

Konzepte zur Erhöhung der Lichtausbeute in Halbleiter-Lichtemittern

Dipl.-Phys. Matthias Dworzak
aus Halle/Saale

Von der Fakultät II (Mathematik und Naturwissenschaften)
der Technischen Universität Berlin
zur Erlangung des akademischen Grades
“Doktor der Naturwissenschaften” (Dr. rer. nat.)
genehmigte Dissertation.

Prüfungsvorsitzender: Prof. Dr. E. Sedlmayr

Berichter: Priv. Doz. Dr. A. Hoffmann
Prof. Dr. M. Kneissl

Tag der wissenschaftlichen Aussprache: 3. Juli 2007

Berlin 2007

D 83

Zusammenfassung

In dieser Arbeit werden vier Konzepte zur Erhöhung der internen Quanteneffizienz am Beispiel der Mischhalbleiter GaInNAs und InGaN untersucht. Die Ergebnisse wurden mittels zum Teil zeit- und orts aufgelöster Photolumineszenzspektroskopie und optischer Gewinn-spektroskopie erzielt und mit strukturellen und theoretischen Untersuchungen verglichen. Die durch den Einbau von Stickstoff stark reduzierte Lichtausbeute von infrarot emittierenden GaInNAs-Quantenfilmstrukturen kann durch ein thermisches Ausheilen nach dem Wachstum enorm verbessert werden. Dabei ist die geschickte Kombination von Wachstums- und Ausheilprozess entscheidend. Defekte, die als nichtstrahlende Rekombinationszentren wirken, können durch das Ausheilen unter zwei verschiedenen Ausheilatmosphären (Argon oder Wasserstoff) deutlich reduziert werden. Der Einbau zweier Defektypen unterschiedlichen mikroskopischen Ursprungs führt dazu, dass sich die Lichtausbeute der bei tiefen Temperaturen abgeschiedene QWs ausschließlich durch das Wasserstoffausheilen erhöhen lässt, während für die bei höheren Temperaturen hergestellten QWs das Ausheilen unter Argon effizienter ist. Eine bisher angenommene Bedeutung der Homogenisierung der chemischen Zusammensetzung im QW für die Erhöhung der Lichtausbeute kann erstmals widerlegt werden.

Auch für InGaN-Schichten in blau/ultraviolett emittierenden Laserdioden (LD) spielt die Anzahl der Kristalldefekte, insbesondere die Versetzungsdichte, eine entscheidende Rolle für die Lichtausbeute. Im Gegensatz zu InGaN-Leuchtdioden wird diese bei hohen Anregungsdichten in einer InGaN-LD nicht durch Lokalisierungseffekte, sondern durch die Sättigung bzw. Abschirmung der in InGaN reichlich vorhandenen nichtstrahlenden Rekombinationszentren durch angeregte Ladungsträger bestimmt. Daher führt die Verringerung der Versetzungsdichte durch das homoepitaktische Wachstum auf hochwertigen GaN-Substraten zu einer deutlich geringeren Laserschwelle.

Neben den Lokalisierungseffekten bestimmen interne elektrische Felder die optischen Eigenschaften von InGaN. Diese können durch die Dotierung mit 10^{19} cm^{-3} Si-Donatoren abgeschirmt werden. Feldfreie InGaN-Schichten zeigen daher keine Blauverschiebung mit zunehmender Anregungsdichte.

Der Einsatz von Quantenpunkten (QP) mit dem Ziel, geringere Schwellstromdichten und eine höhere Temperaturstabilität der Lichtausbeute in InGaN-LDs zu erreichen, wird anhand eines InGaN-QP-Ensembles hoher lateraler Dichte (10^{11} cm^{-2}) untersucht. Die Ausnutzung der QP-Eigenschaften wird allerdings durch die geringen Lokalisierungsenergien begrenzt. Die untersuchten 3 bis 5 nm großen InGaN-Fluktuationsinseln verlieren aufgrund ihres geringen Indiumgehalts ihre QP-Eigenschaften bereits bei ca. 130 K. Untersuchungen der Rekombinationsdynamik einzelner InGaN-QPe und deren Simulation mittels der Acht-Band- $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Theorie zeigen außerdem, dass sich InGaN-QPe grundsätzlich von anderen QP-Systemen unterscheiden. Die ungeordnete Verteilung der strukturellen QP-Parameter führt zu einer inhomogen verbreiterten Verteilung der exzitonischen Lebensdauern im QP-Ensemble. Mittels eines einfachen statistischen Ansatzes kann deren Verteilungsfunktion aus den experimentellen Ergebnissen bestimmt werden. Dies ermöglicht erstmals eine vollständige Beschreibung der Rekombinationsdynamik in InGaN-QPen.

