanosekunde (detailliert in Tabelle B.IV in Anhang B). Zudem mußten fast alle Meßkurven mit dem doppelt exponentiellen Sugawara-Modell gefittet werden.

Ein Großteil der höherenergetischen, angeregten Zustände weist längere Rekombinationszeiten auf als der Grundzustand. Dies ließe sich nur durch fehlende Relaxationskanäle erklären, da die Wellenfunktionsüberlappwerte der angeregten Zustände prinzipiell deutlich kleiner sind. Wenn dann auch noch die Relaxationskanäle blockiert sind, entsteht eine insgesamt große Rekombinationszeit.

Verstärkt werden kann dieser Effekt noch durch den Umstand, daß die energetisch tieferen Niveaus schon vollständig besetzt sind, und so die Relaxation dorthin nicht möglich ist, das sogenannte *Pauli-Blocking*.

Die Anstiegszeiten liegen in dieser Messung beinahe alle unter 100 ps. Prinzipiell erwartet man kleine Anstiegszeiten aufgrund kurzer Relaxationszeiten, denn bei derart hohen Anregungsleistungen (0,7 mW Leistungsmittel auf einem Fokus mit $r=30\mu\mathrm{m}$: $24.8\,\frac{\mathrm{W}}{\mathrm{cm}^2}$) und damit auch hohen Ladungsträgerdichten dürfte aufgrund der

Ladungsträger-Ladungsträger-Wechselwirkung (z.B. Auger-Effekt) ein ausreichend effektiver Relaxationsmechanismus zur Verfügung stehen.

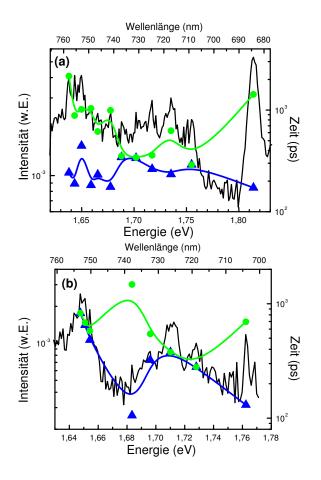


Abbildung 5.4:

Spektrum und Zerfallszeiten

- (a) einer $200 \, \text{nm}$ und
- (b) einer 100 nm-Typ A-Mesa. Ebenfalls mit eingetragen sind die Anstiegs- (Dreiecke) und Zerfallszeiten (Kreise) als Funktion der Energie bzw. der Wellenlänge. Die Verbindungslinien dienen nur zur Führung des Auges.

Wie man sich in Abbildung 4.4 vor Augen führen kann, ist der Wellenfunktionsüberlapp bei den Typ B-QP in der Typ II-Konfiguration wesentlich geringer als bei den beinahe Typ I-ähnlichen Typ A-Quantenpunkten. Aus diesem Grunde erwartet man für die Typ B-Quanteninseln geringe Oszillatorstärken und damit lange Rekombinations- bzw. Zerfallsdauern.

Einzelne Typ A-Quantenpunkte zeigen nach Abbildung 5.4 (b) ein ähnliches Verhalten wie solche im Ensemble [37]: Erstens bleiben ihre Zerfallszeiten⁴ relativ konstant. Und zweitens weisen sie deutlich längere Anstiegs- dafür kürzere Zerfallszeiten auf, als von den Typ B-QP bekannt.

Die langen Anstiegszeiten sind eine direkte Folge des Relaxationsflaschenhalses. Es ist anzunehmen, daß der bestimmende Mechanismus die Augerrelaxation ist, da die großen energetischen Abstände im elektronischen System der Typ A-Quantenpunkte ansonsten nur durch Multiphononenprozesse überbrückt werden könnten. Aufgrund der Badtemperatur von 5 K ist die Menge der zur Verfügung

⁴die Emissionslinien der Typ A-QP in Abb. 5.4 (b) liegen zwischen 1,70 und 1,77 eV!

stehenden Phononen aber stark eingeschränkt. Die Relaxation über den Augereffekt geht zwar in sehr kurzen Zeitrahmen vonstatten, trotz allem scheint die allgemeine Relaxation gehemmt. Für den Mechanismus der Augerrelaxation spricht zudem die exorbitant hohe Ladungsträgerdichte, da zum Zeitpunkt des 150 fs-Pulses eine Leistungsdichte in der Größenordnung von mehreren Megawatt pro cm² auf der Probenoberfläche vorhanden sind.

Letztlich bleibt festzuhalten, daß ein Ziel der Vergleichsmessungen über verschiedene Mesengrößen nicht erreicht werden konnte. Es ist kein Trend in den Spektren der vier Reduktionsstufen zu erkennen. Vergleicht man allein die Abbildungen 5.3 (a) und (b) miteinander, und sieht, daß eine Verringerung der durchschnittlichen Anzahl der gleichzeitig vermessenen QP von vier auf eins dermaßen drastische Änderungen des PL-Spektrums zur Folge hat, kann man nur von willkürlichen bzw. unsystematischen Merkmalsveränderungen ausgehen.

Es hätten mehr Messungen nach dem vorigen Schema durchgeführt werden müssen. Da aber ein Meßdurchlauf allein schon sehr zeitintensiv ist, war im Rahmen dieser Diplomarbeit keine weitere Verfolgung dieser Untersuchungen möglich.

5.1 Variation der Leistung

Anhand einer Leistungsserie wird versucht, die Richtigkeit der zuvor aufgestellten These⁵ zu überprüfen. Die Anregungsleistung wird von $28,3\,\frac{\mathrm{W}}{\mathrm{cm}^2}$ über $3,2\,\frac{\mathrm{W}}{\mathrm{cm}^2}$ auf $1,4\,\frac{\mathrm{W}}{\mathrm{cm}^2}$ gesenkt. In Abbildung 5.5 erwartet man nun ein Ansteigen der Relaxationszeiten und eventuell ein im Spektrum stärkeres Ausbilden der angeregten Zustände aufgrund der fehlenden Relaxationsmöglichkeit.

Die Aussage relativiert sich jedoch wieder, wenn man sich die Ladungsträgeranzahl vor Augen führt, die durch den 150 fs-Puls alle 12,2 ns erzeugt werden. Damit ergeben sich zum Anregungsmoment Leistungsdichten von 2,3 $\frac{\text{MW}}{\text{cm}^2}$, 0,26 $\frac{\text{MW}}{\text{cm}^2}$ und 0,12 $\frac{\text{MW}}{\text{cm}^2}$, für die Messung mit der schwächsten Anregungsleistung. Das heißt, daß im Moment der Relaxationsprozesse - also bis zu mehrere hundert Pikosekunden nach dem Anregungspuls - eine derart hohe Ladungsträgerdichte herrscht, daß Ladungsträger-Ladungsträger-Wechselwirkungen(WW) einen dominierenden Einfluß haben müssen.

Um eine Ladungsträgerdichte zu erzeugen, bei der man aus der Erfahrung bei den cw-Messungen eine Reduktion der Ladungsträger-Ladungsträger-WW erwartet⁶, müßte man den Anregungslaser über Neutraldichtefilter so weit drosseln, daß man mit nur $1,74\cdot 10^{-11}\,\mathrm{W}$ anregen müßte, was nicht meßbar ist. Die Schlußfolgerung hieraus ist, daß bei zeitaufgelösten Messungen an einzelnen Quantenpunkten immer der Höchstanregungsfall vorliegt.

