

Wachstum und Charakterisierung von InGaAs Quantenpunkten auf GaP Substraten

vorgelegt von

Diplom Physiker

Gernot Stracke

aus Meschede

Von der Fakultät II - Mathematik und Naturwissenschaften der Technischen
Universität Berlin
zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor der Naturwissenschaften

- Dr. rer. nat. -

genehmigte Dissertation

Promotionsausschuss:

Vorsitzender: Prof. Dr. Michael Lehmann

Berichter/ Gutachter: Prof. Dr. Dieter Bimberg

Berichter/ Gutachter: Prof. Dr. Armin Dadgar

Tag der wissenschaftlichen Aussprache: 29.08.2014

Berlin 2014

D 83

Kurzfassung

Galliumphosphid-basierte Nanostrukturen, und insbesondere in Galliumphosphid eingebettete Quantenpunkte (QP) aus Indiumgalliumarsenid, haben in den letzten Jahren das Interesse einer zunehmenden Zahl von Forschungsgruppen geweckt, da sich mit ihnen theoretisch zwei aktuelle Probleme der Halbleiterindustrie lösen lassen: Die monolithische Integration von auf III-V Halbleitern basierenden photonischen Bauelementen mit Silizium-basierter Elektronik, und die Realisierung eines schnellen und gleichzeitig nicht-flüchtigen elektronischen Speichers.

Die vorliegende Arbeit legt die materialwissenschaftlichen Grundlagen für die technologische Anwendung von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen. Demonstriert wird die Herstellung von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mittels Metallorganischer Gasphasenepitaxie und die gezielte Steuerung ihrer strukturellen Eigenschaften wie Größe und Dichte über die Parameter des Epitaxieprozesses. Die Struktur der QPe kann direkt mit ihren elektronischen und optischen Eigenschaften verknüpft werden, so dass auf die jeweilige Anwendung maßgeschneiderte QPe hergestellt werden können.

Hohe Materialverspannungen im $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QP-System verursachen im Normalfall eine im $\mathbf{k}$ - und/oder Ortsraum indirekte elektronische Struktur. Diese Arbeit zeigt erstmals eine Möglichkeit auf, diese Materialverspannungen zu reduzieren und $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPe mit hocheffizienten optischen Rekombinationen herzustellen, was für eine Anwendung in photonischen Bauelementen unerlässlich ist. Neben der technologischen Anwendung stellen $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPe somit auch ein ideales Modellsystem zur Untersuchung von fundamentalen Wechselwirkungsprozessen von QPen mit ihrer Umgebung in Abhängigkeit von ihrer elektronischen Struktur dar. Erste detaillierte Untersuchungen dieser Art mittels optischer und kapazitiver Spektroskopie werden vorgestellt. Die von theoretischen Modellen vorhergesagte elektronische Struktur von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen im Grenzbereich zwischen indirekten und direkten optischen Übergängen kann so bestätigt werden.

Eine Evaluation des technologischen Potentials des $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QP-Systems

mit dem Fokus auf elektronischen Speichern ergibt eine gegenüber $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ QPen um drei Größenordnungen erhöhte Speicherzeit bei Raumtemperatur. Eine konsequente Weiterentwicklung des GaP-basierten Materialsystems lässt einen nicht-flüchtigen Speicher somit realisierbar werden.

Abstract

In recent years, gallium phosphide based nanostructures, particularly indium gallium arsenide quantum dots (QD) embedded in gallium phosphide, have attracted interest of a growing number of research groups worldwide. $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QDs are a possible solution for two current issues of the semiconductor industry: Monolithic integration of photonic devices based on III-V semiconductors with silicon-based electronics, and realization of a fast and non-volatile electronic memory.

The present thesis lays the groundwork for technological applications of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QDs. The fabrication of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QDs by metalorganic vapour phase epitaxy and control of their structural properties like size and areal density via parameters of the epitaxial process are being developed. The structure of the QDs can be linked directly to their optical and electronic properties. Thus, the QDs can be tailored to fit a specific application.

The electronic structure of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ heterostructures generally is indirect in reciprocal and/or direct space due to high material strain. For the first time, the present work demonstrates a way to reduce this material strain and to fabricate $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QDs with high-efficient optical recombination channels, which is crucial for photonic devices. Besides technological applications, $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QDs thereby present an ideal system to study fundamental interaction processes of QDs with surrounding material in dependence upon their electronic structure. First detailed analysis of the electronic structure of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QDs by means of optical and capacitance spectroscopy is presented. The theoretically predicted electronic structure of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QDs at the threshold between indirect and direct optical recombinations is confirmed.

An evaluation of the technological potential of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QDs for electronic memories yields a storage time at room temperature three orders of magnitude larger compared to $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ QDs. A non-volatile memory can be realized by systematic further development of the GaP-based material system.

Teile dieser Arbeit wurden bereits veröffentlicht:

G. Stracke, E. M. Sala, S. Selve, T. Niermann, A. Schliwa, A. Strittmatter und D. Bimberg, *Indirect and direct optical transitions in $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}/\text{GaP}$ quantum dots*, Applied Physics Letters **104** (12), 123107 (2014)

C. Prohl, A. Lenz, D. Roy, J. Schuppang, G. Stracke, A. Strittmatter, U. W. Pohl, D. Bimberg, H. Eisele und M. Dähne, *Spatial structure of $\text{In}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}/\text{GaAs}/\text{GaP}$ quantum dots on the atomic scale*, Applied Physics Letters **102** (12), 123102 (2013)

G. Stracke, A. Glacki, T. Nowozin, L. Bonato, S. Rodt, C. Prohl, A. Lenz, H. Eisele, A. Schliwa, A. Strittmatter, U. W. Pohl und D. Bimberg, *Growth of $\text{In}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$ quantum dots on GaP utilizing a GaAs interlayer*, Applied Physics Letters **101** (22), 223110 (2012)

Konferenzbeiträge:

Direct optical transitions in $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}/\text{GaP}$ quantum dots grown by MOVPE and luminescence study of individual quantum dots, 17th International Conference on Metal Organic Vapor Phase Epitaxy, Lausanne, Schweiz, 2014
InGaAs/GaP quantum dots: Controlling structural and optical properties, SemiconNano 2013, Lake Arrowhead, USA, 2013

InGaAs/GaP quantum dots: Controlling structural and optical properties, International Nano-Optoelectronics Workshop 2013, Cargèse, Frankreich, 2013

MOVPE growth of InGaAs quantum dots on GaP for nanomemory cells, III-V Halbleiter Sektion der Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Regensburg, 2013

MOVPE of $\text{In}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$ quantum dots on GaP for nanomemory cells, International Nano-Optoelectronics Workshop 2012, Berkeley und Stanford, USA, 2012

MOVPE growth of $\text{In}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}$ quantum dots on GaP for nanomemory cells, 16th International Conference on Metal Organic Vapor Phase Epitaxy, Busan, Südkorea, 2012

MOVPE growth of $In_{0.25}Ga_{0.75}As$ quantum dots on GaP for nanomemory cells, 17th International Winterschool on New Developments in Solid State Physics, Mauterndorf, Österreich, 2012

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	17
2	Grundlagen	21
2.1	Quantenpunkte	21
2.1.1	Elektronische Struktur von Quantenpunkten	21
2.2	Quantenpunkte für elektronische Speicher	23
2.3	Wachstumsmodi epitaktischer Schichten	25
2.3.1	Stranski-Krastanow Wachstum	27
3	Experimentelle Methoden	29
3.1	Metallorganische Gasphasenepitaxie	29
3.1.1	Der MOVPE Prozess	29
3.1.2	Aufbau der MOVPE Anlage	31
3.1.3	Substrate	33
3.2	Methoden zur Charakterisierung der hergestellten Proben	33
3.2.1	Probenstruktur	33
3.2.2	Photo- und Kathodolumineszenzspektroskopie	36
3.2.3	Rasterkraftmikroskopie	37
3.2.4	Querschnitts-Rastertunnelmikroskopie	38
3.2.5	Transmissionselektronenmikroskopie	39
4	Epitaxie von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Quantenpunkten auf GaP	41
4.1	Literaturübersicht und Arbeiten anderer Forschungsgruppen	41
4.2	Wachstumsmodus von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ auf GaP	43
4.3	$\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe: Kritische Schichtdicke, Dichte und Größe	48
4.4	Struktur vergrabener $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe	51
4.5	Entwicklung der QP-Lumineszenz mit der $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Bedeckung	54
4.6	Diskussion der GaAs Zwischenschicht	56

4.7	Speicherzeit in $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPen	58
4.8	Zusammenfassung	62
5	Erhöhung des Indiumgehaltes der $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPe	63
5.1	Optimierung der Dicke der GaAs Zwischenschicht	63
5.2	$\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe: Kritische Schichtdicke, Dichte und Größe . .	65
5.3	Querschnitts-TEM an vergrabenen $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ QPen	67
5.4	Entwicklung der QP-Lumineszenz mit der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung . .	69
5.5	Zusammenfassung und Vergleich mit $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPen	71
6	Elektronische Struktur von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenpunkten	73
6.1	Theoretisches Modell	73
6.2	Temp.-abh. KL von $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ und $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen	76
7	Verspannungsreduzierte $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenpunkte	83
7.1	Modifikation der Quantenpunkt-Deckschicht	83
7.2	Quantenpunktreifung während der Wachstumsunterbrechung	88
7.3	Oberflächennahe $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe	92
7.4	Temp.-abh. KL verspannungsreduzierter $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe . . .	93
7.5	Lumineszenz einzelner verspannungsreduzierter $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe	97
7.6	Zusammenfassung	100
8	Zusammenfassung	101
	Literatur	103

Abbildungsverzeichnis

2.1	Einfaches Schema der elektronischen Quantenpunktstruktur	22
2.2	Energielücken von III-V Halbleitern und Loch-Speicherzeit in QPen. .	24
2.3	Wachstumsmodi epitaktischer Schichten	27
3.1	MOVPE Prozess	30
3.2	MOVPE Reaktor, Schemazeichnung	31
4.1	$\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Wachstumsmodi auf GaAs und GaP	44
4.2	QP-Entwicklung mit $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Bedeckung, AFM	49
4.3	$\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe: Dichte und Höhe	50
4.4	$\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe: Querschnitts-STM	52
4.5	$\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe: Stöchiometrie	53
4.6	$\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe: Entwicklung der Lumineszenz mit der $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Bedeckung	54
4.7	Tight-Binding GaAs/GaP und $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenfilme . . .	55
4.8	DLTS-Probenstruktur, QPe in pn^+ -Diode	59
4.9	DLTS-Spektrum schematisch und von $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPen . . .	60
4.10	DLTS-Arrheniusgraph	62
5.1	Variation der GaAs Zwischenschichtdicke, AFM	64
5.2	Variation der GaAs Zwischenschichtdicke, Statistik	65
5.3	QP-Entwicklung mit der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung, AFM	66
5.4	$\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe: Dichte und Höhe	66
5.5	TEM Dunkelfeldaufnahme von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen	68
5.6	Hochauflösende TEM Aufnahme eines $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPes	69
5.7	$\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe: Entwicklung der Lumineszenz mit der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung	70
5.8	Integrierte Intensität und spektrale Position der Lumineszenz vergra- bener $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe	70
6.1	Elektronische Struktur von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenpunkten	74
6.2	Temperaturabhängige KL-Spektren von $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ und $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen	77

6.3	Aktivierungsenergien von Elektronen in $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ und $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen	78
6.4	$\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe: Temperaturabhängigkeit des Lumineszenzmaximums	80
6.5	$\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe: Temperaturabhängigkeit des Lumineszenzmaximums	80
6.6	Intensitätsverhältnis der hoch- und niederenergetischen Übergänge . .	81
7.1	Elektronische Struktur verspannungsreduzierter $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenpunkte	84
7.2	PL-Spektren verspannungsreduzierter $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe	85
7.3	PL-Spektren von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mit und ohne VRS	86
7.4	Anregungsabhängige PL verspannungsreduzierter $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe	87
7.5	Anregungsabhängige PL verspannungsreduzierter $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe: Entwicklung von Intensität und spektraler Position	88
7.6	AFM-Aufnahmen von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mit variierender Wachstumsunterbrechung	89
7.7	PL-Spektren von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mit variierender Wachstumsunterbrechung	90
7.8	Entwicklung der spektralen Position des Lumineszenzmaximums von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mit der Wachstumsunterbrechung	91
7.9	PL-Spektren von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mit dünner Deckschicht . .	93
7.10	KL-Spektren verspannungsreduzierter $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe, temperaturabhängig	94
7.11	Auswertung der temperaturabhängigen KL verspannungsreduzierter $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe	96
7.12	KL-Spektren einzelner $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe	98
7.13	Thermische Verschiebung der Emissionslinien einzelner $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe	99

Tabellenverzeichnis

2.1	Materialeigenschaften von GaP, GaAs und InAs	26
3.1	Rezept zur nasschemischen Behandlung von GaP Substraten	34
3.2	Probenstruktur, Wachstumsparameter	35

Abkürzungsverzeichnis

AFM	Rasterkraftmikroskopie (engl.: atomic force microscopy)
CBE	Chemische Dampfstrahlepitaxie (engl.: chemical beam epitaxy)
DLTS	zeitaufgelöste temperaturabhängige Kapazitätsspektroskopie (engl.: Deep-Level Transient Spectroscopy)
DRAM	Dynamic Random Access Memory
FWHM	Halbwertsbreite (engl.: Full Width Half Maximum)
GRI	Wachstumsunterbrechung (engl.: growth interruption)
KL	Kathodolumineszenzspektroskopie
MBE	Molekularstrahlepitaxie (engl.: molecular beam epitaxy)
ML	Monolage
MOVPE	Metallorganische Gasphasenepitaxie (engl.: metalorganic vapour phase epitaxy), Synonyme: OMVPE (organometallic vapour phase epitaxy), MOCVD (metalorganic chemical vapour deposition)
PH ₃	Monophosphan (Phosphin/ Phosphorwasserstoff)
PL	Photolumineszenzspektroskopie
QP	Quantenpunkt
STM	Rastertunnelmikroskopie (engl.: scanning tunneling microscopy)
TBAs	tert-Butylarsin
TBP	tert-Butylphosphin
TEGa	Triethylgallium
TEM	Transmissionselektronenmikroskopie
TMAI	Trimethylaluminium
TMGa	Trimethylgallium
TMI _n	Trimethylindium
VRS	verspannungsreduzierende Schicht (engl.: strain reducing layer (SRL))

1 Einleitung

Moderne Nachrichtentechniken ermöglichen seit dem 19. Jh. einen stetig zunehmenden Austausch von Daten und Informationen über immer größere Entfernungen. Besonders die Fortschritte der Halbleitertechnologie seit Mitte des 20. Jh.s führten zu einer rasanten Entwicklung der Kommunikations- und Informationsverarbeitungskapazitäten [1–5]. Die mit dem technologischen Fortschritt einhergehende Transformation unserer Gesellschaft in eine Informations- und Wissensgesellschaft erzeugt ihrerseits einen Bedarf an wachsenden Kapazitäten zum Austausch von Daten, sowie zu ihrer Verarbeitung und Speicherung. Einige Zahlen aus dem *Cisco Visual Networking Index 2013* [6] verdeutlichen die Geschwindigkeit und den enormen Umfang dieser Entwicklung: Der globale Internetverkehr wird bis 2017 jährlich um 23 % zunehmen und einen Wert von 1,4 Zettabyte¹ pro Jahr erreichen. Im Jahr 2017 wird die Zahl der mit dem Internet verbundenen Geräte dreimal größer sein als die Erdbevölkerung (*Internet der Dinge* [7]). Der Datenverkehr mobiler Endgeräte wird bis 2017 denjenigen kabelgebundener Geräte übertreffen.

Die konsequente Weiterentwicklung nanostrukturierter Halbleiterbauelemente ist nötig, um dieses Wachstum aufrechtzuerhalten und nachhaltig zu gestalten. Der Einsatz von Quantenpunkten (QPen) als optisch aktives Medium in Lasern und optischen Verstärkern verspricht gegenüber Quantenfilmen Vorteile wie verbesserte Temperaturstabilität, niedrigere Schwellstromdichten und schnellere Gewinnerholung [8–10].

Sämtliche Daten, die ausgetauscht werden, müssen auch an einer oder mehreren Stellen gespeichert und bereitgehalten werden. Die Leistung von Speichermedien muss folglich in gleichem Maße wie das Datenaufkommen ansteigen. In der Vergangenheit konnte dieser technologischen Herausforderung fast ausschließlich durch eine Erhöhung der Speicherdichte und damit der Speicherkapazität begegnet werden. Mit der Einführung stetig performanterer Prozessoren und Datenübertragungswege rückt

¹Zettabyte: 10^9 Terabyte

neben der Kapazität zunehmend auch die Geschwindigkeit in den Fokus, mit der auf gespeicherte Daten zugegriffen werden kann. Dieses Umdenken drückt sich etwa in den steigenden Absatzzahlen von Festkörperlaufwerken (Solid-State-Drives) aus [11], die auf dem Konzept des Flash-Speichers [12] basieren und gegenüber konventionellen Festplatten deutlich kürzere Lese- und Schreibzeiten aufweisen [13]. Das Fehlen störungsanfälliger mechanischer Bauteile prädestiniert Festkörperlaufwerke zudem für die Anwendung in mobilen Endgeräten. Der Moore'schen Prophezeiung folgend, konnte in den letzten Jahrzehnten die Zahl der Transistoren pro Fläche in Halbleiterbauelementen im Schnitt alle 18 Monate verdoppelt werden [14]. Für das Jahr 2020 wird ein Ende dieser Entwicklung erwartet, da die Strukturen dann eine Größenordnung erreichen, in der das Auftreten von Tunnel-Leckströmen zwischen benachbarten Transistoren unbeherrschbar wird. Um den technologischen Fortschritt weiterhin zu gewährleisten, müssen daher Bauelemente mit neuen Funktionalitäten im Fokus der Forschung stehen. Bezüglich der Speichertechnologien würde insbesondere eine Verschmelzung der langen Speicherzeit des Flash-Speichers von mehr als 10 Jahren mit den noch schnelleren Zugriffszeiten (~ 10 ns) und der langen Lebensdauer ($> 10^{15}$ Schreibzyklen) des Dynamic Random Access Memory (DRAM) [15, 16] in einem Bauelement eine entscheidende Innovation darstellen [17–19].

Ein auf QPen basierendes elektronisches Speicherkonzept, der sogenannte *QD-Flash* [20], könnte einen solchen hochfunktionalen Speicher ermöglichen. Prototypen zeigen bereits vielversprechende Eigenschaften wie Schreibzeiten im Bereich des DRAM von 6 ns [21], schnelle Auslesezeiten im ns-Bereich [22] und volle Operationalität bei tiefen Temperaturen < 200 K [20]. Ein wichtiges Problem, das noch gelöst werden muss, ist die Speicherzeit des QD-Flash. Die längste demonstrierte Speicherzeit von Ladungsträgern in QPen beträgt 1,6 s bei Raumtemperatur in InAs/Al_{0,9}Ga_{0,1}As QPen [23]. Für QPe in einer (Ga,Al)P Matrix werden Speicherzeiten von mehr als 10 Jahren theoretisch vorausgesagt [24]. Die vorliegende Arbeit stellt einen ersten Schritt der Materialentwicklung in diese Richtung dar. Das kontrollierte epitaktische Wachstum von In_xGa_{1-x}As QPen in einer GaP Matrix wird entwickelt und die strukturellen, elektronischen und optischen Eigenschaften von In_xGa_{1-x}As/GaP QPen werden mit Hinblick auf ihre technologische Anwendung evaluiert.

In den letzten Jahren haben auch einige andere Forschungsgruppen die Entwicklung des In_xGa_{1-x}As/GaP Quantenpunktsystems in Angriff genommen [25–27]. Die Arbeit dieser Gruppen motiviert sich aus der Tatsache, dass die Gitterkonstanten

von GaP und Silizium sehr ähnlich sind, weshalb GaP-basierte Materialien defektfrei auf Si gezüchtet werden können [28, 29]. Das Ziel ist die monolithische Herstellung eines Halbleiterlasers auf Si für eine direkte Anbindung schneller optischer Datenverbindungen an die Prozessoreinheiten von Computerchips, die auch in absehbarer Zukunft weiterhin aus Si hergestellt werden. Sowohl Si als auch GaP sind Halbleiter mit einer indirekten Energielücke und eignen sich daher nicht für optische Anwendungen. Mit QPen aus dem direkten Halbleitermaterial $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ soll daher eine effiziente optisch aktive Zone realisiert werden. Die hohen Materialverspannungen im $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ System führen jedoch zu einer starken energetischen Verschiebung der elektronischen Zustände, so dass die resultierende elektronische Struktur des Systems wiederum indirekt ist [30–32]. Der kürzlich demonstrierte erste $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenpunktlaser zeigt dementsprechend nur gepulsten Betrieb bei tiefen Temperaturen [27]. Die vorliegende Arbeit zeigt einen Weg auf, wie sich der lokale Verspannungszustand der $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPe durch eine Modifikation des Deckschichtwachstums gezielt reduzieren lässt, wodurch die elektronische Struktur des Systems in eine direkte Konfiguration mit hocheffizienten optischen Übergängen rücküberführt werden kann. Dies stellt eine Grundvoraussetzung für eine erfolgreiche Anwendung von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen in der Optoelektronik dar.

Die Arbeit gliedert sich wie folgt:

Kapitel 2 erläutert die wichtigsten Grundlagen zu Quantenpunkten, zum QD-Flash und zur epitaktischen Herstellung von Quantenpunkten.

Kapitel 3 beschreibt die verwendeten experimentellen Methoden, besonders die Metallorganische Gasphasenepitaxie, mittels derer die untersuchten $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenpunktproben hergestellt wurden.

Kapitel 4 und 5 behandeln das epitaktische Wachstum von $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ und $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenpunkten. Der Einfluss verschiedener Wachstumsparameter auf die Quantenpunktbildung wird untersucht. Die strukturellen Eigenschaften der Quantenpunkte werden mit ihren optischen und elektronischen Eigenschaften verknüpft.

Kapitel 6 und 7 analysieren die elektronische Struktur von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen und zeigen epitaktische Mittel auf, diese zu verändern.

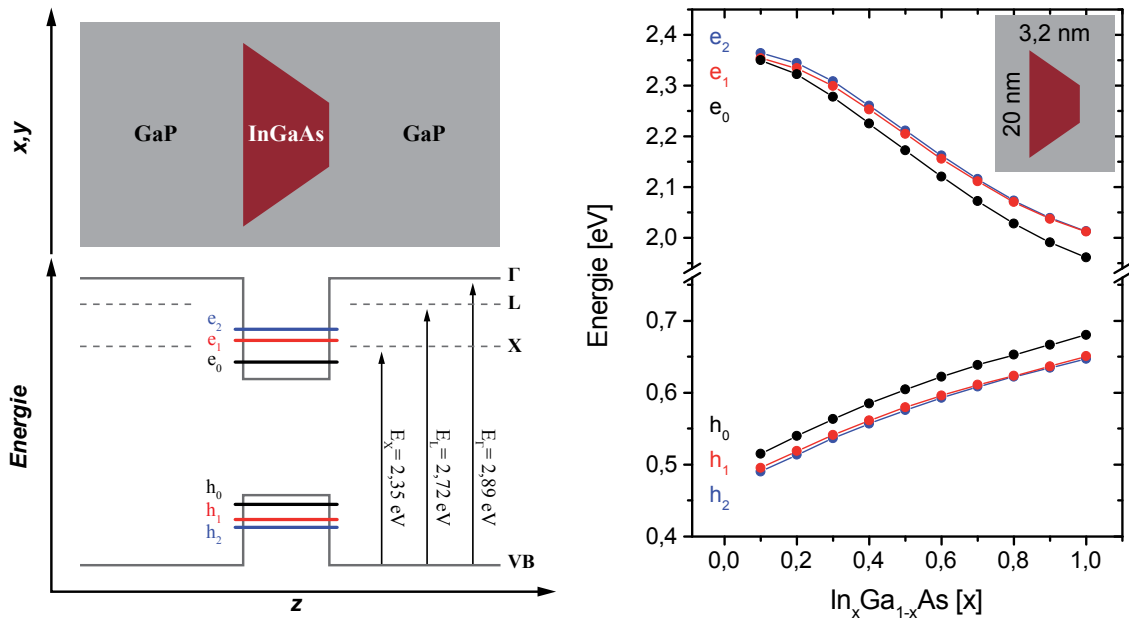
2 Grundlagen

2.1 Quantenpunkte

Als Quantenpunkt wird eine Struktur bezeichnet, in der die Bewegungsfreiheit von Ladungsträgern in allen drei Raumrichtungen so weit eingeschränkt ist, dass quantenmechanische Effekte auftreten. In einem solchen nulldimensionalen System können Ladungsträger nur noch diskrete Energiewerte annehmen, vergleichbar mit den Energieniveaus eines Atoms. QPe werden daher auch künstliche Atome genannt. Durch Variation von Größe, Form und Material der QPe können ihre elektronischen und optischen Eigenschaften gezielt verändert werden. Hergestellt werden Quantenpunkte zumeist aus Halbleiterkristallen mittels nasschemischer [33], epitaktischer [34–37] oder lithographischer Verfahren [38], oder durch Einschnürung von Ladungsträgern in einem elektrischen Potential [39, 40]. Für Anwendungen in der Informationstechnologie sind vor allem epitaktisch hergestellte QPe von Interesse, da sie eine hohe Materialqualität aufweisen und sich einfach in bestehende Bauelementkonzepte wie z. B. Laserdioden integrieren lassen. Im Folgenden werden daher nur epitaktisch hergestellte QPe betrachtet, die aus dem Einschluss eines Materials mit kleiner Energielücke (z. B. InAs) in einem anderen Material mit größerer Energielücke (z. B. GaAs, GaP) bestehen. Die Grundlagen ihrer Herstellung werden in Kapitel 2.3 erläutert.

2.1.1 Elektronische Struktur von Quantenpunkten

Abbildung 2.1(a) zeigt ein vereinfachtes Schema der elektronischen Struktur eines $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenpunktes entlang der Wachstumsrichtung z . Die energetische Lage der ersten drei Elektron- und Lochniveaus bei einer Temperatur von 0 K ist in Abbildung 2.1(b) über dem Indiumgehalt x für einen 20 nm breiten und 3,2 nm hohen $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QP aufgetragen. Die Elektron- und Lochenergien wurden nach dem Acht-Band $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ Modell berechnet. Details zum verwendeten Rechenmodell



(a) Vereinfachtes Schema der elektronischen Struktur von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen am Γ -Punkt der Brioullinzone, beruhend auf Acht-Band $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ Simulationen. Die gestrichelten Linien geben die energetischen Lagen der Zustände am X- und L-Punkt der Brioullinzone von GaP an [41].

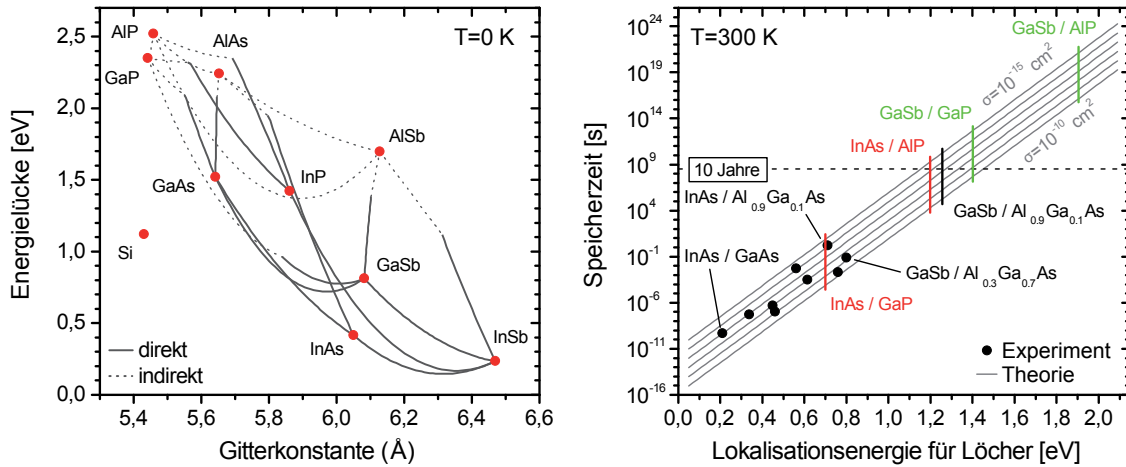
(b) Die ersten drei Elektron- und Lochniveaus e_i bzw. h_i als Funktion des Indiumgehaltes eines $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mit einer Basisbreite von 20 nm und einer Höhe von 3,2 nm, gerechnet für $T = 0$ K. Eine Energie von 0 eV entspricht der Valenzbandkante von GaP.

Abbildung 2.1

können [42] und [43] entnommen werden. Eine wesentliche Einschränkung des Modells besteht darin, dass es die elektronischen Zustände nur am Γ -Punkt der Brioullinzone entwickelt, Zustände mit Wellenvektoren $k \neq 0$ werden nicht berücksichtigt. Für Systeme mit direkter Energielücke, wie z. B. InAs/GaAs QPe, ist diese Einschränkung ohne Auswirkung auf die Vorhersage lokalisierter Zustände. Die Energielücke von GaP ist jedoch indirekt im $\mathbf{k}$ -Raum, mit dem Leitungsbandminimum am X-Punkt der Brioullinzone [44, 45]. Der energetische Abstand zwischen dem Valenzbandmaximum am Γ -Punkt und dem Leitungsbandminimum am X-Punkt beträgt 2,35 eV bei einer Temperatur von 0 K [41]. Das elektronische Niveau am X-Punkt des GaP Matrixmaterials liegt also im selben Energiebereich wie die berechneten elektronischen Zustände im $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ QP, angedeutet durch die untere gestrichelte Linie in Abbildung 2.1(a). Die reale elektronische Konfiguration im $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ System ist daher komplizierter als in Abbildung 2.1 dargestellt. Eine ausführliche Diskussion dieser Situation unter Einbeziehung zusätzlicher, durch Materialverspannungen hervorgerufener, Effekte erfolgt in Kapitel 6.

2.2 Quantenpunkte für elektronische Speicher

Den Markt für Halbleiterspeicher dominieren derzeit zwei Typen von elektronischen Speichern. Der Flash als persistenter, aber vergleichsweise langsamer Langzeitspeicher, und der DRAM als schneller, aber flüchtiger Arbeitsspeicher. Mit dem Ziel, die Vorteile beider Speichertypen in einem Bauelement zu vereinen, wird an der TU Berlin der *QD-Flash* entwickelt [20]. Der QD-Flash adaptiert das grundlegende Konzept des Flash-Speichers, setzt aber auf Quantenpunkte aus III-V Halbleitern als Speicherzellen. Das bietet gegenüber dem auf Si/SiO₂ Materialien basierenden Flash eine Reihe von Vorteilen: In III-V Systemen lässt sich die Bandstruktur durch Kombination verschiedener Materialien maßschneidern, während die Potentialbarrieren im Si/SiO₂ System fix sind. Quantenpunkte erweitern den Kreis an verfügbaren Materialien zusätzlich, da sie die defektfreie Kombination von Materialien mit stark voneinander abweichenden Gitterkonstanten ermöglichen, siehe Kapitel 2.3 und Abbildung 2.2(a). Der extrem schnelle Einfang von Ladungsträgern in QPe, der auf einer Zeitskala von Pikosekunden geschieht [46], führt zu schnellen Schreibzeiten des QD-Flash. Die demonstrierte Schreibzeit von 6 ns [21] ist bereits konkurrenzfähig zum DRAM [15, 16]. Der Speicherzustand der QPe wird über die Leitfähigkeitsänderung



(a) Die Energielücken der für den QD-Flash relevanten III-V Halbleiter über ihrer Gitterkonstanten, nach [41]. Durchgezogene und gepunktete Linien zeigen den Verlauf der direkten bzw. indirekten Energielücke ternärer Verbindungen.

(b) Speicherzeit von Löchern bei 300 K über ihrer Lokalisationsenergie in QPen. Schwarze Punkte entsprechen experimentellen Werten für QPe in (Ga,Al)As. Graue Linien zeigen den theoretischen Verlauf der Speicherzeit für verschiedene Einfangquerschnitte σ an. Vertikale Markierungen geben theoretisch zu erwartende Werte an, für QPe in (Ga,Al)P farbig. Nach [24, 47].

Abbildung 2.2

eines zweidimensionalen Ladungsträgerkanals in geringem Abstand (≈ 15 nm) zur QP-Schicht ausgelesen. Lesezeiten im ns-Bereich werden so ermöglicht [22].

Der QD-Flash verwendet bisher nicht Elektronen, sondern Löcher als Informationsträger. Die höhere effektive Masse von Löchern führt zu einer geringeren Wahrscheinlichkeit von Tunnel- oder thermischer Emission der Löcher aus den QPen, und damit zu einer längeren Speicherzeit. Die längste bisher demonstrierte Speicherzeit in InAs/Al_{0.9}Ga_{0.1}As QPen liegt bei 1,6 s bei Raumtemperatur [23]. Um einen nicht-flüchtigen Speicher zu verwirklichen, muss dieser Wert um mehrere Größenordnungen auf mindestens 10 Jahre gesteigert werden. Die Speicherzeit von Ladungsträgern wird maßgeblich durch die Höhe ihrer Lokalisationsenergie in den QPen bestimmt. Eine Erhöhung der Lokalisationsenergie kann durch Verwendung alternativer Materialkombinationen erreicht werden. Eine Evaluation vorhandener experimenteller Daten und theoretischer Abschätzungen ergibt, dass QPe in einer (Ga,Al)P Matrix die benötigten Lokalisationsenergien bieten könnten [24]. Die bisher mit QPen in (Ga,Al)As realisierten Speicherzeiten sind zusammen mit den theoretisch zu erwartenden

tenden Werten für QPe in (Ga,Al)P in Abbildung 2.2(b) aufgetragen. Neben der Lokalisationsenergie hat auch der Einfangquerschnitt der QPe Einfluss auf die Speicherzeit. Der Einfangquerschnitt kann als Maß für die Kopplungsstärke des QPe an seine Umgebung aufgefasst werden [47] und ist in einfacher Näherung proportional zur Größe der QPe. Ein kleiner QP hat einen kleineren Einfangquerschnitt, was folglich zu einer längeren Speicherzeit führt. Gleichzeitig bietet ein kleiner QP jedoch auch ein flacheres Lokalisationspotential für Ladungsträger, was die Speicherzeit wieder herabsetzt. Experimentelle Werte des Einfangquerschnittes von QPen variieren zwischen 10^{-10} cm^2 und 10^{-15} cm^2 . Der theoretische Verlauf der Speicherzeit für verschiedene Einfangquerschnitte wird in Abbildung 2.2(b) durch die grauen Linien wiedergegeben.

Für QPe in (Ga,Al)P kann eine um ca. 500 meV höhere Lokalisationsenergie für Löcher erwartet werden als für QPe gleichen Materials in (Ga,Al)As. Gleichzeitig wird aus der Darstellung in Abbildung 2.2(b) deutlich, dass das in der vorliegenden Arbeit entwickelte $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QP-System einen Zwischenschritt auf dem Weg zum persistenten Speicher darstellt. Um die benötigten 10 Jahre Speicherzeit bei Raumtemperatur zu erreichen, muss das Materialsystem zukünftig um Al- haltige Barrieren und Sb- haltige QPe erweitert werden.

2.3 Wachstumsmodi epitaktischer Schichten

In diesem Kapitel werden die Grundlagen des Wachstums epitaktischer Schichten zusammengefasst, die zum Verständnis der in Kapitel 4 beschriebenen Experimente notwendig sind. Die Darstellung orientiert sich dabei an [48]. Epitaxie bezeichnet das Wachstum kristalliner Schichten auf einem (hier: ein-)kristallinen Substrat, bei dem die Schicht die Kristallstruktur der Substratoberfläche reproduziert. Hierbei unterscheidet man zwischen Homoepitaxie, bei der Substrat und Schicht aus demselben Material bestehen, und Heteroepitaxie, bei der auf das Substrat eine Schicht unterschiedlichen Materials aufgewachsen wird. Diese Arbeit untersucht die Heteroepitaxie von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Schichten auf GaP Substraten. GaP, GaAs und InAs sind III-V Halbleiter, die jeweils in der Zinkblendestruktur kristallisieren und sich kristallographisch hauptsächlich durch ihre Gitterkonstante a unterscheiden, mit der kleinsten Gitterkonstanten für GaP und der größten für InAs (siehe Tabelle 2.1 und Abbildung 2.2(a)). Alle betrachteten $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Schichten sind daher kompressiv

Tabelle 2.1 – Gitterkonstante a , Energielücke E_g , Schermodul G und Poissonverhältnis ν von GaP, GaAs und InAs [41].

Material	$a(0\text{ K}) [\text{\AA}]$	$E_g(0\text{ K}) [\text{eV}]$	$G(300\text{ K}) [\text{GPa}]$	$\nu(300\text{ K})$
GaP	5,442	2,35 (X)	39,2	0,31
GaAs	5,642	1,519	32,7	0,34
InAs	6,050	0,417	19,0	0,35

verspannt. Die Art des Wachstumsmodus einer Heteroschicht wird durch die Energien γ_i bestimmt, die zur Ausbildung von Oberflächen und Grenzschichten aufgebracht werden müssen:

γ_s = Oberflächenenergie des Substrates

γ_h = Oberflächenenergie der Heteroschicht

γ_{sh} = Grenzschichtenergie zwischen Substrat und Heteroschicht

Aus der Bestrebung des Systems zur Energieminimierung ergeben sich je nach Verhältnis der γ_i zueinander zwei mögliche Wachstumsmodi:

$\gamma_s \geq \gamma_h + \gamma_{sh}$ – Die Heteroschicht bedeckt die Substratoberfläche vollständig und bildet eine atomar flache Oberfläche aus. Dieser Wachstumsmodus wird *Franck-van der Merwe Wachstum* genannt.