Nachstehend aufgeführte Veröffentlichungen enthalten Teile der vorliegenden Dissertation:

M. Dworzak, T. Stempel Pereira, M. Bügler, A. Hoffmann, G. Franssen, S. Grzanka, T. Suski, R. Czernecki, M. Leszczynski, and I. Grzegory, *Gain mechanisms in field-free InGaN quantum wells grown on sapphire and bulk GaN substrate*, Physica Status Solidi - Rapid Research Letters **1**, 141 (2007).

M. Dworzak, R. Hildebrant, A. Hoffmann, L. Geelhaar, M. Galluppi, H. Riechert, T. Remmele, M. Albrecht, *On the origin of the unexpected annealing behavior of GaInNAs quantum wells*, Japanese Journal of Applied Physics **46**, L614 (2007)

L. Geelhaar, M. Galluppi, G. Jaschke, R. Aeverbeck, H. Riechert, T. Remmele, M. Albrecht, *M. Dworzak*, R. Hildebrant, A. Hoffmann, *Influence of structural nonuniformity and nonradiative processes on the luminescence efficiency of InGaAsN quantum wells*, Applied Physics Letters **88**, 11903 (2006).

M. Dworzak, T. Stempel, A. Hoffmann, G. Franssen, S. Grzanka, T. Suski, R. Czernecki, M. Leszczynski, and I. Grzegory, *Luminescence efficiency of InGaN/GaN quantum wells on bulk GaN substrate*, Material Research Society Symposium Proceedings **892**, 825 (2006).

M. Dworzak, T. Stempel, A. Hoffmann, G. Franssen, S. Grzanka, T. Suski, R. Czernecki, M. Leszczynski, I. Grzegory, *Optical properties of InGaN/GaN quantum wells on sapphire and bulk GaN substrate*, Physica Status Solidi (c) **6**, 2078-81 (2006).

M. Dworzak, T. Bartel, M. Strassburg, A. Hoffmann, A. Strittmatter, D. Bimberg, *Redistribution of excitons localized in InGaN quantum dot structures*, AIP Conf. Proc. **772**, 701 (2005).

M. Dworzak, T. Bartel, M. Strassburg, I. L. Krestnikov, A. Hoffmann, R. Seguin, S. Rodt, A. Strittmatter, D. Bimberg, *Optical Properties of InGaN Quantum Dots*, Superlattices and Microstructures **36**, 763-72 (2004).

T. Bartel, M. Dworzak, M. Strassburg, A. Hoffmann, A. Strittmatter, D. Bimberg, *Recombination dynamics of localized excitons in InGaN quantum dots*, Applied Physics Letters **85**, 1946 (2004).

Weitere Veröffentlichungen des Autors:

S. Siebentritt, I. Beckers, T. Riemann, J. Christen, A. Hoffmann, M. Dworzak, *Reconciliation of luminescence and Hall measurements on the ternary semiconductor CuGaSe₂*, Applied Physics Letters **86**, 91909 (2005).

S. Reich, M. Dworzak, A. Hoffmann, C. Thomsen, M. S. Strano, *Excited-state carrier lifetime in single-walled carbon nanotubes*, Physical Review B **71**, 33402 (2005).

M. Dworzak, P. Zimmer, H. Born, A. Hoffmann, *Dephasing and energy relaxation processes in self-assembled In(Ga)As/GaAs quantum dots*, AIP Conf. Proc. **772**, 633 (2005).