Bereits aus den Messungen am Ensemble und an den größeren Mesen (vgl. Kapitel 5) ist das Verhalten der Zerfallszeiten über der energetischen Lage, im Quanten-

⁵die Augerrelaxation als dominanter Relaxationsmechanismus

 $^{^6}$ Kapitel 4.3 auf den Seiten 47ff

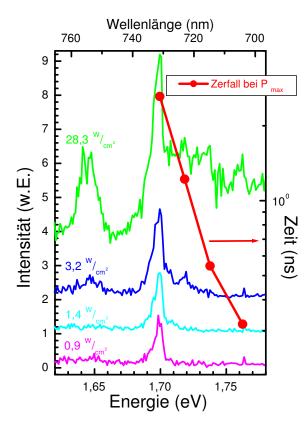


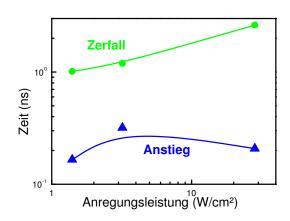
Abbildung 5.5:

Leistungsserie an einer 100 nm-Typ A-Mesa zur Untersuchung der Relaxationskanäle. Auf der y-Achse abgetragen sieht man für die höchste Anregungsleistung die Zerfallszeiten für verschiedene Energien. Auffällig die exponentielle Steigerung der Rekombinationszeiten hin zum Grundzustand. Bei 1,720 eV ist ein bottleneck erkennbar.

punktspektrum, wie in Abbildung 5.5 im roten Graphen für den Fall der höchsten Anregungsleistung gezeigt, bekannt: Sie steigen von den höheren Niveaus mit etwa 200 ps hin zum Grundzustand mit beinahe 2 ns an.

Abbildung 5.6:

Die Anstiegs- (Dreiecke) und Zerfallszeiten (Kreise) über der Anregungsleistung. Aufgetragen sind die Zeiten des Grundzustandes eines Typ A-QP. Die Verbindungslinien dienen nur zur Führung der Auges.



In Abbildung 5.6 sieht man im grünen Graphen mit sinkender Anregungsleistung kürzer werdende Zerfalls- respektive Rekombinationszeiten. Sie lassen sich auf den geringer werdenden, störenden Einfluß der Ladungsträgerdichte auf die Lage der Ladungsträger innerhalb des Quantenpunktes und damit auf den Wellenfunktionsüberlapp zurückführen⁷. Dabei dürften sich die hier vermessenen Typ A-Quantenpunkte

 $^{^7 {\}rm vgl.}$ auch in Kapitel4.2auf den Seiten $38f\!f$ die Leistungsabhängigkeit von Rauschmechanismen, blinking und quenching

noch unempfindlicher auf die Störung durch die umgebenden Ladungsträger zeigen, als es eine Typ B-Probe würde. Durch ihre Typ I-ähnliche Bandstruktur (vgl. Abbildung 4.4) weisen ihre Ladungsträger prinzipiell einen größeren Wellenfunktionsüberlapp auf. Deutlicher ausgeprägte Typ II-Systeme, wie das der Typ B-Quantenpunkte, sind *a priori* anfälliger gegen Störungen und reagieren mit erheblich höheren Rekombinationszeiten.

Ebenso tritt mit sinkender Anregungsleistung nicht das vorausgesagte weitere Vorhandensein der angeregten Zustände ein. Im Gegenteil sieht man in Abb. 5.5: Während die höherenergetischen Zustände, anfangs noch leicht auszumachen, spätestens unter $3 \frac{W}{cm^2}$ aus dem Spektrum verschwunden sind, wirkt sich eine weitere Senkung der Anregungsleistung kaum auf die Intensität der Grundzustandsemission bei 1,700 eV aus. Die effiziente Auger-Relaxation ist auch für das Ausbleiben dieser Vorhersage verantwortlich.

Betrachtet man die Entwicklung des PL-Spektrums des Typ A-QP in Abbildung 5.5 über die Leistung, fällt auf, daß die Emissionslinie bei 1,720 eV selbst dann noch sichtbar ist, wenn alle anderen Merkmale, bis auf die Grundzustandsemission, bereits zu signalschwach sind. Das Verhalten dieser Emissionslinie läßt sich mit einer Feststellung Pryors [26] erklären. Bei der numerischen Bestimmung der Bandstruktur von InP/GaInP-Punkten, fand er, daß sich Lochzustände am unteren Rand der abgeschnittenen Pyramide⁸ sogenannte A-Zustände, und aber auch ober- und außerhalb des QP-Körpers, die sogenannten B-Zustände, befinden. Weiterhin gibt er an, daß es keinen direkten Relaxationskanal zwischen A- und B-Zuständen gibt.

Wie man in [26] auch sehen kann, beträgt der energetische Abstand dieser beiden Lochzustände bei den kleinen Quantenpunkten gerade die ca. 20 meV, die man in Abbildung 5.5 im obersten Spektrum ablesen kann. Diese Feststellung gibt der entwickelten These noch mehr Halt.

Damit erklärt sich das Verhalten der 1,720 eV-Linie folgendermaßen: Aufgrund des fehlenden Relaxationsweges zu energetisch tieferen Zuständen bleibt den Ladungsträgern in diesem als *B*-Zustand identifizierten Niveau nur die Rekombination über strahlende oder nichtstrahlende Kanäle.

5.2 Transienten

Mit der zur Verfügung stehenden Software war es möglich, Momentaufnahmen des Gesamtspektrums zu bestimmten Zeiten - relativ zum Anregungspuls gesehen - aufzunehmen. Aufnahmen der Ladungsträgerpopulation im zeitlichen Verlauf kurz vor, während und nach dem Anregungslaserpuls bezeichnet man als *Transienten*.

Dabei fährt der Monochromator auf eine bestimmte Wellenlänge, nimmt dort für das Übersichtsspektrum über einen definierten Zeitraum - bei dieser Messung $5\,\mathrm{s}$ - die Gesamtintensität auf und integriert dann über einen zweiten wählbaren Zeitraum

⁸die Gestalt eines InP-QP eingebettet in GaInP kann man in Abb. 3.4 auf Seite 28 sehen

alle auf dieser Wellenlänge detektierten Photonen, zeitlich relativ zum Triggersignal des Laserpulses aufgelöst, auf.

Experimentell ergab sich die Schwierigkeit, daß der Laser bzw. im speziellen der Pulsvorgang nur über einen Zeitraum von maximal 3 bis 4 Stunden stabil aufrecht erhalten werden konnte.

Um ein möglichst rauscharmes Spektrum zu gewinnen, sollte die Aufnahmedauer eines Bildes pro Detektionswellenlänge entsprechend lang sein, so daß der Rauschanteil geringer als das real detektierte Signal ist. Es gilt, die Integrationszeit für die Einzelschritte im Spektrum sowie die Integrationszeit für die Zerfallsaufnahme so mit dem Wellenlängenbereich und der Einzelschrittweite zur nächsten Detektionswellenlänge abzustimmen, daß man unterhalb des genannten Gesamtzeitlimits bleibt.

Es wurden zwei Transientenmessungen durchgeführt; bei beiden konnten stabile Randbedingungen bis zum Schluß gewahrt werden.

Im Transienten in Abbildung 5.7 des vermessenen Typ B-Quantenpunktes kann man, anhand der relativ gleichmäßigen Intensitätsverteilung über die energetischen Zustände für die ersten 1,5 ns, deutlich das Auffüllen der Zustände beobachten. Der Grundzustand bei etwa 1,64 eV kann seine Lumineszenz rudimentär bis etwa 5,5 ns nach der Anregung aufrecht erhalten. Der erste angeregte Zustand - circa die erwarteten 12 meV vom Grundzustand entfernt - bricht schon früher, nach etwa 3 ns, zusammen. Einen zweiten angeregten Zustand kann man bei etwa 1,66 eV erahnen, wiederum mit reduzierter Lumineszenzdauer (2,5 ns). Mit diesem zeitlichen Verhalten bestätigen sie die aus den punktuellen Zeitmessungen bekannten Daten (beispielsweise in Abbildung 5.3 (a)): Die Rekombinationszeit sinkt mit höherer energetischer Lage.

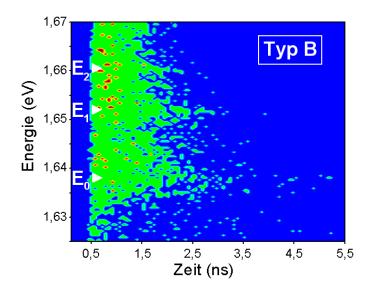


Abbildung 5.7:

Transientenspektrum einer $100 \,\mathrm{nm}$ -Typ B-Mesa bei einer Badtemperatur von $5 \,\mathrm{K}$ und einer mittleren Anregungsleistung von $5,7 \,\frac{\mathrm{W}}{\mathrm{cm}^2}$. Die PL-Intensität ist farbkodiert, wobei dunkelblau geringste und rot höchste Intensität widerspiegelt.