$\gamma_s < \gamma_h + \gamma_{sh}$ – Es ist energetisch günstiger, wenn die Heteroschicht das Substrat nicht vollständig bedeckt. Daher wächst die Schicht in Form dreidimensionaler Inseln, die möglichst große Bereiche der Substratoberfläche frei lassen. Dieser Wachstumsmodus wird *Volmer-Weber Wachstum* genannt.

Weicht die natürliche Gitterkonstante a_h der Schicht von der Gitterkonstanten a_s des Substrates ab, so erfährt die Schicht eine Verzerrung, deren laterale Komponente $\varepsilon_{||}$ der Gitterfehlانpassung f entspricht:

$$\varepsilon_{||} = f = \frac{a_h - a_s}{a_h} \quad (2.1)$$

Mit zunehmender Schichtdicke d_h akkumuliert die Schicht daher elastische Energie. Für ein kubisches Kristallgitter ergibt sich die elastische Flächenenergiedichte einer

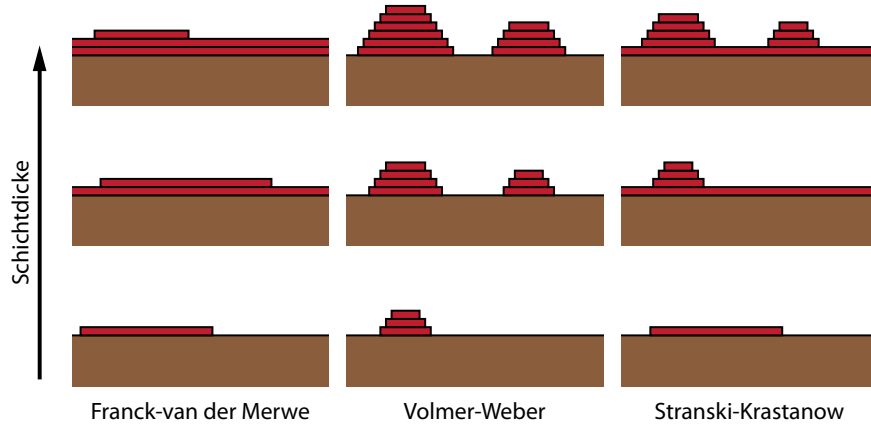


Abbildung 2.3 – Schematische Darstellung der drei möglichen Wachstumsmodi epitaktischer Schichten.

biaxial verzernten Schicht im Franck-van der Merwe Modus zu

$$E_A^{\text{el}} = 2G\varepsilon_{\parallel}^2 \frac{1+\nu}{1-\nu} d_h, \quad (2.2)$$

mit dem Schermodul G und dem Poissonverhältnis ν der Schicht. Ab einer kritischen Schichtdicke d_{kr}^V übersteigt die akkumulierte elastische Energie die Formierungsenergie von Versetzungen im Kristallgitter, so dass die Heteroschicht unter Ausbildung eben jener Versetzungen plastisch relaxiert.

2.3.1 Stranski-Krastanow Wachstum

In einigen Materialsystemen und unter geeigneten Bedingungen kann die Schicht unter Ausbildung von dreidimensionalen Inseln auch elastisch (defektfrei) relaxieren. In diesem Fall wächst zunächst eine, typischerweise wenige Monolagen dünne, Schicht im Franck-van der Merwe Modus. Diese Schicht bedeckt die Substratoberfläche und wird Benetzungsschicht genannt. Übersteigt die Dicke der Benetzungsschicht eine kritische Schichtdicke d_{kr}^{3D} , mit $d_{\text{kr}}^{3D} < d_{\text{kr}}^V$, so ändert sich der Wachstumsmodus in ein dreidimensionales Inselwachstum. Das geschieht dann, wenn die durch elastische Volumenrelaxation in den Inseln gewonnene Energie E_{relax} größer ist als die Summe der benötigten Energien zur Bildung neuer Oberflächen ΔE_{OF} und Kanten E_{Kanten} der Inseln:

$$E_{\text{relax}} > \Delta E_{\text{OF}} + E_{\text{Kanten}} \quad (2.3)$$

Sei A das Flächenelement der Substratoberfläche, auf dem sich durchschnittlich eine Insel befindet, A_{Fac} die Fläche einer Seitenfacette einer Insel und A_{Insel} die Grundfläche einer Insel. Dann ist die zur Ausbildung neuer Oberflächen beim Inselwachstum gegenüber dem zweidimensionalen Schichtwachstum nötige Energie

$$\Delta E_{\text{OF}}^A = \sum_i A_{\text{Fac}}^i \gamma_{\text{Fac}}^i + \gamma_{\text{BS}} (A - A_{\text{Insel}}) - \gamma_{2\text{D}} A, \quad (2.4)$$

mit der Oberflächenenergie γ_{Fac} einer Seitenfacette der Insel, der Oberflächenenergie γ_{BS} der Benetzungsschicht und der Oberflächenenergie $\gamma_{2\text{D}}$ einer zweidimensionalen Schicht gleichen Volumens wie Benetzungsschicht + Insel. Der Erste Term in Gleichung (2.4) ist die Summe der Oberflächenenergien aller Seitenfacetten einer Insel. Der zweite Term ist die Oberflächenenergie der nicht von der Insel bedeckten Benetzungsschicht. Mit dem letzten Term wird die Differenz zur Energie einer Oberfläche gebildet, die entsteht, wenn das Wachstum rein zweidimensional verläuft. Es sei darauf hingewiesen, dass im Allgemeinen $\gamma_{2\text{D}} \neq \gamma_{\text{BS}}$, da die rein zweidimensionale Schicht dicker ist als die Benetzungsschicht, und sich Oberflächenrekonstruktionen und damit -Energien verspannter Schichten mit der Schichtdicke ändern [49]. Der soeben beschriebene Wachstumsmodus wird *Stranski-Krastanow Wachstum* genannt und zur Herstellung selbstorganisierter Quantenpunkte ausgenutzt. Im Folgenden wird daher für im Stranski-Krastanow Modus entstandene Inseln der Begriff Quantenpunkte verwendet. Selbstorganisation bezeichnet die durch das System selbst ausgehende, d. h. nicht von außen aufgeprägte, Entstehung der QPe, sowie ihrer Form, Größe und Anordnung. Abbildung 2.3 zeigt eine schematische Darstellung der drei besprochenen Wachstumsmodi.

3 Experimentelle Methoden

Das Hauptaugenmerk dieser Arbeit liegt auf der Epitaxie von Quantenpunkten und dem Einfluss verschiedener Parameter des Herstellungsprozesses auf das QP-Wachstum und die Eigenschaften der QPe. Daher beginnt dieses Kapitel mit einer Beschreibung der Metallorganischen Gasphasenepitaxie, mittels derer die Proben hergestellt wurden. Anschließend folgt eine kompakte Übersicht der zur Untersuchung der Proben angewandten Techniken. Für eine detaillierte Beschreibung der jeweiligen Methoden werden entsprechende Referenzen gegeben.

3.1 Metallorganische Gasphasenepitaxie

Die Metallorganische Gasphasenepitaxie (MOVPE) ist ein epitaktisches Verfahren zur Herstellung kristalliner Schichten auf einem einkristallinen Substrat¹, das auch in der industriellen Produktion von Halbleiterbauelementen breite Verwendung findet. Eine umfassende theoretische und praktische Abhandlung der MOVPE findet sich in [50] und zur Epitaxie von Halbleitern im Allgemeinen in [48]. Die einzelnen Komponenten der aufzuwachsenden Schicht werden als gasförmige chemische Verbindungen über die Oberfläche des erhitzten Substrates geleitet. An der Substratoberfläche findet eine chemische Reaktion statt, die zur Bildung einer kristallinen Schicht auf dem Substrat führt.

3.1.1 Der MOVPE Prozess

Die Ausgangsstoffe, auch Präkursoren genannt, liegen als metallorganische Moleküle oder als Hydride vor. Mit Hilfe eines inerten Trärgases, zumeist Wasserstoff, werden die Präkursoren in einem laminaren Gasstrom über das erhitzte Substrat geführt,

¹Epitaxie (von griechisch *epi*- „auf“, „über“ und *taxis*- „ordnen“, „anrichten“) bezeichnet das Aufwachsen kristalliner Schichten auf einem kristallinen Substrat, bei dem die Schicht die Kristallstruktur des Substrates übernimmt.

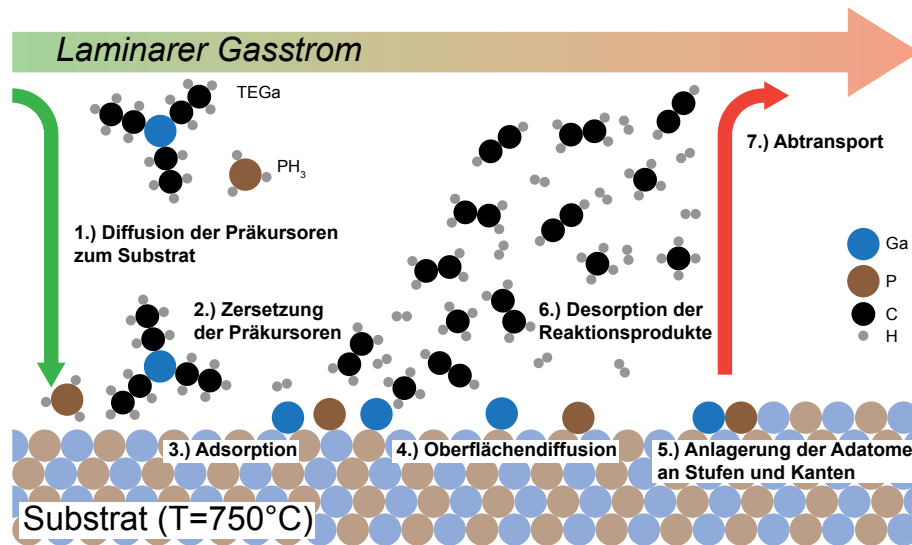


Abbildung 3.1 – Während des MOVPE Wachstums an der Substratoberfläche ablaufende Prozesse am Beispiel des Wachstums von GaP mit den Präkursoren TEGa und PH_3 .

siehe Abbildung 3.1. Der Prozess des Kristallwachstums lässt sich in folgende Schritte unterteilen:

1. Diffusion der Präkursoren zur Substratoberfläche
2. Zersetzung der Präkursoren durch thermische und katalytische Prozesse, eine starke Übersättigung der Gasphase mit den elementaren Kristallkomponenten entsteht.
3. Adsorption der elementaren Kristallkomponenten an die Substratoberfläche
4. Diffusion der Adatome auf der Substratoberfläche
5. Anlagerung der Adatome an Stufen und Kanten, Einbau in den Kristall
6. Desorption der restlichen Reaktionsprodukte von der Substratoberfläche
7. Abtransport der Reaktionsprodukte und nicht reagierter Präkursoren

Für viele der in dieser Arbeit gezüchteten GaP Schichten wurden die Präkursoren Triethylgallium (TEGa) und Monophosphan (PH_3) verwendet. Eine Untersuchung der genauen Reaktionspfade und Endprodukte für diese Präkursorkombination wurde

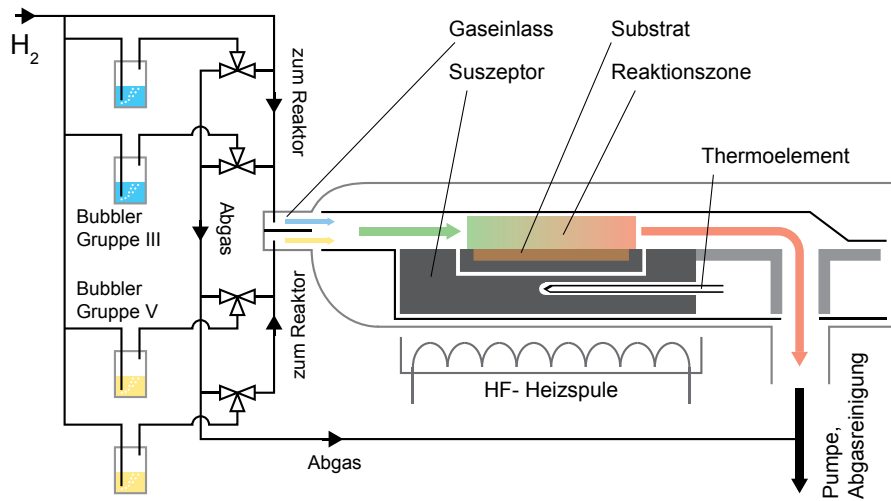
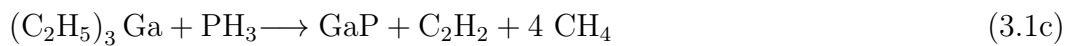
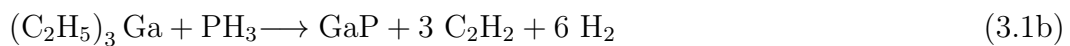
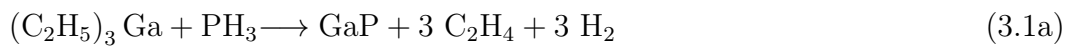


Abbildung 3.2 – Schematische Darstellung der MOVPE Anlage.

bisher nicht veröffentlicht, mögliche Reaktionsgleichungen sind z. B.:



Dieses Beispiel deutet an, dass die während des MOVPE Wachstums ablaufenden chemischen Reaktionen bereits bei Verwendung von nur zwei Präkursoren sehr komplex sein können und sich oftmals der genauen Kenntnis entziehen. In der Praxis muss daher, gerade bei der Entwicklung neuer Materialien, in der Regel auf einen hauptsächlich empirischen Ansatz zurückgegriffen werden, bei dem durch systematische Variation der Prozessparameter, wie verwendete Präkursoren und deren Mischungsverhältnisse, Substrattemperatur, Reaktordruck und Substratbeschaffenheit, eine sukzessive Annäherung an das gewünschte Ergebnis erreicht wird.

3.1.2 Aufbau der MOVPE Anlage

Der schematische Aufbau der in dieser Arbeit verwendeten MOVPE Anlage zur Epitaxie von III-V Halbleitern ist in Abbildung 3.2 gezeigt. Es handelt sich um eine Anlage der Firma Aixtron, Typ AIX 200 RF, mit horizontaler Reaktorordnung. Als Trägergas wird Wasserstoff verwendet. Die metallorganischen Präkursoren liegen

in flüssiger oder seltener in fester Form vor und werden bei konstanter Temperatur und konstantem Druck in sogenannten Bubbler gelagert. Diese Bubbler haben die Funktion von Waschflaschen und werden von Trägergas durchströmt, welches sich dabei mit dem Präkursor anreichert. Das mit dem Präkursor angereicherte Trägergas wird durch eine Rohrleitung zum Reaktor geführt. Präkursoren, die als gasförmige Hydride vorliegen, werden direkt zum Reaktor geleitet. Kurz vor dem Gaseinlass in die Reaktorkammer befindet sich für jede Präkursorlinie eine Ventilschaltung, die es ermöglicht, den Gasfluss entweder in den Reaktor oder am Reaktor vorbei direkt ins Abgassystem zu leiten. Während des Epitaxiebetriebes wird ein konstanter Gasfluss im Leitungssystem aufrechterhalten, und nur bei Bedarf durch Schalten des jeweiligen Eingangsventils in die Reaktorkammer injiziert. Auf diese Weise lässt sich die in den Reaktor eintretende Menge der Präkursoren sehr präzise und reproduzierbar steuern.

Um Vorreaktionen zwischen den Präkursoren der III. und V. Hauptgruppe in der Gasphase zu vermeiden, werden diese getrennt in die Reaktorkammer injiziert und vermischen sich erst im Bereich oberhalb des aus Graphit gefertigten Suszeptors. Das Substrat liegt auf einem Graphitteller, der in der Mitte des Suszeptors auf einem Gaspolster rotiert. Die Rotation sorgt für ein homogeneres Schichtwachstum auf dem Substrat. Der Suszeptor wird mittels einer Hochfrequenzheizung geheizt, die Wachstumstemperaturen dieser Arbeit liegen zwischen 500 °C und 800 °C. Die Temperatur wird mit einem Thermoelement gemessen, welches sich im Suszeptor unterhalb des Graphittellers befindet. Die Suszeptoranordnung befindet sich im Inneren eines Führungsrohres mit rechteckigem Querschnitt, das für einen homogenen, laminaren Gasstrom oberhalb des Substrates sorgt. An der Substratoberfläche findet die in Abschnitt 3.1.1 beschriebene chemische Reaktion statt, die zum Kristallwachstum führt. Die Restgase werden aus dem Reaktor in ein Abgasreinigungssystem gepumpt. Der Druck in der Reaktorkammer wird mittels eines Drosselventils zwischen Reaktorausgang und Pumpe geregelt.

Bestimmung der realen Substrattemperatur

Aus der Anordnung des Thermoelementes unterhalb des Substrattellers ergibt sich eine Abweichung der gemessenen Temperatur von der tatsächlichen Temperatur der Substratoberfläche von ca. 30 °C. Diese Abweichung wird durch Aufheizen eines aluminiumbeschichteten Siliziumwafers bestimmt, dessen eutektische Temperatur 577 °C beträgt. Bei Erreichen der eutektischen Temperatur ändert sich die Reflexion

der Waferoberfläche, die Differenz zwischen gemessener Temperatur und 577 °C ergibt die gesuchte Abweichung. Alle in dieser Arbeit angegebenen Wachstumstemperaturen sind um diese Abweichung korrigiert.

3.1.3 Substrate

Alle Proben dieser Arbeit wurden auf je einem Viertel eines GaP(001) 2 Zoll Wafers gezüchtet. Die Substrate wurden von verschiedenen Herstellern in mehreren Chargen bezogen und sind als *Epi-ready* deklariert. Das heißt es sollte keine Vorbehandlung der Substratoberfläche vor Beginn der Epitaxie nötig sein. Auf einigen der Substratchargen zeigten die gezüchteten Schichten ohne Vorbehandlung dennoch raue Oberflächen mit hohen Defektdichten. Die Substrate der betroffenen Chargen wurden daher vor Epitaxiebeginn mit dem in Tabelle 3.1 angegeben Rezept nasschemisch behandelt. Die Defektdichte von Schichten, die auf den so behandelten Substraten gezüchtet wurden, liegt im Bereich der spezifizierten Versetzungsdichte der Substrate von $1 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2}$. Zur Auswahl standen n- und p-leitende (Dotanten: S bzw. Zn), sowie semiisolierende Substrate (Dotant: Cr). Da die n- und p-leitenden Substrate Lumineszenzbanden im gleichen Spektralbereich wie die $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPe zeigen, wurden für Lumineszenzmessungen bestimmte Proben auf semiisolierenden Substraten gezüchtet. Proben für strukturelle und kapazitive Charakterisierung wurden in der Regel auf n- oder p-leitenden Substraten gezüchtet. Eine Änderung der ex situ per hochauflösender Röntgendiffraktometrie bestimmten Wachstumsraten bei Verwendung verschiedener Substrate wurde nicht beobachtet. Trotzdem wurden alle Proben einer Probenserie jeweils auf Substraten derselben Charge und Dotierung gezüchtet, um eine Verfälschung der Ergebnisse durch Mischen der Substrate zu verhindern.

3.2 Methoden zur Charakterisierung der hergestellten Proben

3.2.1 Probenstruktur

In Tabelle 3.2 sind die Schichtfolge sowie die typischen Wachstumsparameter der einzelnen Schichten von Proben mit $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen angegeben, die für Lumi-

Tabelle 3.1 – Rezept zur nasschemischen Behandlung von GaP Substraten vor der Epitaxie. (*) KOH + H₂O₂ 8 min miteinander reagieren lassen, dann H₂O zugeben und weitere 2 min vor Ätzbeginn stehen lassen.

Schritt	Ätzlösung	Zeit [min]	Kommentar
1	H ₂ SO ₄ , 96 %	10	
2		≥ 10	Spülen in Reinstwasser
3	4 KOH : 4 H ₂ O ₂ : 5 H ₂ O	5	(*)
4		≥ 10	Spülen in Reinstwasser
5			Trockenblasen mit Stickstoff

neszenzmessungen bestimmt sind. Alle in dieser Arbeit untersuchten Proben basieren auf dieser Struktur, auf Abweichungen wird an entsprechender Stelle hingewiesen. Auf dem Substrat wurde als Erstes stets eine 500 nm dicke Schicht GaP bei einer für GaP optimalen Substrattemperatur von 750 °C gezüchtet [51]. Diese Schicht sorgt für eine immer gleiche, planare Oberfläche, auf der die zu untersuchenden Schichten gezüchtet werden. Die folgende Al_{0,4}Ga_{0,6}P Schicht stellt eine Diffusionsbarriere für Ladungsträger dar. Zusammen mit den GaP Schichten Nr. 3, 10 und 11, deren Dicke bei allen Proben konstant ist, wird so in allen Proben ein gleich großes Kristallvolumen geschaffen, in dem bei Lumineszenzmessungen Ladungsträger generiert werden und in den QPen rekombinieren können. Auf diese Weise wird bei gleicher Anregung eine Vergleichbarkeit der gemessenen Lumineszenzintensität der Proben untereinander sichergestellt.

Tabelle 3.2 – Wachstumssequenz einer Probe für Lumineszenzmessungen und Wachstumsparameter der Schichten. Die Schritte Nr. 8 und 9 wurden nur bei den verspannungsreduzierten QPen in Kapitel 7 eingeführt. T_{gr} : Wachstumstemperatur, P_R : Reaktordruck, g_r : Wachstumsrate, ML: Monolagen, GRI: Wachstumsunterbrechung

Nr.	Material	Schichtdicke	T_{gr} [°C]	P_R [mbar]	g_r [ML s ⁻¹]	V/III	Präkursoren
11	GaP	50 nm	600	100	1,0	11	TEGa, TBP
10	GaP	6 nm	500	50	0,5	13	TEGa, TBP
(9)	–	1 s GRI ohne Gruppe V, Umschalten von As auf P					–
(8)	GaAs	0 ML - 5 ML	500	50	0,2	17	TMGa, TBAs
7	–	1 s - 400 s GRI ohne Gruppe V, QP-Reifung					–
6	In _x Ga _{1-x} As	0 ML - 3 ML	500	50	0,5	4,5 - 6,7	TMGa, TMIIn, TBAs
5	GaAs	1 ML - 3 ML	500	50	0,2 - 0,4	13 - 17	TMGa, TBAs
4	–	1 s GRI ohne Gruppe V, Umschalten von P auf As					–
3	GaP	150 nm	750	50	2,0	150	TEGa, PH ₃
2	Al _{0,4} Ga _{0,6} P	20 nm	750	50	2,0	400	TEGa, TMAI, PH ₃
1	GaP	500 nm	750	50	2,0	150	TEGa, PH ₃
Substrat	GaP(001)	250 µm - 350 µm					

Für das Wachstum der $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ QPe wurde die Substrattemperatur auf 500°C reduziert, was einer üblichen Wachstumstemperatur für $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ QPe entspricht [52–54]. Nach der $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Abscheidung wurde das Wachstum für mehrere Sekunden bis Minuten unterbrochen, um eine Reifung der QPe zu ermöglichen [54–57]. Anschließend wurden die QPe mit einer 6 nm dicken Schicht GaP zugedeckt, um die QP-Reifung zu stoppen. Für die abschließende 50 nm dicke GaP Schicht wurde die Substrattemperatur auf 600°C erhöht. Der Wert von 600°C ist ein Kompromiss aus einer möglichst hohen Temperatur zur Erzielung guter Materialqualität dieser Schicht einerseits, und einem Verhindern von thermisch aktivierter Interdiffusion von Indium- und Galliumatomen andererseits. Eine solche Interdiffusion wird für $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ QPe bei Temperaturen $> 600^\circ\text{C}$ beobachtet und äußert sich z. B. in einer Blauverschiebung der QP-Lumineszenz [52, 58, 59]. Auf die Details des Wachstums der $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Schichten (Nr. 5 - 9) wird ab Kapitel 4 eingegangen. Während der Wachstumsunterbrechungen von jeweils 1 s ohne Gruppe V Angebot beim Wechsel zwischen P- und As-haltigen Schichten (Nr. 4 und 9) wird der stets im Überschuss angebotene Gruppe V Präkursor der vorhergehenden Schicht aus dem Reaktor gespült. Auf diese Weise wird eine Verschleppung von As bzw. P in die nachfolgende Schicht effektiv unterbunden, wie durch Querschnitts-Rastertunnelmikroskopie in Kapitel 4.4 bestätigt wird.

3.2.2 Photo- und Kathodolumineszenzspektroskopie

Eine schnelle und zerstörungsfreie Methode zur Charakterisierung von Halbleitermaterialien bieten Lumineszenzuntersuchungen. Sie basieren auf der Generation von freien Ladungsträgern in der Probe durch äußere Anregung. Die erzeugten Ladungsträger relaxieren in den niedrigsten erreichbaren energetischen Zustand und rekombinieren dort unter Emission eines Photons, dessen Energie der Übergangsenergie des Zustandes entspricht. Neben der Bestimmung von optischen und elektronischen Eigenschaften lassen sich aus Lumineszenzexperimenten auch Aussagen über die Kristallqualität treffen, da z. B. Gitterfehler in der Regel eine strahlungslose Rekombination von Ladungsträgern ermöglichen. Eine Probe mit vielen Kristalldefekten wird daher unter gleichen experimentellen Bedingungen weniger Photonen emittieren, als eine Probe mit wenigen Defekten.

Die in dieser Arbeit hergestellten $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenpunkte wurden mittels Photolumineszenz- (PL) und Kathodolumineszenzspektroskopie (KL) untersucht.

Beide Methoden unterscheiden sich hauptsächlich in der Art der Anregung der Proben. Für PL Messungen wurden die Proben mit einem Laserstrahl der Wellenlänge 441 nm, entsprechend einer Photonenenergie von 2,81 eV, angeregt. Durch Einbringen von Graufiltern in den Anregungsstrahlengang kann die Anregungsdichte am Probenort zwischen ca. 1 W cm^{-2} und 1000 W cm^{-2} in Schritten von jeweils einer Größenordnung variiert werden. Das Lumineszenzlicht wird durch einen Monochromator spektral zerlegt und von einem Photodetektor registriert. Als Detektoren kamen je nach untersuchtem Spektralbereich entweder ein GaAs- Photomultiplier (für Wellenlängen $< 850 \text{ nm}$) oder eine InGaAs- Photodiode ($> 850 \text{ nm}$) zum Einsatz.

Aufgrund der Temperaturabhängigkeit der Energielücke von Halbleitern [60] ist die direkte Energielücke von GaP für Temperaturen unterhalb von ca. 200 K größer als die Photonenenergie des verwendeten Lasers, wodurch die effektive Anregung stark abnimmt. Für Messungen bei tiefen Temperaturen und temperaturabhängige Messungen wurde deshalb auf die KL zurückgegriffen. Bei der KL wird die Probe mittels eines Elektronenstrahls angeregt, die Detektion erfolgt wie bei der PL über einen Photodetektor nach spektraler Zerlegung des Lumineszenzlichtes durch einen Monochromator. Als Detektor kam eine Silizium CCD-Kamera zum Einsatz. Die gute Fokussierbarkeit des Elektronenstrahls auf einen Durchmesser von wenigen nm erlaubt Messungen mit einer Ortsauflösung von einigen hundert nm, bedingt durch Energietransferprozesse und Ladungsträgerdiffusion. Dadurch ist es möglich, bei Proben mit geringen Quantenpunktdichten die Spektrallinien einzelner Quantenpunkte aufzulösen. Eine detaillierte Beschreibung des verwendeten Kathodolumineszenzaufbaus ist in der Dissertation von Rodt [61] zu finden. Ausführliche Behandlungen der Photolumineszenzspektroskopie mit dem Fokus auf Quantenpunkten finden sich z. B. bei Guffarth [62] und Warming [63]. Die in dieser Arbeit gezeigten KL-Messungen wurden von Sven Rodt und Manuel Gschrey an der TU Berlin durchgeführt. PL-Messungen wurden vom Autor dieser Arbeit selbst vorgenommen.

3.2.3 Rasterkraftmikroskopie

Die Oberflächenbeschaffenheit der hergestellten Schichten wurde mittels Rasterkraftmikroskopie (AFM) untersucht. Hierbei wird die Probenoberfläche mit einer sehr feinen Nadel, die an einem Federarm befestigt ist, abgetastet. Zwischen der Nadel und der Probenoberfläche wirken anziehende Van-der-Waals- und abstoßende Coulombkräfte, die zu einer Auslenkung des Federarmes führen. Alle in dieser Arbeit

gezeigten Messungen wurden im sogenannten Kontaktmodus durchgeführt, bei dem die Nadel so nah an die Probe herangefahren wird, dass die Coulombabstoßung zwischen den Elektronenhüllen der Atome von Probenoberfläche und Nadelspitze dominiert. Unter der Annahme, dass sich weder Probenoberfläche noch Nadelspitze verformen, entspricht die Auslenkung des Federarms während des Abtastens einer Höhenänderung der Probenoberfläche. Die Spitze der Nadel hat einen Radius von $10 \text{ \AA}$ bis $20 \text{ \AA}$, wodurch das laterale Auflösungsvermögen auf etwa denselben Wert begrenzt wird. In vertikaler Richtung wird eine höhere Auflösung von ca. $2 \text{ \AA}$ erreicht. Das Rasterkraftmikroskop wurde von Binnig und Quate [64] erfunden, der aktuelle technologische Stand der Rasterkraftmikroskopie ist z. B. in [65] zusammengefasst.

Zur Bestimmung von QP-Größe und -Dichte wurden AFM Messungen an freistehenden oder dünn überwachsenen $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen durchgeführt. Für freistehende QPe wurde das Wachstum nach Abscheidung der $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Schicht (Nr. 6 in Tabelle 3.2) beendet. Bei dünn überwachsenen QPen wurde auch die 6 nm dünne Tieftemperatur-Deckschicht Nr. 10 gezüchtet. Diese Schicht bedeckt die QPe zwar vollständig, die QPe zeichnen sich jedoch noch unter der Oberfläche als Erhebungen ab. Die $\text{Al}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{P}$ Barriere und die nachfolgende 150 nm GaP Schicht (Nr. 2 und 3) wurden bei diesen Proben nicht gezüchtet, da sie für AFM Messungen keine Funktion erfüllen.

3.2.4 Querschnitts-Rastertunnelmikroskopie

Analog zur Rasterkraftmikroskopie wird bei der Rastertunnelmikroskopie (STM) eine Probenoberfläche mit einer sehr feinen Nadel abgetastet. Als Messgröße wird jedoch nicht die auf die Nadel wirkende Kraft aufgenommen, sondern ein zwischen der Nadel und der Probe fließender (Vakuum-) Tunnelstrom. Zur Durchführung von STM werden daher elektrisch leitende Proben und Messnadeln benötigt. Bei einer konstanten, zwischen Nadel und Probe angelegten Spannung hängt die Größe des Tunnelstroms exponentiell vom Abstand der Nadelspitze zur Probenoberfläche ab. Daraus ergibt sich eine gegenüber der AFM deutlich verbesserte Auflösung bis in den atomaren Bereich. Im Gegensatz zu AFM bildet STM nicht direkt die physische Topographie der Probenoberfläche ab, sondern deren Faltung mit der lokalen elektronischen Zustandsdichte der Probenoberfläche. Daraus ergibt sich die Möglichkeit, neben einem Höhenprofil auch eine spektroskopische Abbildung der Probenoberfläche zu erstellen. In der vorliegenden Arbeit wurden Abbildungen von

Probenquerschnitten erstellt, indem die Spaltfläche einer Probe mit $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mit STM vermessen wurde. Der spektroskopische Anteil des STM Signals erlaubt dabei die Unterscheidung verschiedener Atomsorten (Ga, In, As, P). Das Rastertunnelmikroskop ist ebenfalls eine Erfindung von Binnig et al. [66], die 1986 mit dem Nobelpreis für Physik ausgezeichnet wurde. Eine ausführliche Übersicht der Rastertunnelmikroskopie bietet [67].

Beim Spalten von Proben mit verspannten Schichten bilden sich auf der Spaltfläche häufig Stufenkanten im Bereich der verspannten Schichten. Diese Kanten verhindern eine Untersuchung der verspannten QP-Schichten. Daher wurden in der untersuchten Probe drei QP-Schichten im Abstand von jeweils 50 nm übereinander gezüchtet, so dass sich einfacher Bereiche auf der Spaltfläche finden lassen, in denen nicht alle QP-Schichten von Kanten überlagert werden. Die Schritte Nr. 4 bis 11 aus Tabelle 3.2 wurden also dreimal wiederholt. Zusätzlich wurde oberhalb der QP-Schichten insgesamt ca. 1 μm GaP gezüchtet, um ein Abrutschen der STM Nadel von der Spaltfläche während der Messung zu verhindern. Da für STM elektrisch leitendes Material benötigt wird, wurde die Probe auf einem n-leitenden Substrat gezüchtet. GaP Schichten bis 50 nm unterhalb der QP-Schichten sind ebenfalls n-leitend durch Dotierung mit Si, die GaP Schichten oberhalb der QP-Schichten wurden mit Zn dotiert und sind p-leitend. Die Ladungsträgerdichte beträgt jeweils $5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Zur einfacheren Auffindung der QP-Schichten während der Messung wurde die Dotierung der oberen Deckschichten alle 50 nm zwischen $5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und $1 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ moduliert und es wurden mehrere dünne GaAs Markerschichten eingezo-gen.

3.2.5 Transmissionselektronenmikroskopie

Eine der bedeutendsten Techniken der Materialanalyse stellt die Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) dar. Sie beruht auf der Wechselwirkung eines Elektronenstrahls mit dem zu untersuchenden Material. Das Probenmaterial wird hierfür auf eine Dicke von 10 nm bis 100 nm gedünnt. Der Elektronenstrahl durchstrahlt diese dünne Probe, wobei ein Teil der Elektronen an den Atomen der Probe gestreut wird. Die transmittierten Elektronen (gebeugte und unabgelenkte) durchlaufen hinter der Probe eine Objektivlinse. Handelt es sich bei der Probe um einen Kristall, so entsteht in der Brennebene der Objektivlinse ein Beugungsmuster, in der Bildebene eine Abbildung der Probe im Ortsraum. Hieraus ergibt sich eine Fülle an Möglichkeiten

zur Bildgebung und Materialanalyse. Beispielsweise können durch Blenden in der Brennebene gezielt einzelne Beugungsreflexe ausgewählt werden, wodurch in der Bildebene eine Abbildung der Probe mit materialabhängigem Kontrast entsteht. Moderne Strahlformungsverfahren und schmalbandig emittierende Elektronenquellen ermöglichen eine weitgehende Korrektur von Abbildungsfehlern der Objektivlinse, wie z. B. sphärische Aberrationen. So können Auflösungen von unter 1 Å erreicht werden.

Für TEM Untersuchungen sind keine speziellen Probenstrukturen wie z. B. für Querschnitts-STM nötig. Die in dieser Arbeit gezeigten TEM Aufnahmen konnten daher an denselben Proben aufgenommen werden, an denen auch Lumineszenzmessungen durchgeführt wurden.

4 Epitaxie von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Quantenpunkten auf GaP

4.1 Literaturübersicht und Arbeiten anderer Forschungsgruppen

Im Folgenden wird ein Überblick über die bisher veröffentlichte Literatur zur Epitaxie von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen gegeben. Die ersten drei Veröffentlichungen zum Wachstum von dreidimensionalen InAs/GaP Inseln erschienen praktisch zeitgleich Anfang 1998 und bedienten sich jeweils unterschiedlicher Epitaxieverfahren: Nogaki et al. [68] der Metallorganischen Gasphasenepitaxie (wie auch diese Arbeit), Junno et al. [69] der Chemischen Dampfstrahlepitaxie (CBE) und Leon et al. [70] der Molekularstrahlepitaxie (MBE).

Die mittels MOVPE gezüchteten $\text{InAs}/\text{GaP}(001)$ Schichten zeigten für eine Bedeckung von 1,5 Monolagen (ML) InAs in einem Bereich der Substrattemperatur von 450°C bis 650°C Bildung von dreidimensionalen Inseln, wobei mit zunehmender Temperatur die Inselgröße zu- und die Inseldichte abnahm. Die kleinsten Inseln wurden für eine Bedeckung von 0,19 ML InAs bei 450°C beobachtet und entsprechen mit einer durchschnittlichen Höhe von 5 nm und einer Breite von 50 nm eher der Größe von relaxierten Inseln als defektfreien QPen (vergl. Kapitel 4.3). In einer nachfolgenden Arbeit zeigen die Autoren anhand von Querschnitts-Transmissionselektronenmikroskopie, dass die InAs Inseln unter Ausbildung von Gitterversetzungen relaxiert sind, und weisen darauf hin, dass keine Lumineszenz von den InAs/GaP Inseln detektiert werden konnte [71]. Dieselben Autoren veröffentlichten bis 2004 weitere Untersuchungen an $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Schichten auf $\text{GaP}(001)$ mit $0 < x < 1$ [72–74]. Inselbildung wurde für $x \geq 0,5$ beobachtet, stets mit gleichzeitiger Entstehung von Gitterversetzungen. Eindeutige QP-Lumineszenz konnte nicht detektiert werden.

Mit CBE gezüchtete $\text{InAs}/\text{GaP}(001)$ Schichten bildeten Inseln mit typischen

Abmessungen von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen [69]. Lumineszenz von diesen Inseln konnte allerdings ausdrücklich nicht beobachtet werden, woraus sich schließen lässt, dass es sich nicht um optisch aktive QPe handelt.