C. Kristukat, M. Dworzak, A. R. Goni, P. Zimmer, F. Hatami, S. Dressler, A. Hoffmann, W. T. Masselink, C. Thomsen, *Recombination dynamics in self-assembled InP/GaP quantum dots under high pressure*, Physica Status Solidi (b) **241**, 3263-8 (2004).

A. V. Rodina, M. Strassburg, M. Dworzak, U. Haboeck, A. Hoffmann, A. Zeuner, H. R. Alves, D. M. Hofmann, B. K. Meyer, *Magneto-optical properties of bound excitons in ZnO*, Phys. Rev. B **69**, 125206 (2004).

M. Strassburg, A. Rodina, M. Dworzak, U. Haboeck, I.L. Krestnikov, A. Hoffmann, O. Gelhausen, M.R. Phillips, H.R. Alves, A. Zeuner, D.M. Hofmann, B.K. Meyer, *Identification of bound exciton complexes in ZnO*, Physica Status Solidi (b) **241**, 607-611 (2004).

B. K. Meyer, H. Alves, D. M. Hofmann, W. Kriegseis, D. Forster, F. Bertram, J. Christen, A. Hoffmann, M. Straßburg, M. Dworzak, U. Haboeck, A. V. Rodina, *Bound*

exciton and donor-acceptor pair recombinations in ZnO, Physica Status Solidi (b) **241**, 231-260 (2004).

S. Rodt, V. Türck, F. Guffarth, R. Engelhardt, U. W. Pohl, M. Stassburg, M. Dworzak, A. Hoffmann, D. Bimberg, *Lateral carrier transfer in $Cd_xZn_{1-x}Se/ZnS_ySe_{1-y}$ quantum dot layers*, Physical Review B **67**, 235327-1-7 (2003).

A. Zeuner, H. Alves, D.M. Hofmann, B.K. Meyer, A. Hoffmann, U. Haboeck, M. Strassburg, M. Dworzak, *Optical Properties of the Nitrogen Acceptor in Epitaxial ZnO*, Physica Status Solidi (b) **234**, R7-R9 (2002).

P. M. Ravailov, M. Dworzak, C. Thomsen, *Luminescence and Raman spectroscopy on MgB_2* , Solid State Communications **122**, 455-8 (2002).

M. Strassburg, M. Dworzak, H. Born, R. Heitz, A. Hoffmann, M. Bartels, K. Lischka, D. Schikora, J. Christen, *Lateral redistribution of excitons in CdSe/ZnSe quantum dots*, Applied Physics Letters **80**, 473 (2002).

M. Strassburg, J. Christen, M. Dworzak, R. Heitz, A. Hoffmann, M. Bartels, K. Lischka, D. Schikora, *Analysis of Quantum Dot Formation and Exciton Localisation in the (Zn, Cd) (S, Se) System*, physica status solidi (b) **229**, 529-523 (2002).

M. Strassburg, M. Dworzak, R. Heitz, A. Hoffmann, J. Christen, D. Schikora, *Redistribution of localized excitons in CdSe/ZnSe quantum dot structures*, Material Science & Engineering B **88**, 1 (2002).

M. Strassburg, M. Dworzak, A. Hoffmann, R. Heitz, U.W. Pohl, D. Bimberg, D. Litvinov, A. Rosenauer, D. Gerthsen, I. Kudryashov, K. Lischka, D. Schikora, *Resonant Gain in ZnSe Structures with Stacked CdSe Islands Grown in Stranski-Krastanov Mode*, physica status solidi (a) **180**, 281-285 (2000).