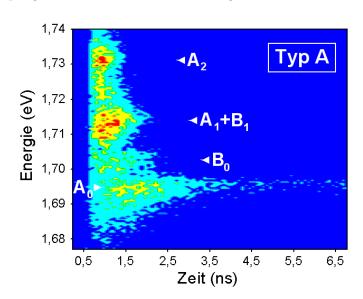
Die gleichmäßige Intensität der Lumineszenz über den gesamten Bereich in Abb. 5.7 läßt auf funktionierende Relaxationskanäle zwischen den Niveaus schließen. Es bildet sich an keiner Stelle ein Überangebot an Ladungsträgern aus. Deshalb ist

auch der Grundzustand am längsten sichtbar, da er ständig von den höher liegenden Zuständen "befüttert" wird.

Ein gänzlich anderes Bild präsentiert sich uns bei den Typ A-Quantenpunkten in Abbildung 5.8. Hier sind die einzelnen Zustände viel besser auflösbar: Der Grundzustand bei etwa 1,695 eV und die zwei angeregte Zustände bei circa 1,715 eV und 1,732 eV. Und es fällt sofort die prägnantere Intensitätsverteilung auf.

Abbildung 5.8:

Transientenspektrum 100 nm-Typ A-Mesa bei einer Badtemperatur von $20\,\mathrm{K}$ und einer mittleren Anregungsleistung von Die PL-Intensität ist farbkodiert, wobei dunkelblau geringste und rot höchste Intensität widerspiegelt. Die "hohe" Badtemperatur wurde gewählt, da hier die Lumineszenzausbeute dieses QP-Types am größten ist.



Der Transient in Abb. 5.8 wurde bei einer zu den vorherigen Messungen erhöhten Badtemperatur von 20 K aufgenommen, da bei vorherigen Messungen an Typ A-Quantenpunkten festgestellt wurde, daß es aufgrund des Relaxationsflaschenhalses schwieriger ist, bei geringeren Temperaturen eine strahlende Mesa zu finden. Deshalb wirkt das Bild auch weniger "verrauscht", da die Lumineszenzausbeute, basierend auf den geänderten Ausgangbedingungen, höher war.

Zwischen dem ersten angeregten und dem Grundzustand deutet sich bei ca. $1,705\,\mathrm{eV}$ eine weitere Emissionslinie B_0 an, welcher relativ schwach in seiner Rekombinationsintensität ist. Aufgrund der energetischen Lage zwischen den wie erwartet ungefähr $20\,\mathrm{meV}$ auseinanderliegenden Quantenpunktzuständen kann diese Linie auf einen B-Zustand nach $Pryor\ et\ al\ [26]$ zurückgeführt werden.

Wie zuvor, beim ersten Überblick über das zeitliche Verhalten der beiden Quantenpunktklassen B und A, zeigen sich zumindest bei den angeregten Typ A-Zuständen deutlich reduzierte Rekombinationszeiten (> 1 ns). So erlischt die PL beider sichtbarer angeregter Zustände schon nach 2 bzw. 1,5 ns vollständig. Die erheblich längere Lumineszenzzeit des Grundzustandes, verglichen mit den Typ B-Ergebnissen, läßt das Fehlen parasitärer nichtstrahlender Übergänge vermuten.

Kommen wir zum zweiten auffälligen Merkmal des Transienten 5.8: Der erste angeregte Zustand (in seiner Intensität heller als der Grundzustand) gibt einen Hinweis auf das Vorhandensein eines Relaxations bottlenecks. Wie schon zuvor bei der Leistungsserie (Abb. 5.5) liegt die Vermutung nahe, daß es sich um einen B-Zustand

 B_1 der Löcher handelt (siehe Seite 76). Auch hier stimmt der energetische Abstand überein. Seine Intensität wird noch zusätzlich durch die energetische Nähe des ersten angeregten A-Zustandes A_1 erhöht.

In den "Sackgassenzuständen" B_0 und B_1 kommen durch die fehlenden Relaxationskanäle nur strahlende und nichtstrahlende Rekombination für die Ladungsträger in Frage. Durch das ständige Auffüllen von höheren Zuständen erhöht sich zusätzlich die Ladungsträgeranzahl. Verbunden mit den zuvor bestätigten kurzen Rekombinationszeiten für angeregte Typ A-Zustände erhält man eine hohe PL-Intensität bei dieser Energie.

Die Photolumineszenz des Grundzustandes bleibt aufgrund der charakteristischen langen Rekombinationszeiten länger bestehen (bis 6,5 ns) und weist deshalb bei gleicher Ladungsträgerzahl, wie die höheren Niveaus, eine schwächere Intensität auf.

Einen schon in Kapitel 2.4.1 und 4.2 angesprochenen Effekt kann man in Abb. 5.8 ab circa 2,5 ns am Grundzustand beobachten: Mit sinkender Ladungsträgerdichte verschmälert sich die Linienbreite zusehends. Dies ist ein deutlicher Beleg für die Leistungsabhängigkeit⁹ der homogenen Linienverbreiterungsmechanismen in Quantenpunktspektren (vgl. auch Kapitel 2.4.1 sowie 4.2 auf den Seiten 11 und 38ff).

5.3 Temperaturserie

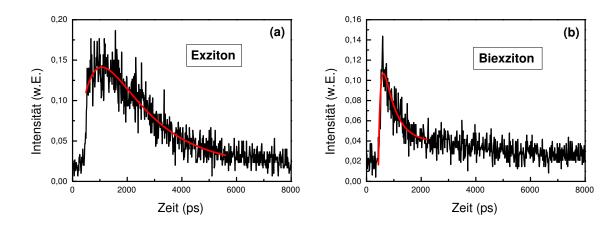


Abbildung 5.9: Zerfallspektren eines Typ B-QP- (a) Exzitons und (b) Biexzitons.

Nachdem der Einfluß der Ladungsträgerdichte bzw. der Ladungsträger-Ladungsträger-Wechselwirkung nun hinreichend genau untersucht wurde, wenden wir uns im folgenden Kapitel wieder der Ladungsträger-Phonon-Wechselwirkung zu. Durch Variation der Temperatur und zeitgleicher Beobachtung der Relaxations-

⁹über die Ladungsträgerdichte

und Rekombinationszeiten lassen sich unter anderem auch Aussagen über Relaxationsprozesse unter Phononenbeteiligung treffen.

In den beiden Abbildungen 5.9 (a) und (b) kann man typische Zerfallsspektren eines Exzitons und eines Biexzitons sehen. Gut erkennbar ist die deutlich kürzere Zerfallszeit des Biexzitons gegenüber dem Exziton zu erkennen. Verfolgt man die Zerfallszeiten beider über die Temperatur, so erhält man den Graphen in Abbildung 5.10.

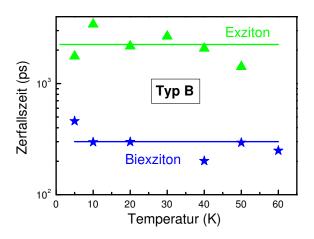


Abbildung 5.10:

Die Zerfallszeiten des Exzitons und des Biexzitons einer 100 nm-Typ B-Mesa in Abhängigkeit von der Temperatur. Die mittlere Anregungsleistung betrug $4.6 \frac{W}{cm^2}$.

In den Spektren der Temperaturserie läßt sich sowohl die Emissionslinie des Exzitons X als auch die des Biexzitons BiX bis hin zu Temperaturen von $60\,\mathrm{K}$ verfolgen. Trägt man, wie zuvor erwähnt, die aus den Zeitspektren gewonnenen Zerfallszeiten für X und BiX über der Temperatur auf, erhält man zwei horizontale Geraden die man in Abbildung 5.10 sehen kann. Das konstante Temperaturverhalten erwartet man auch aus der Theorie für nulldimensionale Systeme (siehe Kapitel 2.7). Eher wie ein zweidimensionales Exziton verhalten sich hingegen die Typ B-Quantenpunktensembles [37]: die Rekombinationszeit steigt linear mit der Temperatur an, um ab einem Wert von ca. 160 K wiederum abzunehmen.