Für mit MBE hergestellte InAs/GaP Schichten wurde ebenfalls Inselbildung beobachtet [70]. Eine Besonderheit stellt das Wachstum insoweit dar, als dass die InAs Schicht in fünf 1 s langen Pulsen, getrennt durch jeweils 3 s Wachstumspause, abgeschieden wurde. Die Autoren kommen durch nicht näher beschriebene Analyse mit Rasterkraftmikroskopie und Transmissionselektronenmikroskopie zu dem Schluss, dass die Inseln im Vollmer-Weber Modus entstanden sind. Die Breite der Inseln von > 30 nm spricht wiederum eher für relaxierte Inseln als defektfreie QPe. Lumineszenz von den hergestellten Proben wurde für Temperaturen von 77 K und 300 K bei Photonenenergien um 1,7 eV detektiert, in einem vergleichbaren Energiebereich wie die in Kapitel 4.5 dieser Arbeit besprochene QP-Lumineszenz. Allerdings zeigt die Lage des Lumineszenzmaximums keine Temperaturabhängigkeit, wie aufgrund der Temperaturabhängigkeit der Energielücke von Halbleitern zu erwarten wäre [60]. Die Autoren selbst weisen auf die Möglichkeit der Emission aus tiefen Störstellen hin.

Erst 2010 [25] und 2011 [26] wurden, zeitgleich mit den in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen, erneut Arbeiten zu mit MBE gezüchteten $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen veröffentlicht. Song et al. [25] berichten über Lumineszenz, die bei höheren Energien ($> 1,9$ eV) liegt als in dieser Arbeit, und nur bis zu einer Temperatur von 80 K beobachtet wurde. Gleichzeitig werden, besonders unter Berücksichtigung der hohen Verspannungen im $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ System ($3,6\% \leq f \leq 10\%$), untypisch hohe Bedeckungen von bis zu 11 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ angegeben. Die von den Autoren getroffene Zuordnung der Lumineszenz zu $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen erscheint daher fragwürdig. Im Gegensatz dazu stimmen die von Nguyen Thanh et al. [26] und in nachfolgenden Arbeiten [30, 31] veröffentlichten Daten zu Größen und Dichten sowie Lumineszenz von $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}/\text{GaP}$ QPen sehr gut mit den in dieser Arbeit gefundenen Werten überein. Ebenfalls in guter Übereinstimmung bezüglich dieser Werte befindet sich eine kürzlich veröffentlichte Studie von Heidemann et al. [27] an mit Gasquellen-MBE gezüchteten $\text{In}_{0,4}\text{Ga}_{0,6}\text{As}/\text{GaP}$ QPen. Die QPe zeigen in beiden Fällen temperaturabhängige Lumineszenz bis zu 300 K.

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass – von der vorliegenden Arbeit abgesehen – eine erfolgreiche Herstellung optisch aktiver, defektfreier $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ QPe auf GaP bisher nur mit MBE oder dem verwandten Verfahren der Gasquellen-MBE

gelungen ist, und das zweifelsfrei nur zwei Forschungsgruppen: Nguyen Thanh et al. [26] von der Université Européenne de Bretagne in Rennes und Heidemann et al. [27] von der Universität Würzburg. Ein Grund für diese Schwierigkeiten ist die hohe Gitterfehlانpassung von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ zu GaP zwischen 3,6 % ($x = 0$) und 10,0 % ($x = 1$), was zur Bildung von Gitterversetzungen schon bei Schichtdicken von wenigen Monolagen führt. Zum Vergleich: Die Gitterfehlانpassung im epitaktisch gut beherrschbaren $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ QP-System beträgt maximal 6,7 %. Im nächsten Kapitel wird gezeigt, dass auch die Oberflächenenergien und Mobilitäten von Adatomen auf der GaP(001) Oberfläche ungünstig für die QP-Bildung sind.

4.2 Wachstumsmodus von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ auf GaP

Als Ausgangspunkt und Vergleichssystem für das Wachstum von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Quantenpunkten auf GaP wurde das bekannte und weit erforschte System der $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ QPe auf GaAs(001) gewählt [52–54]. Die kritische Schichtdicke d_{kr}^{3D} ab der sich QPe bilden ist im $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ System abhängig vom Indiumgehalt x der $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Schicht, und damit auch von der Verspannung. Für binäres InAs/GaAs findet der 2D-3D Übergang für InAs Bedeckungen $> 1,5$ ML statt. Die Gitterfehlانpassung f von InAs zu GaAs beträgt 6,7 %. $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ auf GaAs ($f = 3,5$ %) bildet erst ab einer Bedeckung von ca. 3,0 ML QPe aus [52].

Abbildung 4.1(a) zeigt eine Rasterkraftmikroskopaufnahme von $\text{In}_{0,83}\text{Ga}_{0,17}\text{As}$ QPen, die auf einem GaAs(001) Substrat gewachsen wurden. Die Gitterfehlانpassung der $\text{In}_{0,83}\text{Ga}_{0,17}\text{As}$ Schicht zum GaAs Substrat beträgt 5,6 %. Die Abscheidemenge entspricht einer Bedeckung von 2,4 ML $\text{In}_{0,83}\text{Ga}_{0,17}\text{As}$, die Substrattemperatur T_{gr} betrug 500 °C, die Wachstumsrate $0,4 \text{ ML s}^{-1}$, das V/III-Verhältnis 4,6. Nach der $\text{In}_{0,83}\text{Ga}_{0,17}\text{As}$ Abscheidung wurde das Wachstum für 180 s unterbrochen, um eine Reifung der QPe zu ermöglichen [54–57] (siehe auch Kapitel 7.2). Während der Wachstumsunterbrechung (GRI) wurde auch der Zufluss des Gruppe V Präkursors abgeschaltet. Anschließend wurden die QPe mit einer 6 nm dicken Schicht GaAs zugedeckt, um die QP-Reifung zu stoppen. Die QPe werden durch diese 6 nm GaAs vollständig bedeckt, zeichnen sich aber noch unter der Probenoberfläche ab, so dass sie mit AFM vermessen werden können. Die durch die QPe hervorgerufenen Erhebungen sind 8 nm bis 10 nm hoch und haben eine Dichte von $1,4 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$.

Werden $\text{In}_{0,83}\text{Ga}_{0,17}\text{As}$ Schichten unter den gleichen Wachstumsbedingungen auf

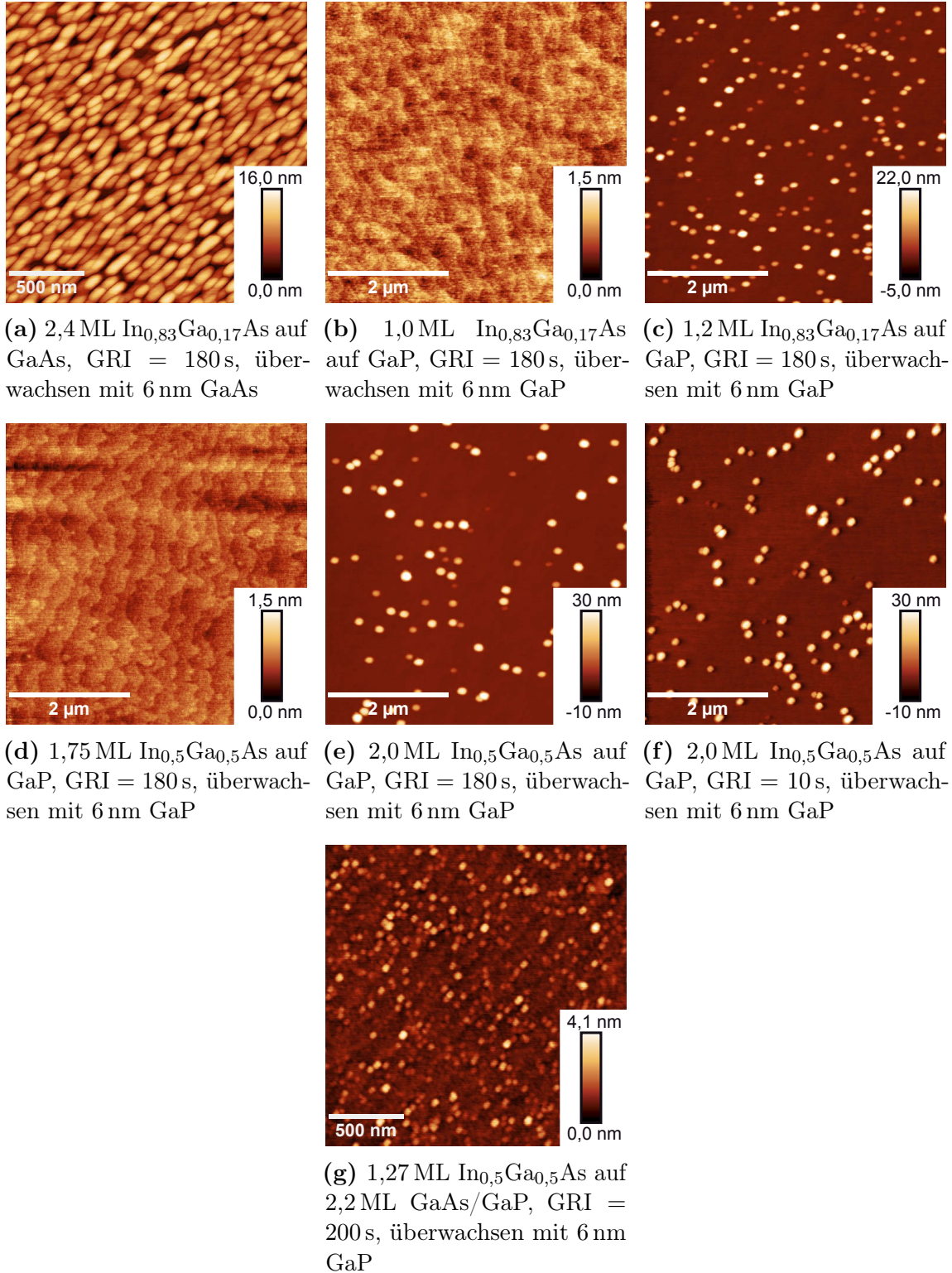


Abbildung 4.1

einem GaP(001) Substrat abgeschieden, so findet keine Bildung kohärent verspannter QPe statt. Die in Abbildung 4.1 gezeigten $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ Schichten wurden analog zu den $\text{In}_{0,83}\text{Ga}_{0,17}\text{As}/\text{GaAs}$ QPen nach einer GRI von 180 s ohne Gruppe V Angebot mit 6 nm GaP zugedeckt. Bis zu einer $\text{In}_{0,83}\text{Ga}_{0,17}\text{As}$ Bedeckung von 1,0 ML verläuft das Wachstum zweidimensional (Abbildung 4.1(b)). Bei Bedeckungen > 1 ML $\text{In}_{0,83}\text{Ga}_{0,17}\text{As}$ entstehen Inseln, die deutlich größer sind als typische QPe. Für 1,2 ML $\text{In}_{0,83}\text{Ga}_{0,17}\text{As}$ betragen die Inselhöhen zwischen 8 nm und 25 nm und die Breiten zwischen 150 nm und 190 nm, wie in Abbildung 4.1(c) zu sehen. Die Dichte dieser Inseln beträgt $8 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$. Eine weitere Erhöhung der $\text{In}_{0,83}\text{Ga}_{0,17}\text{As}$ Bedeckung führt zu einer Zunahme der Inselgröße und -dichte. Für 4,0 ML $\text{In}_{0,83}\text{Ga}_{0,17}\text{As}$ erreichen die Inseln Höhen von bis zu 60 nm und eine Dichte von $3 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ (hier nicht gezeigt). Wie in den Kapiteln 4.3 und 4.5 gezeigt werden wird, stellen Inseln dieser Größe keine optisch aktiven QPe dar. Es kann davon ausgegangen werden, dass diese Inseln durch die Bildung von Versetzungen aufgrund der hohen Verspannung im Kristallgitter entstehen. Die Gitterfehlانpassung von $\text{In}_{0,83}\text{Ga}_{0,17}\text{As}$ zu GaP beträgt 9,0 %. In der Umgebung von Versetzungen ist die $\text{In}_{0,83}\text{Ga}_{0,17}\text{As}$ Schicht relaxiert und die Gitterfehlانpassung nimmt ab. Daher lagert sich zusätzlich abgeschiedenes $\text{In}_{0,83}\text{Ga}_{0,17}\text{As}$ bevorzugt an den Versetzungen an. Ob und in welchem Maß eine Migration von bereits vor der Versetzungsbildung abgeschiedenem $\text{In}_{0,83}\text{Ga}_{0,17}\text{As}$ zu den Inseln stattfindet, kann aus diesen Messungen nicht bestimmt werden. Die Bildung von relaxierten Inseln bei Überschreiten einer kritischen Schichtdicke d_{kr}^V – ohne einen Schichtdickenbereich, in dem sich QPe bilden – wurde für mit MOVPE gezüchtete $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ Schichten bereits vorher beobachtet [72, 73]. Die Energie, die zur Bildung von QPen nötig ist, ist für $\text{In}_{0,83}\text{Ga}_{0,17}\text{As}$ auf GaP unter den gewählten Wachstumsbedingungen also größer als die Energie zur Ausbildung von Versetzungen und es gilt $d_{\text{kr}}^{3D} > d_{\text{kr}}^V$. Die Bedingungen für den in Kapitel 2.3.1 besprochenen Stranski-Krastanow Wachstumsmodus sind nicht erfüllt.

Durch Absenkung des Indiumgehaltes der $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Schicht kann die Verspannung der Schicht reduziert werden. Ein Indiumgehalt von 50 % resultiert in einer Gitterfehlانpassung von 6,9 % und entspricht damit etwa derjenigen von InAs auf GaAs ($f = 6,7 \%$). Auch $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ Schichten zeigen denselben Wachstumsmodus wie $\text{In}_{0,83}\text{Ga}_{0,17}\text{As}/\text{GaP}$, die Bildung relaxierter Inseln findet jedoch erst bei dickeren Schichten statt. Bis zu einer Bedeckung von 1,75 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ verläuft das Wachstum zweidimensional, siehe Abbildung 4.1(d). Bei einer Bedeckung von

2,0 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ entstehen Inseln mit Höhen zwischen 8 nm und 35 nm und Breiten zwischen 130 nm und 220 nm (Abbildung 4.1(e)). Die Dichte beträgt $6 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$. Abbildung 4.1(f) zeigt die Oberfläche einer ebenfalls 2,0 ML dicken $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Schicht auf GaP. Die Wachstumsunterbrechung betrug in diesem Fall nur 10 s. Die Größe und Dichte der Inseln sind identisch zur Probe mit einer Wachstumsunterbrechung von 180 s. Daraus lässt sich schließen, dass die relaxierten Inseln bereits während oder kurz nach Wachstum der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Schicht entstehen, und nicht durch eine zu starke Größenzunahme von QPen während der Wachstumsunterbrechung, wodurch ebenfalls relaxierte Inseln entstehen können. Die Bildung von relaxierten Inseln aufgrund zu starker QP-Reifung wird typischerweise erst ab Wachstumsunterbrechungen von ca. 100 s beobachtet [52, 54, 56] (siehe auch Kapitel 7.2).

Laut Gleichung (2.3) ist die in den pseudomorph verspannten $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Schichten gespeicherte elastische Energie nach Gleichung (2.2) die maßgebliche Triebfeder zur Bildung von QPen im Stranski-Krastanow Modus. Aufgrund der größeren Gitterfehlanpassung f besitzen die auf dem GaP Substrat abgeschiedenen, unrelaxierten $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Schichten eine um 7 % (1,0 ML $\text{In}_{0,83}\text{Ga}_{0,17}\text{As}$) bzw. 28 % (1,75 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$) größere elastische Flächenenergiedichte als die auf dem GaAs Substrat abgeschiedene Schicht von 2,4 ML $\text{In}_{0,83}\text{Ga}_{0,17}\text{As}$, die QPe ausbildet. Trotz größerer elastischer Energie findet auf dem GaP Substrat kein Quantenpunkt看stum statt. Größen, die eine Quantenpunktbildung verhindern können, sind

1. erhöhter Energiebedarf zur Ausbildung von neuen Facetten und Kanten von QPen,
2. eine erhöhte Oberflächenenergie der Benetzungsschicht (siehe Gleichung (2.4)) und – bisher nicht betrachtet –
3. verminderte Diffusion von Adatomen auf der Oberfläche der Benetzungsschicht.

Zu Punkt 1: Rastertunnelmikroskopische Untersuchungen an mit Molekularstrahlepitaxie gezüchteten InAs/GaAs [75] und $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}/\text{GaP}$ [31] QPen zeigen, dass kleine QPe, die nach der Nukleationsphase keine signifikante Reifung erfahren haben, in beiden Fällen gleich groß sind und vier Hauptfacetten mit fast identischen Millerindizes ausbilden ((137) für InAs/GaAs QPe und (136) für $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}/\text{GaP}$ QPe). Es erscheint daher unwahrscheinlich, dass zur Bildung von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ QPen auf GaP ein Mehrbedarf an Formierungsenergie besteht, der nicht durch den höheren Gewinn an elastischer Relaxationsenergie kompensiert werden kann. Die Ursache für

die ausbleibende Quantenpunktbildung auf GaP ist daher in der Beschaffenheit der Oberfläche der $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Benetzungsschicht zu suchen.

Dies führt zu Punkt 2 und 3: Bislang wurden weder experimentelle noch theoretische Untersuchungen der Struktur und Energetik einer $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Benetzungsschicht auf GaP veröffentlicht. Die Oberflächenrekonstruktionen und daraus resultierenden Oberflächenenergien sind demnach unbekannt. Für $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Benetzungsschichten auf GaAs(001) wurde gezeigt, dass sich die Oberflächenrekonstruktion mit Dicke, Indiumgehalt (und damit auch der Verspannungsenergie) und Temperatur ändert [49, 76]. Einen direkten Vergleich zwischen $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Benetzungsschichten auf GaAs und GaP anzustellen, ist aus zwei Gründen nicht zulässig: 1. Die Verspannungszustände unterscheiden sich in beiden Fällen stark, wie oben ausgeführt. 2. Die Rekonstruktion einer Kristalloberfläche umfasst nicht nur die oberste Atomlage, sondern auch die darunterliegenden Atomlagen des Substrates erfahren eine gewisse Relaxation und beeinflussen die Anordnung der Oberflächenatome. Theoretische Modelle zur Berechnung von Oberflächenrekonstruktionen und -energien berücksichtigen sechs bis zwölf Atomlagen [77–79].

Die Oberflächenrekonstruktion bestimmt neben der Oberflächenenergie auch maßgeblich die Diffusionslänge von Adatomen auf der Oberfläche. Berechnungen der Diffusion von Indiumadatom auf $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(001)$ Benetzungsschichten von Rosini et al. [80] ergaben, dass der Diffusionskoeffizient von Indiumadatom neben einer Temperaturabhängigkeit auch eine starke Abhängigkeit von Indiumgehalt und Art der Oberflächenrekonstruktion der Benetzungsschicht aufweist. Bei einer für das Quantenpunktwachstum üblichen und auch in dieser Arbeit verwendeten Substrattemperatur um 500 °C variiert der berechnete Diffusionskoeffizient um mehr als zwei Größenordnungen. Es ist daher davon auszugehen, dass sich der Diffusionskoeffizient einer $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Benetzungsschicht auf einem GaP Substrat von dem auf einem GaAs Substrat unterscheidet. Bereits 1993 zeigten Grandjean und Massies [81] anhand von Wachstumsexperimenten und Monte Carlo-Simulationen, dass eine Reduktion der Diffusionslänge von Adatomen zu einer Erhöhung der kritischen Schichtdicke des 2D-3D Überganges von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ Schichten führt. Experimentell wurde eine Erhöhung der Diffusionsbarriere - und damit Reduktion der Diffusionslänge - durch Absenken der Wachstumstemperatur, Erhöhung der Wachstumsrate oder Einsatz von Tellur als Surfactant¹ erreicht.

¹engl.: surface active agent (grenzflächenaktive Substanz)

In dieser Arbeit wurde eine Modifikation der Oberflächenenergie und Adatomdiffusion der $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ Oberfläche erzielt, indem das GaP Substrat vor der $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Abscheidung mit einer wenige Monolagen dünnen Schicht GaAs bedeckt wurde. Diese GaAs Schicht wird im Folgenden als Zwischenschicht bezeichnet. Die Dicke der Zwischenschicht wurde stets so gewählt, dass sie die Substratoberfläche vollständig bedeckt und eine pseudomorph gespannte zweidimensionale Schicht bildet. Eine auf einem solchen GaAs/GaP Pseudosubstrat abgeschiedene Schicht $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ bildet QPe aus, wie in Abbildung 4.1(g) am Beispiel von 1,27 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ auf 2,2 ML GaAs auf GaP(001) demonstriert. Die Wachstumsunterbrechung betrug in diesem Fall 200 s. Die Erhebungen an der Oberfläche sind durchschnittlich $(1,3 \pm 0,4)$ nm hoch, was darauf schließen lässt, dass die darunter liegenden Inseln kohärent gespannte QPe sind. Ihre Dichte beträgt $1,1 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$.

In Kapitel 5.2 wird gezeigt werden, dass die QP-Bildung ab einer Bedeckung von 0,57 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ auf einem 2,2 ML GaAs/GaP Pseudosubstrat einsetzt. Die akkumulierte elastische Flächenenergiedichte der 2,2 ML GaAs und 0,57 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Schichten ist um 28 % geringer als die der 1,75 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Schicht in Abbildung 4.1(d), deren Wachstum rein zweidimensional ist. Der Unterschied im Wachstumsmodus ist daher nur durch eine Absenkung der Oberflächenenergie und/oder Erhöhung der Adatomdiffusion auf dem GaAs/GaP Pseudosubstrat gegenüber dem unbedeckten GaP Substrat zu erklären. Alle in den folgenden Kapiteln behandelten $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ QPe wurden auf einem GaAs/GaP Pseudosubstrat gezüchtet. Zur besseren Lesbarkeit wird die Aufführung der GaAs Zwischenschicht in Ausdrücken wie $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/3 \text{ ML GaAs/GaP}$ in der Regel weggelassen.

4.3 $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenpunkte: Kritische Schichtdicke, Dichte und Größe

Der Stranski-Krastanow Wachstumsmodus zeichnet sich dadurch aus, dass das Inselwachstum ab einer kritischen Schichtdicke d_{kr}^{3D} einsetzt (Kapitel 2.3.1). Abbildung 4.2 zeigt AFM Aufnahmen einer Serie von $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Schichten mit nominellen Bedeckungen von 0 ML bis 2,5 ML, die auf einem 3 ML GaAs/GaP Pseudosubstrat abgeschieden wurden. Der Indiumgehalt von $x = 25 \%$ wurde gewählt, da dies einer vergleichsweise moderaten Gitterfehlانpassung von $f = 5,3 \%$ ($\cong \text{In}_{0,78}\text{Ga}_{0,22}\text{As}/\text{GaAs}$) entspricht, bei der für geringe Schichtdicken von wenigen Monolagen nicht mit De-

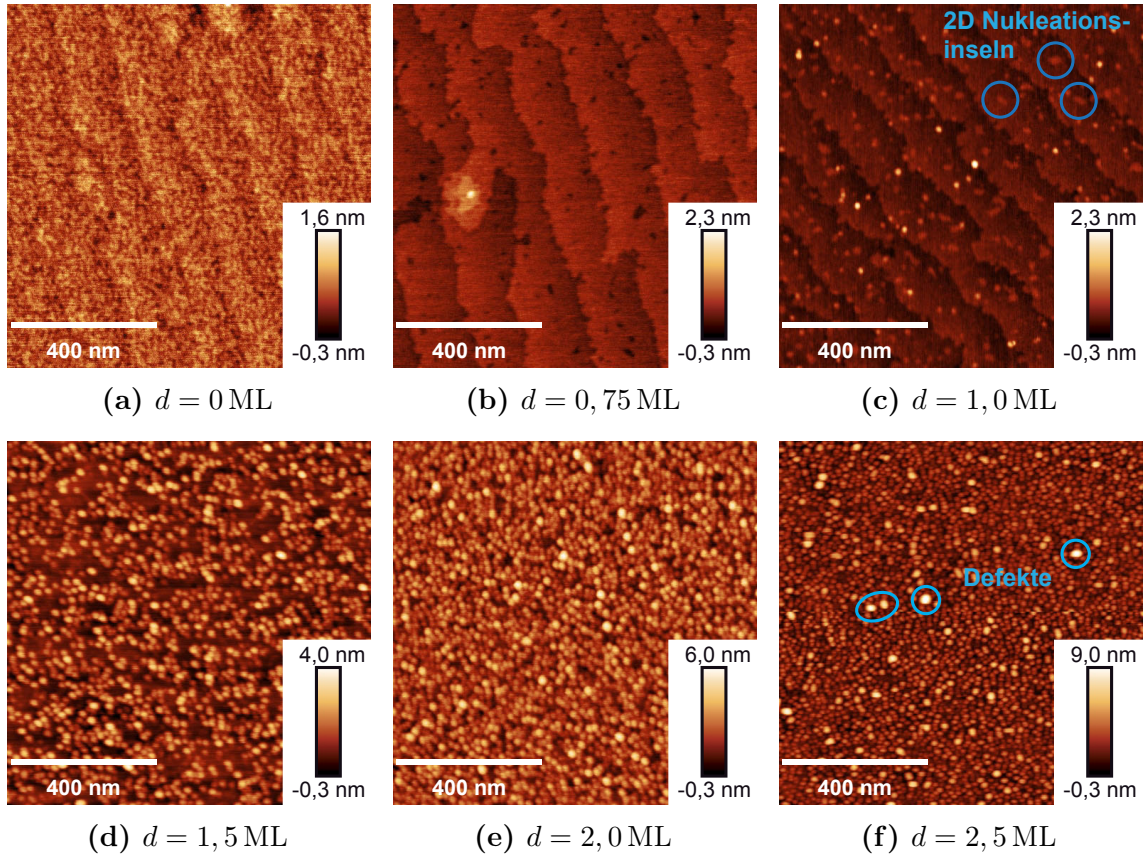
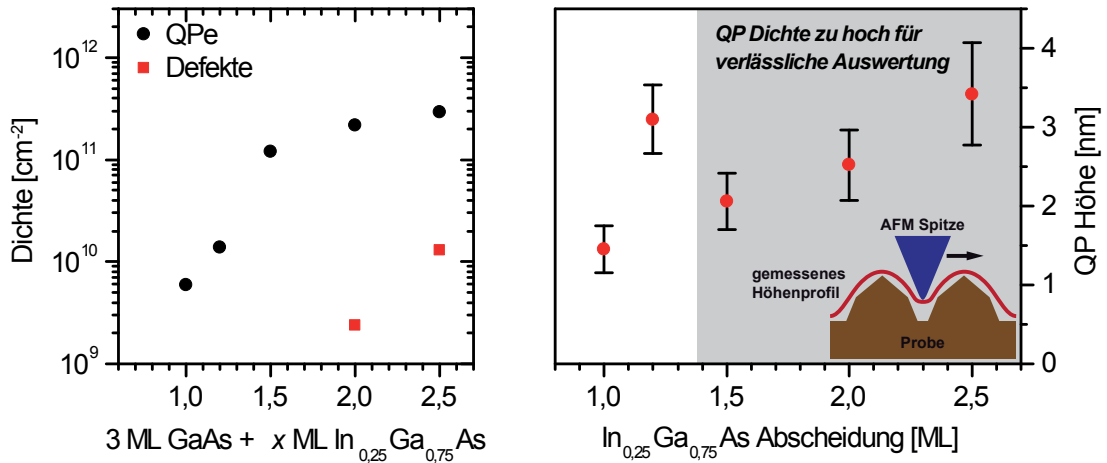


Abbildung 4.2 – AFM Aufnahmen von unbedeckten $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Schichten der nominellen Bedeckung d auf 3 ML GaAs/GaP ($T_{\text{gr}} = 500^\circ\text{C}$)

fektbildung aufgrund plastischer Relaxation zu rechnen ist. Die Substrattemperatur betrug $T_{\text{gr}} = 500^\circ\text{C}$, die Wachstumsrate der $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Schichten $g_r = 0,5 \text{ ML s}^{-1}$ und das V/III Verhältnis 6,7. Wachstumsrate und V/III Verhältnis der GaAs Zwischenschicht betrugen $0,35 \text{ ML s}^{-1}$ bzw. 13. Nach der $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Abscheidung wurde keine weitere Deckschicht gewachsen, sondern das Substrat ohne Gruppe V Stabilisierung der Oberfläche abgekühlt. Als Abschätzung für die Zeitspanne, während der die QPe reifen können, wird eine Zeit von ca. 60 s angenommen, die vergeht, bis das Substrat von 500°C auf 400°C abgekühlt ist. Für Temperaturen unterhalb von 400°C ist aufgrund stark reduzierter Diffusion von Oberflächenatomen keine signifikante Reifung der QPe mehr zu erwarten [80].

Die in Abbildung 4.2(a) gezeigte Oberfläche des 3 ML GaAs/GaP Pseudosubstrates besitzt eine zweidimensionale Morphologie mit monolagenhohen Nukleationsinseln. Die Stufenstruktur der Oberfläche des GaP Substrates ist noch zu erkennen. Auch eine



(a) QP- und Defektdichten in Abhängigkeit der $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Bedeckung auf 3 ML $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Bedeckung auf 3 ML GaAs/GaP

(b) QP-Höhe in Abhängigkeit der $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Bedeckung auf 3 ML GaAs/GaP

Abbildung 4.3

auf diesem Pseudosubstrat abgeschiedene Schicht $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ bildet zunächst eine zweidimensionale, geschlossene Oberfläche aus (Abbildung 4.2(b)). Die in der Mitte der linken Bildhälfte von Abbildung 4.2(b) zu sehende dreidimensionale Struktur ist noch kein im Stranski-Krastanow Modus entstandener QP. Ähnliche Strukturen wurden auf den hier verwendeten GaP Substraten auch für homoepitaktische Schichten beobachtet und sind daher auf Kristallfehler im Substrat zurückzuführen. Der Übergang vom zwei- zum dreidimensionalen Wachstum findet für eine nominelle $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Bedeckung zwischen 0,75 ML und 1,0 ML statt, ab der sich QPe bilden.

Die Dichte der QPe hängt von der Menge des abgeschiedenen $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ ab, siehe Abbildung 4.3(a). Sie steigt von $5,8 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ für 1,0 ML $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ auf $2,9 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ für 2,5 ML $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$. Auch die Größe der QPe ändert sich mit der $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Bedeckung, wie in Abbildung 4.3(b) gezeigt. Die QP-Höhe beträgt $(1,5 \pm 0,3) \text{ nm}$ bei Abscheidung von 1,0 ML $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ und steigt auf $(3,1 \pm 0,4) \text{ nm}$ bei Abscheidung von 1,2 ML $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$. Bei weiter erhöhter $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Bedeckung nimmt die QP-Höhe laut AFM Messungen zunächst wieder ab. Das könnte allerdings auch auf einem Messfehler aufgrund der dann ebenfalls hohen QP-Dichte ($> 1 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$) beruhen. Stehen die QPe zu dicht beieinander, so senkt sich die AFM Spitze zwischen den QPen nicht mehr bis auf das Grundniveau der Benetzungsschicht ab, da Kräfte von den Seitenfacetten der QPe auf die Flanken der AFM Spitze wirken (siehe Skizze in Abbildung 4.3(b)). Die gemessene QP-Höhe

ist in diesem Fall also kleiner als die tatsächliche. Aus demselben Grund wird die laterale Ausdehnung der QPe auch für geringe Dichten durch die AFM Messung überschätzt und hier nicht detailliert betrachtet. Als Abschätzung für die Größe von QPen hoher Dichte werden daher die Werte angenommen, die sich für eine Bedeckung von 1,2 ML $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ ergeben. Die QP-Dichte und Höhe betragen in diesem Fall $1,4 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ bzw. $(3,1 \pm 0,4) \text{ nm}$, und der QP-Basisdurchmesser wird zu $(21 \pm 2) \text{ nm}$ gemessen.

Ab einer $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Bedeckung von 2,0 ML bilden sich neben den oben betrachteten QPen auch größere Inseln, die für 2,5 ML $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ eine Höhe von $(6,8 \pm 1,4) \text{ nm}$ und einen Durchmesser von $(36 \pm 4) \text{ nm}$ erreichen. Diese Inseln sind in Abbildung 4.2(f) als Defekte gekennzeichnet, da ihr Auftreten mit dem Abnehmen der Intensität der in Abbildung 4.6 gezeigten Kathodolumineszenzspektren von vergrabenen $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPen zusammenfällt. Es ist für Stranski-Krastanow Systeme typisch, dass ab einer bestimmten Bedeckung bzw. Inselgröße das verspannte Material auch durch Ausbildung von Kristalldefekten relaxiert [52]. An diesen Kristalldefekten können Ladungsträgerpaare strahlungslos rekombinieren, was den Rückgang der Lumineszenzintensität mit zunehmender Defektdichte erklärt.

4.4 Struktur vergrabener $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe

Im voranstehenden Abschnitt wurden freistehende, also nicht mit weiteren epitaktischen Schichten überwachsene, Quantenpunkte betrachtet. Zum Zweck der technologischen Anwendung werden QPe zumeist in eine komplexere Struktur eingebettet, die aus mehreren verschiedenen epitaktischen Schichten besteht. Beispiele sind etwa Laserdioden und Speicherelemente [10, 20]. Hierfür werden die QPe nach der Reifungsphase während der Wachstumsunterbrechung mit weiteren Schichten überwachsen. Solche mit einer oder mehreren Deckschichten überwachsene QPe werden vergrabene QPe genannt. Der Prozess des Überwachsens löst in der Regel eine Formänderung der QPe aus, so haben vergrabene $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ QPe häufig die Form von Pyramidenstümpfen [82, 83]. Um die Struktur vergrabener $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ QPe auf einem 3 ML GaAs/GaP Pseudosubstrat zu untersuchen, wurden rastertunnelmikroskopische Aufnahmen an der Spaltfläche einer Probe mit vergrabenen QPen aufgenommen. Auf diese Weise erhält man den Querschnitt der QPe.

Abbildung 4.4 zeigt eine Querschnittsaufnahme einer Schicht $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/3 \text{ ML}$

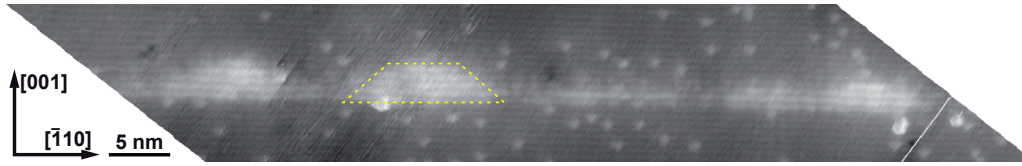


Abbildung 4.4 – Rastertunnelmikroskopaufnahme des Querschnitts von vergrabenen $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ QPen auf 3 ML GaAs/GaP. Die QPe und die Benetzungsschicht sind als heller Bildkontrast zu erkennen. Die gelbe gestrichelte Linie zeichnet den Umriss eines QPes nach. Horizontale (helle) Streifen entsprechen jeweils zwei Monolagen Material. Die kleinen hellen Punkte sind Fremdatome, die sich auf der Spaltfläche angelagert haben. Probenspannung und Tunnelstrom: $V_S = -3\text{ V}$ bzw. $I_S = 30\text{ pA}$. (Bild: Christopher Prohl, TU Berlin)

GaAs/GaP QPe. Die nominelle $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Bedeckung beträgt 2 ML. Nach einer Wachstumsunterbrechung von 10 s wurde die $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Schicht zunächst mit 6 nm GaP überwachsen. Daraufhin wurde die Substrattemperatur von 500°C auf 600°C erhöht und weitere für die STM Messungen benötigte Deck- und Markerschichten gewachsen. Auf der Aufnahme sind die QPe und die Benetzungsschicht als helle Bereiche zu erkennen. Zu dem hellen Kontrast tragen zwei Effekte bei. Erstens wölbt sich das Material der QPe aufgrund seiner Verspannung nach außen aus der Spaltfläche heraus, wodurch in der Messung ein struktureller Kontrast entsteht. Zweitens ist die Tunnelwahrscheinlichkeit über den indium- und arsenreichen Bereichen der Probe erhöht, woraus sich ein elektronischer Kontrast ergibt. Der Querschnitt der QPe entspricht einem Trapez, was darauf hindeutet, dass die dreidimensionale Form der vergrabenen QPe wie bei $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ QPen ein Pyramidenstumpf ist. Die durchschnittliche Höhe der vergrabenen QPe beträgt 3,0 nm (10 ML) und die durchschnittliche Basislänge 12 nm. Die per STM gemessene QP-Höhe liegt leicht unterhalb der per AFM gemessenen Höhe freistehender QPe von 3,1 nm. Eine leichte Reduktion der QP-Höhe durch den Prozess des Überwachsens ist zu erwarten („Abschneiden“ der Pyramidenspitze). Die laterale Ausdehnung der QPe kann mit dem Querschnitts-STM deutlich verlässlicher bestimmt werden als mit dem AFM, wie im vorletzten Absatz von Kapitel 4.3 diskutiert. Die aus den STM Messungen abgeschätzte QP-Dichte beträgt $2,4 \cdot 10^{11}\text{ cm}^{-2}$, in guter Übereinstimmung mit dem Wert von $2,2 \cdot 10^{11}\text{ cm}^{-2}$ der AFM Messung.