INHALTSVERZEICHNIS

1. Einführung	16
1.1 Einführung in das Themengebiet	16
1.2 Zielstellung dieser Arbeit	18
1.3 Aufbau der Arbeit	20
2. Grundlagen	22
2.1 Die Dynamik exzitonischer Übergänge	22
2.1.1 Exzitonen	22
2.1.2 Rekombinationsdynamik	24
2.2 Heterostrukturen als aktive Schichten in Halbleiterlasern	25
2.2.1 Doppel-Heterostruktur	25
2.2.2 Niederdimensionale Heterostrukturen	26
2.3 Der quaternäre Verbindungshalbleiter GaInNAs	28
2.3.1 Die Bandstruktur von $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$	28
2.3.2 GaInNAs/GaAs-Heterostrukturen	32
2.3.3 Defekte, nichtstrahlende Rekombination, thermisches Ausheilen	33
2.4 Der ternäre Verbindungshalbleiter InGaN	33
2.4.1 Interne elektrische Felder	34
2.4.2 Lokalisierungseffekte	35
2.4.3 Optische Eigenschaften von InGaN/GaN-Heterostrukturen	38
2.4.4 InGaN-Quantenpunkte	41
2.4.5 Neue Konzepte: GaN-Substrate, feldfreie Strukturen	42

3. Experimentelle Realisierung	44
3.1 Zeitintegrierte Photolumineszenz	44
3.1.1 Das Kühlsystem	44
3.1.2 Anregung und Nachweis	45
3.2 Zeitaufgelöste Photolumineszenz	45
3.2.1 Anregung	47
3.2.2 Nachweissystem	48
3.2.3 Auswertung der Transienten	49
3.3 Spektroskopie an einzelnen Quantenpunkten	49
3.4 Gewinnspektroskopie - Die Strichlängen-Methode	52
4. Die Lichtausbeute in GaInNAs-Quantenfilmen	54
4.1 Der Einfluss der Wachstumstemperatur	56
4.2 Der Einfluss des Ausheilprozesses	67
5. Rekombinationsdynamik lokalisierter Exzitonen in feldfreien InGaN-Schichten	74
5.1 Rekombination lokalisierter Exzitonen bei tiefen Temperaturen	76
5.1.1 Zeitintegrierte PL	76
5.1.2 Zeitaufgelöste PL	79
5.2 Lateraler Transfer lokalisierter Exzitonen	79
5.3 Der Einfluss struktureller Eigenschaften auf die Temperaturstabilität der Lichtausbeute	81
6. Gewinnmechanismen in feldfreien InGaN-Quantenfilmen	85
6.1 Rekombinationsdynamik bei hohen Anregungsdichten	86
6.2 Der Einfluss der Versetzungsdichte auf den optischen Gewinn	89
7. InGaN-Quantenpunkte	94
7.1 Lumineszenzeigenschaften des Quantenpunkt-Ensembles	97
7.1.1 Emissionsverhalten bei tiefen Temperaturen	97

7.1.2	Das Verschwinden der Quantenpunkteigenschaften bei Raumtemperatur	97
7.1.3	Besonderheiten des PL-Abklingens	98
7.2	Rekombinationsdynamik in einzelnen Quantenpunkten	101
7.3	Die breite Verteilung der Exzitonen-Lebensdauern	102
7.3.1	Numerische Bestimmung der Verteilungsfunktion	102
7.3.2	Der Einfluss lateraler Transferprozesse	103
7.3.3	Nichtstrahlende Rekombination	106
7.4	Berechnung der Lebensdauern mittels der Acht-Band- $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Methode	108
7.4.1	Der Modell-Quantenpunkt	109
7.4.2	Einfluss der strukturellen Quantenpunkt-Parameter auf die exzitoni- sche Lebensdauer	111
8.	Zusammenfassung	115
9.	Danksagung	119
	Anhang	134
A.	Mathematica-Skript zur numerischen Laplace-Retransformation	135