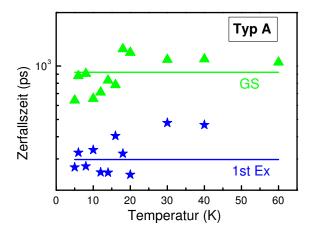
Die wesentlich kürzeren Zerfallszeiten des Biexzitons erklären sich durch die zwei möglichen strahlenden Rekombinationskanäle [10].

Außerdem liefert Abbildung 5.10 den Beleg für die Zuordnung von Exziton und Biexziton durch deren Zeitverhalten, denn es gilt, wie in Kapitel 2.6 auf Seite 17 beschrieben: $\tau_{BiX} = \frac{\tau_X}{2}$, wobei τ_{BiX} die Lebensdauer des Biexzitons und τ_X die des Exzitons ist.

So deutlich wie bei der Messung zuvor sieht man bei dem Typ A-Quantenpunkt aus Abbildung 5.11 das konstante Zeitverhalten der nulldimensionalen Exzitonen nicht. Zu höheren Temperaturen ergibt sich ein ähnliches Bild wie bei den großen QP. Im Gegensatz zu deren Messung wurden aber bei den kleinen QP mehr Zwischenschritte bei niedrigeren Temperaturen aufgenommen. Es ist also möglich, daß sich hier nur die Streuung durch schlechte Parameterwahl beim Anpassen bemerkbar macht.

Abbildung 5.11:

Die Zerfallszeiten des Grund- und des ersten angeregten Zustandes einer 100 nm-Typ A-Mesa in Abhängigkeit von der Temperatur. Die mittlere Anregungsleistung betrug 17,7 $\frac{W}{cm^2}$. Die 30 K- und 40 K-Zeiten des angeregten Zustandes wurden nicht mit in die Simulation einbezogen.



Zum Verhalten des Typ A-Ensembles besteht trotzdem keine Ähnlichkeit. Dort kann man einen konstanten Verlauf der Kurve bis 40 K, beobachten, gefolgt von einem linearen Anstieg und anschließendem Abfall.

Darüber hinaus fallen die - wie bei den vorangehenden Messungen bereits festgestellt -, im Vergleich zu den Typ B-Quantenpunkten, kürzeren Rekombinationszeiten auf. Ein quantitatives Anpassen der Anstiegszeiten erbrachte keine neuen Erkenntnisse, ließ aber den Trend zu längeren Relaxationszeiten erkennen.

Arrangiert man die Übersichtsspektren zu den einzelnen Temperaturen zu einem Konturplot (Abb. 5.12), wird deutlich, warum die meisten Messungen an den Typ A-Quanteninseln bei einer Badtemperatur von 20 K vorgenommen wurden.

Ein Grund ist sicher die steigende Effektivität des Ladungsträgereinfangs mit wachsender Verfügbarkeit von Phononen. Zudem läßt sich aufgrund des abrupten Lumineszenzbeginns bei 16 K ein thermischer Aktivierungsprozeß ($E_{th} = 1, 4 \text{ meV}$) vermuten. Denkbar ist ein flacher Defektzustand oder ein anderer nichtstrahlender Rekombinationskanal, der mit Aufbringung dieser Energie thermisch "entvölkert" wird.

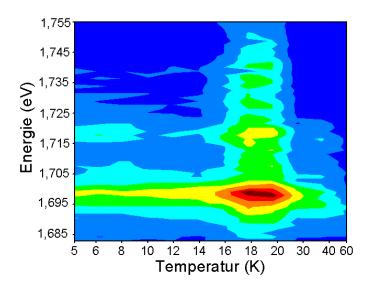


Abbildung 5.12:

Temperaturabhängigkeit der Lumineszenz eines Typ A-Quantenpunktes bei einer mittleren Anregungsleistung von $17.7 \frac{W}{cm^2}$. Die Intensität ist farbkodiert, wobei dunkelblau der geringsten und rot der höchsten Intensität entspricht.

Wenn bei etwa 25 K die Lumineszenz der höheren Zustände erneut und endgültig zusammenbricht, ist die Hauptursache im thermischen Verlust (thermal escape) in die Barriere bzw. in die wetting layer zu suchen. Es stehen weniger Ladungsträger zur Rekombination zur Verfügung. Durch effektive Relaxationsprozesse, wie Auger-¹⁰ und phononische Relaxation, gelangen die im Quantenpunkt verbleibenden Ladungsträger schnell in den Grundzustand bei circa 1,700 eV und rekombinieren dort.

 $^{^{10}\}mathrm{im}$ Moment des Laserpulses herrschen, wie bereits dargelegt, extrem hohe Ladungsträgerdichten

Kapitel 6

Ausblick

Hält man sich das ursprüngliche Interesse an den SQDs vor Augen, nämlich die gezielte Erzeugung eines und nur eines Photons, wird ein Hauptaugenmerk der weiteren Untersuchungen sicher auf dem Phänomen des blinkings liegen. Die willkürliche Steuerung der Emission eines Quantenpunktes ist der erste Schritt auf dem Weg zur Quanteninformationsverarbeitung (quantum information processing).

Dazu sind genaue Untersuchungen der Art und Reichweite der die Lumineszenz beeinflussenden Faktoren nötig. Das Verfahren könnte wie folgt aussehen: Zunächst wird eine unbeeinflußte Quantenpunktensembleprobe mittels μ -PL charakterisiert. Der Vorteil dieser Spektroskopiemethode liegt in der Ortsauflösung.

Im nächsten Schritt bringt man Defekte durch Implantation etwa in der Art von Abbildung 6.1 in die Probe ein. Die folgenden μ -PL-Messungen werden durch Feststellen der Orte reduzierter bzw. ausbleibender Lumineszenz den Radius des Einflußbereiches offenbaren.

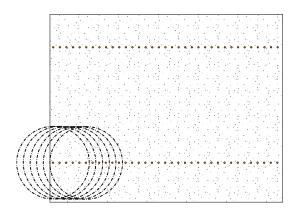


Abbildung 6.1: Probenaufbau zur Untersuchung der Reichweite und des Einflusses von elektrischen Feldern auf die Lumineszenz von Quantenpunkten. Man sieht eine denkbare Maske zur Implantation von Defekten sowie die gedachten Auswirkungsdurchmesser.

Variiert man zusätzlich die energetische Tiefe des Defektes durch geschickte Wahl

des Implantationsmaterials, läßt sich noch eine Vielzahl mehr an Abhängigkeiten untersuchen.

Diese Idee ist im Prinzip nur eine Weiterführung der ersten Ansätze in [43]. Dort (bzw. in [42]) wurde der Gedanke entwickelt, auf die Quantenpunktprobe beidseitig eine dünne Goldschicht aufzudampfen. Dünn heißt in diesem Fall etwa 20 nm, denn so ist es noch möglich die Lumineszenz durch diese Schicht hindurch zu beobachten. Zwischen den beiden Goldschichten, also in der Probe, kann nun durch Anlegen einer definierten Spannung ein Feld erzeugt werden, dessen Auswirkung die PL quenchen sollte.

Mit diesem Aufbau kann man auch durch Anlegen einer definierten Spannung das "Wandern" der Biexzitonenlinie von der Hochenergieseite hin zur Niederenergieseite des Exzitons beobachten, wie es in [48] beschrieben ist.

In der vorliegenden Diplomarbeit konnten aus zeitlichen Gründen nur die Eigenschaften eines Materialsystems - InP/GaInP - untersucht werden. Bei Verwendung eines anderen Materials, beispielsweise um einen anderen Wellenlängenbereich nutzen zu können, müssen ähnliche Untersuchungen wie die hier durchgeführten vorgenommen werden.