Neben der Bestimmung der geometrischen Form der QPe bietet das Querschnitts-STM die Möglichkeit, die Stöchiometrie der QPe zu untersuchen. Hierzu wird die lokale Gitterkonstante in Wachstumsrichtung betrachtet, die sich aus dem Abstand

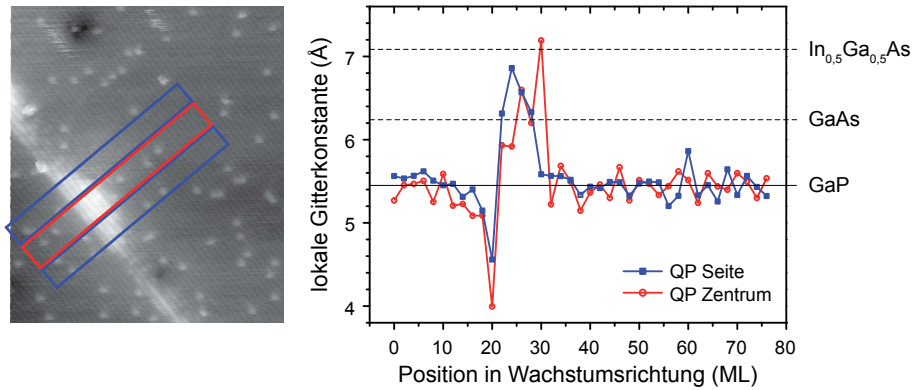
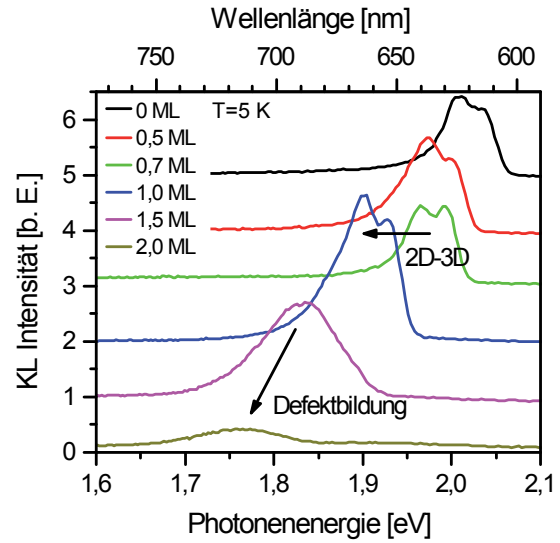


Abbildung 4.5 – Lokale Gitterkonstante entlang der Wachstumsrichtung für einen $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/3\text{ ML GaAs}/\text{GaP}$ QP, gemittelt über das Zentrum (rotes Kästchen im Bild links), und über den Seitenbereich des QPes (blaue Kästchen). Die gestrichelten Linien im Graphen rechts entsprechen den berechneten Werten der lokalen Gitterkonstanten in Wachstumsrichtung von GaAs bzw. $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$. [84].

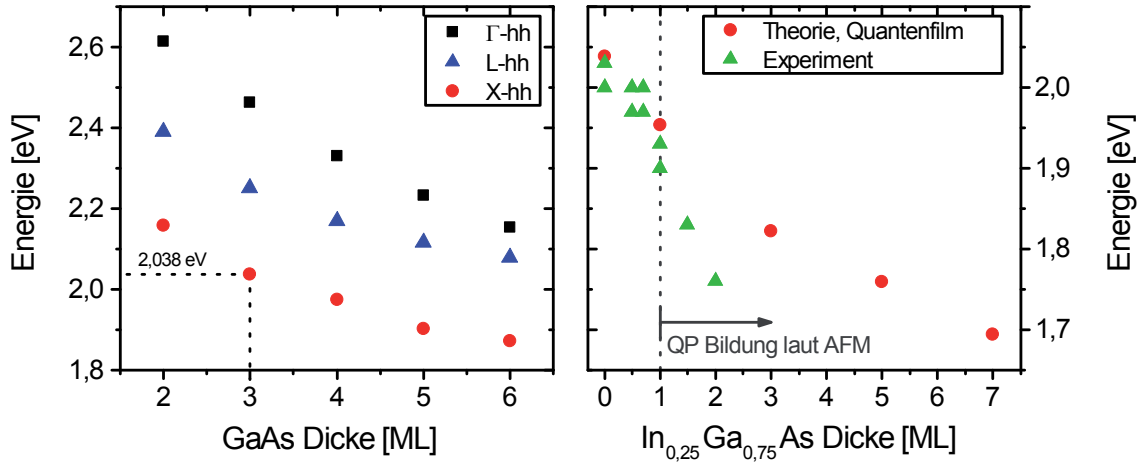
der atomaren Ketten ergibt, die als horizontale Streifen in Abbildung 4.4 zu erkennen sind. In Abbildung 4.5 ist die lokale Gitterkonstante in z -Richtung über den Bereich eines QPes und seiner Umgebung aufgetragen. Die lokale Gitterkonstante ist im Bereich des QPes deutlich größer als in der umgebenden GaP Matrix. Aus der lokalen Gitterkonstanten kann unter Annahme elastischer Verspannungsrelaxation die Komposition der $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Schicht bestimmt werden. Direkt unterhalb des QPes ist die lokale Gitterkonstante wesentlich kleiner als die der unverspannten GaP Matrix, was auf eine starke Kompression des Materials in diesem Bereich hindeutet. Eine detaillierte Auswertung der Daten ergibt, dass im QP kein Phosphor vorhanden ist. Das abgeschiedene Indium konzentriert sich sämtlich in den QPen, die Benetzungsschicht besteht aus fast reinem GaAs. Der durchschnittliche Indiumgehalt eines QPes beträgt 20 % bis 25 % und ist inhomogen verteilt. Im Zentrum und in der Spitze des QPes ist die Indiumkonzentration am höchsten und erreicht bis zu 50 %. Unter Berücksichtigung einer Bedeckung der Substratoberfläche durch QPe von ca. 24 %, ist das insgesamt in der Struktur vorhandene Indium äquivalent zu einer Bedeckung von 0,5 ML. Dieser Wert entspricht genau der nominell abgeschiedenen Menge (2,0 ML $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$).

Abbildung 4.6 – Kathodolumineszenzspektren von vergrabenen $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Schichten mit Bedeckungen von 0 ML bis 2 ML auf 3 ML GaAs/GaP und einer Wachstumsunterbrechung von 10 s, Messtemperatur $T = 5\text{ K}$. Die Spektren sind zur besseren Übersichtlichkeit vertikal gegeneinander verschoben.



4.5 Entwicklung der Quantenpunktlumineszenz mit der $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Bedeckung

Die Kathodolumineszenzspektren in Abbildung 4.6 wurden an einer Probenserie von vergrabenen $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Schichten mit Bedeckungen von 0 ML bis 2 ML auf 3 ML GaAs/GaP bei einer Messtemperatur von $T = 5\text{ K}$ aufgenommen. Nach einer Wachstumsunterbrechung von 10 s wurden die $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Schichten analog zur Querschnitts-STM Probe zunächst mit 6 nm GaP überwachsen. Daraufhin wurde die Substrattemperatur von $500\text{ }^{\circ}\text{C}$ auf $600\text{ }^{\circ}\text{C}$ erhöht und weitere 50 nm GaP gewachsen. Die Entwicklung der Spektren mit zunehmender $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Bedeckung spiegelt die per AFM gemessenen strukturellen Änderungen aus Abbildung 4.2 sehr gut wider. Das Spektrum der Probe, die nur eine 3 ML GaAs Zwischenschicht enthält, besteht aus einem Dublett mit Maxima bei 2,03 eV und 2,0 eV. Die Aufspaltung des Maximums könnte durch eine Schichtdickenfluktuation aufgrund der monolagenhohen Nukleationsinseln hervorgerufen werden, die in Abbildung 4.2(a) zu erkennen sind. Die gemessenen Energien stimmen nahezu perfekt mit den in Abbildung 4.7(a) aufgetragenen berechneten Übergangsenergien für einen 3 ML dicken GaAs Quantenfilm in GaP überein. Die Berechnungen wurden nach dem Tight-Binding Modell durchgeführt [85]. Demnach entspricht die Photonenenergie von 2,03 eV einem indirekten Übergang vom $X_{x,y}$ -Zustand des Leitungsbandes in den Schwerlochzustand (siehe auch Kapitel 6.1).



(a) Nach dem Tight-Binding Modell berechnete Energien der Übergänge vom Γ -, L- und X-Punkt des Leitungsbandes in den Schwerlochzustand (hh) in einem GaAs Quantenfilm der Dicke 2 ML bis 6 ML in GaP.

(b) Nach dem Tight-Binding Modell berechnete $X_{x,y} - hh$ Übergangsenergien in einem $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Quantenfilm der Dicke 0 ML bis 7 ML auf 3 ML GaAs in GaP (rote Punkte). Die grünen Dreiecke geben die Positionen der Maxima der Kathodolumineszenzspektren aus Abbildung 4.6 an.

Abbildung 4.7

Für $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Bedeckungen von weniger als einer Monolage auf der GaAs Zwischenschicht, und damit unterhalb der kritischen Schichtdicke zur QP-Bildung, verschwindet das Hochenergiemaximum des Dubletts und es bildet sich ein neues niederenergetisches Maximum bei 1,97 eV. Dies spricht für eine Auffüllung der nicht geschlossenen obersten Monolage der GaAs Zwischenschicht und Bildung neuer zweidimensionaler $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Nukleationsinseln auf der GaAs Zwischenschicht. Die Energien passen wieder zu den Rechnungen für einen $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Quantenfilm auf 3 ML GaAs in GaP (Abbildung 4.7(b)). Wird die kritische Schichtdicke zur QP-Bildung überschritten, so erfährt das Dublett eine deutliche Verschiebung zu niedrigeren Energien von 1,93 eV und 1,90 eV für eine $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Bedeckung von 1,0 ML. Diese Energien liegen deutlich unter den für einen Quantenfilm berechneten. Das deutet darauf hin, dass sich in Übereinstimmung mit den AFM Messungen QPe gebildet haben. Wird die $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Bedeckung weiter erhöht, so schiebt das Lumineszenzmaximum weiter zu niedrigeren Energien. Diese Verschiebung lässt sich durch tieferliegende Energieniveaus in den QPen erklären, was wiederum auf eine Zunahme der QP-Größe schließen lässt, wie auch die AFM Messungen nahelegen (Abbildung 4.3(b)). Als weitere Beobachtung lässt sich feststellen, dass die Aufspaltung

des Maximums in ein Dublett verschwindet. Letzteres könnte dadurch hervorgerufen werden, dass keine zweidimensionalen Nukleationsinseln mehr vorhanden sind, wie im Vergleich der Abbildungen 4.2(c) und 4.2(d) zu erkennen ist. Mit dem Auftreten von Defekten ab einer $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Bedeckung von 2,0 ML (vergl. Abbildung 4.2(e) und 4.2(f)) geht die Lumineszenzintensität aufgrund nichtstrahlender Rekombination zurück.

4.6 Diskussion der GaAs Zwischenschicht im Vergleich zu anderen Arbeiten und Epitaxieverfahren

In Kapitel 4.2 wurde gezeigt, dass $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ auf GaP(001) trotz sehr hoher Verspannung zunächst im zweidimensionalen Franck-van der Merwe Modus wächst, und bei Überschreiten einer kritischen Schichtdicke d_{kr}^V relaxierte Inseln bildet. Durch Modifikation der Oberflächenenergie und Adatomdiffusion mithilfe einer dünnen GaAs Zwischenschicht auf dem GaP Substrat wird das Inselwachstum im Stranski-Krastanow Modus ausgelöst. Diese Beobachtung muss mit der Einschränkung versehen werden, dass sie nur für die hier betrachteten Wachstumsbedingungen gültig ist. Das heißt insbesondere: Angewandtes Epitaxieverfahren (MOVPE), Verhältnis der Partialdrücke der Gruppe-III und -V Präkursoren in der Gasphase, Wachstumsrate, Substrattemperatur und Substratorientierung. Alle genannten Parameter beeinflussen die sich ausbildende Rekonstruktion der Wachstumsoberfläche sowie ihre Oberflächenenergie und Adatomdiffusion. Durch Variation der Substratfehlorientierung können zusätzliche Stufen und Kanten entstehen, die als Nukleationsorte für Quantenpunkte dienen können. Es ist daher nicht auszuschließen, dass ein Satz von Wachstumsparametern existiert, bei dem auch direkt auf einem GaP(001) Substrat abgeschiedene $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Schichten QPe im Stranski-Krastanow Modus bilden.

Die Zusammenfassung bisher publizierter Arbeiten zu $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen in Kapitel 4.1 zeigt, dass die Herstellung optisch aktiver, defektfreier $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ QPe auf GaP bisher nur mit MBE oder dem verwandten Verfahren der Gasquellen-MBE gelungen ist, und das zweifelsfrei nur zwei Forschungsgruppen: Nguyen Thanh et al. [26] von der Université Européenne de Bretagne in Rennes und Heidemann et al. [27] von der Universität Würzburg. Von bewusst getroffenen Maßnahmen zur Modifikation

der Oberflächenenergien oder der Adatomdiffusion wird in beiden Arbeiten nicht berichtet. Es kann daher vermutet werden, dass auch das angewandte Epitaxieverfahren entscheidenden Einfluss auf Oberflächenenergien und Adatomdiffusion hat.

Ergänzend zu der Diskussion in Kapitel 4.2 wird die Bedeutung der Diffusionslänge von Adatomen für das QP-Wachstum anhand einer von Abramkin et al. [86] durchgeführten Untersuchung des Wachstumsmodus von GaAs auf GaP deutlich. Untersucht wurde das MBE Wachstum von 3 ML GaAs auf GaP bei Temperaturen von 420 °C, 550 °C und 600 °C. Der Wachstumsmodus ändert sich mit zunehmender Wachstumstemperatur von einem zweidimensionalen Schichtwachstum bei 420 °C über die Bildung großer, relaxierter Inseln bei 550 °C schließlich zur Bildung defektfreier QPe bei 600 °C. Es sei in Erinnerung gerufen, dass die in dieser Arbeit mit MOVPE bei 500 °C abgeschiedenen 3 ML GaAs Zwischenschichten eine rein zweidimensionale Morphologie besitzen (Abbildung 4.2(a)). Nguyen Thanh et al. [26] geben als Wachstumstemperatur der QPe 600 °C an. Die Diffusionslänge von Oberflächenatomen kann in diesem Fall also als größer angenommen werden als bei der in dieser Arbeit verwendeten Wachstumstemperatur von 500 °C [80], wodurch die Bildung von QPen begünstigt wird. Heidemann et al. [27] züchten ihre QPe allerdings ebenfalls bei einer Temperatur von 500 °C, was wiederum dafür spricht, dass die Adatomdiffusion bei gleicher Substrattemperatur in der MBE größer ist als in der MOVPE.

Abschließend lässt sich festhalten, dass die Diffusionslänge von Atomen an der Oberfläche eine entscheidende Größe für die Bildung von QPen im Stranski-Krastanow Modus darstellt. Für $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ auf GaP(001) bewegt sich die Diffusionslänge offenbar in einem kritischen Bereich an der Grenze zwischen zwei- und dreidimensionalem Wachstum. Das erklärt auch die Tatsache, dass es trotz jahrzehntelanger Erfahrung in der epitaktischen Herstellung von materialverwandten QP-Systemen wie $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ [34, 35], $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{InP}$ [36, 37] und selbst $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{P}/\text{GaP}$ [87, 88], erst in den letzten vier Jahren gelungen ist, defektfreie $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ QPe auf GaP herzustellen. Unter MOVPE Bedingungen scheint die Diffusionslänge der Oberflächenatome gegenüber der MBE nochmals herabgesetzt zu sein, sodass eine gezielte Modifikation der GaP Oberfläche, beispielsweise durch eine wenige Monolagen dünne GaAs Bedeckung, für das Wachstum von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen nötig ist.

4.7 Messung der Speicherzeit in $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenpunkten

Zur Messung der Speicherzeit von Löchern in $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenpunkten wurde die Methode der Deep-Level Transient Spectroscopy (DLTS) angewandt. In diesem Kapitel werden die DLTS und die Ergebnisse der Messungen vorgestellt. Eine ausführliche Abhandlung der Speicherzeitmessung von QPen mit weiteren Details auch zu den hier vorgestellten Messungen an $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPen findet sich bei Nowozin [47]. Andere QP-Systeme wie $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ [23, 89, 90], $\text{InP}/\text{Ga}_{0,5}\text{In}_{0,5}\text{P}$ [91] und $\text{GaSb}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ [92, 93] wurden bereits erfolgreich mit DLTS charakterisiert.

Die Speicherzeit von Ladungsträgern in QPen wird in einem Quantenpunktspeicher durch thermische Emissionsprozesse limitiert, der Beitrag von Tunnelprozessen kann vernachlässigt werden [94]. Die Speicherzeit τ_s von Löchern in QPen bei einer Temperatur T ist dann gleich dem Kehrwert ihrer thermischen Emissionsrate e_h :

$$\frac{1}{\tau_s} = e_h = \gamma T^2 \sigma_h \exp\left(-\frac{E_a^h}{k_B T}\right), \quad (4.1)$$

mit der Loch-Aktivierungsenergie E_a^h , der Boltzmannkonstanten k_B , dem Loch-Einfangquerschnitt der QPe σ_h und einem konstanten Faktor γ , der die thermische Geschwindigkeit der Ladungsträger und die effektive Zustandsdichte enthält [95, 154 ff.]. Sind E_a^h und σ_h bekannt, lässt sich also die Speicherzeit für beliebige Temperaturen berechnen.

Die Aktivierungsenergie und der Einfangquerschnitt können über die Messung von temperaturabhängigen Kapazitätstransienten bestimmt werden, die während eines thermischen Entladevorganges der QPe aufgenommen werden. Dieses Verfahren ist als DLTS bekannt und wurde ursprünglich zur Bestimmung tiefer Störstellen in Halbleitern entwickelt [96]. Um die Lochemission zu messen, werden die QPe in den p-dotierten Bereich einer pn^+ -Diode eingebettet (siehe Abbildung 4.8(a)). Bei der Messspannung V_m am pn^+ -Übergang liegen die QPe in der Verarmungszone und sind daher im Gleichgewicht entladen (Abbildung 4.8(b)). Durch Anlegen eines Spannungspulses V_p in Durchlassrichtung werden die QPe zunächst vollständig beladen, da sich die Energieniveaus der QPe oberhalb des Fermi-niveaus für Löcher befinden (Abbildung 4.8(c)). Wird die Spannung zurück auf den Ausgangswert V_m

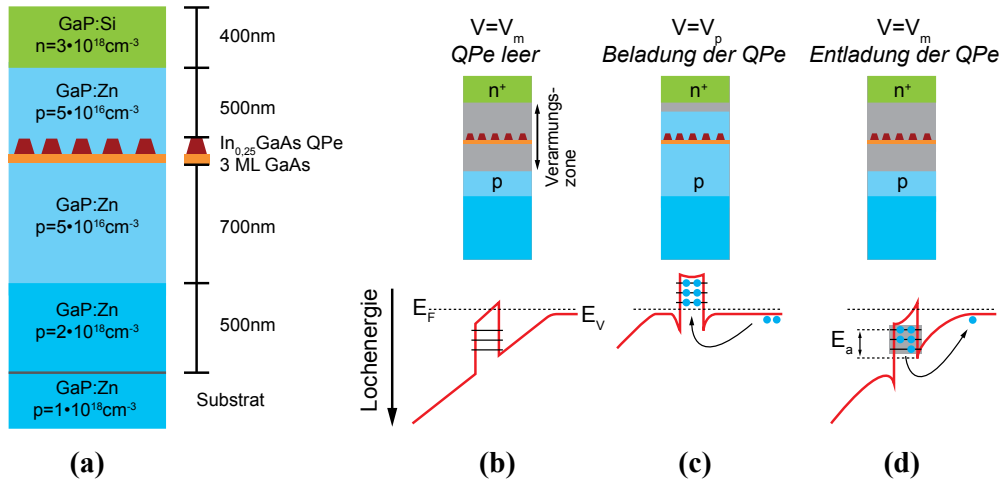


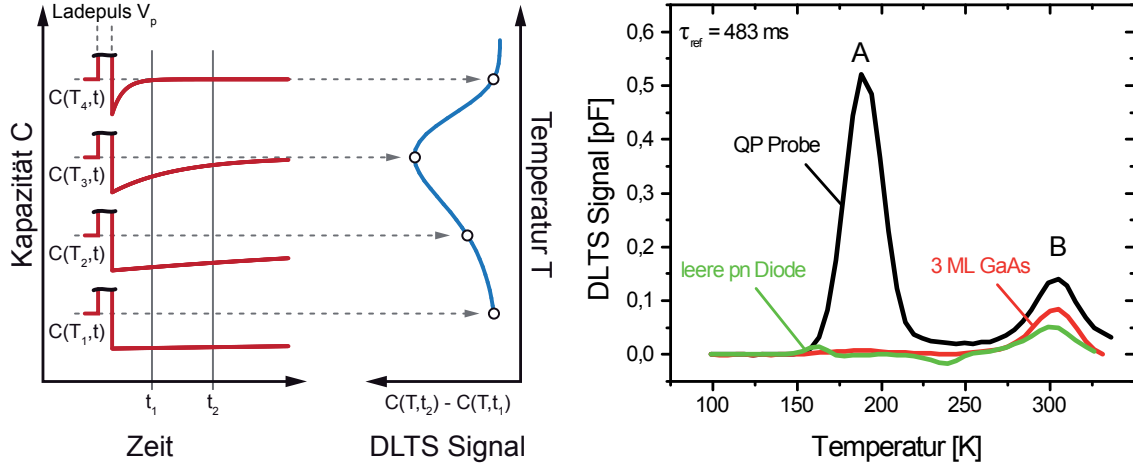
Abbildung 4.8 – (a) Probenstruktur der pn^+ -Diode mit eingebetteten $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ QPen. (b) Gleichgewichtszustand, (c) Be- und (d) Entladevorgang während einer DLTS-Messung.

gestellt, befinden sich die Energieniveaus der QPe wieder unterhalb des Fermienergie, und die QPe werden entladen (Abbildung 4.8(d)). Der Entladevorgang der QPe geht mit einer Änderung der Kapazität C des pn^+ -Überganges einher. Da die Messung die thermischen Emissionsprozesse von Löchern aus allen Energieniveaus der QPe erfasst, und die QPe zudem einer statistischen Größenverteilung unterliegen, ist der Abfall der gemessenen Kapazitätstransienten nicht monoexponentiell. Es werden daher mehrere Transienten bei verschiedenen Temperaturen aufgenommen und im Ratenfensterverfahren ausgewertet (Abbildung 4.9(a)). Das DLTS-Signal bei einer bestimmten Temperatur T und einem Zeitfenster $t_2 - t_1$ ist dann

$$S(T, t_1, t_2) = C(T, t_2) - C(T, t_1) \quad (4.2)$$

$$= C_0 \left[\exp \left(-\frac{t_2}{\tau(T)} \right) - \exp \left(-\frac{t_1}{\tau(T)} \right) \right], \quad (4.3)$$

mit C_0 der Kapazität des pn^+ -Überganges mit voll beladenen QPen und der thermischen Emissionszeitkonstanten τ . Das DLTS-Signal für ein festes Zeitfenster aufgetragen über die Temperatur ergibt das DLTS-Spektrum. Durch Ableitung von Gleichung (4.3) ergibt sich, dass das Maximum des DLTS-Spektrums bei der Temperatur T_0



(a) Schematische Darstellung eines DLTS-Spektrums für das Zeitfenster $t_2 - t_1$. (b) DLTS-Spektren der pn^+ -Diode mit eingebetteten $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ QPen und der beiden Referenzproben ohne QPe für $\tau_{ref} = 483$ ms, $V_m = 4$ V in Sperrrichtung und $V_p = 0$ V.

Abbildung 4.9

liegt, für die

$$\tau(T_0) = \tau_{ref} = \frac{t_2 - t_1}{\ln(t_2/t_1)}. \quad (4.4)$$

τ_{ref} wird als Referenzzeitkonstante des Zeitfensters definiert. Das DLTS-Spektrum einer Probe mit einer Schicht $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ QPe ist in Abbildung 4.9(b) für eine Referenzzeitkonstante von $\tau_{ref} = 483$ ms aufgetragen. Die Messspannung betrug $V_m = 4$ V in Sperrrichtung, der Ladepuls $V_p = 0$ V. Neben der Probe mit QPen wurden zwei Referenzproben vermessen: Eine Probe, die nur die 3 ML GaAs Zwischenschicht ohne $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ QPe enthält, und eine GaP pn^+ -Diode ohne Zwischenschicht und QPe. Das Spektrum der QP-Probe hat ein deutliches Maximum (A) bei $T = 190$ K, welches in den Spektren der Referenzproben fehlt. Dieses Signal kann daher der Emission von Löchern aus den QPen zugeordnet werden. Alle drei Spektren haben ein kleineres Maximum (B) um 300 K, welches folglich einer Störstelle oder einem Defekt im GaP Volumenmaterial zuzuordnen ist.

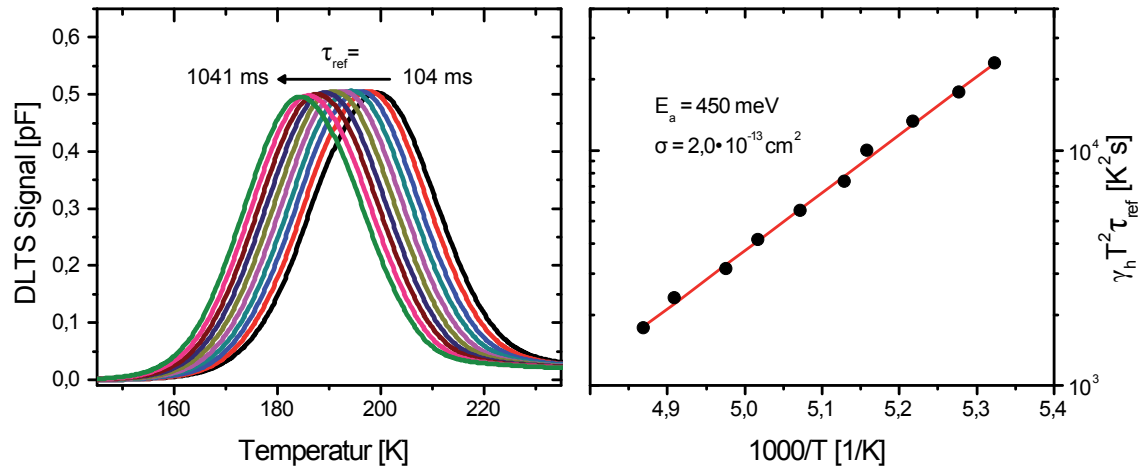
Die Referenzzeitkonstante τ_{ref} ist gleich dem Kehrwert der thermischen Emissionsrate e_h (Gleichung (4.1)) bei $T = T_0$, und damit gleich der Speicherzeit τ_s bei T_0 . Eine Auswertung der Kapazitätstransienten mit verschiedenen Referenzzeitkonstanten ergibt eine Schar von DLTS-Spektren, die für das den $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ QPen zugeord-

nete Signal in Abbildung 4.10(a) gezeigt sind. Aus den Maxima dieser Spektrenschar erhält man einen Satz an Paaren (τ_{ref}^i, T_0^i) . Nach Umformung von Gleichung (4.1) zu

$$\ln(T^2 \tau_{ref} \gamma_h) = \frac{E_a^h}{k_B T} - \ln(\sigma_h) \quad (4.5)$$

und Auftragung von $\ln((T_0^i)^2 \tau_{ref}^i \gamma_h)$ gegen T^{-1} erhält man den Arrheniusgraphen aus Abbildung 4.10(b). Aus einem linearen Fit an die Daten erhält man die Aktivierungsenergie E_a^h als Steigung und den Einfangquerschnitt σ_h aus dem y-Achsen Abschnitt des Graphen. Für die hier untersuchten $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ QPe in GaP beträgt die Loch-Aktivierungsenergie $E_a^h = (450 \pm 20)$ meV, und der Loch-Einfangquerschnitt $\sigma_h = 2 \cdot 10^{-13} \text{ cm}^2$ mit einem Fehler von 0,6 Größenordnungen. Die mittlere Speicherzeit bei Raumtemperatur lässt sich aus diesen Werten nach Gleichung (4.1) zu $\tau_s(300 \text{ K}) = 3 \mu\text{s}$ mit einem Fehler von 0,2 Größenordnungen abschätzen.

Es ist zu beachten, dass die hier gemessene Aktivierungsenergie über sämtliche Lochzustände in den QPen mittelt, da die QPe während der Messung komplett be- bzw. entladen werden. Werden Ladepuls V_p und Messspannung V_m so gewählt, dass die QPe nur mit jeweils sehr wenigen Löcher be- und entladen werden, können die Aktivierungsenergien der verschiedenen Lochzustände bestimmt werden. Diese verfeinerte Messmethode wird ladungsselektive DLTS genannt [92, 97]. In dem Fall der QPe in GaP kann die ladungsselektive DLTS nicht durchgeführt werden, da die Ionisierungsenergien der n- (Si) und p- (Zn) Dotanten in GaP sehr hoch sind. Sie betragen 85 meV für Silizium und 70 meV für Zink [98]. Das führt zu einer Änderung der freien Ladungsträgerdichte während der temperaturabhängigen DLTS-Messungen. Die Detektion einer sehr kleinen Anzahl von Ladungsträgern, wie bei der ladungsselektiven DLTS nötig, ist dadurch stark erschwert. Der Lochgrundzustand in $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPen hat daher eine größere Aktivierungs- bzw. Lokalisierungsenergie als die hier gemessenen 450 meV. Acht-Band $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ Simulationen von $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/3 \text{ ML GaAs}/\text{GaP}$ QPen ergeben einen Wert von 552 meV für die Lokalisierungsenergie des Schwerlochgrundzustandes. Für die Simulation wurde von den Ergebnissen der Querschnitts-STM Messungen in Kapitel 4.4 ausgehend, ein QP mit der Form eines Pyramidenstumpfes und einer Höhe von 11 ML angenommen. Eine Differenz von 102 meV zwischen der berechneten Grundzustandsenergie und der gemessenen mittleren Aktivierungsenergie ist ein realistischer Wert. In anderen QP-Systemen bewegt sich die gemessene Differenz zwischen 50 meV in $\text{In}_{0,8}\text{Ga}_{0,2}\text{As}/\text{GaAs}$



(a) DLTS-Spektren des den $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ QPen zugeordneten Maximums A aus Abbildung 4.9(b) für τ_{ref} zwischen 104 ms und 1041 ms. (b) Die Maximumpositionen der Spektren aus (a) aufgetragen als Arrheniusgraph zur Bestimmung von Aktivierungsenergie E_a^h und Einfangquerschnitt σ_h .

Abbildung 4.10

QPen [97] und 110 meV [97] bzw. 143 meV [99] in GaSb/GaAs QPen.

4.8 Zusammenfassung

Um die Bildung von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ QPen auf GaP(001) im Stranski-Krastanow Modus auszulösen, muss die Oberflächenenergie und -diffusion des Substrates unter MOVPE Bedingungen modifiziert werden. Dies kann durch Herstellung eines Pseudosubstrates geschehen, bei dem die Oberfläche des GaP Substrates mit einer wenige Monolagen dünnen GaAs Schicht bedeckt ist. Größen und Dichten von $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ QPen auf diesem Pseudosubstrat können über die nominelle $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Bedeckung gesteuert werden. Sehr hohe QP-Dichten bis zu $2,9 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ sind erreichbar. Vergrabene $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe besitzen die Form von Pyramidenstümpfen, ihre durchschnittliche Höhe beträgt 3,0 nm und die durchschnittliche Basislänge 12 nm. Die Lumineszenz vergrabener $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Schichten in GaP ist direkt mit ihrer strukturellen Beschaffenheit verknüpft, QP-Lumineszenz wird um 1,8 eV bei 5 K detektiert. Die mittlere Loch-Aktivierungsenergie in $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPen beträgt 450 meV, woraus eine mittlere Speicherzeit von 3 μs bei Raumtemperatur abgeschätzt werden kann.

5 Erhöhung des Indiumgehaltes der $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPe

Ein Weg zur Erhöhung der Speicherzeit in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen ist eine Steigerung des Indiumgehaltes x , was zu einem tieferen Lokalisationspotential für Löcher in den QPen führt, siehe Abbildung 2.1(b). Aus struktureller und epitaktischer Sicht ist dabei zu bedenken, dass mit steigendem Indiumgehalt auch die – auf GaP ohnehin schon sehr hohe – Verspannung der $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Schicht zunimmt, was die Bildung von Gitterversetzungen wahrscheinlicher werden lässt. Der Indiumgehalt wurde daher zunächst von 25 % auf 50 % gesteigert. Die Gitterfehlانpassung beträgt in diesem Fall $f = 6,9\%$, vergleichbar zu InAs/GaAs ($f = 6,7\%$). Durch die ebenfalls kompressiv verspannte GaAs Zwischenschicht ($f = 3,6\%$) unterhalb der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ QPe wird die Gesamtverspannung der Struktur zusätzlich erhöht. Um die Gesamtverspannung möglichst gering zu halten, wird daher die Dicke der GaAs Zwischenschicht für das Wachstum von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen minimiert (Kapitel 5.1). Anschließend wird in Kapitel 5.2 der Einfluss der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung auf die QP-Bildung auf diesem optimierten GaAs/GaP Pseudosubstrat untersucht.

5.1 Optimierung der Dicke der GaAs Zwischenschicht

In Abbildung 5.1 sind AFM Aufnahmen von freistehenden $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Quantenpunkten auf einem GaAs/GaP Pseudosubstrat gezeigt. Die $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung beträgt jeweils 1,3 ML. Die Substrattemperatur betrug $T_{\text{gr}} = 500^\circ\text{C}$, die Wachstumsrate $g_r = 0,5 \text{ ML s}^{-1}$ und das V/III Verhältnis 4,5. Wachstumsrate und V/III Verhältnis der GaAs Zwischenschicht betrugen $0,25 \text{ ML s}^{-1}$ bzw. 17. Die Dicke der GaAs Zwischenschicht wurde von den für die $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe verwendeten 3,0 ML GaAs auf 2,2 ML und 1,2 ML reduziert, was Auswirkung auf die Dichte und

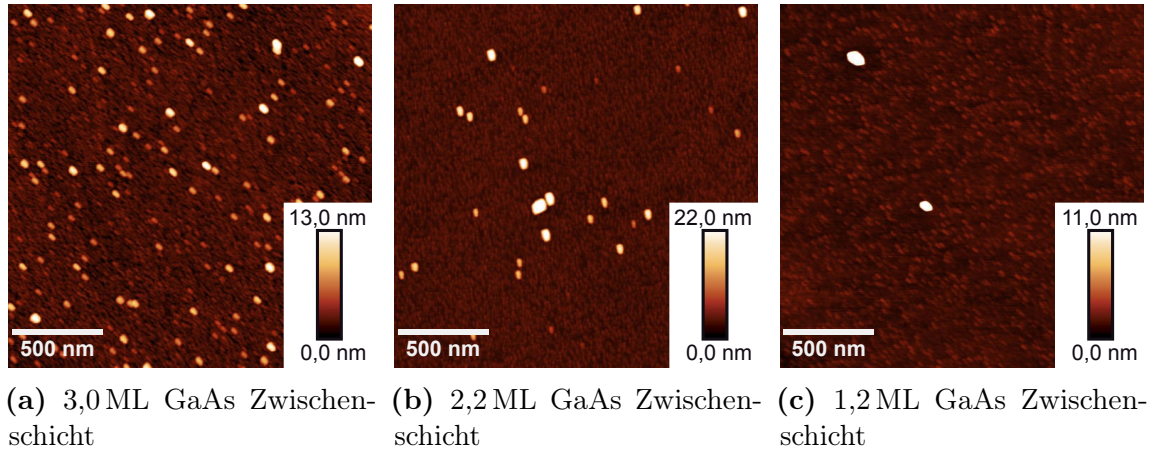


Abbildung 5.1 – AFM Aufnahmen von freistehenden 1,3 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ QPen auf einem GaAs/GaP Pseudosubstrat mit variierender Dicke der GaAs Zwischenschicht.

Größe von QPen und Defekten hat. Die Entwicklung der Dichte und Höhe von Defekten bzw. von QPen mit der Zwischenschichtdicke ist in Abbildung 5.2 aufgetragen. Für eine Zwischenschichtdicke von 3,0 ML GaAs bilden sich neben QPen deutlich größere Inseln, ähnlich zu den Defekten in Abbildung 4.2(f) für $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe mit Bedeckungen $\geq 2,0$ ML $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$. Die Defektdichte beträgt $5 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$, die durchschnittliche Höhe und Breite eines Defektes $(7 \pm 2) \text{ nm}$ bzw. $(51 \pm 4) \text{ nm}$. Durch Reduzierung der Zwischenschichtdicke auf 2,2 ML und 1,2 ML GaAs verringert sich die Defektdichte auf $6 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$ bzw. $8 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2}$. Andererseits nimmt die Größe der Defekte zu. Die durchschnittliche Defekthöhe steigt auf $(21 \pm 6) \text{ nm}$ bzw. $(24 \pm 7) \text{ nm}$, die durchschnittliche Defektbreite auf $(57 \pm 15) \text{ nm}$ bzw. $(76 \pm 13) \text{ nm}$. Diese Werte sind vergleichbar mit denen der relaxierten Inseln, die $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Schichten bei Überschreiten einer kritischen Schichtdicke d_{kr}^V bilden, wenn die $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Schichten ohne GaAs Zwischenschicht direkt auf GaP abgeschieden werden, siehe Abbildungen 4.1(d) bis 4.1(f). Das könnte darauf hindeuten, dass sich die Art der Defektbildung mit Reduktion der GaAs Zwischenschicht ändert. Während die Defektgröße bei einer Zwischenschichtdicke von 3 ML GaAs auf eine zu starke Reifung der QPe schließen lässt, was zur Bildung von relaxierten Inseln führt, passen die großen Inseln bei einer Zwischenschichtdicke von 1,2 ML GaAs eher zur Bildung von Versetzungen in einer zweidimensionalen Schicht, an denen sich anschließend Material anlagert.

Die Dichte der Quantenpunkte bleibt bei Reduzierung der GaAs Zwischenschichtdicke von 3,0 ML auf 2,2 ML zunächst konstant bei $1,9 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, und geht bei weiterer Reduzierung der Zwischenschichtdicke auf 1,2 ML GaAs auf $5,7 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ zurück.