Zudem können Verbesserungen am Aufbau, wie Durchführung einer μ -PL oder Untersuchungen mittels SNOM neue detailliertere Erkenntnisse durch weniger Signalverlust von der Probe zum Detektor bewirken. Eine Ortsauflösung ist damit auch möglich.

Kapitel 7

Zusammenfassung

Im Rahmen der Vorbereitungen und beständig während der Diplomarbeit wurde etabliertes Wissen aus Lehrbüchern und aktuelle Theorien aus wissenschaftlichen Abhandlungen gesammelt, ausgewertet, bewertet und in eigene Modelle aufgenommen.

Das Theorie-Kapitel 2 sollte in seiner Konzeption und in seinem Aufbau ein schnelles und effektives Einarbeiten in die Grundlagen der Spektroskopie an Quantenpunkten ermöglichen. Auf weiterführende, detailliertere Literaturquellen wird jeweils im Zusammenhang verwiesen.

Grundlage dieser Arbeit sind die Ergebnisse aus zwei verschiedenen Meßmethoden. Zum einen wurde mit Dauerstrichanregung gemessen und zum anderen in einem modifizierten Aufbau (siehe Kapitel 3.2) mit gepulster Anregung.

Mittels der Dauerstrich-Anregungs-Messungen wurde zunächst der Übergang vom Quantenpunktensemble hin zu einzelnen Quantenpunkten untersucht und versucht die theoretischen Vorhersagen zu bestätigen. Zu diesem Zwecke wurden Proben unterschiedlicher Quantenpunktgrößen mikrostrukturiert: Mesen unterschiedlichen Durchmessers wurden mittels Elektronenstrahllithographie geschrieben und anschließend geätzt. Die dadurch erreichte sukzessive Reduzierung der in einer Mesa enthaltenen Quanteninseln schuf die probentechnischen Grundlagen, um einen Übergang vom Ensemble zum Einzelpunkt beobachten zu können.

Entgegen der theoretischen Vorhersagen konnte eine sukzessive Ausdünnung des Spektrums bzw. ein klarer Übergang von den gaußförmigen Photolumineszenzlinien des Ensembles hin zu einzelnen, ausgeprägt scharfen Linien für Einzelpunkte mit Linienbreiten deutlich kleiner als 1 meV nicht beobachtet werden. Grund dafür waren hauptsächlich homogene Linienverbreiterungsmechanismen wie das Einfangen eines Ladungsträgers in einen Defektzustand mit dem dadurch erfolgten quench des PL-Signals und die Auswirkungen des elektrischen Feldes der Ladungsträger auf die im Quantenpunkt lokalisierten Ladungsträger. Ebenso spielen Mechanismen wie das blinking und das Vorhandensein von geladenen Quantenpunkten eine wichtige Rolle als homogener Linienverbreiterungsmechanismus, die zudem für eine 'Verrauschung' des Lumineszenzsignals sorgen.

Das Ziel der durchgeführten Leistungsserien war es, Ladungsträgerkanäle aufzudecken und das Auffüllen der atomähnlichen Zustände und somit die elektronische Struktur des Quantenpunktes zu beobachten. Aufgrund der Ergebnisse anderer Arbeitsgruppen wurde erwartet, außer Exzitonen auch "exotischere" Teilchen wie Biund Multiexzitonen sowie geladene Exzitonen zu beobachten.

Neben der Feststellung, daß bei Einzelquantenpunkten die Linienbreite stark anregungsleistungsabhängig ist, wurden Biexzitonen identifiziert und deren Bindungsenergie bestimmt. Hierbei konnten die Untersuchungen von Persson et al [48] zur Lage des Biexzitons relativ zum Exziton in Abhängigkeit von der Quantenpunktgröße bestätigt werden. Das Auftreten von geladenen Exzitonen wurde schon in den Messungen zuvor nachgewiesen. Die Signale von Multiexzitonen wurden ebenfalls in den aufgenommenen Spektren gefunden, konnten jedoch nicht näher aufgelöst werden.

Die anschließend vorgenommenen Temperaturserien bei festgehaltener Leistung gaben einen tieferen und quantitativeren Einblick in die Struktur und Art der Ladungsträgerkanäle.

Die Beobachtung der thermischen Besetzung von Defektzuständen sowie das Feststellen der Art und Weise, wie das elektronische System an das phononische koppelt, sind die wichtigsten Ergebnisse dieses Teils der Arbeit.

Es konnte das Auftreten eines phononischen Relaxationsflaschenhalses (phonon bottleneck) bei den Typ A-Quantenpunkten beobachtet werden. Dieser äußerte sich aber nicht, wie bei anderen Gruppen und Materialsystemen, im vollständigen Erlöschen jeglicher Photolumineszenz bei tiefen ($T\approx 5\,\mathrm{K}$) Temperaturen. Die Begründung dafür findet man in der Vielzahl (siehe Kapitel 2.5) der Wege zu rekombinieren und hier vor allem an der Effizienz der Augerrelaxation. Selbst bei geringen Ladungsträgerdichten können die angeregten Zustände noch schwach wahrgenommen werden, obwohl die phononischen Relaxationskanäle weggefallen sind.

Die Messungen mit gepulster Anregung ergaben im Vergleich der verschiedenen Mesengrößen untereinander keine verwendbaren Erkenntnisse. Der Zeitaufwand für eine statistisch sinnvolle Untersuchung war für diese Diplomarbeit zu groß und kann vielleicht Teil einer weiteren Arbeit sein.

Jedoch konnte ein dynamisches Modell zur statistischen Besetzung und Rekombination (*RIO*; siehe Kapitel 2.8) von *Mukai und Sugawara* [30,31] erfolgreich an Einzel-Quantenpunkten angewendet werden. Die folgenden Ergebnisse beruhen auf der Auswertung anhand dieses Modells.

Bei der Untersuchung der Abhängigkeit der Zerfallszeiten von der Ladungsträgerdichte bestätigte sich die wichtige Rolle des Auger-Prozesses als Relaxationsmechanismus bei Quantenpunkten. Es war jedoch mit dem verwendeten Versuchsaufbau bzw. Apparatur nicht möglich die Anregungsleistung so weit herabzusenken, daß man einen ausgeprägten Relaxationsflaschenhals hätte beobachten können.

Anhand der Rekombinationszeiten wird ersichtlich, daß ein zu hohes Maß an umgebenden Ladungsträgern in der Form hinderlich ist, als daß unter Umständen der

Wellenfunktionsüberlapp durch Störungen verkleinert und damit die Zerfallszeiten angehoben werden kann.

Viele der zuvor aufgestellten Theorien fanden durch die Transientenmessungen ihre Bestätigung. Dazu gehören unter anderem auch der Einfluß der Ladungsträgerdichte auf die Linienverbreiterung.

Bei den Typ A-QP konnten über einen qualitativen und quantitativen Vergleich mit den Typ B-QP hinaus das Modell von *Pryor et al* [26] bestätigt werden, das die Existenz zweier unterschiedlicher, räumlich getrennter Lochzustände vorhersagt, die keinen effektiven Relaxationskanal zueinander aufweisen.

In der Lumineszenz der Typ A-QP-Probe konnte zudem ein Relaxationsflaschenhals beobachtet werden.

Bei den temperaturvarianten zeitaufgelösten Messungen konnten sowohl Exziton als auch Biexziton in ihrem Temperaturverhalten beobachtet werden. Die in der Theorie nulldimensionaler Systeme vorhergesagten über die Temperatur konstanten Zerfallszeiten wurden bestätigt. Damit ergibt sich ein weiterer eklatanter Unterschied zu den Quantenpunktensembles.

Anhang A

Elektronische Struktur InP, $Ga_{.50}In_{.50}P$

Kurzzeichen	Bedeutung
$E_{val,aver}$	Valenzbandmittel
Δ_0	Spin-Orbit Splitting
E_q	Energielücke (bulk-Wert)
$a_{Barriere}$	Gitterkonstante des Barrierenmaterials $(T = 300 \mathrm{K})$
a_{QP}	Gitterkonstante des Quantenpunktmaterials $(T = 300 \mathrm{K})$
a_V	hydrostatisches Deformationspotential für das Valenzband
a_C	hydrostatisches Deformationspotential für das Leitungsband
c_{11}	Elastizitätskonstante
c_{12}	Elastizitätskonstante
b	Scherdeformationspotential
ΔE_{HH}^{sh}	verspannungsabhängige Verschiebung (schwere Löcher)
ΔE_{LH}^{sh}	verspannungsabhängige Verschiebung (leichte Löcher)
ΔE_V^{hy}	Verschiebung durch hydrostatische Verspannung (Valenzband)
ΔE_C^{hy}	Verschiebung durch hydrostatische Verspannung (Leitungsband)
E_C	absolute Lage des Leitungsbandkante
$E_{V,HH}$	absolute Lage Valenzbandkante (schwere Löcher)
$E_{V,LH}$	absolute Lage Valenzbandkante (leichte Löcher)
$E_{g,HH}$	daraus resultierende Bandlücke (schwere Löcher)
$E_{g,LH}$	daraus resultierende Bandlücke (leichte Löcher)
E_V (unkorr.)	unkorrigierter Wert Valenzbandkante
E_C (unkorr.)	unkorrigierter Wert Leitungsbandkante

Tabelle A.I: Aufschlüsselung der Bedeutungen der Kurzzeichen in der nachfolgenden Tabelle A.II.

Einige der Materialwerte für $Ga_{.50}In_{.50}P$ in Tabelle A.II mußten nach dem auch von Krijn [12] vorgeschlagenen Näherungsverfahren nach Vegard (Vegard's law) ab-

	Einheit	InP	$Ga_{.50}In_{.50}P$
$E_{val,aver}$	eV	-7,04	-7,22
Δ_0	eV	0,11	0,103
E_g	eV	1,42305	1,875575
$a_{Barriere}$	nm	0,566035	$0,\!566035$
a_{QP}	nm	$0,\!58697$	$0,\!58697$
a_V	eV	1,27	1,485
a_C	eV	-5,04	-6,09
c_{11}	$10^{12} \frac{dyn}{cm^2}$	1,02	1,215
c_{12}	$10^{12} \frac{dyn}{cm^2}$	0,576	0,6
b	eV	-2,02	-1,55
ΔE_{HH}^{sh}	meV	153,42	109,88
ΔE_{LH}^{sh}	meV	86,34	48,99
ΔE_V^{hy}	meV	-39,43	-53,62
ΔE_C^{hy}	meV	156,49	219,89
E_C	meV	-5.423,79	-5.090,20
$E_{V,HH}$	meV	-6.889,35	-7.129,40
$E_{V,LH}$	meV	-6.956,43	-7.190,29
$E_{g,HH}$	meV	$1.465,\!56$	2.039,20
$E_{g,LH}$	meV	1.532,64	2.100,09
E_V (unkorr.)	meV	-7.185,67	
E_C (unkorr.)	meV	-5.310,09	

Tabelle A.II: Die Materialdaten für InP und GaInP aus [12,33,34,35,36] eingesetzt in das Formelwerk [12,11] zur Berechnung der neuen Bandstruktur

geschätzt werden. Werte die durch die genannte Literatur genauer bekannt waren, stimmten mit diesen genäherten Daten gut überein.

Anhang B

Zeitaufgelöste Spektroskopie: Daten

	D1	D2	ZW	D3	SD	WL	B2	B1
Energie (eV)	1,639	1,652	1,682	1,721	1,792	1,820	1,866	1,912
Anstieg	255	179	201	275	65	124	147	151
Zerfall	1356	1046	564	279	668	1257	2149	2426

Tabelle B.I: Anstiegs- und Zerfallszeiten einer 1000 nm-Mesa des Typs B; in Pikosekunden.

	D1	D2	D3	D4	D5	D6
Energie (eV)	1,621	1,628	1,639	1,644	1,659	1,674
Anstieg	130	233	400	470	512	447
Zerfall	1300	1705	1640	1225	711	448
	D7	D8	SD	WL	B2	
Energie (eV)	1,683	1,702	1,763	1,822	1,869	
Anstieg	398	320	57	147	153	
Zerfall	401	323	1046	1631	2264	

Tabelle B.II: Anstiegs- und Zerfallszeiten einer 500 nm-Mesa des Typs B; in Pikosekunden.

	D1	D2	D3	D4	D5	D6	D7	WL	B2
Energie (eV)	1,624	1,635	1,641	1,654	1,683	1,695	1,707	1,822	1,867
Anstieg	65	47	233	263	74	52	74	120	176
Zerfall	121	2222	1077	831	618	268	186	1733	2136
Zerfall 2	1559								

 $\bf Tabelle~B.III:~$ Die aus dem Spektrum gewonnenen Anstiegs- und Zerfallszeiten einer zufällig ausgewählten 200 nm-Typ B-Mesa sind in Pikosekunden angegeben.

	L	D1	D2.1	D2.2	D2.3	D3.1	D3.2	D3.3
Energie (eV)	1,567	1,617	1,6387	1,6431	1,6455	1,6564	1,6593	1,6642
Anstieg	105	90	63	112	113	80	87	91
Zerfall	105	92	120	114	113	86	86	89
Zerfall 2			970	1440	1341	1506	911	967
	D4	D5	D6	D7	WL	B2	B1	
Energie (eV)	1,678	1,695	1,707	1,724	1,813	1,866	1,908	
Anstieg	92	88	78	77	88	156	196	
Zerfall	93	90	84	79	85	2063	2767	
Zerfall 2	1242	1567	1951	2630	4562			

Tabelle B.IV: Die aus dem Spektrum 5.3 gewonnenen Anstiegs- und Zerfallszeiten einer 100-Typ B-Mesa sind in Pikosekunden angegeben.

Stichwortverzeichnis

A AFM, 26, 27, 30 Aktivierung -senergie, 54 thermische, 55, 64, 65, 67, 68, 81 artificial atoms, 15 Auger-Effekt, 17 Auswahlregel, 15	E Energie-Zeit-Unschärfe, 11, 38 Erhaltungsgrößen, 13, 57 Exziton, 49 Bindungsenergie, 9, 10 Definition, 9 Radius, 9, 38, 40 Temperaturverhalten, 80
B Bandkantenabsenkung, 56, 59, 61 Bandlücke, 8, 13, 26 Bandstruktur, 8, 26, 76 Benetzungsschicht, siehe wetting layer Biexziton, 17, 49–51, 64 Bindungsenergie, 17, 49 Temperaturverhalten, 80 bimodale Größenverteilung, 30, 46, 47, 51 Bindungsenergie Biexziton, 17 Exziton, 9, 10 negative, 49 blinking, 41, 67 C confinement, 12, 40, 47, 49, 65 Definition, 9 Regimes, 9, 40 Coulomb-Wechselwirkung, 9, 13, 17, 18, 40, 44 D Defekte, 5, 15, 16, 39, 55, 67, 68, 78, 81 Ätz-, 30, 42, 71	F Ferminiveau, 43, 44 Freie Oberflächenenergie, 5 Frequenzverdopplung, 35 G Gaußkurve, 13, 58, 64 geladene Quantenpunkte, 43, 44, 49 geladene Störstelle, 39 Gitterkonstante, 8, 15, 26, 27 InP,GaInP, 8 H Hamiltonoperator, 44 K Kryostat (Durchfluß-), 32 L Ladungsträgerdynamik, 19 Laserpuls, 31, 34, 35, 74, 76 Lebensdauer, 9 Biexziton, 18, 80 Exziton, 80 Ladungsträgerrekombinations-, 34 Quantenpunkt, 18
Deformationspotential, 8, 13, 27	Typ II, 18