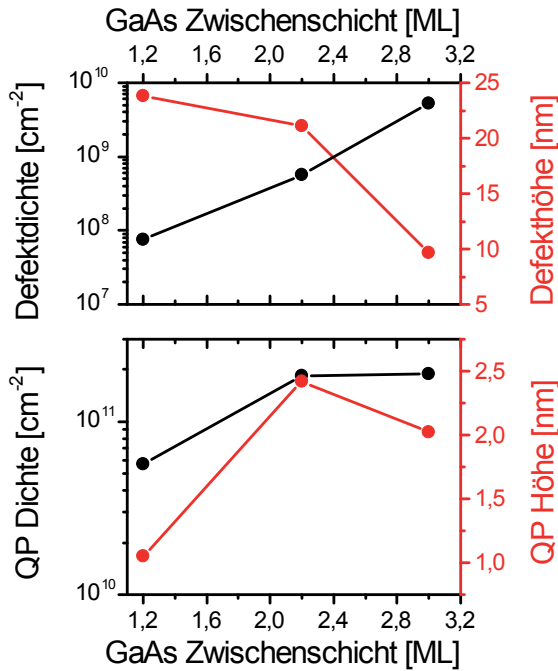


Abbildung 5.2 – Dichten und Höhen von Defekten (oben) und QPen (unten) auf den AFM Aufnahmen in Abbildung 5.1 von 1,3 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ auf einem GaAs/GaP Pseudosubstrat mit variierender Dicke der GaAs Zwischenschicht.

Bemerkenswert ist die Entwicklung der QP-Größe. So steigt die durchschnittliche QP-Höhe bei Reduzierung der GaAs Zwischenschichtdicke von 3,0 ML auf 2,2 ML zunächst von $(2,0 \pm 0,2)$ nm auf $(2,4 \pm 0,2)$ nm leicht an, fällt dann aber bei weiterer Reduzierung der Zwischenschichtdicke auf 1,2 ML GaAs deutlich auf $(1,1 \pm 0,2)$ nm ab. Aus der Überlegung heraus, dass einerseits die GaAs Zwischenschicht so dünn wie möglich sein sollte, um die Gesamtverspannung der Struktur gering zu halten, andererseits große QPe höhere Lokalisationsenergien für Ladungsträger – und damit z. B. längere Speicherzeiten – bedeuten, wurde die Dicke der Zwischenschicht für alle weiteren Experimente zu 2,2 ML GaAs gewählt.

5.2 $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenpunkte: Kritische Schichtdicke, Dichte und Größe

Analog zu den Ergebnissen der Untersuchungen an $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenpunkten in Kapitel 4.3, ist auch für $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe die Dichte und Größe der QPe eine Funktion der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung. Abbildung 5.3 zeigt AFM Aufnahmen an freistehenden $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Schichten mit nominellen Bedeckungen von 0,42 ML bis 1,14 ML auf einem 2,2 ML GaAs/GaP Pseudosubstrat. Nach der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Abscheidung wurde das Substrat ohne Gruppe V Stabilisierung ab-

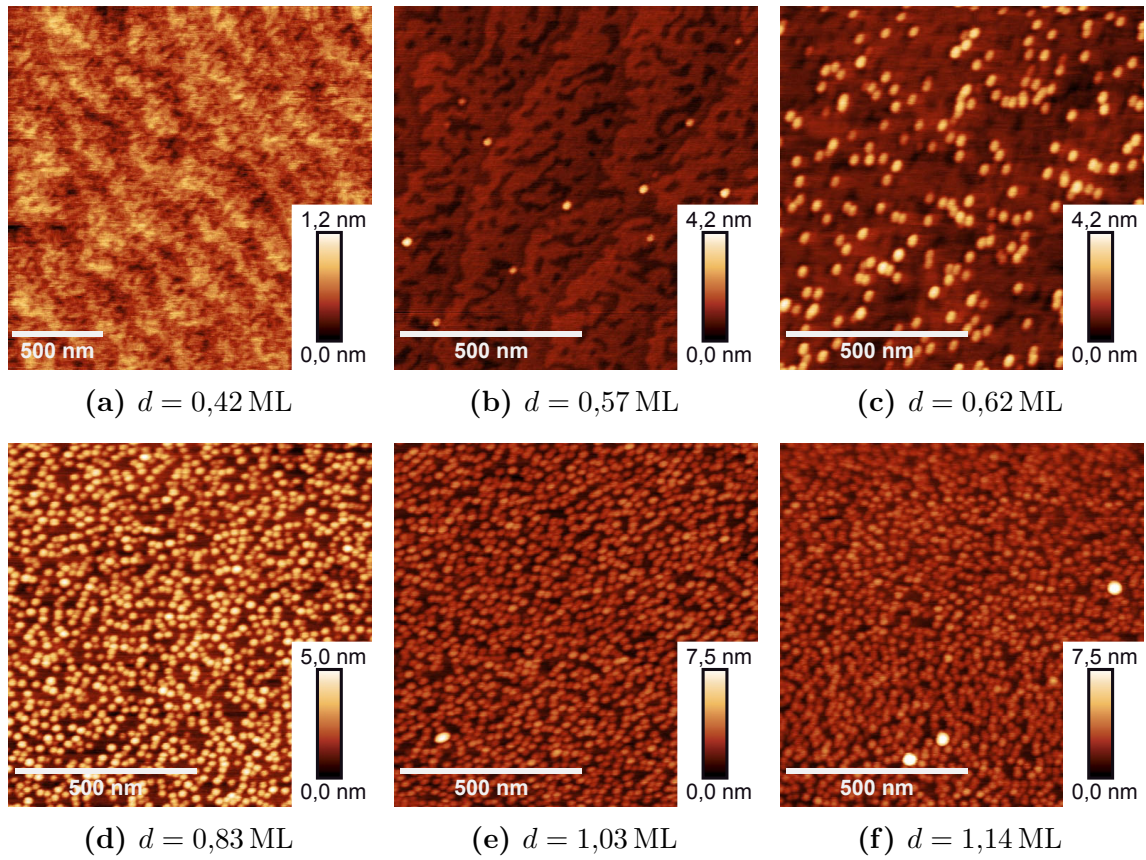


Abbildung 5.3 – AFM Aufnahmen von unbedeckten $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Schichten der Dicke d auf 2,2 ML GaAs/GaP ($T_{\text{gr}} = 500^\circ\text{C}$, $g_{\text{r}} = 0,5 \text{ ML s}^{-1}$, $V/\text{III} = 4,5$)

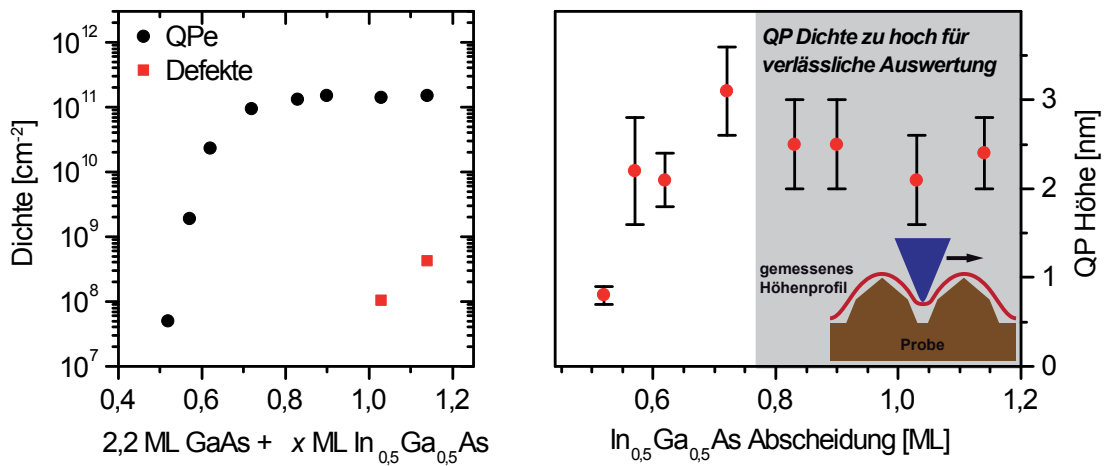


Abbildung 5.4

geköhlt ($t(500^\circ\text{C} - 400^\circ\text{C}) \approx 60\text{ s}$). Die Entwicklung des Wachstumsmodus der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Schichten und der QPe ist identisch zu $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$, findet jedoch in einem nur etwa halb so großen Schichtdickenfenster statt. Die Bildung von QPen setzt bereits bei einer $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung von 0,52 ML mit einer QP-Dichte von $5 \cdot 10^7\text{ cm}^{-2}$ ein. Mit zunehmender $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung steigt die QP-Dichte rasch bis zu einem Maximalwert von $1,5 \cdot 10^{11}\text{ cm}^{-2}$ für 0,9 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ (Abbildung 5.4(a)). Eine weitere Erhöhung der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung führt zur Bildung von Defekten bei quasi konstant bleibender QP-Dichte. Die Entwicklung der durchschnittlichen QP-Höhe ist in Abbildung 5.4(b) über die $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung aufgetragen. Sie steigt mit der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung von $(0,8 \pm 0,1)\text{ nm}$ für 0,52 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ auf $(3,1 \pm 0,5)\text{ nm}$ für 0,72 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$. Bei weiter zunehmender Bedeckung scheint sich – wie bei den $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPen – die QP-Höhe wieder zu verringern, wobei auch hier berücksichtigt werden muss, dass bei sehr hohen Dichten die AFM Messung wahrscheinlich zu geringe Werte für die QP-Höhe liefert. Als Abschätzung für die QP-Höhe auch bei höheren Dichten wird daher der Wert von $(3,1 \pm 0,5)\text{ nm}$ für 0,72 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ angenommen. Der durchschnittliche Basisdurchmesser der QPe beträgt bei dieser $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung $(21 \pm 2)\text{ nm}$. Das sind exakt dieselben Werte, wie für die $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe in Kapitel 4.3. Für die Größe vergrabener $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe können daher ebenfalls die per Querschnitts-STM für $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe ermittelten Werte von 3,0 nm (10 ML) und 12 nm für die QP-Höhe bzw. Basislänge angenommen werden.

5.3 Querschnitts- Transmissionselektronenmikroskopie an vergrabenen $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen

Abbildung 5.5 zeigt eine transmissionselektronenmikroskopische Aufnahme von vergrabenen $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ QPen auf 2,2 ML GaAs/GaP . Die $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung beträgt 0,85 ML, die Wachstumsunterbrechung 200 s. Zu sehen ist der Querschnitt der Probe, aufgenommen unter Dunkelfeldbedingungen des $\{200\}$ Reflexes in Wachstumsrichtung. Die detektierte Intensität entspricht unter diesen Bedingungen einem Materialkontrast. GaP erscheint in der Aufnahme hell, $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ dunkel. In der Mitte der Aufnahme sind die QPe deutlich als dunkle Punkte zu erkennen. Um

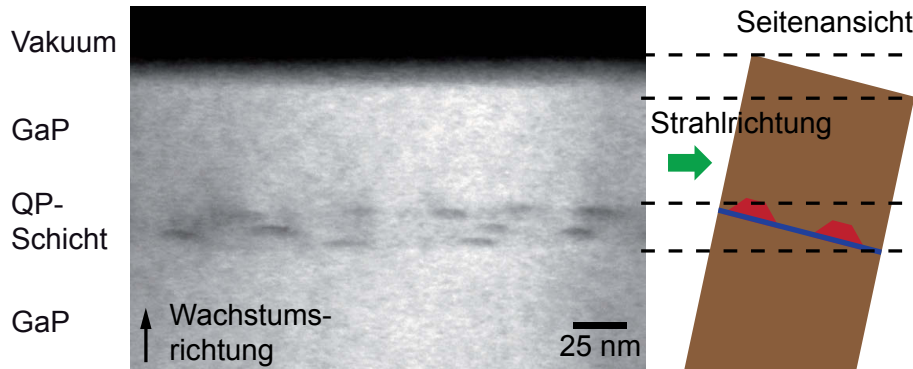


Abbildung 5.5 – Querschnitts-TEM Dunkelfeldaufnahme des $\{200\}$ Reflexes vergrabener 0,85 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/2,2$ ML GaAs/GaP QPe, GRI = 200 s. Die QPe sind als dunkle Punkte zu erkennen. Die Probe wurde um $13,25^\circ$ relativ zum Elektronenstrahl verkippt, um ein Überlappen der QPe in der Abbildung zu vermeiden.

ein Überlappen von hintereinander liegenden QPen in der Abbildung zu vermeiden, wurde die Probe um $13,25^\circ$ relativ zum Elektronenstrahl verkippt. Die in der TEM Aufnahme übereinander liegenden dunklen Punkte entsprechen also QPen, die sich in derselben Wachstumsebene in der Tiefe verteilen. Aus der Aufnahme lässt sich die QP-Dichte auf ca. $1 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ abschätzen, was gut mit dem per AFM an freistehenden QPen bestimmten Wert von $1,3 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ übereinstimmt.

Mittels auf Phasenkontrast beruhender, hochauflösender TEM können Form und Größe der QPe ähnlich genau bestimmt werden wie mit Querschnitts-STM. Abbildung 5.6 zeigt eine hochauflösende TEM Aufnahme eines einzelnen $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPes. Die Aufnahme wurde in der $\langle 100 \rangle$ Zonenachse aufgenommen und mit einer Fourierfilterung des (020) Koeffizienten kombiniert. Die resultierende Intensitätsverteilung entspricht einem Materialkontrast, wodurch der QP als dunkelroter Bereich in der Mitte der Abbildung zu erkennen ist. Die GaAs Zwischenschicht lässt sich ebenfalls als rote Linie erahnen. Eine genaue Aussage zum Indium- und Arsengehalt des QPes lässt sich nicht treffen, da ein Intensitätswert in der Abbildung mehreren verschiedenen Materialzusammensetzungen zugeordnet werden könnte. Die Form des $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ QPes ist die eines Pyramidenstumpfes, wie sie schon für die $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe durch Querschnitts-STM ermittelt wurde (Kapitel 4.4). Höhe und Basislänge dieses $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ QPes betragen 3,5 nm bzw. 19,5 nm. Für eine statistische Auswertung der QP-Abmessungen reichten die bei Abschluss dieser Arbeit vorliegenden Daten noch nicht aus. Ein direkter Vergleich mit den per STM ermittelten Werten für $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe von 3,0 nm bzw. 12 nm ist

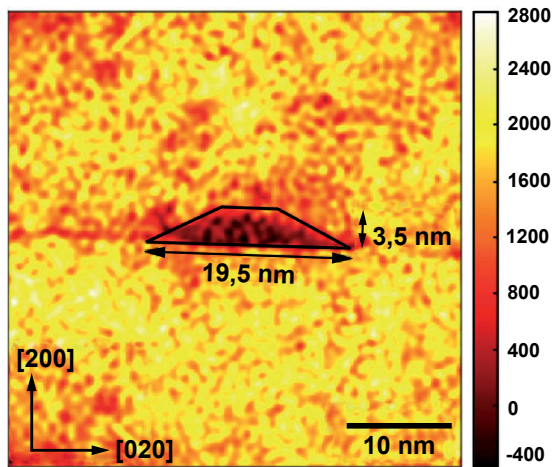


Abbildung 5.6 – Hochauflösende Querschnitts-TEM Aufnahme eines einzelnen $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPes. Die Abbildung zeigt den Realteil des Fourier-gefilterten (020) Reflexes in beliebigen Einheiten. Die Intensitätsverteilung entspricht einem Materialkontrast. (Bild: Sören Selve, TU Berlin)

daher nicht möglich. Es lässt sich jedoch festhalten, dass die Größen vergrabener $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ und $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe im selben Bereich liegen, wie schon anhand der AFM Messungen an freistehenden QPen zu erwarten war.

5.4 Entwicklung der Quantenpunktlumineszenz mit der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung

Die in Kapitel 5.2 gezeigte Zunahme der QP-Dichte und -Größe mit der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung spiegelt sich in den Photolumineszenzspektren vergrabener $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Schichten auf 2,2 ML GaAs/GaP in Abbildung 5.7 wider. Die Wachstumsbedingungen der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Schichten sind identisch zu denen der in Abbildung 5.3 gezeigten AFM Proben. Nach einer Wachstumsunterbrechung von 200 s wurden die $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Schichten mit einer zusätzlichen Schicht von 1,6 ML GaAs überwachsen. Der Einfluss dieser zusätzlichen GaAs Schicht wird in Kapitel 7.1 diskutiert, hier dient sie zur Erhöhung der Lumineszenzintensität. Die Entwicklung der integrierten Lumineszenz und der spektralen Position des Lumineszenzmaximums ist in Abbildung 5.8 aufgetragen.

Die GaAs Zwischenschicht zeigt Lumineszenz um 673 nm (1,84 eV), die mit der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung bis 0,57 ML kontinuierlich zu 693 nm (1,79 eV) rotverschiebt und dann verschwindet. Ab 0,46 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ entsteht eine weitere niederenergetische Lumineszenzbande bei 739 nm (1,68 eV), die bei weiterer Erhöhung der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung rasch an Intensität gewinnt und deutlich rotverschiebt. Die Entstehung der niederenergetischen Lumineszenzbande bei 0,46 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$

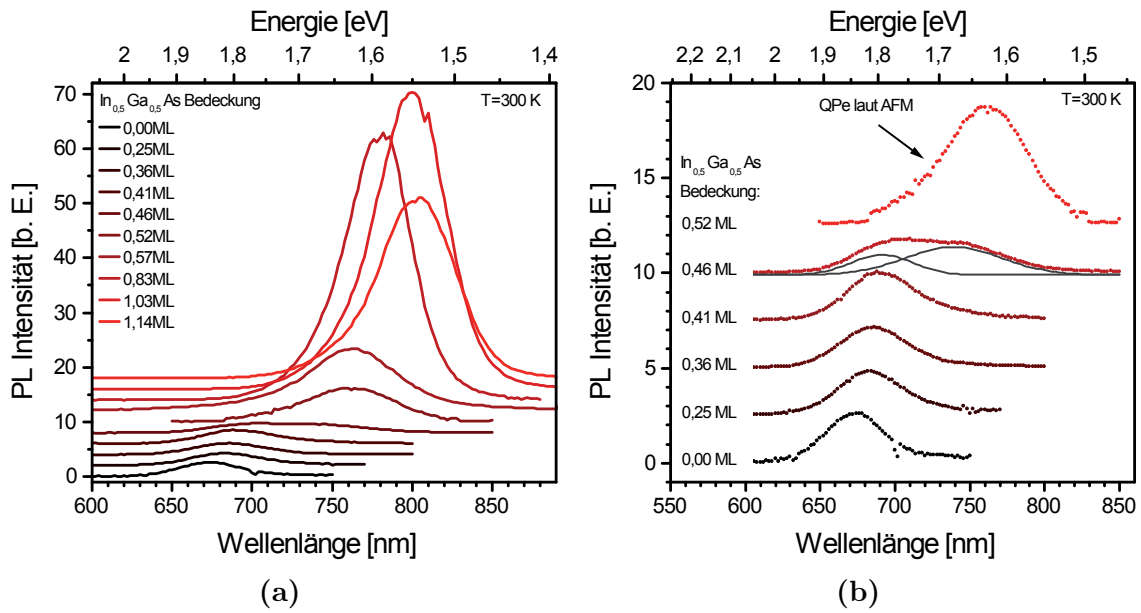
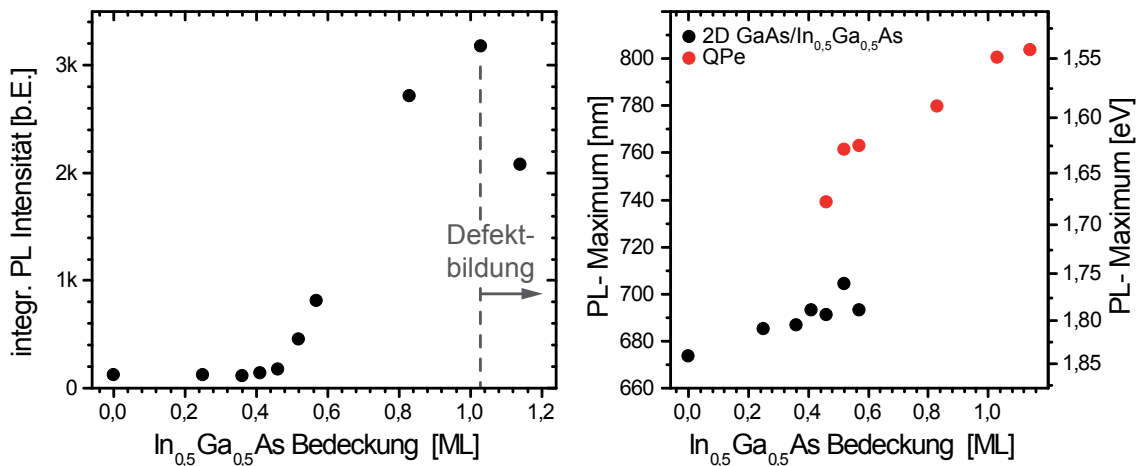


Abbildung 5.7 – PL Spektren bei Raumtemperatur vergrabener QPe mit variierender $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung auf $2,2\text{ ML GaAs/GaP}$. Die QPe wurden nach einer Wachstumsunterbrechung von 200 s mit $1,6\text{ ML GaAs}$ überwachsen, um die Lumineszenzintensität zu erhöhen, siehe Kapitel 7.1. Die Spektren sind zur besseren Übersichtlichkeit vertikal gegeneinander verschoben. (b) zeigt eine Vergrößerung der Spektren aus (a) für niedrige $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckungen nahe des 2D-3D Überganges.



(a) Entwicklung der integrierten PL Intensität mit der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung (b) Spektrale Position der Lumineszenzmaxima über der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung

Abbildung 5.8

passt gut mit dem per AFM bestimmten Einsetzen der QP-Bildung bei 0,52 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ zusammen. Diese Lumineszenzbande kann daher den $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ QPen zugeordnet werden. Die Rotverschiebung der QP-Lumineszenz zu 804 nm (1,54 eV) mit Erhöhung der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung auf 1,14 ML spiegelt die Größenzunahme der QPe wider, die per AFM beobachtet wurde. Der starke Anstieg der integrierten Lumineszenz entspricht der Erhöhung der QP-Dichte, ebenfalls per AFM beobachtet. Die Abnahme der integrierten Lumineszenz für $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckungen $> 1,03$ ML kann der strahlungslosen Ladungsträgerrekombination an Defekten zugeschrieben werden, deren Bildung laut AFM Messungen ab genau dieser $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung auftritt.

5.5 Zusammenfassung und Vergleich mit $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPen

Zum Wachstum von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen wurde das GaAs/GaP Pseudosubstrat optimiert, um möglichst große QPe bei minimaler Defektdichte herzustellen. Die Dicke der GaAs Zwischenschicht wurde daher von 3,0 ML auf 2,2 ML reduziert. Die QP-Dichte kann über einen weiten Bereich von $5 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2}$ bis $1,5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ über die nominelle $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung eingestellt werden. Die QP-Größe und Form vergrabener $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe sind identisch zu $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPen. Analog zu den $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPen in Kapitel 4.5, kann auch für die $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe die per AFM bestimmte Struktur direkt mit den Lumineszenzeigenschaften der QPe verknüpft werden. Ergebnisse von Speicherzeitmessungen an $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen lagen bei Abschluss dieser Arbeit nicht vor.

Bei einem Vergleich der Entwicklung des QP-Wachstums von $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ und $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Schichten auf einem GaAs/GaP Pseudosubstrat fällt auf, dass markante Stufen in der QP-Entwicklung für $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ bei etwa doppelt so hohen nominellen Bedeckungen erreicht werden, wie für $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$. So findet der Übergang vom zweidimensionalen Schicht- zum Inselwachstum für $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ bei $\approx 0,5$ ML, und für $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ bei ≈ 1 ML statt, was jeweils 0,25 ML In-As entspricht. Dasselbe gilt für das Entstehen von Defekten (> 1 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ bzw. > 2 ML $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$) und Erreichen der maximalen QP-Dichten (0,9 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ bzw. ≈ 2 ML $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$). Diese Beobachtung deckt sich mit dem Ergebnis der Querschnitts-STM Messungen an $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPen in Kapitel

4.4, denen zufolge sich das Indium vollständig in den QPen sammelt, und die Gesamtmenge an Indium in der Struktur sehr genau der nominell abgeschiedenen entspricht. Es liegt daher die Vermutung nahe, dass die Menge an absolut abgeschiedenem Indium für das QP-Wachstum maßgeblich ist. Da Indiumatome in der Regel eine größere Diffusionslänge an der Oberfläche aufweisen als Galliumatome [80, 100], ist dies eine Bestätigung der These aus Kapitel 4.6, dass die Adatomdiffusion der entscheidende Parameter für den Wachstumsmodus von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ QPen auf GaP ist.

Da auch die Größen von $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ und $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen gleich sind, stellt sich die Frage, ob eine Erhöhung des nominellen Indiumgehaltes der abgeschiedenen $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Schicht auch zu einer signifikanten Erhöhung des Indiumgehaltes der QPe führt. In Kapitel 6.2 werden temperaturabhängige Lumineszenzmessungen an $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ und $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen vorgestellt, die zeigen, dass die Lumineszenzeigenschaften von $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ und $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen weitestgehend identisch sind, einschließlich der gemessenen Übergangsenergien. Aufgrund der besonderen Struktur des Leitungsbandes von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen, die in Kapitel 6.1 diskutiert wird, lässt sich daraus jedoch nicht eindeutig auf den Indiumgehalt der QPe rückschließen. Unklar in diesem Zusammenhang bliebe auch der Verbleib des im Falle der $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe mehr abgeschiedenen GaAs. Eine Klärung dieser Fragen können nur Querschnitts-STM Messungen an vergrabenen $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen und deren Vergleich mit den Messungen an $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPen in Kapitel 4.4 geben. Bei Abschluss dieser Arbeit lagen noch keine Ergebnisse zu $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen vor.

Eine systematische Untersuchung des Wachstums von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mit nominellem Indiumgehalt $x > 0,5$ wurde nicht durchgeführt. Es ist zu erwarten, dass die kritischen $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Bedeckungen für QP- und Defektbildung mit steigendem Indiumgehalt weiter abnehmen, wodurch ein kontrolliertes QP-Wachstum erschwert wird.

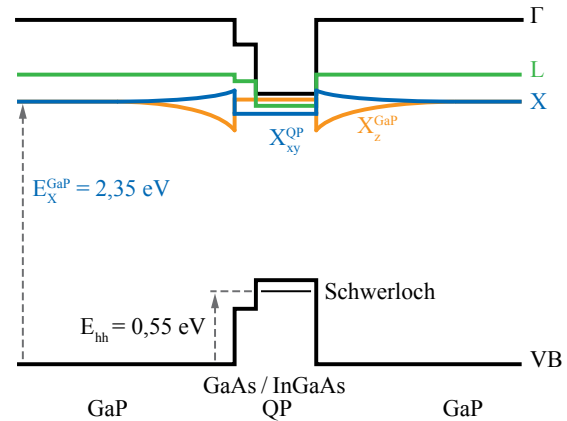
6 Elektronische Struktur von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenpunkten

6.1 Theoretisches Modell

$\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ist über die gesamte Kompositionsbandbreite hinweg ein Halbleiter mit einer direkten Energielücke am Γ -Punkt der Brioullinzone von $E^\Gamma = 1,52 \text{ eV}$ ($x = 0$) bzw. $E^\Gamma = 0,42 \text{ eV}$ ($x = 1$) [41]. Die aus der direkten Energielücke resultierende starke optische Rekombination von Exzitonen führte zu einer breiten Anwendung von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ basierten Materialien in der Optoelektronik. Eine Änderung der Atomabstände, wie sie z. B. durch die Gitterverzerrung beim pseudomorphen Wachstum von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ auf GaP verursacht wird, beeinflusst die elektronische Struktur. Aufgrund der sehr hohen Gitterfehlانpassung zwischen $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ und GaP zwischen $f = 3,6 \%$ ($x = 0$) und $f = 10 \%$ ($x = 1$), ist die Änderung der Bandstruktur gegenüber dem unverspannten Fall gravierend. Detaillierte Berechnungen der elektronischen Struktur von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}(001)$ QPen wurden von Robert [85] mit einer Kombination aus Acht-Band $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ und Tight-Binding Simulationen durchgeführt, deren Ergebnisse durch kürzlich veröffentlichte Sechs-Band $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ Rechnungen von Heidemann et al. [27] bestätigt werden. Die folgende Darstellung stützt sich im Wesentlichen auf diese beiden Arbeiten.

Die biaxiale Verzerrung in der Wachstumsebene und die uniaxiale Verzerrung entlang der Wachstumsrichtung führen dazu, dass die $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Leitungsbandminima am L- und Γ -Punkt zu höheren Energien schieben, während das X-Minimum energetisch abgesenkt wird. Das X-Minimum spaltet zusätzlich in einen tiefer liegenden X_{xy} - und einen höher liegenden X_z -Zustand auf. Für GaAs auf GaP liegt das X_{xy} -Minimum sogar unterhalb des Γ -Minimums, das GaAs hat also eine im $\mathbf{k}$ -Raum

Abbildung 6.1 – Schema der elektronischen Struktur von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenpunkten nach [85] mit GaAs Zwischenschicht. Eingezeichnet sind der allgemein akzeptierte Wert der indirekten Energielücke $E_X^{\text{GaP}} = 2,35 \text{ eV}$ von GaP bei 0 K [41], und die per Acht-Band $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ berechnete Grundzustandsenergie schwerer Löcher $E_{\text{hh}} = 0,55 \text{ eV}$ aus Kapitel 4.7.



indirekte Energielücke. Die vollständige Quantisierung in einem Quantenpunkt verstärkt diesen Effekt noch. In einem GaAs/GaP QP gleicher Größe wie die in dieser Arbeit untersuchten QPe, liegt der aus dem Γ -Punkt der Brioullinzone entwickelte elektronische Zustand laut den Berechnungen in [85] 320 meV über dem X_{xy} -artigen Zustand. Mit zunehmendem Indiumgehalt x nähern sich die aus den Γ -, L -, und X -Punkten der Brioullinzone entwickelten Zustände eines $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPes einander wieder an. Für $x > 50\%$ wird eine Absenkung des Γ -artigen Zustandes unter den X_{xy} -artigen vorausgesagt. Für die in dieser Arbeit betrachteten QPe kann daher davon ausgegangen werden, dass die Γ -, L -, und X -artigen Zustände energetisch sehr dicht beieinander liegen, wie schematisch in Abbildung 6.1 dargestellt. An dieser Stelle sei angemerkt, dass die Bezeichnung der elektronischen Zustände in einem Quantenpunkt als Γ , L , und X strenggenommen nicht korrekt ist, da in einem QP die Translationssymmetrie gebrochen ist und $\mathbf{k}$ keine geeignete Quantenzahl mehr darstellt. Die tatsächlichen elektronischen Zustände in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen sind daher als komplex gekoppelte Mischzustände anzunehmen.

Eine weitere Besonderheit von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen ist die Tatsache, dass das Matrixmaterial GaP eine indirekte Bandstruktur mit dem Leitungsbandminimum am X -Punkt der Brioullinzone besitzt. Energetisch liegt dieses Leitungsbandminimum X^{GaP} laut den Berechnungen von Robert [85] nur knapp über dem X_{xy}^{QP} -artigen Zustand in den $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen, was zu einem kleinen Einschlusspotential von Elektronen führt. Da nicht nur das Material im QP, sondern auch das Matrixmaterial in der Nähe des QPes eine Verzerrung aufgrund der Gitterfehlانpassung erfährt, muss auch eine Änderung der elektronischen Struktur des Matrixmaterials in der Umgebung des QPes berücksichtigt werden. Bereits 1999 berechneten Williamson et al. [32] für

InP/GaP QPe, dass das Leitungsbandminimum am X-Punkt der GaP Matrix an der Grenzfläche zum QP in einen tiefer liegenden X_z^{GaP} - und einen höher liegenden X_{xy}^{GaP} -Zustand aufspaltet, und sich an dieser Stelle ein Dreieckspotential bildet (Aufgrund der tensilen Verzerrung der GaP Matrix im Gegensatz zur kompressiven des QPe, ist in der GaP Matrix der X_z^{GaP} -Zustand der tiefere). Die Berechnungen für GaAs/GaP QPe [30] und $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPe [27, 85] bestätigen diesen Effekt. Es ist zu beachten, dass dieses Dreieckspotential nicht aufgrund der Coulombwechselwirkung zwischen Löchern und Elektronen entsteht, wie in klassischen TyP II Systemen, z. B. GaSb/GaAs [101], der Fall. Die Coulombwechselwirkung ist in den hier diskutierten Modellen nicht berücksichtigt.

Eine gewisse Uneinigkeit herrscht bezüglich der energetischen Lage des X_z^{GaP} -Zustandes in der Matrix relativ zum X_{xy}^{QP} -Zustand im QP. Robert et al. [30] berechnen für einen 3,3 nm hohen GaAs/GaP QP, dass die Elektronen im X_z^{GaP} Dreieckspotential der GaP Matrix lokalisieren, mit einer Lokalisierungsenergie von 119 meV unterhalb des X^{GaP} Minimums der unverspannten GaP Matrix abseits der QPe. In diesem Fall ist die elektronische Struktur sowohl im Orts- als auch im $\mathbf{k}$ -Raum indirekt, mit Elektronen im X_z^{GaP} Dreieckspotential der Matrix und Löchern im Quantenpunkt lokalisiert. Entsprechend schwache optische Rekombinationen sind zu erwarten. In zeitaufgelösten Photolumineszenzmessungen an $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}/\text{GaP}$ QPen bestimmen die Autoren lange Abklingzeiten von 1,2 μs [85], was für langsame indirekte Rekombinationen spricht (übliche Abklingzeiten für InAs/GaAs QPe liegen bei 1 ns [102]). Der Indiumgehalt der QPe hat laut Robert [85] einen vernachlässigbaren Effekt auf die Lage des X_{xy}^{QP} -Zustandes, sollte aber aufgrund der erhöhten Gitterfehlpassung zu einer weiteren Absenkung des X_z^{GaP} -Zustandes in der GaP Matrix führen.

Bei den Berechnungen von Heidemann et al. [27] liegt das X_{xy}^{QP} -artige Niveau eines $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}/\text{GaP}$ QPe von 3,1 nm Höhe dagegen unterhalb des X_z^{GaP} -Zustandes der GaP Matrix, wodurch die Elektronen im QP lokalisieren. In diesem Fall ist die elektronische Struktur zwar räumlich direkt, der indirekte $\mathbf{k}$ -Charakter des X_{xy}^{QP} -artigen Zustandes lässt jedoch auch für diesen Fall schwache optische Rekombinationen erwarten. Bestätigt wird dies durch die hohe Schwellstromdichte von 6,3 kA eines von den Autoren hergestellten $\text{In}_{0,3}\text{Ga}_{0,7}\text{As}/\text{GaP}$ QP-Lasers. Lasing konnte zudem nur bei tiefen Temperaturen bis 140 K und im gepulsten Betrieb erzielt werden.

Unabhängig von der genauen energetischen Lage der X_z^{GaP} - und X_{xy}^{QP} -Zustände

zueinander, haben die optischen Übergänge in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen für $x \leq 0,5$ also einen indirekten Charakter, der zu schwachen optischen Rekombinationen führt. Das Einschlusspotential für Elektronen ist zudem sehr klein.

6.2 Temperaturabhängige Lumineszenz von $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ und $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen

Abbildung 6.2 zeigt Kathodolumineszenzspektren bei Temperaturen von $T = 5\text{ K}$ bis 300 K von zwei Proben mit jeweils einer Schicht vergrabener $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ (Abb. 6.2(a)) bzw. $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ (Abb. 6.2(b)) QPe. Die nominelle Bedeckung beträgt $1,5\text{ ML}$ $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ auf $3,0\text{ ML}$ GaAs/GaP bzw. $1,25\text{ ML}$ $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ auf $2,2\text{ ML}$ GaAs/GaP , die Wachstumsunterbrechung jeweils 30 s . In beiden Fällen liegt das Maximum der QP-Lumineszenz um $1,75\text{ eV}$. Bei tiefen Temperaturen $< 40\text{ K}$ zeigen die Spektren beider Proben mehrere Maxima zwischen $2,1\text{ eV}$ und $2,3\text{ eV}$, die Donor-Akzeptor Paaren nahe der indirekten GaP Bandkante am X-Punkt ($E_{0,X}^{\text{GaP}} = 2,35\text{ eV}$) zuzuordnen sind [103]. Die Tieftemperaturspektren der Probe mit $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPen zeigen eine hochenergetische Schulter der QP-Lumineszenz mit zwei lokalen Maxima bei $1,92\text{ eV}$ und $1,95\text{ eV}$. Die Energien liegen im Bereich des Dubletts, dass für $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ Bedeckungen nahe des 2D-3D Überganges in Kapitel 4.5 gefunden wurde, und können daher der Benetzungsschicht oder QP-Nukleationskeimen zugeordnet werden. Dieses hochenergetische Dublett fehlt in den Spektren der Probe mit $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen, wahrscheinlich aufgrund der geringeren Gesamtbedeckung aus GaAs Zwischenschicht und $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$.