94 Stichwortverzeichnis

Linienbreite, 11, 37, 50, 60–62, 64	direkt/indirekt, 8
Linienverbreiterung (homogen, in-	einzelne, 11, 28–30, 38, 47, 48, 58,
homogen), 12, 28, 38, 41, 43,	71, 74
46, 79	Ensemble, 12, 28, 29, 37, 43, 47,
Lorentzkurve, 11, 58, 64	49, 51, 67, 69, 74, 80, 81
	exzitonische Lebensdauer, 18, 19
M	geladene, siehe geladene Quanten-
Mesa, 29, 33, 38	punkte
mittlere Phononenenergie, 59–60	selbstorganisiertes Wachstum, 5,
Multiexziton, 18, 51	25
Multiphononen, siehe Phononen	single photon emitter, 2, 43
	Typ A, 30, 31, 38, 44, 45, 47, 51–
O	54, 65–68, 74–76, 78–82
Oberflächendiffusion, 30	Typ B, 30, 31, 38, 47–51, 54–65,
Oberflächenzustände, 26, 42, 62	77–78, 80
ordering, 57	Typ II, 10, 39, 41, 73, 76
Orts-Impuls-Unschärfe, 15	Wachstumsmodi, 5
Ostwald'scher Reifeprozeß, 30, 45	Zustandsdichte, 2
	quenching, 41, 42, 55, 67
P	queneming, 41, 42, 66, 67
Pauli-Blocking, 72	R
phonon bottleneck, 14, 16, 46, 53, 57,	Ratengleichung, 21
66, 68, 73, 78, 81	Rauschen, 41, 47
Definition, 14	blinking, siehe blinking
Phononen, 13, 15, 54	geladene Quantenpunkte, 43
akustische, 15, 16	Meßapparatur, 43
Dispersion relation, 14	Oberflächenzustände, siehe Ober-
LA, 15	flächenzustände
LO, 13, 15	Zustandskopplung, 42
Multi-, 16, 57	Relaxation, 13, 19, 53, 54, 65, 67
optische, 15, 18	-szeit, 54
TA, 15, 64	Auger-, 16, 58, 73, 76, 82
TO, 63	Defekte, 15
phononischer Flaschenhals, siehe pho-	Intrapunkt-, 16, 17
non bottleneck	phononische, 13, 54, 56, 73, 79–82
PL, 31, 46	Pseudoimpuls, 15
PLE, 30, 38	Tiefe Störstellen, 15
Pseudoimpuls, 15	Renormalisierungsenergie, 59, 60
F 3.23, 20	RIO, 19, 70
Q	
Quantenfilm, 6, 7, 9, 10, 18, 19, 26	Rydbergenergie, 10
Quantenpunkte	S
Charakterisierung, 27, 37	state filling, 38, 47, 49, 52, 55, 56, 77
Definition, 1	Supergitter, 57

Stichwortverzeichnis 95

```
Т
TEM, 26, 27
thermischer Verlust, 10, 56, 58, 65, 82
Tiefe Störstellen, 15
Transienten, 76–79
Tunnelprozeß, 15
Typ II, 10, 76
   Definition, 39, 41
   Lebensdauer, 18, 73
V
Varshni-Shift, siehe Bandkantenab-
       senkung
Verspannung, 6, 26, 27, 38
   tensil, kompressiv, 8
W
Wechselwirkung
   Austausch-, 44
   Coulomb-, 9, 13, 17, 18, 40, 44
   Elektron-Phonon-, 60
   Exziton-Exziton-, 51
   Ladungsträger-Exziton-, 12, 30, 38
   Ladungsträger-Ladungsträger-, 9,
       17, 19, 73, 74
   Ladungsträger-Phonon-, 14, 16,
       59, 79
   Quantenpunkt-Quantenpunkt, 54
Wellenfunktion, 40
wetting layer, 5-7, 26, 30, 38, 53, 54,
       58, 65, 67, 69, 71, 82
```

Literatur

[1] E. Moreau et al. 'Single-mode solid-state single photon source based on isolated quantum dots in pillar microcavities'. *Appl. Phys. Lett.*, Band 79; 2865 (2001).

- [2] M. Bayer et al. 'Coupling and Entangling of Quantum States in Quantum Dot Molecules'. Science, Band 291; 451 (2001).
- [3] L. Besombes et al. 'Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission'. *Phys. Rev. B*, Band 63; 155.307 (2001).
- [4] J. Seufert et al. 'Spectral diffusion of the exciton transition in a single self-organized quantum dot'. Appl. Phys. Lett., Band 76; 1872 (2000).
- [5] G. Bacher et al. 'Biexciton versus Exciton Lifetime in a Single Semiconductor Quantum Dot'. *Phys. Rev. Lett.*, Band 83; 4417 (1999).
- [6] M. Bayer et al. 'Hidden symmetries in the energy levels of excitonic 'artificial atoms'. *Nature*, Band 405; 923 (2000).
- [7] E. Dekel et al. 'Carrier-carrier correlations in an optically excited single semi-conductor quantum dot'. *Phys. Rev. B*, Band 61; 11.009 (2000).
- [8] All your base are belong to us!
- [9] E. Dekel et al. 'Cascade evolution and radiative recombination of quantum dot multiexcitons studied by time-resolved spectroscopy'. *Phys. Rev. B*, Band 62; 11.038 (2000).
- [10] Dieter Bimberg; Marius Grundmann; Nikolai N. Ledentsov. Quantum dot heterostructures (Wiley-VCH, 1999).
- [11] Frank Adler. Physikalische Eigenschaften von selbstorganisierten InAs/GaAs-Quantenpunkten. Doktorarbeit, 4. Physikalisches Institut der Universität Stuttgart (1997).
- [12] M.C.P.M. Krijn. 'Heterojunction band offsets and effective masses in III-V quaternary alloys'. Semicond. Sci. Technol., Band 6; 27–31 (1991).
- [13] I. Vurgaftman et al. 'Band parameters for III-V compound semiconductors and their alloys'. *Journal of applied physics*, Band 89, Nr. 11; 5815–5875 (2001).
- [14] A.J. Williamson et al. 'Indirect band gaps in quantum dots made from direct-gap bulk materials'. *Journal of electronic materials*, Band 28, Nr. 5; 414 (1999).
- [15] O. Stier et al. 'Shape and Composition Effects on Excitons and Biexcitons in Quantum Dots'. *Phys. Stat. Sol.* (a), Band 190, Nr. 2; 477–484 (2002).

[16] R. Heitz et al. 'Shape-Dependent Exciton Dynamics in InGaAs/GaAs Quantum Dots'. *Phys. Stat. Sol.* (a), Band 190, Nr. 2; 499–504 (2002).

- [17] Grabert und Horner. 'n/a'. unbekannt (1991).
- [18] S. Raymond et al. 'Experimental determination of Auger capture coefficients in self-assembled quantum dots'. *Phys. Rev. B*, Band 61, Nr. 24; R16.331 (2000).
- [19] D. Morris et al. 'Carrier energy relaxation by means of Auger processes in InAs/GaAs self-assembled quantum dots'. *Appl. Phys. Lett.*, Band 75, Nr. 23; 3593 (1999).
- [20] A.V. Uskov et al. 'Auger carrier capture kinetics in self-assembled quantum dot structures'. *Appl. Phys. Lett.*, Band 72, Nr. 1; 58 (1998).
- [21] S. Sanguinetti et al. 'Role of the wetting layer in the carrier relaxation in quantum dots'. *Appl. Phys. Lett.*, Band 81, Nr. 4; 613 (2002).
- [22] R. Ferreira & G. Bastard. 'Phonon-assisted capture and intradot Auger relaxation in quantum dots'. *Appl. Phys. Lett.*, Band 74, Nr. 19; 2818 (1999).
- [23] G. Mayer. Ladungsträger-Dynamik in III/V-Halbleiter-Quantendraht-Strukturen. Doktorarbeit, 4. Physikalisches Institut der Universität Stuttgart (1993).
- [24] Peter Ernst. Optische Eigenschaften von geordnetem GaInP₂. Doktorarbeit, 4. Physikalisches Institut der Universität Stuttgart (1997).
- [25] Ulrich Cebulla. Rekombinations- und Relaxations-Untersuchungen an Quantentopf-Strukturen mittels optischer Kurzzeitspektroskopie. Doktorarbeit, 4. Physikalisches Institut der Universität Stuttgart (1990).
- [26] C. Pryor et al. 'Electronic structure of strained $InP/Ga_{.51}In_{.49}P$ quantum dots'. *Phys. Rev. B*, Band 56; 10.404–10.411 (1997).
- [27] M. Bayer et al. 'Exciton complexes in $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ quantum dots'. Phys. Rev. B, Band 58, Nr. 8; 4740–4753 (1998).
- [28] Ph. Lelong & G. Bastard. In: *Proceedings of 23rd International Conference on* THE PHYSICS OF SEMICONDUCTORS, Seite 1377 (World Scientific, Singapore, 1996 in Berlin, Germany).
- [29] D.S. Citrin. Superlattices and Microstructures, Seite 303 (13, 1993).
- [30] K. Mukai und M. Sugawara. 'Optical characterization of quantum dots'. In: Self-Assembled InGaAs/GaAs Quantum Dots, Band 60 von Semiconductors and Semimetals, Kapitel 4, Seiten 183–208 (Academic Press, 1999).

[31] K. Mukai und M. Sugawara. 'The photon bottleneck effect in quantum dots'. In: Self-Assembled InGaAs/GaAs Quantum Dots, Band 60 von Semiconductors and Semimetals, Kapitel 5, Seiten 209–239 (Academic Press, 1999).

- [32] Jörg Porsche. Selbstorganisation von (Ga,In)P-Quanteninseln für Laseranwendungen im sichtbaren Spektralbereich. Doktorarbeit, 4. Physikalisches Institut der Universität Stuttgart (2001).
- [33] S. Adachi, R. Blachnik, R.P. Devaty, F. Fuchs, A. Hangleiter, W. Kulisch, Y. Kumashiro, B.K. Meyer, R. Sauer. 'Part β: Electronic, transport, optical and other properties'. In: Subvolume a1: Group IV Elements, IV-IV and III-V Compounds, Band III/41 von Landolt-Börnstein numerical data and functional relationships in science and technology (Springer Verlag, 2002).
- [34] A.R. Adams, E.P. O'Reilly, A.R. Forouhi, I. Bloomer. 'Properties of indium phosphite'. In: *EMIS Datareviews Series*, 6 (INSPEC, The Institution of Electrical Engineers, London and New York, 1991).
- [35] Achim Moritz. Optische Verstärkung in GaInP-AlGaInP-Quantenstrukturen. Doktorarbeit, 4. Physikalisches Institut der Universität Stuttgart (1997).
- [36] Rolf Winterhoff. Kurzwellige GaInP-Quantenfilmlaser. Doktorarbeit, 4. Physikalisches Institut der Universität Stuttgart (1999).
- [37] M. Jetter. 'Relaxations- und Rekombinationsuntersuchungen an selbstorganisierten (Ga,In)P-Quantenpunkten'. Unveröffentlichte Doktorarbeit über spektroskopische Untersuchungen an $Ga_xIn_{1-x}P/Ga_xIn_{1-x}P$ Quantenpunkten.
- [38] Manual for monochromator HD-320.
- [39] Bernard Couillaud. *Mode Locking Titanium Sapphire*. Coherent Inc. (Oktober 1990).
- [40] P. Dawson et al. 'Microsecond carrier recombination times in InAs/AlAs quantum dots'. Appl. Phys. Lett., Band 81, Nr. 13; 2349–2351 (2002).
- [41] S. Anders et al. 'Bimodal size distribution of self-assembled $In_xGa_{1-x}As$ quantum dots'. *Phys. Rev. B*, Band 66; 125.309 (2002).
- [42] M. Sugisaki et al. 'Flourescence Intermittency in Self-Assembled InP Quantum Dots'. *Phys. Rev. Lett.*, Band 86, Nr. 21; 4883 (2001).
- [43] M. Sugisaki et al. 'Optical Properties of InP Self-Assembled Quantum Dots Studied by Imaging and Single Dot Spectroscopy'. *Jap. Journ. Appl. Phys.*, Band 41, Nr. part 1, No. 2B; 958–966 (2002).

[44] Andreas Ruf. Epitaxie und Untersuchung von selbstorganisierten (Ga)InP-Quantenpunkten. Diplomarbeit, 4. Physikalisches Institut der Universität Stuttgart (1997).

- [45] M-E. Pistol et al. 'Random telegraph noise in photoluminescence from individual self-assembled quantm dots'. *Phys. Rev. B*, Band 59, Nr. 16; 10.725 (1999).
- [46] M-E. Pistol. 'Spectroscopic studies of random telegraph noise in self-assembled InP quantum dots in GaInP'. *Phys. Rev. B*, Band 63; 113.306 (2001).
- [47] K.T. Shimizu et al. 'Blinking statistics in single semiconductor nanocrystal quantum dots'. *Phys. Rev. B*, Band 63; 205.316 (2001).
- [48] J. Persson et al. 'Optical and theoretical investigations of small InP quantum dots in $Ga_xIn_{1-x}P$ '. Phys. Rev. B, Band 67; 035.320–1 035.320–7 (2003).
- [49] G. Saint-Girons & I. Sagnes. 'Photoluminescence quenching of a low-pressure metal-organic vapor-phase-epitaxy grown quantum dots array with bimodal inhomogeneous broadening'. *J. Appl. Phys.*, Band 91, Nr. 12; 10.115–10.118 (Juni 2002).
- [50] P.G. Blome et al. 'Temperature-dependent linewidth of single $InP/Ga_xIn_{1^{\sim}x}P$ quantum dots: Interaction with surrounding charge configurations'. *Phys. Rev.* B, Band 61, Nr. 12; 8382–8387 (März 2000).
- [51] Y.P. Varshni. 'Temperature dependence of the energy gap in semiconductors'. *Physica B*, Band 34; 149–154 (1967).
- [52] K.P. O'Donnel & X. Chen. 'Temperature dependence of semiconductor band gaps'. *Appl. Phys. Lett.*, Band 58; 2924–2926 (1991).
- [53] L. Vi na et al. 'Temperature dependence of the electric function of germanium'. *Phys. Rev. B*, Band 30, Nr. 4; 1979–1991 (August 1984).
- [54] Gerd Bacher. Exzitonendynamik in Quantenfilm-Heterostrukturen: Energie-, Impuls- und Phasenrelaxation. Doktorarbeit, 4. Physikalisches Institut der Universität Stuttgart (1993).

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich denen danken, die diese Arbeit mit ermöglicht haben:

Herrn Prof. Dr. H. Schweizer für die Übernahme des Hauptberichts und die hilfreichen, informativen Gespräche zur Diplomarbeit, sowie für den schier unerschöpflichen Vorrat an Detailwissen und Wissen um die großen Zusammenhänge, die eine Diplomarbeit doch erst in das etablierte Wissen einordenbarmachen.

Herrn Prof. Dr. T. Pfau für die Übernahme des Mitberichts und das Interesse für diese Arbeit.

Michael Jetter für die intensive Betreuung der Diplomarbeit, in Hilfestellung, Tips, tiefgehenden Diskussionen und für seine unverwüstliche gute Laune.

allen Mitgliedern - Diplomanden, Doktoranden sowie Professoren - des Mikrostrukturlabors und des 4. Physikalischen Instituts für zahlreiche Diskussionen physikalischer und auch fachfremder Thematik. Insbesondere seien erwähnt: Michael Körbl, für einen umfangreichen Vorrat an Tips zur Physik, wie auch zu TeX; Enno Baars für Rettung in höchster Not;-) und ebenfalls unglaublich interessante Off-Topic-Diskussionen; meinen "Mitstreitern" Ralf, Bernd und Albert.

Meinen Eltern nicht nur für die finanzielle Unterstützung auf dem Weg zu dieser Arbeit, sondern auch für ihr Interesse, sowie meinem Bruder.

Katja, fürs Korrekturlesen und schlicht für ihre Liebe, nicht nur, wenn mir die Sorge um diese Arbeit den Humor nahm.