Die thermischen Aktivierungsenergien E_a lokalisierter Ladungsträger können abgeschätzt werden, indem die Entwicklung der Lumineszenzintensität mit der Temperatur T ausgewertet wird. In Abbildung 6.3 ist der natürliche Logarithmus der normierten integrierten Lumineszenzintensität I über $(k_B T)^{-1}$ aufgetragen. Die Datenpunkte können mit einer Arrheniusgleichung der Form

$$I = \frac{1}{1 + C_1 \exp\left(\frac{-E_{a1}}{k_B T}\right) + C_2 \exp\left(\frac{-E_{a2}}{k_B T}\right)} \quad (6.1)$$

mit zwei Aktivierungsenergien, entsprechend zwei thermisch aktivierten Emissionsprozessen, gut angepasst werden [104]. Die Vorfaktoren $C_{1,2}$ sind ein Maß für

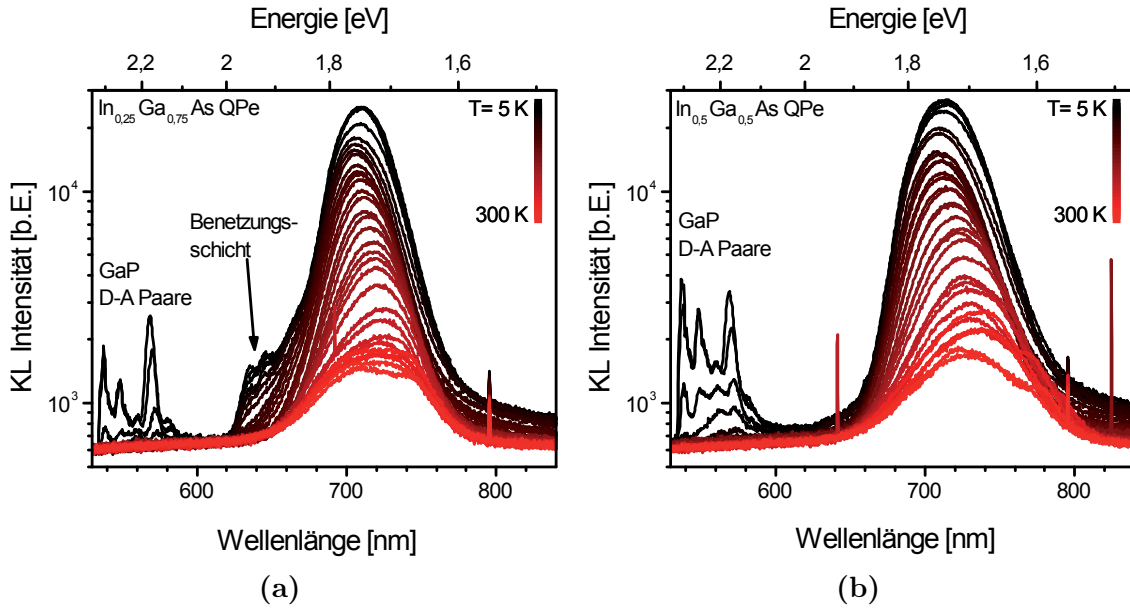


Abbildung 6.2 – KL Spektren bei Temperaturen von $T = 5\text{ K}$ bis 300 K von vergrabenen $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ (a) und $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ (b) QPen. $U = 7\text{ kV}$

die Effektivität, mit der thermisch aktivierte Ladungsträger nichtstrahlende Zustände besetzen. Für $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe betragen die Aktivierungsenergien $E_{a,1} = (7,3 \pm 0,5)\text{ meV}$ und $E_{a,2} = (71 \pm 5)\text{ meV}$, die zugehörigen Vorfaktoren $C_1 = 2,6 \pm 0,2$ und $C_2 = 207 \pm 58$. Die niedrigen Aktivierungsenergien und der hohe Vorfaktor C_2 spiegeln den starken Rückgang der integrierten Lumineszenzintensität mit steigender Temperatur wieder. Das Verhältnis der integrierten Intensitäten bei 5 K und 300 K beträgt $I(5\text{ K})/I(300\text{ K}) = 14,9$. Für die $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe ergibt sich ein fast identisches Bild mit leicht höheren Aktivierungsenergien von $E_{a,1} = (8,3 \pm 0,5)\text{ meV}$ und $E_{a,2} = (92 \pm 10)\text{ meV}$, und Vorfaktoren $C_1 = 3,4 \pm 0,3$ und $C_2 = 341 \pm 163$. Das Verhältnis $I(5\text{ K})/I(300\text{ K}) = 15,5$ ist fast identisch zu dem der $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe. Die Aktivierungsenergien sind deutlich kleiner als die mittels DLTS gemessene Loch-Aktivierungsenergie von 450 meV (Kapitel 4.7), und werden daher der thermischen Emission von Elektronen zugeordnet. Das in Kapitel 6.1 diskutierte Modell der elektronischen Struktur von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mit geringem Einschlusspotential für Elektronen und energetisch eng beieinander liegenden elektronischen Zuständen ist mit den gemessenen niedrigen Aktivierungsenergien im Einklang. (zum Vergleich: In ähnlichen Lumineszenzexperimenten wurden für InAs/GaAs QPe ebenfalls zwei thermische Aktivierungsenergien mit deutlich höheren

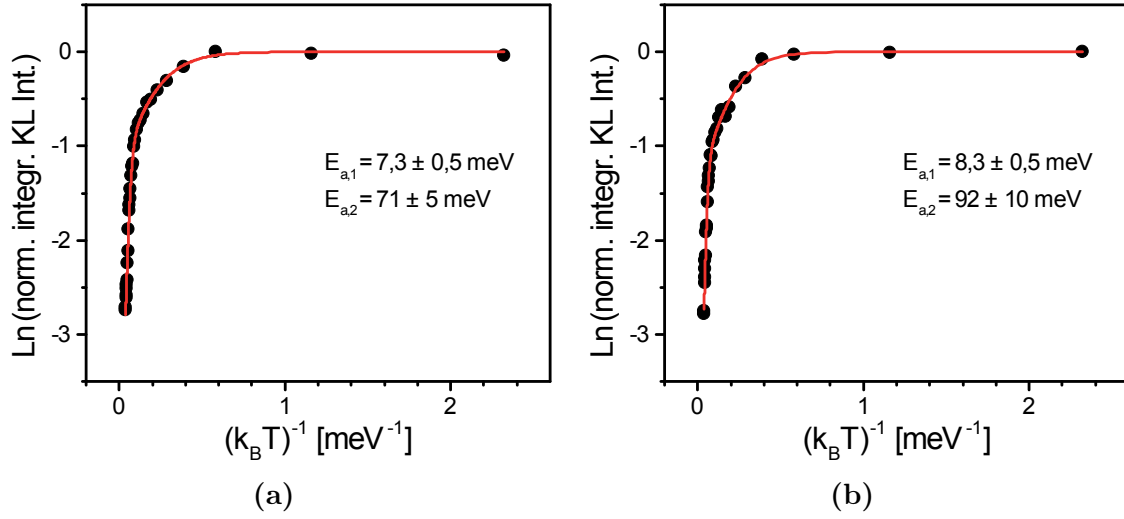


Abbildung 6.3 – Die normierte integrierte KL Intensität aufgetragen über $(k_B T)^{-1}$ für $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ (a) und $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ (a) QPe. Zur Ermittlung der Aktivierungsenergien von Ladungsträgern wurden die Daten mit Gleichung (6.1) angepasst.

Werten von $E_{a,1} = 75 \text{ meV}$ bis 110 meV und $E_{a,2} = 270 \text{ meV}$ bis 320 meV gemessen. [105])

Die Änderung der spektralen Position des Maximums der QP-Lumineszenz mit der Temperatur ist für $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe in Abbildung 6.4, und für $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe in Abbildung 6.5 gezeigt. Für Temperaturen zwischen 60 K und 200 K folgt der Verlauf für beide Proben der Änderung der indirekten Energielücke von GaP E_X^{GaP} mit der Temperatur, in den Abbildungen durch die rote Linie angezeigt. Die Änderung der Energielücke wurde mit der Varshni-Gleichung [60] und den von Vurgaftman et al. [41] angegebenen Varshniparametern für GaP berechnet. Von dem so erhaltenen Wert wurden 590 meV (600 meV) für die $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ ($\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$) QPe abgezogen, um den Funktionsgraphen an die Datenpunkte anzupassen. Zieht man von diesen Korrekturwerten die oben bestimmten Aktivierungsenergien ab, bleibt ein Wert von 512 meV (500 meV) für die $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ ($\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$) QPe, was gut mit den in Kapitel 4.7 abgeschätzten Lochenergien von 450 meV bis 552 meV übereinstimmt.

Im Bereich tiefer Temperaturen $\leq 60 \text{ K}$ schieben die Lumineszenzmaxima beider Proben zunächst zu kleineren Energien mit einem lokalen Minimum bei 20 K, und dann wieder zurück zu höheren Energien. Die Amplitude der Verschiebung beträgt für $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe 8 meV und für $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe 9 meV. Ein solches Verhalten ist in der Literatur als *S-Shape* bekannt und wird auf Potentialfluktuationen

zurückgeführt, die z. B. durch Grenzflächenrauigkeiten von Quantenfilmen und inhomogene Komposition von Multikomponentkristallen hervorgerufen werden [106]. Eine QP-Schicht hoher Dichte, wie im vorliegenden Fall von $> 1 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, kann als eine solche fluktuierende Potentiallandschaft aufgefasst werden. Aufgrund der statistischen Größenverteilung des QP-Ensembles variiert die Potentialtiefe der einzelnen QPe. Die anfängliche Rotverschiebung wird in diesem Bild durch ein thermisch aktiviertes Hüpfen der Ladungsträger aus flachen Potentialmulden (kleinen QPen) heraus in tiefere Potentialtöpfe (große QPe) gedeutet. Da die thermische Energie nicht ausreicht, um die großen QPe wieder zu verlassen, rekombinieren die Ladungsträger verstärkt in den großen QPen, die gemessene optische Übergangsenergie ist also kleiner als die über das gesamte QP-Ensemble gemittelte. Mit weiter ansteigender Temperatur reicht die thermische Energie aus, um die tieferen Potentialtöpfe (großen QPe) wieder zu verlassen, so dass die Ladungsträger wieder vermehrt auch in kleineren QPen rekombinieren, was zu einer Blauverschiebung des Lumineszenzmaximums führt. Konsistent mit diesem Modell ist eine mit der Rotverschiebung des Lumineszenzmaximums einhergehende Verschmälerung der Halbwertsbreite des Lumineszenzmaximums, das sich bei der anschließenden Blauverschiebung wieder verbreitert. Ein solches Verhalten wird z.B für $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ QPe beobachtet, wobei das Minimum der Halbwertsbreite bei tieferen Temperaturen erreicht wird, als das energetische Minimum des Lumineszenzmaximums [107, 108]. Bei $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ QPen liegt der *S-Shape* aufgrund des größeren Einschlusspotentials für Elektronen bei Temperaturen $> 100 \text{ K}$, wodurch das Minimum der Halbwertsbreite eindeutig in den Messdaten zu erkennen ist. Für die $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe (Abbildung 6.5) lässt sich ein lokales Minimum der Halbwertsbreite bei 10 K erahnen, für die $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe nicht (Abbildung 6.4). Für beide Proben nimmt die Halbwertsbreite mit steigender Temperatur zunächst zu und erreicht Werte von 107 meV bei 60 K für die $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe, und 122 meV bei 40 K für die $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe. Anschließend nimmt die Halbwertsbreite wieder ab und erreicht ein Minimum von 101 meV (115 meV) für die $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ ($\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$) QPe, um mit weiter steigender Temperatur wiederum zuzunehmen.

Ab einer Temperatur von 200 K ist in den Spektren beider Proben die Entstehung einer niederenergetischen Schulter auszumachen, wie im rechten Teil der Abbildungen 6.4 und 6.5 gezeigt. Für Temperaturen $< 200 \text{ K}$ können die Spektren jeweils gut mit einer Gaußkurve angepasst werden, was auf eine Normalverteilung der QP-

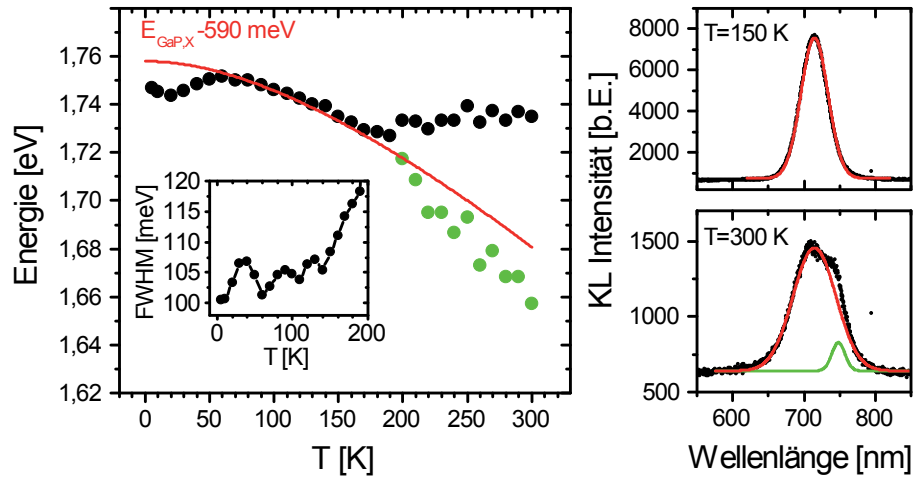


Abbildung 6.4 – links: Spektrale Positionen der Lumineszenzmaxima von $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPen über der Temperatur. Die rote Linie gibt den Verlauf der indirekten Energielücke von GaP nach Varshni [60] an. Der Einschub zeigt die Entwicklung der Halbwertsbreite (FWHM). rechts: Beispielhafte Anpassung der Spektren mit Gaussfunktionen.

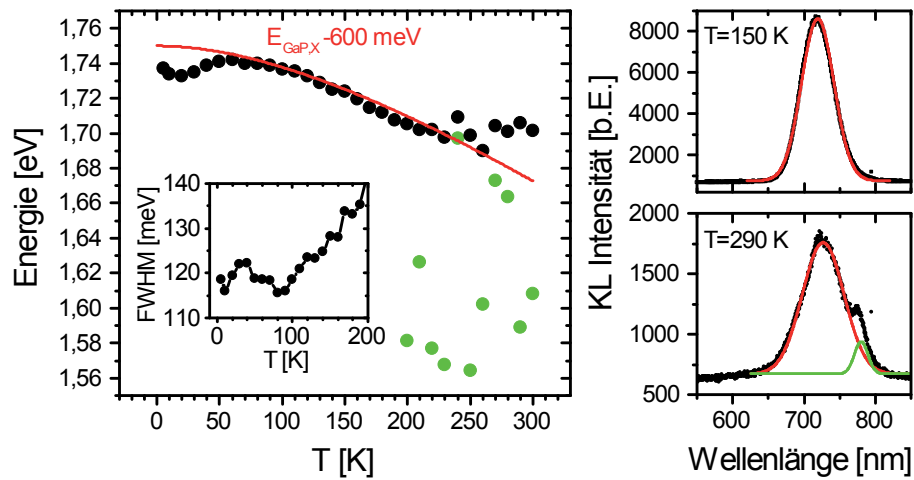


Abbildung 6.5 – links: Spektrale Positionen der Lumineszenzmaxima von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen über der Temperatur. Die rote Linie gibt den Verlauf der indirekten Energielücke von GaP nach Varshni [60] an. Der Einschub zeigt die Entwicklung der Halbwertsbreite (FWHM). rechts: Beispielhafte Anpassung der Spektren mit Gaussfunktionen.

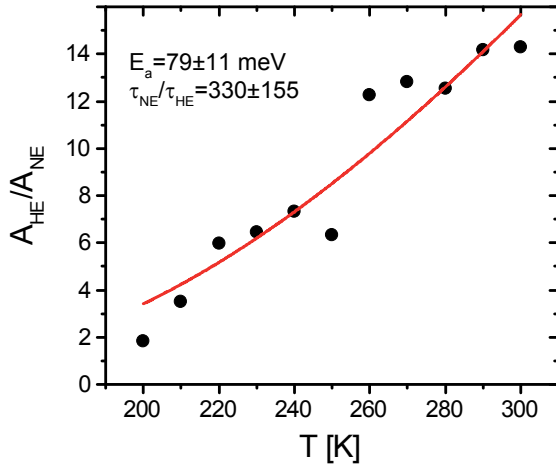


Abbildung 6.6 – Flächenverhältnis $A_{\text{HE}}/A_{\text{NE}}$ der hoch- und niederenergetischen Gaußkurven, die an die KL Spektren für $T > 200$ K angepasst wurden. Die rote Linie ist eine Anpassung an die Datenpunkte nach Gleichung (6.2) zur Abschätzung der thermischen Aktivierungsenergie E_a und des Verhältnisses der Exziton-Lebensdauern $\tau_{\text{NE}}/\tau_{\text{HE}}$.

Größen schließen lässt. Zur Anpassung der Spektren bei $T > 200$ K muss eine zweite Gaußkurve angenommen werden, was auf die Aktivierung eines zweiten optischen Rekombinationskanals hindeutet. Für die $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe ist die Position der zweiten Gaußkurve nicht immer eindeutig zu bestimmen, woraus sich die breite Streuung der Maximumpositionen in diesem Fall ergibt. In der weiteren Diskussion wird sich daher auf die $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPe bezogen. Den Gaußfunktionen nach ist die Fläche des hochenergetischen Maximums (HE) größer als die des niederenergetischen Maximums (NE). Bei 200 K beträgt das Verhältnis der Flächen $A_{\text{HE}}/A_{\text{NE}} = 1,8$ und steigt mit der Temperatur auf 14,3 bei 300 K, siehe Abbildung 6.6. Das bedeutet, dass das hochenergetische Maximum einem effizienteren Rekombinationskanal zuzuordnen ist, welcher thermisch aktiviert wird. Die thermische Aktivierungsenergie E_a und das Verhältnis der Exziton-Lebensdauern $\tau_{\text{NE}}/\tau_{\text{HE}}$ in den jeweiligen Zuständen lassen sich über eine Anpassung der Datenpunkte mit

$$\frac{A_{\text{HE}}}{A_{\text{NE}}} = \frac{\tau_{\text{NE}}}{\tau_{\text{HE}}} \exp\left(-\frac{E_a}{k_B T}\right) \quad (6.2)$$

abschätzen. Das Ergebnis einer solchen Anpassung ist in Abbildung 6.6 als rote Linie eingezeichnet, mit $E_a = (79 \pm 11)$ meV und $\tau_{\text{NE}}/\tau_{\text{HE}} = 330 \pm 155$. Das hohe Verhältnis der Exziton-Lebensdauern erklärt, dass der hochenergetische Rekombinationskanal das Lumineszenzspektrum nach seiner Aktivierung dominiert.

Legt man das Modell der elektronischen Struktur von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen aus Abbildung 6.1 zugrunde, bietet sich folgender Erklärungsansatz an: Das niederenergetische Maximum könnte zu einem Übergang von im X_z^{GaP} Dreieckspotential der GaP Matrix lokalisierten Elektronen in den Lochzustand gehören. Dieser Übergang

ist aufgrund seiner doppelten Indirektheit im Orts- und $\mathbf{k}$ -Raum schwach strahlend. Das energetisch höhere Maximum könnte folglich zu einer Rekombination vom elektronischen $X_{x,y}^{\text{QP}}$ -Zustand der QPe in den Lochzustand gehören, welcher im Ortsraum direkt und damit wahrscheinlicher ist. Diese Interpretation ist konsistent mit der Entwicklung der spektralen Position des niederenergetischen Maximums. Dieses verschiebt auch für Temperaturen $> 200\text{ K}$ weiter ins Rote und folgt dabei ungefähr dem Verlauf der indirekten Energielücke in GaP, die Rotverschiebung ist allerdings stärker als nach der Varshni-Gleichung zu erwarten (Abbildung 6.4). Das hochenergetische Maximum hingegen zeigt eine leichte Blauverschiebung. Diese Entwicklung ist vermutlich nur durch Vielteilcheneffekte erklärbar, z. B. einer Coulombabstoßung von Elektronen in räumlich benachbarten Zuständen, wie es im Fall einer Besetzung von X_z^{GaP} -Zuständen in der GaP Matrix und $X_{x,y}^{\text{QP}}$ -Zuständen im QP der Fall wäre.

Ein Vergleich der Lumineszenzintensitäten der hier untersuchten $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}$ und $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ QPe in GaP mit $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ QPen ergibt, dass unter vergleichbaren Anregungs- und Detektionsbedingungen die QPe in GaP eine um ca. zwei Größenordnungen schwächere Lumineszenz zeigen als die QPe in GaAs (hier nicht gezeigt). Das ist ein weiterer starker Hinweis darauf, dass die optischen Übergänge in den $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen indirekter Natur sind.

7 Verspannungsreduzierte In_{0,5}Ga_{0,5}As/GaP Quantenpunkte

7.1 Modifikation der Quantenpunkt-Deckschicht

Der vom Modell der elektronischen Struktur in Kapitel 6.1 vorhergesagte, und durch die Kathodolumineszenzmessungen in Kapitel 6.2 bestätigte, indirekte Charakter der optischen Übergänge in In_{0,25}Ga_{0,75}As/GaP und In_{0,5}Ga_{0,5}As/GaP QPen ist eine Folge der starken Verspannungen und Verzerrungen in diesem Materialsystem. Durch eine lokale Reduzierung der Verspannung am Ort der QPe kann der Γ -artige elektronische Zustand in den QPen wieder unter die X- und L-artigen Zustände abgesenkt werden (Abbildung 7.1). Die elektronische Struktur der In_xGa_{1-x}As/GaP QPe wird so von einer indirekten in eine direkte überführt. Eine solche lokale Verspannungsreduzierung kann erzielt werden, indem man die QPe nicht direkt mit dem Matrixmaterial zudeckt, sondern erst eine dünne Schicht eines Materials abscheidet, das ebenfalls eine Gitterfehlانpassung zum Substrat aufweist, und zwar mit gleichem Vorzeichen wie die QPe. Eine solche Schicht wird *verspannungsreduzierende Schicht (VRS)* genannt, und kann z. B. zur Rotverschiebung der Lumineszenzwellenlänge von In_xGa_{1-x}As/GaAs QPen verwendet werden, die mit einer VRS aus In_xGa_{1-x}As [109] oder GaAs_xSb_{1-x} [110] überwachsen werden.

Zur Änderung des Verspannungszustandes der In_xGa_{1-x}As/GaP QPe wurden diese in dieser Arbeit mit einer zusätzlichen dünnen Schicht GaAs direkt nach der Wachstumsunterbrechung überwachsen, und anschließend mit der Standardsequenz aus 6 nm GaP bei 500 °C und 50 nm GaP bei 600 °C zugedeckt. Abbildung 7.2(a) zeigt Photolumineszenzspektren einer Serie von Proben mit vergrabenen In_{0,5}Ga_{0,5}As/GaP QPen, die mit einer VRS von 0 ML bis 5 ML GaAs überwachsen wurden. Die nomi-

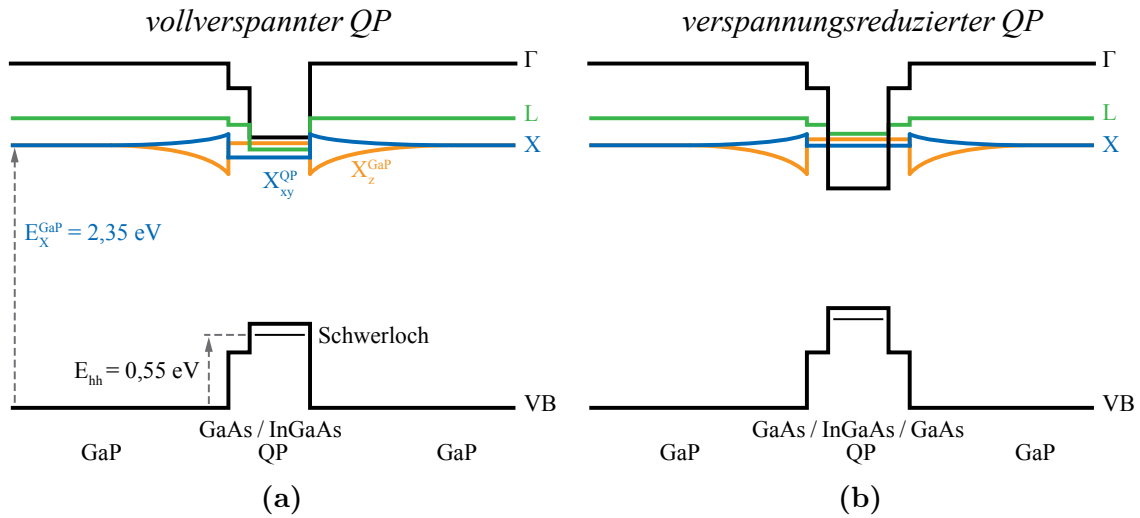
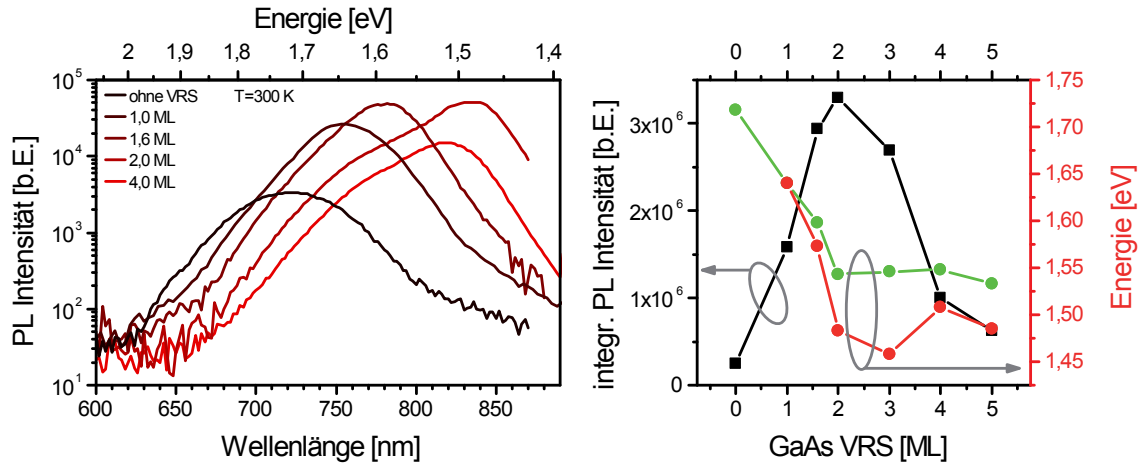


Abbildung 7.1 – Schema der elektronischen Struktur von vollverspannten $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mit GaAs Zwischenschicht (a), und von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mit zusätzlicher verspannungsreduzierender GaAs Schicht oberhalb der QPe (b). Eingezeichnet sind der Wert der indirekten Energielücke $E_X^{\text{GaP}} = 2,35 \text{ eV}$ von GaP bei 0 K [41], und die per Acht-Band $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ berechnete Grundzustandsenergie schwerer Löcher.

nelle $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung beträgt 0,83 ML, die Wachstumsunterbrechung 200 s. Die PL Messungen wurden bei Raumtemperatur mit einer Anregungsleistung von 1000 W cm^{-2} durchgeführt. Es lassen sich drei Effekte der GaAs VRS beobachten:

1. Eine Rotverschiebung des Lumineszenzmaximums von 722 nm (1,72 eV) für $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe ohne VRS bis 843 nm (1,47 eV) für QPe mit 3 ML GaAs VRS.
2. Die integrierte Lumineszenz nimmt um mehr als eine Größenordnung zu und erreicht einen Maximalwert für eine VRS von 2 ML GaAs, siehe Abbildung 7.2(b).
3. Das Lumineszenzmaximum spaltet in zwei Maxima auf, wie in Abbildung 7.3 gezeigt.

Der starke Anstieg der Lumineszenzintensität zeigt, dass der Γ -artige elektronische Zustand im QP wie durch das theoretische Modell vorausgesagt mit der Verspannungsreduzierung energetisch stärker abgesenkt wird als die X- und L-artigen Zustände. Der optische Übergang gewinnt dadurch zunehmend an direktem Charakter und wird stärker. Der schnelle Abfall der Lumineszenzintensität für eine Dicke der VRS



(a) Photolumineszenzspektren bei Raumtemperatur von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mit variierender Dicke der GaAs VRS. $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung: 0,83 ML, GRI = 200 s, Anregungsdichte: 1000 W cm^{-2}

(b) Integrierte Lumineszenz und spektrale Positionen der Lumineszenzmaxima der Spektren aus (a) über der GaAs VRS Dicke.

Abbildung 7.2

> 2 ML GaAs deutet auf eine Relaxation der Gitterverspannungen unter Ausbildung von Versetzungen hin. Die VRS reduziert zwar die lokale Verspannung am Ort der QPe, die gesamte Verspannungsenergie der Struktur wird jedoch erhöht, wodurch die Dicke der VRS limitiert ist. Die deutliche Rotverschiebung der Lumineszenz ist konsistent mit einer starken energetischen Absenkung der elektronischen Zustände. Die gemessene Übergangsenergie von 1,47 eV für $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe mit 3 ML GaAs VRS ist in guter Übereinstimmung mit Acht-Band $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ Simulationen, die einen Wert von 1,51 eV für direkte optische Übergänge ergeben.

Das Lumineszenzspektrum von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen ohne VRS lässt sich auch bei hoher Anregungsdichte von 1000 W cm^{-2} gut durch eine Gaußkurve anpassen, was auf eine statistische Verteilung der QP-Größen und die Aktivierung eines einzigen optischen Überganges schließen lässt, siehe Abbildung 7.3(a). Die Spektren der QPe mit VRS setzen sich aus zwei Gaußkurven zusammen, wie in Abbildung 7.3(b) für eine VRS von 2 ML GaAs gezeigt. Da die VRS in der Wachstumssequenz nach der Wachstumsunterbrechung abgeschieden wird, und somit keinen Einfluss auf die Reifung und Größenverteilung der QPe nehmen kann, sind beide Gaußkurven unterschiedlichen optischen Übergängen zuzuordnen. Die spektrale Separation des hochenergetischen Maximums HE und des niederenergetischen Maximums NE nimmt

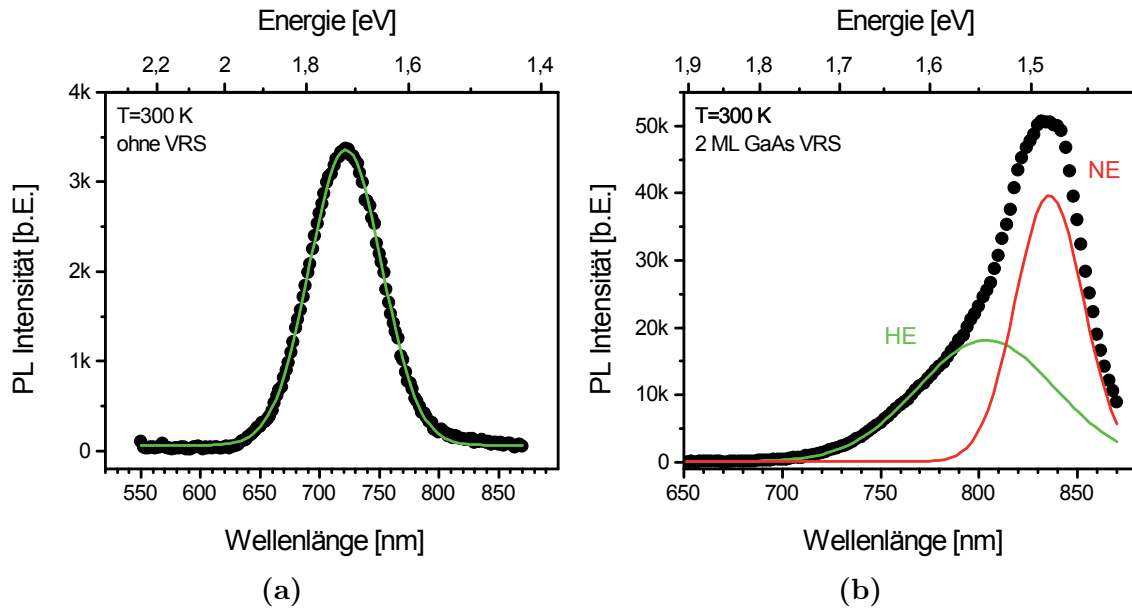


Abbildung 7.3 – Raumtemperatur PL Spektren von 0,83 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen ohne VRS (a) und mit 2 ML GaAs VRS (b). Die Anregungsdichte beider Messungen beträgt 1000 W cm^{-2} .

mit der Dicke der VRS zu und erreicht einen Maximalwert von 87 meV für eine VRS von 3 ML GaAs (Abbildung 7.2(b)). Für dickere VRS nimmt die Separation wieder ab, was auf Defektbildung zurückzuführen sein könnte. Die Änderung der energetischen Separation der beiden optischen Übergänge mit der VRS Dicke, und somit mit dem Verspannungszustand der QPe, ist konsistent mit der durch die Theorie vorhergesagten unterschiedlich starken Absenkung der X-, L- und Γ -artigen elektronischen Zustände im QP. Hieraus ergibt sich die Identifizierung des niederenergetischen Maximums als Übergang des Γ -artigen Grundzustandes, und des hochenergetischen Maximums als einen Übergang mit indirektem Charakter. Zu beachten ist, dass die Intensität des hochenergetischen Beitrages bei einer VRS von 2 ML GaAs ca. dreimal größer ist als die Lumineszenzintensität der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe ohne VRS, siehe Abbildung 7.3. Daraus lässt sich ableiten, dass auch dieser optische Übergang durch die Verspannungsreduktion an direktem Charakter gewinnt.

Abbildung 7.4 zeigt PL Messungen bei Raumtemperatur mit variierender Anregungsdichte von 1 W cm^{-2} bis 1000 W cm^{-2} an $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mit 2 ML GaAs VRS. Für eine niedrige Anregungsdichte von 1 W cm^{-2} kann das Spektrum mit einer einzigen Gaußkurve angepasst werden, für höhere Anregungsdichten besteht das Spektrum aus zwei Gaußkurven. In Abbildung 7.5(a) sind die integrierten

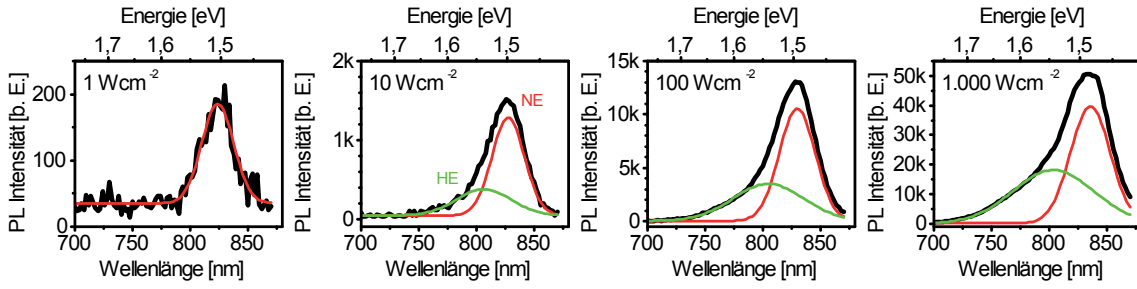


Abbildung 7.4 – PL Spektren bei Raumtemperatur von 0,83 ML In_{0,5}Ga_{0,5}As/GaP QPen mit 2 ML GaAs VRS, GRI = 200 s. Die Anregungsdichte variiert von 1 W cm⁻² bis 1000 W cm⁻².

Lumineszenzen der hoch- und niederenergetischen Beiträge sowie ihre Summe über der Anregungsdichte aufgetragen. Bis zu einer Anregungsdichte von 100 W cm⁻² steigt die integrierte Lumineszenz linear an. Für größere Anregungsdichten flacht der Anstieg ab, was auf eine beginnende Sättigung der optischen Übergänge hindeutet. Damit in Übereinstimmung verkleinert sich das Verhältnis der integrierten Lumineszenzen der nieder- und hochenergetischen Beiträge NE/HE und nähert sich für eine Anregungsdichte von 1000 W cm⁻² dem Wert 1 (Abbildung 7.5(b)). Die spektrale Position des NE Maximums verschiebt mit steigender Anregungsdichte um 21 meV ins Rote, während das HE Maximum um 5 meV blauverschiebt, siehe Abbildung 7.5(c). Eine solche gegenläufige Entwicklung der Übergangsenergien wird auch für Grund- und angeregte Zustände von InAs/GaAs QPen beobachtet, und kann durch eine Renormalisierung der Energielücke aufgrund von Vielteilcheneffekten beschrieben werden [111]. Aufgrund der komplizierten Struktur des Leitungsbandes von In_xGa_{1-x}As/GaP QPen kann nicht ausgeschlossen werden, dass sich Typ II-artige Konfigurationen mit in der GaP Matrix lokalisierten Elektronen ausbilden. In Typ II Systemen verschieben die Lumineszenzmaxima mit der Anregungsdichte D_A proportional zu $D_A^{1/3}$ ins Blaue [112, 113]. In Abbildung 7.5(c) ist eine solche Verschiebung zum Vergleich für das HE Maximum eingezeichnet (schwarze Linie). Die Entwicklung der spektralen Position der HE Lumineszenz weicht von einer $D_A^{1/3}$ Abhängigkeit ab. Es muss allerdings berücksichtigt werden, dass die Bindung von Elektronen in klassischen Typ II Systemen allein durch Coulombwechselwirkung erfolgt, während sich im Fall der In_xGa_{1-x}As/GaP QPe auch ohne Vielteilcheneffekte ein Einschlusspotential in der GaP Matrix bildet, wodurch sich eine Abweichung von der $D_A^{1/3}$ Abhängigkeit ergeben kann. Ob es sich bei dem zum HE Übergang gehörigen elektronischen Zustand um einen angeregten Zustand im QP oder einen

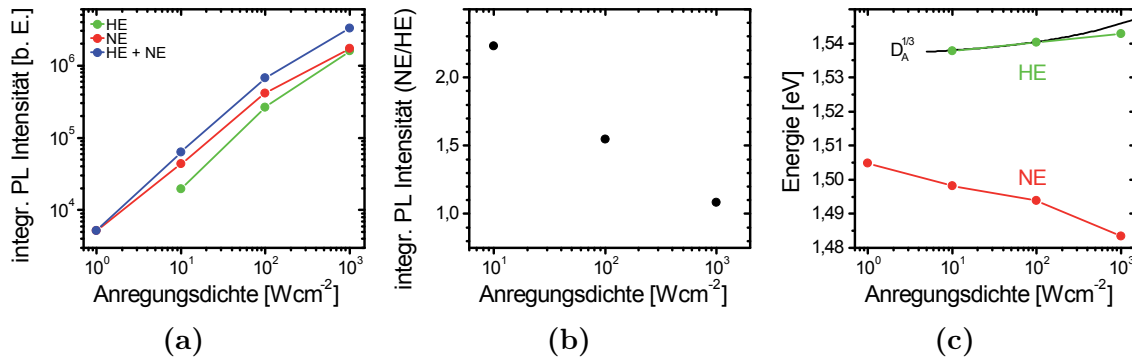


Abbildung 7.5 – Entwicklung der integrierten Intensität (a), des Verhältnisses der integrierten Intensitäten NE/HE (b), und der spektralen Positionen der HE und NE Maxima (c) der PL Spektren von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen aus Abbildung 7.4 mit der Anregungsdichte D_A . Die schwarze Kurve in (c) gibt die für einen Typ II Übergang zu erwartende $D_A^{1/3}$ -Abhängigkeit an.

Zustand im Dreieckspotential in der GaP Matrix handelt, kann daher aus diesen Messungen nicht eindeutig bestimmt werden.

7.2 Quantenpunktreifung während der Wachstumsunterbrechung

Ein Charakteristikum des Stranski-Krastanow Wachstums ist eine Zunahme der QP-Größe bei gleichzeitiger Verringerung der QP-Dichte mit der Zeit, wenn die Oberfläche der QP-bildenden Schicht nach ihrer Abscheidung unbedeckt gelassen wird, und die Substrattemperatur bei einem Wert verbleibt, der eine ausreichende Diffusion von Oberflächenatomen ermöglicht. Eine solche Reifung wird für verschiedene QP-Systeme beobachtet [54–57] und häufig mit einer Ostwaldreifung gleichgesetzt. Theoretische Modelle sagen von der Materialbedeckung abhängige metastabile Zustände des Quantenpunktensembles voraus [114, 115], die zu einer schmalen Verteilung der QP-Größen führen. Beim Wachstum vergrabener QPe wird daher nach Abscheidung der QP-bildenden Schicht das Wachstum für mehrere Sekunden unterbrochen, um eine Reifung der QPe zu ermöglichen, bevor weitere Deckschichten gewachsen werden.

Abbildung 7.6 zeigt AFM Aufnahmen von zwei 1,27 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Schichten auf 2,2 ML GaAs/GaP, die nach einer Wachstumsunterbrechung von 10 s bzw. 200 s mit 6 nm GaP bedeckt wurden. Nach einer Wachstumsunterbrechung von 10 s bilden sich an der Oberfläche der GaP Deckschicht kleine Erhebungen < 1 nm, was darauf

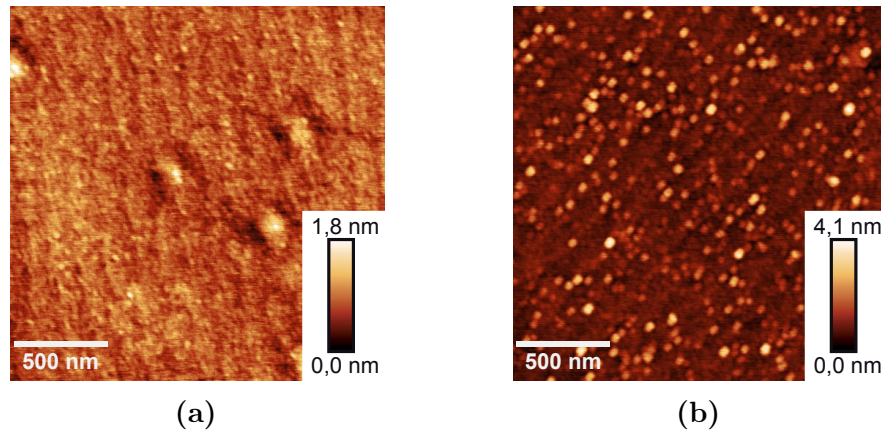


Abbildung 7.6 – AFM Aufnahmen von 1,27 ML $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ auf 2,2 ML GaAs/GaP mit dünner Deckschicht von 6 nm GaP . Wachstumsunterbrechung: (a) 10 s, (b) 200 s

schließen lässt, dass die darunter vergrabenen QPe sehr klein sind. Wird die Wachstumsunterbrechung auf 200 s verlängert, zeichnen sich unter der Deckschicht deutlich größere Inseln mit einer durchschnittlichen Höhe von $(1,3 \pm 0,4)$ nm ab. Während der Wachstumsunterbrechung nach der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Abscheidung findet also auch in diesem Materialsystem eine Reifung statt, die zu einer Zunahme der QP-Größe führt. Eine Änderung der QP-Dichte lässt sich aus diesen AFM Aufnahmen nicht ableiten, da die Erhebungen an der Oberfläche für kurze Wachstumsunterbrechungen zu niedrig sind, um einen zuverlässigen Wert für ihre Dichte zu bestimmen.

Einen detaillierteren Einblick in die Entwicklung des QP-Ensembles während der Reifungsphase geben Lumineszenzmessungen an vergrabenen QPen mit variierender Länge der Wachstumsunterbrechung. Abbildung 7.7 zeigt PL Spektren bei Raumtemperatur vergrabener $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Schichten auf 2,2 ML GaAs/GaP und Wachstumsunterbrechungen zwischen 1 s und 400 s. Die $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Schichten in Abbildung 7.7(a) wurden zusätzlich mit einer verspannungsreduzierenden Schicht von 1,6 ML GaAs überwachsen, die Schichten in Abbildung 7.7(b) nicht. Sowohl die QPe mit, als auch die QPe ohne VRS zeigen für eine Wachstumsunterbrechung von 1 s nur sehr schwache, kaum detektierbare Lumineszenz. Das deutet darauf hin, dass sich erst sehr wenige kleine QPe gebildet haben. Die integrierte Lumineszenzintensität steigt für die $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As/GaP}$ QPe mit VRS (Abbildung 7.7(a)) mit der Länge der Wachstumsunterbrechung bis 150 s kontinuierlich an, und fällt für längere Wachstumsunterbrechungen schnell wieder ab. Der anfängliche Intensitätsanstieg ist sowohl durch eine Erhöhung der QP-Dichte – und damit einer größeren Anzahl

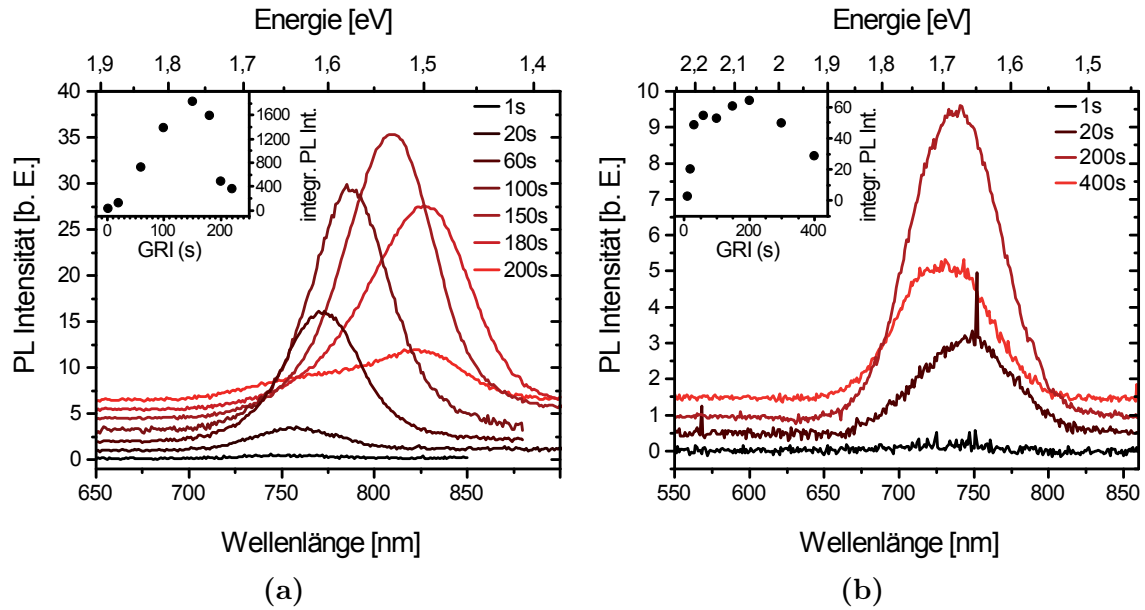


Abbildung 7.7 – Photolumineszenzspektren bei Raumtemperatur von vergrabenen $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mit variierender Länge der Wachstumsunterbrechung (GRI), mit (a) und ohne (b) 1,6 ML GaAs VRS. $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung: 0,83 ML (a) bzw. 1,25 ML (b), Anregungsdichte: 1000 W cm^{-2} . Die Spektren sind zur besseren Übersichtlichkeit vertikal gegeneinander verschoben. Die Einschübe zeigen jeweils die integrierte Lumineszenzintensität über der Länge der Wachstumsunterbrechung.

emittierender QPe –, als auch durch eine Zunahme der QP-Größe erklärbar. Größere QPe führen zu einer energetischen Absenkung des Γ -artigen elektronischen Zustandes, und somit zu einer Verstärkung des direkten Charakters der optischen Übergänge. Die ebenfalls mit der Länge der Wachstumsunterbrechung zu beobachtende starke Rotverschiebung des Lumineszenzmaximums von 755 nm (1,64 eV) für $\text{GRI} = 10 \text{ s}$ auf 828 nm (1,50 eV) für $\text{GRI} = 180 \text{ s}$, spricht für eine Zunahme der QP-Größe (siehe Abbildung 7.8(a)). Eine gleichzeitige Erhöhung der QP-Dichte bei kurzen Wachstumsunterbrechungen ist dadurch nicht ausgeschlossen. Aufgrund der beschränkten Menge an für die QP-Bildung zur Verfügung stehenden Materials ist davon auszugehen, dass für längere Wachstumsunterbrechungen die QP-Dichte abnimmt, wenn das Volumen der QPe zunimmt. Die Abnahme der Lumineszenzintensität für $\text{GRIs} > 150 \text{ s}$ könnte teilweise auf eine Abnahme der QP-Dichte zurückzuführen sein. Der starke Abfall der Intensität für $\text{GRIs} > 180 \text{ s}$ mit einhergehendem Halt der Rotverschiebung zeigt, dass die QPe bei Überschreitung einer bestimmten Größe plastische Relaxationen ausbilden, an denen Ladungsträger strahlungslos rekombinieren.

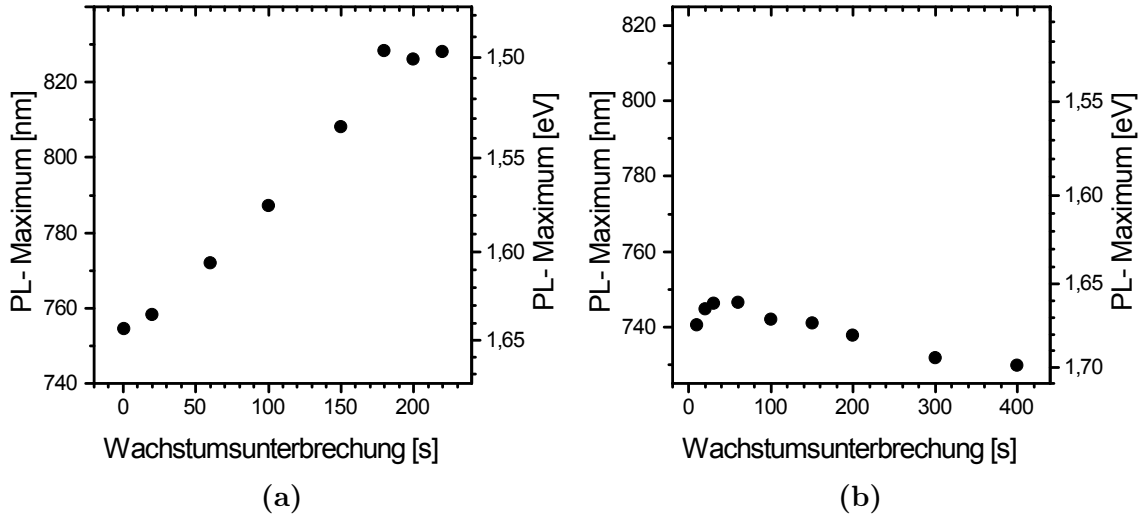


Abbildung 7.8 – Spektrale Lage des Lumineszenzmaximums von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen über der Länge der Wachstumsunterbrechung (a) mit und (b) ohne VRS.

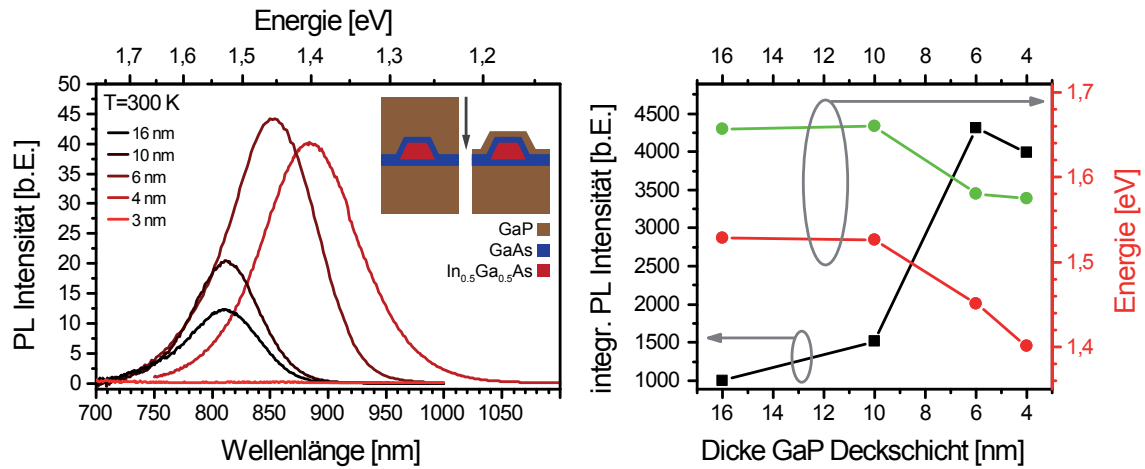
Die $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe ohne VRS (Abbildung 7.7(b)) zeigen für kurze Wachstumsunterbrechungen ebenfalls einen Anstieg der Lumineszenzintensität, diese sättigt jedoch bereits bei $\text{GRI} = 30$ s und steigt dann bis zu $\text{GRI} = 200$ s nur noch leicht an. Der Intensitätsrückgang für Wachstumsunterbrechungen > 200 s deutet auf Defektbildung hin. Im Unterschied zur starken Rotverschiebung der QPe mit VRS ändert sich die spektrale Position des Lumineszenzmaximums der QPe ohne VRS kaum (Abbildung 7.8(b)). Da die VRS nach der Wachstumsunterbrechung abgeschieden wird, und daher keinen Einfluss auf die Reifung der QPe nehmen kann, muss der Unterschied in der Entwicklung der QP-Lumineszenz in der unterschiedlichen elektronischen Konfiguration der QPe mit und ohne VRS begründet sein. Die leichte Rotverschiebung des Lumineszenzmaximums der QPe ohne VRS bis $\text{GRI} = 60$ s von 741 nm (1,67 eV) auf 747 nm (1,66 eV) deutet wieder auf eine Zunahme der QP-Größe hin. Die geringe Amplitude der Rotverschiebung ist eine Bestätigung der Annahme, dass die QPe ohne VRS eine indirekte elektronische Struktur besitzen, bei der die Elektronen im X_z^{GaP} Dreieckspotential in der GaP Matrix, oder im X_{xy}^{QP} -Zustand in den QPen lokalisieren. Die energetische Lage beider Zustände ändert sich nach den theoretischen Berechnungen deutlich weniger mit der QP-Größe, als der Γ -artige elektronische Zustand der QPe mit VRS [85]. Die leichte Blauverschiebung des Lumineszenzmaximums der QPe ohne VRS für $\text{GRI} > 60$ s impliziert eine Abnahme der mittleren QP-Größe, die durch plastische Relaxation großer QPe hervorgerufen

werden könnte. Im Widerspruch dazu steigt die integrierte Lumineszenzintensität bis zu Wachstumsunterbrechungen von 200 s weiter leicht an. Möglicherweise nimmt in diesem Bereich die QP-Dichte weiter zu, während sich bereits erste Relaxationsdefekte bilden, so dass sich beide Effekte überlagern.

7.3 Oberflächennahe $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe

Eine weitere Verspannungsreduzierung der QPe lässt sich erzielen, wenn die QPe nur mit einer sehr dünnen GaP Deckschicht versehen werden, so dass die Gitterverspannungen zur Oberfläche hin relaxieren können. In Abbildung 7.9(a) sind PL Spektren von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mit 1,6 ML GaAs VRS bei Raumtemperatur aufgetragen. Die $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung beträgt jeweils 0,83 ML, die Wachstumsunterbrechung 150 s. Die Dicke der GaP Deckschicht über den QPen variiert von 16 nm bis 3 nm. Die Deckschichten wurden komplett bei 500 °C gewachsen. Die Entwicklung der Lumineszenz mit Verringerung der Deckschichtdicke setzt im Wesentlichen den Trend, der für die VRS-Dicke beobachtet wurde, fort (vergleiche Abbildung 7.2). Bei Verringerung der Deckschicht von 16 nm auf 10 nm bleibt die spektrale Lage der Lumineszenz zunächst unverändert um 1,53 eV, die Intensität nimmt jedoch leicht zu, wie in Abbildung 7.9(b) zu sehen. Die unveränderte spektrale Position deutet an, dass sich die Verspannung der QPe nicht geändert hat. Der Intensitätsanstieg könnte daher rühren, dass es in der Umgebung der QPe weniger Defekte gibt, an denen Ladungsträgerpaare nichtstrahlend rekombinieren. Solche Defekte könnten während des Wachstums dickerer GaP Schichten bei der vergleichsweise tiefen Substrattemperatur von 500 °C entstehen. Die beste Materialqualität von GaP Schichten wurde in dieser Arbeit für eine Wachstumstemperatur von 750 °C erzielt. Es wurde ferner beobachtet, dass GaP bei 500 °C nicht mehr im Stufenfluss-, sondern im 2D Inselwachstum wächst.

Bei weiterer Verringerung der Deckschichtdicke auf unter 10 nm zeigt das Lumineszenzmaximum eine deutliche Rotverschiebung bis 1,40 eV für eine Dicke von 4 nm. Es können wieder der hochenergetische und der niederenergetische optische Übergang unterschieden werden, ihr energetischer Abstand liegt für Deckschichtdicken von 16 nm bis 6 nm bei 130 meV und steigt für die 4 nm Deckschicht auf 174 meV an. Die Lumineszenzintensität zeigt mit Verringerung der Deckschicht unter 10 nm einen starken Anstieg um den Faktor 2,7. Die integrierte Lumineszenz erreicht ihr



(a) PL-Spektren bei Raumtemperatur von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mit 1,6 ML GaAs VRS und variierender Dicke der GaP Deckschicht. $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung: 0,83 ML, GRI = 150 s, Anregungsleistung: 1000 W cm^{-2}

(b) Integrierte Lumineszenz und spektrale Positionen der Lumineszenzmaxima der Spektren aus (a) über der Dicke der GaP Deckschicht.

Abbildung 7.9

Maximum für eine Deckschichtdicke von 6 nm und fällt für 4 nm wieder leicht ab. Für Deckschichtdicken $< 4\text{ nm}$ wird keine QP-Lumineszenz mehr beobachtet, vermutlich weil die QPe nicht mehr vollständig von GaP bedeckt sind.

7.4 Temperaturabhängige Lumineszenz verspannungsreduzierter $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenpunkte

Zur genaueren Identifizierung der elektronischen Zustände wurden auch an verspannungsreduzierten $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen temperaturabhängige Kathodolumineszenzmessungen durchgeführt. Abbildung 7.10 zeigt KL Spektren von 5 K bis 286 K einer Probe mit vergrabenen $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen, die nach einer Wachstumsunterbrechung von 200 s mit einer verspannungsreduzierenden Schicht von 1,6 ML GaAs bedeckt wurden. Die $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung beträgt 0,83 ML. Die Spektren besitzen jeweils eine Schulter auf der hoch- und niederenergetischen Flanke, wie in Abbildung 7.10(b) am Beispiel des Spektrums bei 5 K gezeigt. Die Spektren wurden

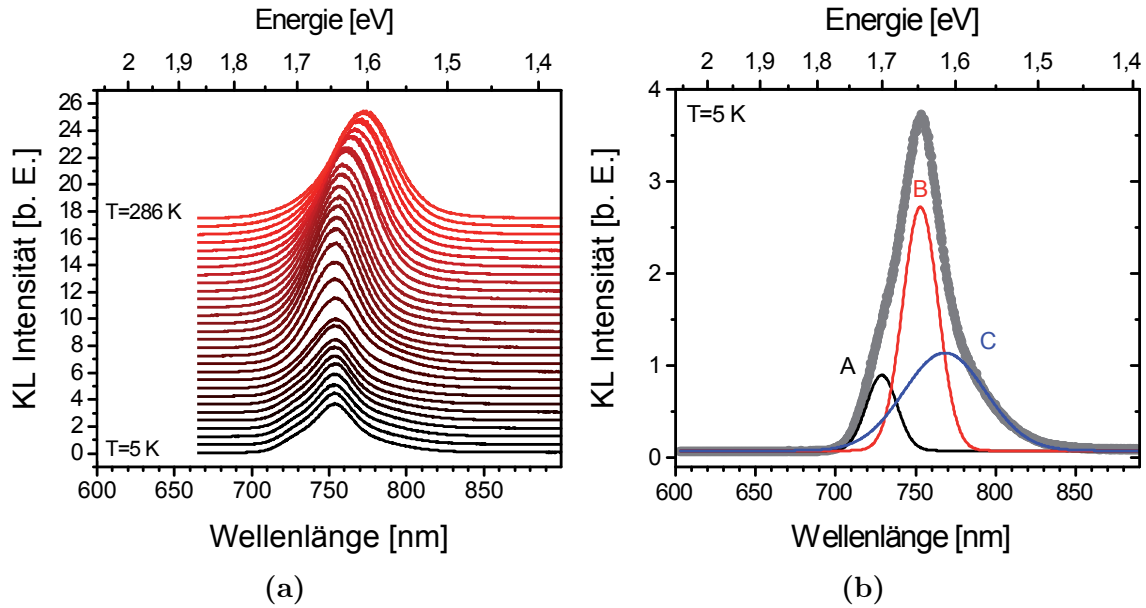


Abbildung 7.10 – Kathodolumineszenzspektren bei Temperaturen von 5 K bis 286 K von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mit 1,6 ML GaAs VRS (a). $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ Bedeckung: 0,83 ML, GRI = 200 s, $U = 7$ kV. Die Spektren sind vertikal gegeneinander verschoben. (b) zeigt das Spektrum bei 5 K, angepasst durch drei Gaußskurven A, B und C.

daher mit drei Gaußskurven (A, B, C) angepasst. Die integrierten Intensitäten, die spektralen Positionen der Maxima und die Halbwertsbreiten dieser Gaußskurven sind in Abbildung 7.11(b) über der Temperatur aufgetragen.

Im Gegensatz zu den $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen ohne verspannungsreduzierende Deckschicht, deren Lumineszenzintensität mit der Temperatur stark abnimmt (Abbildung 6.3), steigt die integrierte Lumineszenzintensität der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe mit der Temperatur deutlich an (schwarze Kurve in Abbildung 7.11(a)). Der Anstieg findet hauptsächlich zwischen 70 K und 210 K statt, in diesem Temperaturbereich nimmt die integrierte Intensität um den Faktor 2,5 zu. Die Intensitätszunahme fällt dabei fast ausschließlich dem durch die Gaußkurve B repräsentierten Anteil zu. Die Fläche der Gaußkurve C bleibt über den gesamten Temperaturbereich annähernd konstant, die von A fällt zwischen 100 K und 200 K auf ca. 60 % des Ausgangswertes ab. Der erneute Anstieg der Fläche von A für Temperaturen > 200 K ist vermutlich auf Ungenauigkeiten in der Anpassung der Spektren zurückzuführen.

Eine solche Intensitätszunahme der QP-Lumineszenz mit der Temperatur ist atypisch und deutet auf eine thermische Aktivierung eines effizienteren Rekombinationskanals hin, in diesem Fall repräsentiert durch die Gaußkurve B. Im Modell der

elektronischen Struktur von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen kann B daher einem direkten optischen Übergang zugeordnet werden. Hierfür spricht auch die Entwicklung der spektralen Position des Maximums von B, welches für Temperaturen $> 150\text{ K}$ der Temperaturabhängigkeit der Energielücke von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ am Γ -Punkt folgt, in Abbildung 7.11(b) durch die graue gestrichelte Linie angedeutet [41, 60]. Zu dem berechneten Wert der Energielücke von unverspanntem Volumenmaterial wurden 678 meV addiert, um den Verlauf an den des Maximums von B bei hohen Temperaturen anzupassen. Die Rotverschiebung zwischen 110 K und 286 K beträgt 45 meV . Bei tiefen Temperaturen $< 120\text{ K}$ ist die energetische Lage des Maximums B nahezu konstant um $1,647\text{ eV}$. Auch die Maxima A und C liegen für tiefe Temperaturen bis 120 K annähernd konstant um $1,70\text{ eV}$ (A) bzw. $1,613\text{ eV}$ (C). Alle drei Kurven nehmen bei 90 K ein lokales Minimum an, was auf eine thermische Umverteilung von Ladungsträgern im QP-Ensemble hindeutet (*S-Shape*). Ein weiteres, schwächer ausgeprägtes lokales Minimum lässt sich ebenfalls für alle drei Kurven bei 40 K bis 50 K ausmachen.

Für Temperaturen über 120 K zeigen die energetischen Positionen der Maxima A und C eine von B abweichende Entwicklung mit der Temperatur. Während B hier mit der Energielücke von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ rotverschiebt, zeigen A und C zunächst eine leichte Blauverschiebung von 12 meV (A) bzw. 4 meV (C), und schieben für Temperaturen $> 180\text{ K}$ (C) bzw. $> 200\text{ K}$ (A) ins Rote. Die Rotverschiebung von A ist mit 57 meV deutlich stärker als die von C von 21 meV . Die unterschiedliche Temperaturabhängigkeit von B und C führt dazu, dass sich beide Maxima mit steigender Temperatur energetisch immer weiter aneinander annähern. Bei einer Fortsetzung der Messreihe über Temperaturen von 286 K hinaus, ist eine Kreuzung der energetischen Lagen von B und C zu erwarten. Daher kann B mit dem niederenergetischen Beitrag NE der Photolumineszenzspektren bei 300 K in Kapitel 7.1 (Abbildungen 7.2(b) und 7.3(b)) gleichgesetzt werden, C folglich mit dem hochenergetischen Beitrag HE. Der dritte Beitrag A konnte bei der Anpassung der PL Spektren bei 300 K nicht aufgelöst werden, da sein Anteil am Gesamtspektrum nur bei tiefen Temperaturen signifikant ist.

Die Gleichsetzung von B und C mit NE und HE wird durch einen Vergleich der Halbwertsbreiten unterstützt. Die Halbwertsbreite von B beträgt bei 286 K 86 meV , die von C 176 meV . Die Auswertung des PL Spektrums der Probe mit einer verspannungsreduzierenden Schicht von $1,6\text{ ML GaAs}$ bei 300 K ergibt eine

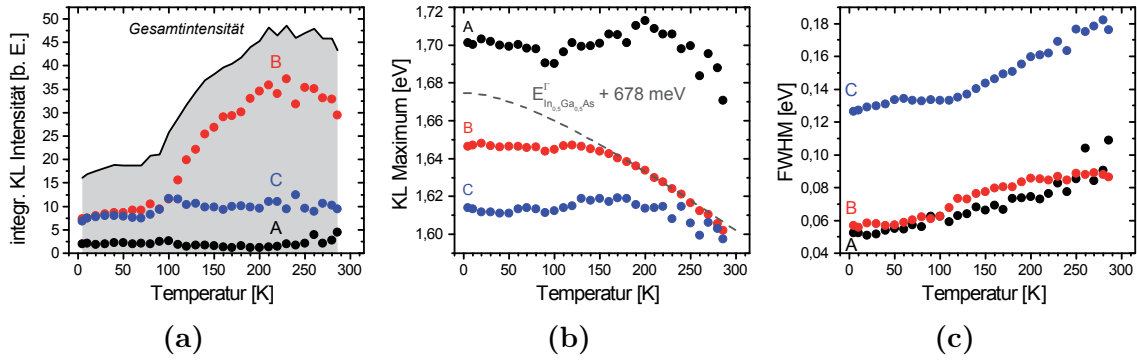


Abbildung 7.11 – Entwicklung der integrierten Intensitäten (a), der spektralen Position der Maxima (b), und der Halbwertsbreiten (c) der an die KL Spektren angepassten Gaußkurven A, B und C. In (a) ist zusätzlich die integrierte Gesamtintensität der Spektren eingezeichnet. Die gestrichelte Linie in (b) gibt die Temperaturabhängigkeit der Energielücke am Γ -Punkt von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ an [41, 60]. Zu dem Wert wurden 678 meV addiert, um die Kurve an den Verlauf des Maximums der Gausskurve B bei hohen Temperaturen anzupassen.

Halbwertsbreite von 76 meV für NE und 135 meV für HE. Die Halbwertsbreite der Gausskurve C stimmt zudem über den gesamten Temperaturbereich sehr gut mit den Halbwertsbreiten der KL Spektren von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen ohne VRS überein (Abbildungen 7.11(c) und 6.5). Das spricht ebenfalls für eine Identifizierung von C als indirekter optischer Übergang.

Für den starken Anstieg der Lumineszenzintensität der verspannungsreduzierten QPe mit der Temperatur bietet sich folgender Erklärungsansatz an: Gehört B zu einem effizienten optischen Übergang mit direktem Charakter, und C zu einem weniger effizienten mit indirektem Charakter, so ist auch die Exzitonlebensdauer in Zustand B kürzer als in C. Nimmt nun mit der Temperatur die Anzahl der Phononen im System zu, so können mehr Exzitonen über Phononenstreuung den Zustand B besetzen und dort rekombinieren. Aufgrund der kürzeren Lebensdauer in Zustand B ist eine Rückstreuung in Zustand C unwahrscheinlicher, folglich nimmt die Intensität des Überganges B zu. Der beginnende Intensitätsabfall ab einer Temperatur von 200 K deutet auf thermische Emission der Ladungsträger in nichtstrahlende Zustände hin. Diese Interpretation bedarf einer Bestätigung durch zeitaufgelöste Lumineszenzmessungen, die eine spektrale und thermische Abhängigkeit der Exzitonlebensdauern zeigen sollten. Ergebnisse solcher Messungen lagen bei Abschluss dieser Arbeit noch nicht vor.

Unklar ist die Entwicklung der energetischen Position der Beiträge A, B und C

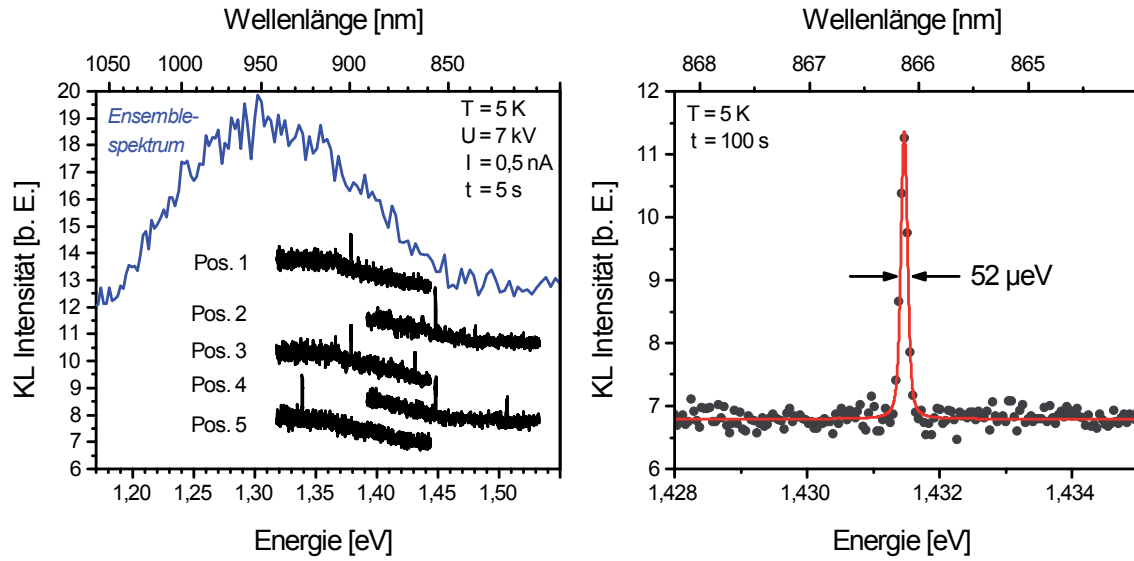
mit Ausnahme der Rotverschiebung insbesondere von B für hohe Temperaturen, welche durch die Temperaturabhängigkeit der Energielücke erklärt werden kann. Die annähernd konstante spektrale Lage aller drei Maxima bei tiefen Temperaturen bis 120 K könnte auf Ensemble-Effekte zurückzuführen sein. Daher wurden temperaturabhängige Kathodolumineszenzmessungen an einzelnen QPen durchgeführt, die im nächsten Kapitel vorgestellt werden.

7.5 Lumineszenz einzelner verspannungsreduzierter $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenpunkte

Die hohe Ortsauflösung der Kathodolumineszenzspektroskopie von einigen hundert nm erlaubt bei hinreichend geringer Quantenpunktdichte die Auflösung von Spektrallinien einzelner QPe. Für die in diesem Kapitel vorgestellten Messungen wurde eine Probe mit $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen einer Dichte von $\text{ca. } 2 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ hergestellt, was einem mittleren Abstand benachbarter QPe von ca. 220 nm entspricht. Aufgrund der statistischen Verteilung der QP-Größen sind die Emissionslinien einzelner QPe zusätzlich spektral separiert. Die $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe wurden nach einer Wachstumsunterbrechung von 200 s mit einer verspannungsreduzierenden Schicht aus 1,6 ML GaAs überwachsen, und anschließend nur mit einer dünnen Deckschicht von 4 nm GaP versehen. Ziel dieser Maßnahme ist eine möglichst hohe Lumineszenzausbeute, siehe Kapitel 7.3.

Abbildung 7.12(a) zeigt mit stark fokussiertem Elektronenstrahl an verschiedenen Stellen derselben Probe aufgenommene Spektren bei einer Temperatur von 5 K. Es sind pro Spektrum ein bis zwei scharfe Emissionslinien zu erkennen. Zum Vergleich ist ein mit defokussiertem Elektronenstrahl aufgenommenes Ensemblespektrum derselben Probe gezeigt (blaue Kurve). Es wird deutlich, dass sich das Ensemblespektrum aus einzelnen scharfen Linien zusammensetzt, die demzufolge der Emission einzelner QPe zugeordnet werden können. Die Emissionslinien unterliegen keinem oder nur einem sehr geringen spektralen Jitter¹, wie dem über 100 s integrierten Spektrum einer einzelnen Emissionslinie in Abbildung 7.12(b) zu entnehmen. Um die spektrale Verbreiterung der Messapparatur (88 μeV) zu entfalten, wurden die Daten mit einem Voigt-Profil angepasst. Die natürliche Breite der Emissionslinie ergibt sich demnach

¹zeitliche spektrale Verschiebungen oder Sprünge der Emissionslinien, verursacht durch elektrische Felder, die von Kristalldefekten in der Nachbarschaft der QPe hervorgerufen werden.



(a) KL Übersichtsspektrum des $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QP-Ensembles (blau) und Spektren bei Punktanregung (schwarz) verschiedener Stellen derselben Probe bei 5 K. Die Spektren sind vertikal gegeneinander verschoben.

(b) Über 100 s integriertes Spektrum einer einzelnen Emissionslinie bei 5 K. An die Datenpunkte wurde ein Voigt-Profil angepasst (rot), um die natürliche Linienbreite zu extrahieren.

Abbildung 7.12

zu $52 \mu\text{eV}$. Dieser Wert liegt im Bereich dessen, was auch für $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ QPe hoher Materialqualität gemessen wird [116–118], und spricht für eine sehr geringe Dichte an Kristalldefekten in der hier untersuchten Probe.

Für zwei Emissionslinien bei $1,4315 \text{ eV}$ (QP A) und $1,4957 \text{ eV}$ (QP B) wurde die Temperaturabhängigkeit untersucht. Die Emissionslinien wurden von verschiedenen Stellen der Probe aufgenommen und gehören daher zu zwei verschiedenen QPen A und B. Die Spektren bei Temperaturen von 5 K bis 95 K von QP A sind in Abbildung 7.13(a) gezeigt. Die Emissionslinie lässt sich bis zu einer Temperatur von 80 K verfolgen, für höhere Temperaturen kann sie aufgrund abnehmender Intensität und thermischer Verbreiterung nicht mehr aufgelöst werden. Das Verhalten der Emissionslinie von QP B ist identisch, die Spektren werden hier daher nicht gezeigt. Die thermische Verschiebung der Emissionsenergien beider Linien ist in Abbildung 7.13(b) dargestellt. Zum Vergleich sind auch die Daten eines InAs/GaAs QPes (aus [61]) und die Temperaturabhängigkeit der direkten Energielücke von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$, sowie der indirekten Energielücke von GaP am X-Punkt nach [41] eingezeichnet. Die

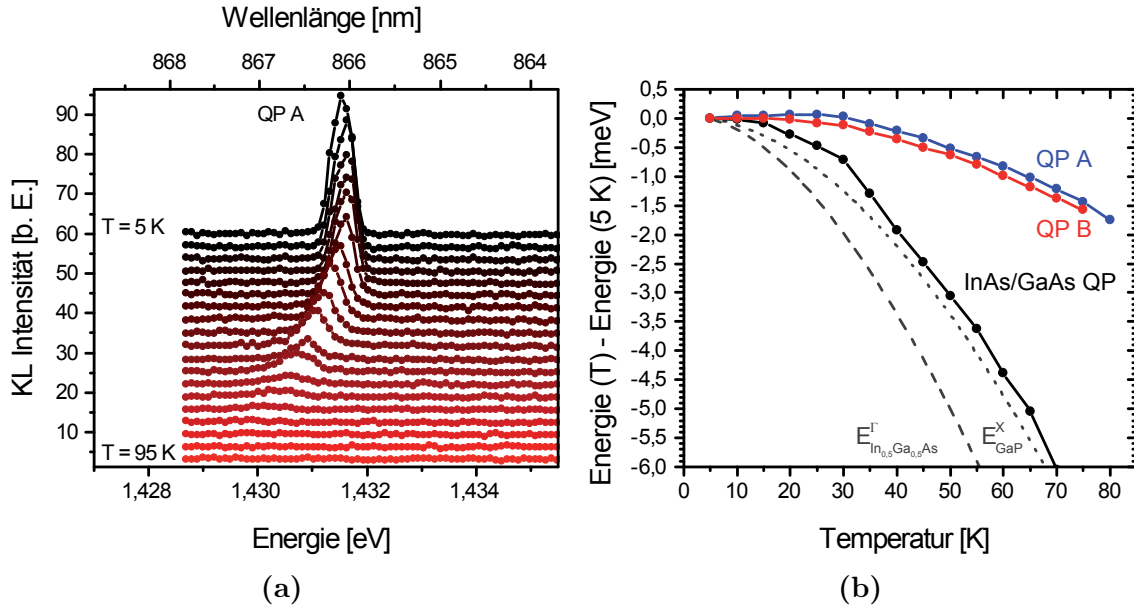


Abbildung 7.13 – (a) KL Spektren von QP A bei Temperaturen von 5 K bis 95 K. Die Spektren sind vertikal gegeneinander verschoben. (b) Thermische Verschiebung der Emissionsenergie der QPe A und B. Zum Vergleich sind die Daten eines InAs/GaAs QPes [61] und die Temperaturabhängigkeit der direkten Energielücke von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$ (gestrichelt), sowie der indirekten Energielücke von GaP am X-Punkt (gepunktet) eingetragen [41].

Verschiebung aller Kurven ist auf ihren jeweiligen Wert bei 5 K bezogen. Die Emissionsenergie des InAs/GaAs QPes weist eine Rotverschiebung auf, die qualitativ der Temperaturänderung der Energielücke von Halbleitern folgt. Die Emissionslinien der $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe A und B zeigen eine deutlich geringere thermische Verschiebung, die weder der Temperaturänderung der Energielücke von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}$, noch der von GaP entspricht. Die Emissionsenergie des QPes A schiebt bis zu einer Temperatur von 20 K sogar um $66 \mu\text{eV}$ ins Blaue, bevor eine leichte Rotverschiebung einsetzt. Die stabile Lage der Emissionsenergie verspannungsreduzierter $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPe bei tiefen Temperaturen, die auch am QP-Ensemble in Kapitel 7.4 beobachtet wurde, ist also *kein Ensembleeffekt*. Sie ist daher auf die komplizierten elektronischen Zustände im verspannungsreduzierten $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QP zurückzuführen.

Bei diesen Experimenten an einzelnen QPen kann nicht ausdifferenziert werden, ob ein QP mehrere Emissionslinien zeigt. Zwar treten an einigen Stellen der Probe mehrere Linien auf (siehe Abbildung 7.12(a)), diese könnten jedoch auch von mehreren QPen stammen. Eine Zuordnung der Emissionslinien zu den Beiträgen A, B und C

des Ensemblespektrums kann daher nicht erfolgen.

7.6 Zusammenfassung

Durch ein Überwachsen der QPe mit einer GaAs VRS können die Materialverspannungen am Ort der QPe lokal reduziert werden. Dies führt zu einer energetischen Absenkung der elektronischen Zustände in $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen. Die Emissionswellenlänge kann als Funktion der VRS-Dicke von 722 nm bis 843 nm ins Rote verschoben werden. Gleichzeitig nimmt die Intensität der QP-Lumineszenz um mehr als eine Größenordnung zu, was auf einen zunehmend effizienten, direkten Charakter der optischen Übergänge schließen lässt. Diese Beobachtung ist konsistent mit theoretischen Berechnungen von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen.

In den PL- und KL-Spektren von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mit VRS können zwei bis drei optische Rekombinationskanäle unterschieden werden. Temperaturabhängige Messungen zeigen eine stark unterschiedliche Entwicklung von spektraler Lage und Intensität der optischen Übergänge. Insbesondere wird ein atypischer Intensitätsanstieg um das 2,5-fache mit der Temperatur für den in Kapitel 7.4 als B bezeichneten Übergang beobachtet. Dieser kann als direkter Übergang vom Γ -artigen elektronischen Zustand im QP in den Schwerlochzustand identifiziert werden. Ein weiterer Übergang (C) kann indirekten Rekombinationen zugeschrieben werden, ob aus elektronischen Zuständen im QP oder im Dreieckspotential der GaP Matrix ist nicht eindeutig. Bei tiefen Temperaturen zwischen 5 K und 120 K zeigt die Emissionsenergie von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen mit VRS nahezu keine Temperaturabhängigkeit. Dieses Phänomen kann auch an Emissionslinien einzelner QPe beobachtet werden und muss daher in der komplizierten Struktur der elektronischen Zustände begründet sein. Die Emissionslinien einzelner QPe besitzen eine sehr schmale Halbwertsbreite von 52 μeV bei 5 K, was auf eine sehr gute Kristallqualität schließen lässt.

8 Zusammenfassung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden das epitaktische Wachstum von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen entwickelt, sowie ihre elektronischen und optischen Eigenschaften untersucht. Gleichzeitig mit den Arbeiten von Nguyen Thanh et al. [26] an der Université Européenne de Bretagne ist es erstmals gelungen, $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPe hoher kristalliner Perfektion herzustellen, die sowohl eine detaillierte Untersuchung ihrer physikalischen Eigenschaften erlauben, als auch für technologische Anwendungen in Frage kommen. Die Modifikation der Oberfläche des GaP Substrates durch Bedeckung mit wenigen Monolagen GaAs erlaubt es, $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPe mittels Metallorganischer Gasphasenepitaxie zu züchten, dem für die industrielle Produktion von optoelektronischen Halbleiterbauelementen bedeutendsten Verfahren.

Dichten und Größen von $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ und $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen können durch Variation der Prozessparameter gezielt eingestellt werden. Über die Menge des abgeschiedenen $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ lässt sich die QP-Dichte über einen weiten Bereich von $5 \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2}$ bis $2 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ verändern. Die Länge der Wachstumsunterbrechung nach $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ Abscheidung stellt einen weiteren Steuerparameter dar, über den die Größe der QPe unabhängig von ihrer Dichte eingestellt werden kann.

Spektroskopische Untersuchungen von $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ und $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen bestätigen die durch theoretische Modelle vorhergesagte indirekte Natur optischer Übergänge in diesem QP-System, mit entsprechend geringer Effizienz optischer Rekombinationen. Eine Reduktion der lokalen Materialverspannung am Ort der QPe mittels eines modifizierten Deckschichtwachstums oberhalb der QPe, verursacht eine energetische Absenkung der elektronischen Zustände in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen. Neben einer starken Rotverschiebung der Emissionswellenlänge von 722 nm bis 843 nm, wird so eine Überführung der elektronischen Struktur von $\text{In}_{0,5}\text{Ga}_{0,5}\text{As}/\text{GaP}$ QPen von einer in Orts- und/oder $\mathbf{k}$ -Raum indirekten in eine direkte erreicht, wodurch eine Steigerung der Lumineszenzintensität um mehr als eine Größenordnung erzielt wird. Es konnten so erstmals überhaupt $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPe mit effizienten, direkten

optischen Übergängen demonstriert werden.

Damit legt diese Arbeit die Grundlagen für zukünftige technologische Anwendungen von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen. Sofort ersichtlich ist die Bedeutung der optischen Rekombinationen für optoelektronische Bauelemente, die aufgrund der geringen Gitterfehlانpassung zwischen GaP und Si möglicherweise zu einer monolithischen Integration von III-V Photonik mit Si-basierter Elektronik führen könnten. Für auf QPen basierende elektronische Speicher eröffnet die erfolgreiche Herstellung von $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ QPen einen neuen Materialpfad zur Verwirklichung einer persistenten Speicherung von Ladungsträgern. Die Loch-Lokalisation von 450 meV in $\text{In}_{0,25}\text{Ga}_{0,75}\text{As}/\text{GaP}$ QPen wird sich durch das Einbringen von $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{P}$ Barrieren um bis zu 500 meV steigern lassen, wodurch bisher unerreichte Speicherzeiten realisiert werden können (siehe Abbildung 2.2). Eine Weiterentwicklung des GaP-basierten Systems um Sb-haltige QPe ließe den persistenten QP-Speicher in greifbare Nähe rücken.

Literatur

- [1] J. Bardeen und W. Brattain, *The Transistor, A Semi-Conductor Triode*, Physical Review **74** (2), 230–231 (1948)
- [2] J. S. Kilby, *Miniaturized Electronic Circuits*, Schutzrecht US3,138,743 (US), 1964
- [3] H. Kroemer, *A proposed class of hetero-junction injection lasers*, Proceedings of the IEEE **51** (12), 1782–1783 (1963)
- [4] M. Börner, *Mehrstufiges Übertragungssystem für in Pulsmodulation dargestellter Nachrichten*, Schutzrecht DE1254513 (DE), 1967
- [5] Z. Alferov, *Double heterostructure lasers: early days and future perspectives*, IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics **6** (6), 832–840 (2000)
- [6] Cisco Systems Inc., *Visual Networking Index*, 2013
- [7] F. Mattern und C. Flörkemeier, *Vom Internet der Computer zum Internet der Dinge*, Informatik-Spektrum **33** (2), 107–121 (2010)
- [8] Y. Arakawa, *Multidimensional quantum well laser and temperature dependence of its threshold current*, Applied Physics Letters **40** (11), 939 (1982)
- [9] D. Bimberg, N. Kirstaedter, N. Ledentsov, Z. Alferov, P. Kop'ev und V. Ustinov, *InGaAs-GaAs quantum-dot lasers*, IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics **3** (2), 196–205 (1997)
- [10] D. Bimberg, *Quantum dots for lasers, amplifiers and computing*, Journal of Physics D: Applied Physics **38** (13), 2055–2058 (2005)
- [11] IHS Technology, *HDD vs. SSD: The Battle for PC Storage Supremacy Continues*, 2013
- [12] R. Bez, E. Camerlenghi, A. Modelli und A. Visconti, *Introduction to Flash Memory*, Proceedings of the IEEE **91** (4), 489–502 (2003)

- [13] Solid State Storage Initiative, *Solid State Storage 101 - An introduction to Solid State Storage*, 2009
- [14] G. Moore, *Cramming More Components Onto Integrated Circuits*, Proceedings of the IEEE **86** (1), 82–85 (1998)
- [15] N. Chatterjee, M. Shevgoor, R. Balasubramonian, A. Davis, Z. Fang, R. Illikkal und R. Iyer, *Leveraging Heterogeneity in DRAM Main Memories to Accelerate Critical Word Access*, in: *2012 45th Annual IEEE/ACM International Symposium on Microarchitecture*, IEEE, 2012, 13–24, ISBN: 978-1-4673-4819-5
- [16] V. Cuppu, B. Jacob, B. Davis und T. Mudge, *A performance comparison of contemporary DRAM architectures*, in: *Proceedings of the 26th International Symposium on Computer Architecture (Cat. No.99CB36367)*, IEEE Comput. Soc. Press, 222–233, ISBN: 0-7695-0170-2
- [17] *International Technology Roadmap for Semiconductors, 2009 Edition*, Techn. Ber., 2009
- [18] K. Strauss und D. Burger, *What the Future Holds for Solid-State Memory*, Computer **47** (1), 24–31 (2014)
- [19] A. Badam, *How Persistent Memory Will Change Software Systems*, Computer **46** (8), 45–51 (2013)
- [20] A. Marent, T. Nowozin, M. Geller und D. Bimberg, *The QD-Flash: a quantum dot-based memory device*, Semiconductor Science and Technology **26** (1), 14026 (2011)
- [21] M. Geller, A. Marent, T. Nowozin, D. Bimberg, N. Akcay und N. Öncan, *A write time of 6 ns for quantum dot-based memory structures*, Applied Physics Letters **92**, 92108 (2008)
- [22] T. Nowozin, A. Beckel, D. Bimberg, A. Lorke und M. Geller, *3 ns single-shot read-out in a quantum dot-based memory structure*, Applied Physics Letters **104** (5), 053111 (2014)
- [23] A. Marent, M. Geller, A. Schliwa, D. Feise, K. Pötschke, D. Bimberg, N. Akcay und N. Öncan, *10^6 years extrapolated hole storage time in GaSb/AlAs quantum dots*, Applied Physics Letters **91**, 242109 (2007)

- [24] T. Nowozin, D. Bimberg, K. Daqrouq, M. N. Ajour und M. Awedh, *Materials for Future Quantum Dot-Based Memories*, Journal of Nanomaterials **2013** (215613), 1–6 (2013)
- [25] Y. Song, P. J. Simmonds und M. L. Lee, *Self-assembled $\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{As}$ quantum dots on GaP*, Applied Physics Letters **97** (22), 223110 (2010)
- [26] T. Nguyen Thanh, C. Robert, C. Cornet, M. Perrin, J. M. Jancu, N. Bertru, J. Even, N. Chevalier, H. Folliot, O. Durand und A. Le Corre, *Room temperature photoluminescence of high density $(\text{In,Ga})\text{As}/\text{GaP}$ quantum dots*, Applied Physics Letters **99** (14), 143123 (2011)
- [27] M. Heidemann, S. Höfling und M. Kamp, *$(\text{In,Ga})\text{As}/\text{GaP}$ electrical injection quantum dot laser*, Applied Physics Letters **104** (1), 011113 (2014)
- [28] A. Beyer, J. Ohlmann, S. Liebich, H. Heim, G. Witte, W. Stolz und K. Volz, *GaP heteroepitaxy on $\text{Si}(001)$: Correlation of Si-surface structure, GaP growth conditions, and Si-III/V interface structure*, Journal of Applied Physics **111** (8), 083534 (2012)
- [29] Y. Song und M. Larry Lee, *InGaAs/GaP quantum dot light-emitting diodes on Si*, Applied Physics Letters **103** (14), 141906 (2013)
- [30] C. Robert, M. O. Nestoklon, K. Pereira da Silva, L. Pedesseau, C. Cornet, M. I. Alonso, A. R. Goñi, P. Turban, J.-M. Jancu, J. Even und O. Durand, *Strain-induced fundamental optical transition in $(\text{In,Ga})\text{As}/\text{GaP}$ quantum dots*, Applied Physics Letters **104** (1), 011908 (2014)
- [31] C. Robert, C. Cornet, P. Turban, T. Nguyen Thanh, M. O. Nestoklon, J. Even, J. M. Jancu, M. Perrin, H. Folliot, T. Rohel, S. Tricot, A. Balocchi, D. Lagarde, X. Marie, N. Bertru, O. Durand und A. Le Corre, *Electronic, optical, and structural properties of $(\text{In,Ga})\text{As}/\text{GaP}$ quantum dots*, Physical Review B **86** (20), 205316 (2012)
- [32] A. J. Williamson, A. Franceschetti, H. Fu, L. W. Wang und A. Zunger, *Indirect band gaps in quantum dots made from direct-gap bulk materials*, Journal of Electronic Materials **28** (5), 414–425 (1999)

- [33] J. Y. Kim, O. Voznyy, D. Zhitomirsky und E. H. Sargent, *25th anniversary article: Colloidal quantum dot materials and devices: a quarter-century of advances*. Advanced materials (Deerfield Beach, Fla.) **25** (36), 4986–5010 (2013)
- [34] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C. M. Reeves, S. P. Denbaars und P. M. Petroff, *Direct formation of quantum-sized dots from uniform coherent islands of InGaAs on GaAs surfaces*, Applied Physics Letters **63** (23), 3203 (1993)
- [35] M. Grundmann, O. Stier und D. Bimberg, *InAs/GaAs pyramidal quantum dots: Strain distribution, optical phonons, and electronic structure*, Physical Review B **52** (16), 11969–11981 (1995)
- [36] S. Fafard, Z. Wasilewski, J. McCaffrey, S. Raymond und S. Charbonneau, *InAs self-assembled quantum dots on InP by molecular beam epitaxy*, Applied Physics Letters **68** (7), 991 (1996)
- [37] N. Carlsson, T. Junno, L. Montelius, M.-E. Pistol, L. Samuelson und W. Seifert, *Growth of self-assembled InAs and InAs_xP_{1-x} dots on InP by metalorganic vapour phase epitaxy*, Journal of Crystal Growth **191** (3), 347–356 (1998)
- [38] M. Reed, J. Randall, R. Aggarwal, R. Matyi, T. Moore und A. Wetsel, *Observation of discrete electronic states in a zero-dimensional semiconductor nanostructure*, Physical Review Letters **60** (6), 535–537 (1988)
- [39] L. P. Kouwenhoven, N. C. Vaart, A. T. Johnson, W. Kool, C. J. P. M. Harmans, J. G. Williamson, A. A. M. Staring und C. T. Foxon, *Single electron charging effects in semiconductor quantum dots*, Zeitschrift für Physik B Condensed Matter **85** (3), 367–373 (1991)
- [40] M. Field, C. Smith, M. Pepper, D. Ritchie, J. Frost, G. Jones und D. Hasko, *Measurements of Coulomb blockade with a noninvasive voltage probe*, Physical Review Letters **70** (9), 1311–1314 (1993)
- [41] I. Vurgaftman, J. R. Meyer und L. R. Ram-Mohan, *Band parameters for III–V compound semiconductors and their alloys*, Journal of Applied Physics **89** (11), 5815 (2001)
- [42] A. Schliwa, M. Winkelkemper und D. Bimberg, *Impact of size, shape, and composition on piezoelectric effects and electronic properties of In(Ga)As/GaAs quantum dots*, Physical Review B **76** (20), 205324 (2007)

- [43] A. Schliwa, *Electronic Properties of Self-Organized Quantum Dots*, Diss., Technische Universität Berlin, 2007
- [44] J. Chelikowsky und M. Cohen, *Nonlocal pseudopotential calculations for the electronic structure of eleven diamond and zinc-blende semiconductors*, Physical Review B **14** (2), 556–582 (1976)
- [45] P. Lawaetz, *Camel’s back structure of the conduction band in GaP*, Solid State Communications **16** (1), 65–67 (1975)
- [46] M. Geller, A. Marent, E. Stock, D. Bimberg, V. I. Zubkov, I. S. Shulgunova und A. V. Solomonov, *Hole capture into self-organized InGaAs quantum dots*, Applied Physics Letters **89**, 232105 (2006)
- [47] R. T. H. Nowozin, *Electronic properties of and carrier dynamics in self-organized quantum dots for memories*, Dissertation, Technische Universität Berlin, 2013
- [48] U. W. Pohl, *Epitaxy of Semiconductors*, Graduate Texts in Physics, Berlin, Heidelberg: Springer, 2013, ISBN: 978-3-642-32969-2
- [49] A. Riposan, J. Mirecki Millunchick und C. Pearson, *Strain mediated reconstructions and indium segregation on InGaAs/GaAs(001) alloy surfaces at intermediate lattice mismatch*, Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films **24** (6), 2041 (2006)
- [50] G. B. Stringfellow, *Organometallic Vapor-Phase Epitaxy: Theory and Practice*, 2. Aufl., San Diego: Academic Press, 1999, ISBN: 0-12-673842-4
- [51] C. Ratcliff, T. J. Grassman, J. A. Carlin und S. A. Ringel, *High temperature step-flow growth of gallium phosphide by molecular beam epitaxy and metal-organic chemical vapor deposition*, Applied Physics Letters **99** (14), 141905 (2011)
- [52] F. Heinrichsdorff, *MOCVD growth and laser applications of In(Ga)As/GaAs Quantum Dots*, Diss., 1997
- [53] C. Heyn, *Stability of InAs quantum dots*, Physical Review B **66** (7) (2002)
- [54] K. Pötschke, L. Müller-Kirsch, R. Heitz, R. L. Sellin, U. W. Pohl, D. Bimberg, N. Zakharov und P. Werner, *Ripening of self-organized InAs quantum dots*, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures **21** (2-4), 606–610 (2004)

- [55] T. I. Kamins, E. C. Carr, R. S. Williams und S. J. Rosner, *Deposition of three-dimensional Ge islands on Si(001) by chemical vapor deposition at atmospheric and reduced pressures*, Journal of Applied Physics **81** (1), 211 (1997)
- [56] A. Raab und G. Springholz, *Oswald ripening and shape transitions of self-assembled PbSe quantum dots on PbTe (111) during annealing*, Applied Physics Letters **77** (19), 2991 (2000)
- [57] T. J. Krzyzewski und T. S. Jones, *Ripening and annealing effects in InAs/GaAs(001) quantum dot formation*, Journal of Applied Physics **96** (1), 668 (2004)
- [58] R. Leon, Y. Kim, C. Jagadish, M. Gal, J. Zou und D. J. H. Cockayne, *Effects of interdiffusion on the luminescence of InGaAs/GaAs quantum dots*, Applied Physics Letters **69** (13), 1888 (1996)
- [59] S. Malik, C. Roberts, R. Murray und M. Pate, *Tuning self-assembled InAs quantum dots by rapid thermal annealing*, Applied Physics Letters **71** (14), 1987 (1997)
- [60] Y. Varshni, *Temperature dependence of the energy gap in semiconductors*, Physica **34** (1), 149–154 (1967)
- [61] S. Rodt, *Exzitonische Komplexe in einzelnen III-V Quantenpunkten*, Diss., Technische Universität Berlin, 2006
- [62] F. Guffarth, *Elektronische Eigenschaften von In(Ga)As/GaAs Quantenpunkten*, hrsg. von C. Thomsen, D. Bimberg, M. Dähne und W. Richter, Berlin: Mensch-und-Buch-Verlag, 2003, ISBN: 3-89820-629-7
- [63] T. Warming, *Elektronische Struktur angeregter Zustände einzelner InAs-Quantenpunkte*, Diss., Technische Universität Berlin, 2009
- [64] G. Binnig und C. F. Quate, *Atomic Force Microscope*, Physical Review Letters **56** (9), 930–933 (1986)
- [65] F. J. Giessibl, *Advances in atomic force microscopy*, Reviews of Modern Physics **75** (3), 949–983 (2003)
- [66] G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber und E. Weibel, *Surface Studies by Scanning Tunneling Microscopy*, Physical Review Letters **49** (1), 57–61 (1982)

- [67] Ø. Fischer, M. Kugler, I. Maggio-Aprile, C. Berthod und C. Renner, *Scanning tunneling spectroscopy of high-temperature superconductors*, Reviews of Modern Physics **79** (1), 353–419 (2007)
- [68] Y. Nonogaki, T. Iguchi, S. Fuchi, Y. Fujiwara und Y. Takeda, *Nanometer-scale InAs islands grown on GaP (001) by organometallic vapor phase epitaxy*, Applied Surface Science **130-132**, 724–728 (1998)
- [69] B. Junno, T. Junno, M. S. Miller und L. Samuelson, *A reflection high-energy electron diffraction and atomic force microscopy study of the chemical beam epitaxial growth of InAs and InP islands on (001) GaP*, Applied Physics Letters **72** (8), 954 (1998)
- [70] R. Leon, C. Lobo, T. P. Chin, J. M. Woodall, S. Fafard, S. Ruvimov, Z. Liliental-Weber und M. A. S. Kalceff, *Self-forming InAs/GaP quantum dots by direct island growth*, Applied Physics Letters **72**, 1356–1358 (1998)
- [71] S. Fuchi, Y. Nonogaki, H. Moriya, Y. Fujiwara und Y. Takeda, *Effects of GaP Cap Layer Growth on Self-Assembled InAs Islands Grown on GaP (001) by Organometallic Vapor Phase Epitaxy*, Japanese Journal of Applied Physics **39**, 3290–3293 (2000)
- [72] H. Moriya, Y. Nonogaki, S. Fuchi, A. Koizumi, Y. Fujiwara und Y. Takeda, *Growth mode transition of InGaAs in OMVPE growth on GaP (001)*, Microelectronic Engineering **51-52**, 35–42 (2000)
- [73] S. Fuchi, Y. Nonogaki, H. Moriya, A. Koizumi, Y. Fujiwara und Y. Takeda, *Self-assembled InGaAs dots grown on GaP (001) substrate by low-pressure organometallic vapor phase epitaxy*, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures **7** (3-4), 855–859 (2000)
- [74] S. Fuchi, Y. Nonogaki, H. Moriya, A. Koizumi, Y. Fujiwara und Y. Takeda, *Composition dependence of energy structure and lattice structure in InGaAs/GaP*, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures **21** (1), 36–44 (2004)
- [75] J. Márquez, L. Geelhaar und K. Jacobi, *Atomically resolved structure of InAs quantum dots*, Applied Physics Letters **78** (16), 2309 (2001)

- [76] J. Belk, C. McConville, J. Sudijono, T. Jones und B. Joyce, *Surface alloying at InAs/GaAs interfaces grown on (001) surfaces by molecular beam epitaxy*, Surface Science **387** (1-3), 213–226 (1997)
- [77] O. Pulci, K. Lüdge, P. Vogt, N. Esser, W. G. Schmidt, W. Richter und F. Bechstedt, *First-principles study of InP and GaP(001) surfaces*, Computational Materials Science **22**, 32–37 (2001)
- [78] D. Li, K. Liu, H. Xiao, H. Dong und X. Zu, *First-principles study of GaP(001) surfaces*, Journal of Alloys and Compounds **440** (1-2), 229–235 (2007)
- [79] W. Schmidt, F. Bechstedt, K. Fleischer, C. Cobet, N. Esser, W. Richter, J. Bernholc und G. Onida, *GaAs(001): Surface Structure and Optical Properties*, physica status solidi (a) **188** (4), 1401–1409 (2001)
- [80] M. Rosini, P. Kratzer und R. Magri, *In adatom diffusion on $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}(001)$: effects of strain, reconstruction and composition*. Journal of physics. Condensed matter : an Institute of Physics journal **21** (35), 355007 (2009)
- [81] N. Grandjean und J. Massies, *Epitaxial growth of highly strained $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ on GaAs(001): the role of surface diffusion length*, Journal of Crystal Growth **134** (1-2), 51–62 (1993)
- [82] O. Flebbe, H. Eisele, T. Kalka, F. Heinrichsdorff, A. Krost, D. Bimberg und M. Dähne-Prietsch, *Atomic structure of stacked InAs quantum dots grown by metal-organic chemical vapor deposition*, Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures **17** (4), 1639 (1999)
- [83] H. Eisele, *Atomic structure of InAs and InGaAs quantum dots determined by cross-sectional scanning tunneling microscopy*, Journal of Crystal Growth **248**, 322–327 (2003)
- [84] C. Prohl, A. Lenz, D. Roy, J. Schuppang, G. Stracke, A. Strittmatter, U. W. Pohl, D. Bimberg, H. Eisele und M. Dähne, *Spatial structure of $\text{In}_{0.25}\text{Ga}_{0.75}\text{As}/\text{GaAs}/\text{GaP}$ quantum dots on the atomic scale*, Applied Physics Letters **102** (12), 123102 (2013)
- [85] C. Robert, *Study of III-V nanostructures on GaP for lasing emission on Si*, Diss., Université européenne de Bretagne, 2013

- [86] D. S. Abramkin, M. A. Putyato, S. A. Budennyi, A. K. Gutakovskii, B. R. Semyagin, V. V. Preobrazhenskii, O. F. Kolomys, V. V. Strelchuk und T. S. Shamirzaev, *Atomic structure and energy spectrum of Ga(As,P)/GaP heterostructures*, Journal of Applied Physics **112** (8), 083713 (2012)
- [87] J.-W. Lee, A. T. Schremer, D. Fekete, J. R. Shealy und J. M. Ballantyne, *Growth of direct bandgap GaInP quantum dots on GaP substrates*, Journal of Electronic Materials **26** (10), 1199–1204 (1997)
- [88] F. Hatami, W. Masselink, L. Schrottke, J. Tömm, V. Talalaev, C. Kristukat und A. Goñi, *InP quantum dots embedded in GaP: Optical properties and carrier dynamics*, Physical Review B **67** (8), 085306 (2003)
- [89] C. M. A. Kapteyn, M. Lion, R. Heitz, D. Bimberg, P. N. Brunkov, B. V. Volovik, S. G. Konnikov, A. R. Kovsh und V. M. Ustinov, *Hole and electron emission from InAs quantum dots*, Applied Physics Letters **76** (12), 1573 (2000)
- [90] A. Marent, M. Geller, D. Bimberg, A. P. Vasi'ev, E. S. Semenova, A. E. Zhukov und V. M. Ustinov, *Carrier storage time of milliseconds at room temperature in self-organized quantum dots*, Applied Physics Letters **89**, 72103 (2006)
- [91] S. Anand, N. Carlsson, M.-E. Pistol, L. Samuelson und W. Seifert, *Electrical characterization of InP/GaInP quantum dots by space charge spectroscopy*, Journal of Applied Physics **84** (7), 3747 (1998)
- [92] M. Geller, C. Kapteyn, L. Müller-Kirsch, R. Heitz und D. Bimberg, *450 meV hole localization in GaSb/GaAs quantum dots*, Applied Physics Letters **82**, 2706–2708 (2003)
- [93] T. Nowozin, L. Bonato, A. Högner, A. Wiengarten, D. Bimberg, W.-H. Lin, S.-Y. Lin, C. J. Reyner, B. L. Liang und D. L. Huffaker, *800 meV localization energy in GaSb/GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As quantum dots*, Applied Physics Letters **102** (5), 052115 (2013)
- [94] T. Nowozin, A. Marent, M. Geller, D. Bimberg, N. Akcay und N. Öncan, *Temperature and electric field dependence of the carrier emission processes in a quantum dot-based memory structure*, Applied Physics Letters **94**, 42108 (2009)

- [95] J. Bourgoin und M. Lannoo, *Point Defects in Semiconductors II - Experimental Aspects*, hrsg. von M. Cardona, P. Fulde und H.-J. Queisser, Berlin, Heidelberg, New York: Springer, 1983, ISBN: 3-540-11515-3
- [96] D. V. Lang, *Deep-level transient spectroscopy: A new method to characterize traps in semiconductors*, Journal of Applied Physics **45** (7), 3023 (1974)
- [97] M. P. Geller, *Investigation of Carrier Dynamics in Self-Organized Quantum Dots for Memory Devices*, Diss., Technische Universität Berlin, 2007
- [98] O. Madelung, U. Rössler und M. Schulz, Hrsg., *Impurities and Defects in Group IV Elements, IV-IV and III-V Compounds. Part b: Group IV-IV and III-V Compounds*. Bd. b, Landolt-Börnstein - Group III Condensed Matter, Berlin/Heidelberg: Springer-Verlag, 2003, ISBN: 3-540-43086-5
- [99] T. Nowozin, A. Marent, L. Bonato, A. Schliwa, D. Bimberg, E. Smakman, J. Garleff, P. Koenraad, R. Young und M. Hayne, *Linking structural and electronic properties of high-purity self-assembled GaSb/GaAs quantum dots*, Physical Review B **86** (3), 035305 (2012)
- [100] A. Kley, P. Ruggerone und M. Scheffler, *Novel Diffusion Mechanism on the GaAs(001) Surface: The Role of Adatom-Dimer Interaction*, Physical Review Letters **79** (26), 5278–5281 (1997)
- [101] L. Müller-Kirsch, A. Schliwa, O. Stier, R. Heitz, H. Kirmse, W. Neumann und D. Bimberg, *State Filling in Type II Quantum Dots*, physica status solidi (b) **224** (2), 349–352 (2001)
- [102] M. Feucker, R. Seguin, S. Rodt, A. Hoffmann und D. Bimberg, *Decay dynamics of neutral and charged excitonic complexes in single InAs/GaAs quantum dots*, Applied Physics Letters **92** (6), 063116 (2008)
- [103] D. R. Wight, *Intrinsic and extrinsic edge luminescence in epitaxial GaP*, Journal of Physics C: Solid State Physics **1**, 1759–1767 (1968)
- [104] D. Bimberg, M. Sondergeld und E. Grobe, *Thermal Dissociation of Excitons Bounds to Neutral Acceptors in High-Purity GaAs*, Physical Review B **4** (10), 3451–3455 (1971)
- [105] R. Heitz, I. Mukhametzhanov, A. Madhukar, A. Hoffmann und D. Bimberg, *Temperature dependent optical properties of self-organized InAs/GaAs quantum dots*, Journal of Electronic Materials **28** (5), 520–527 (1999)

- [106] R. Zimmermann und E. Runge, *Excitons in Narrow Quantum Wells: Disorder Localization and Luminescence Kinetics*, physica status solidi (a) **164** (1), 511–516 (1997)
- [107] S. Sanguinetti, M. Henini, M. Grassi Alessi, M. Capizzi, P. Frigeri und S. Franchi, *Carrier thermal escape and retrapping in self-assembled quantum dots*, Physical Review B **60** (11), 8276–8283 (1999)
- [108] X. L. Zhou, Y. H. Chen, C. H. Jia, X. L. Ye, B. Xu und Z. G. Wang, *Interplay effects of temperature and injection power on photoluminescence of InAs/GaAs quantum dot with high and low areal density*, Journal of Physics D: Applied Physics **43** (48), 485102 (2010)
- [109] F. Guffarth, R. Heitz, A. Schliwa, O. Stier, N. Ledentsov, A. Kovsh, V. Ustinov und D. Bimberg, *Strain engineering of self-organized InAs quantum dots*, Physical Review B **64** (8), 085305 (2001)
- [110] A. Hospodková, M. Zíková, J. Pangrác, J. Oswald, K. Kuldová, J. Vyskočil und E. Hulicius, *Graded GaAsSb strain reducing layers covering InAs/GaAs quantum dots*, Journal of Crystal Growth **370**, 303–306 (2013)
- [111] F. Guffarth, S. Rodt, A. Schliwa, K. Pötschke und D. Bimberg, *Many-particle effects in self-organized quantum dots*, Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures **25** (2-3), 261–270 (2004)
- [112] N. Ledentsov, J. Böhrer, M. Beer, F. Heinrichsdorff, M. Grundmann, D. Bimberg, S. Ivanov, B. Meltser, S. Shaposhnikov, I. Yassievich, N. Faleev, P. Kop'ev und Z. Alferov, *Radiative states in type-II GaSb/GaAs quantum wells*, Physical Review B **52** (19), 14058–14066 (1995)
- [113] F. Hatami, M. Grundmann, N. N. Ledentsov, F. Heinrichsdorff, R. Heitz, J. Böhrer, D. Bimberg, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev und Z. I. Alferov, *Carrier dynamics in type-II GaSb/GaAs quantum dots*, Physical Review B **57** (8), 4635–4641 (1998)
- [114] V. Shchukin, N. Ledentsov, P. Kop'ev und D. Bimberg, *Spontaneous Ordering of Arrays of Coherent Strained Islands*, Physical Review Letters **75** (16), 2968–2971 (1995)

- [115] L. Wang, P. Kratzer, N. Moll und M. Scheffler, *Size, shape, and stability of InAs quantum dots on the GaAs (001) substrate*, Physical Review B **62** (3), 1897–1904 (2000)
- [116] M. Bayer und A. Forchel, *Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in $\text{In}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}\text{As}/\text{GaAs}$ self-assembled quantum dots*, Physical Review B **65** (4), 041308 (2002)
- [117] A. Strittmatter, A. Holzbecher, A. Schliwa, J.-H. Schulze, D. Quandt, T. D. Germann, A. Dreismann, O. Hitzemann, E. Stock, I. A. Ostapenko, S. Rodt, W. Unrau, U. W. Pohl, A. Hoffmann, D. Bimberg und V. Haisler, *Site-controlled quantum dot growth on buried oxide stressor layers*, physica status solidi (a) **209** (12), 2411–2420 (2012)
- [118] C. Schneider, A. Huggenberger, M. Gschrey, P. Gold, S. Rodt, A. Forchel, S. Reitzenstein, S. Höfling und M. Kamp, *In(Ga)As/GaAs site-controlled quantum dots with tailored morphology and high optical quality*, physica status solidi (a) **209** (12), 2379–2386 (2012)

Danksagung

Ich danke allen, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben:

- Prof. Dr. Dieter Bimberg für die Möglichkeit, diese Arbeit in seiner Arbeitsgruppe anzufertigen, die Bereitstellung exzellenter Arbeits- und Forschungsbedingungen und die Betreuung meiner Promotion.
- PD Dr. André Strittmatter für viele Diskussionen und Anregungen zum Thema dieser Arbeit und zur Epitaxie im Allgemeinen, sowie für beständige Unterstützung bei der alltäglichen Forschungsarbeit. Nicht zuletzt vielen Dank für das Korrekturlesen.
- Prof. Dr. Udo W. Pohl für viele anregende Diskussionen und Denkanstöße.
- Prof. Dr. Armin Dadgar für die Übernahme des Zweitgutachtens.
- Dr. Konstantin Pötschke für die Einarbeitung an der MOVPE-Anlage und Hilfe beim Einstieg in die Epitaxie.
- Alexander Glacki, Bertram Jaeger und Elisa Maddalena Sala für die gemeinsamen Anstrengungen zur Herstellung der $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaP}$ Quantenpunkte.
- Dem Rest des Epitaxie-Teams: Tim David Germann, Jan-Hindrik Schulze und David Quandt für gute und angenehme Zusammenarbeit und gegenseitige Hilfe. Jan und David einen extra Dank für Entwicklung und Pflege des Online-Laborbuchs. Kathrin Schatke für technische Unterstützung und gut gewartete Anlagen.
- Dr. Sven Rodt, Dr. Irina A. Ostapenko und Manuel Gschrey für die Kathodolumineszenzmessungen.
- Dr. Tobias Nowozin und Leo Bonato für die DLTS Messungen.

- Christopher Prohl, Dr. Andrea Lenz und PD Dr. Holger Eisele für die STM Messungen.
- Dr. Tore Niermann und Sören Selve für die TEM Aufnahmen.
- Dr. Andrei Schliwa für die Acht-Band $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ Simulationen.
- Dr. Cédric Robert für die Tight-Binding Rechnungen.
- Allen Mitgliedern der AG Bimberg und des Instituts für Festkörperphysik für eine gute Arbeitsatmosphäre und gegenseitige Unterstützung.