ABBILDUNGSVERZEICHNIS

1.1	Leuchtdioden ersetzen herkömmliche Beleuchtungsmittel.	16
1.2	Auf Halbleiterlaser basierende moderne Display-Technologie (Nov).	17
2.1	Dispersion exzitonischer Zustände. (Yu99)	23
2.2	Schematische Darstellung der Anregung, Relaxation und Rekombination von Exzitonen.	24
2.3	Doppel-Heterostruktur.	25
2.4	Vergleich der Zustandsdichten in Heterostrukturen mit reduzierter Dimensionalität. (Alf01)	26
2.5	Normalisierte Temperaturabhängigkeit der Schwellstromdichte für Halbleiterlaser mit (a) einer klassischen DHS, (b) einem Quantenfilm, (c) Quantendrähten bzw. (d) Quantenpunkten in der aktiven Schicht. (Ara82)	28
2.6	Bandlücke verschiedener Halbleiter als Funktion der Gitterkonstante. (Kon96a)	29
2.7	Abhängigkeit der GaAsN-Bandlücke vom Stickstoffgehalt, experimentelle und theoretische Ergebnisse. (Buy01)	30
2.8	Photoreflexionsmessungen zeigen das Aufspalten des GaAs-Leitungsbandes E_0 in zwei Subbänder E_+ und E_- (Sha99a).	31
2.9	Modell der GaAsN-Bandstruktur nach dem <i>Band Anticrossing Model</i> . (Sha99b)	32
2.10	Einheitszelle der Wurtzitstruktur. Entlang der (0001)-Achse ergibt sich aufgrund des ionischen Charakters der Bindung ein Polarisationsfeld. (Hol01)	34
2.11	Schematische Darstellung des <i>Quantum Confined Stark Effect</i>	35
2.12	Löslichkeitskurve für Indium in GaN bzw. Gallium in InN. (Ho96)	36

2.13 Aus EDX-Untersuchungen bestimmter Indiumgehalt einer $\text{In}_{0,1}\text{Ga}_{0,9}\text{N}$ -Schicht. (Sel99)	36
2.14 Aus TEM bestimmter Indiumgehalt eines InGaN-Multi-Quantenfilms. (Kre02)	37
2.15 Schematische Darstellung der Lokalisierung in Verbindungshalbleitern mit inhomogener chemischer Zusammensetzung.	37
2.16 Zeitverzögerte PL-Spektren eines InGaN-Quantenfilms. (Nar97a)	39
2.17 Örtlich hochaufgelöste Kathodolumineszenz-Spektren zeigen die Emissions- linien diskreter InGaN-Quantenpunkt-Zustände. (Seg04a)	42
3.1 Aufbauskinne zur zeitintegrierten PL.	45
3.2 Aufbauskinne zur zeitaufgelösten PL	46
3.3 Schematischer Aufbau der μ -PL.	50
3.4 Raster-Elektronen-Mikroskop-Aufnahme der Platin-Maske mit einer 100 nm- und einer 200 nm-Apertur.	51
3.5 Das Prinzip der Strichlängenmethode.	52
4.1 Struktur der GaInNAs-Quantenfilm-Proben.	55
4.2 TEM-Dunkelfeldaufnahmen der Proben 402, 429 und 453 (chemisch sensi- tiver (002)-Reflex).	56
4.3 PL-Spektren der unbehandelten GaInNAs-Quantenfilme.	57
4.4 PL-Spektren der unbehandelten GaInNAs-Quantenfilme unter verschiede- nen Anregungsbedingungen	58
4.5 Die nicht exponentielle PL-Transiente der GaInNAs-Probe 453. Die experi- mentellen Werte wurden mit der Kohlrausch-Funktion (Gl. 4.1) angepasst.	59
4.6 Spektrale Abhängigkeit der Zeitkonstanten (Probe 429), mit Gl. 4.2 angepasst.	60
4.7 Prinzipskinne der Transferprozesse nach Gourdon und Lavallard (Gou89).	61
4.8 PL-Spektren des GaInNAs-Quantenfilms 453 bei verschiedenen Temperatu- ren zwischen 5 K und Raumtemperatur.	62
4.9 Temperaturabhängigkeit des PL-Maximums, mit Gl. 4.3 angepasst.	63
4.10 Prinzipskinne der thermisch aktivierten Umverteilung.	63

4.11	Integrale PL-Intensität der unbehandelten GaInNAs-Quantenfilme als Arrhenius-Plot.	64
4.12	PL-Abklingzeit τ , strahlende Lebensdauer τ_{rad} und nichtstrahlende Lebensdauer τ_{nr} der unbehandelten GaInNAs-Quantenfilme als Funktion der Temperatur.	65
4.13	PL-Spektren der bei 402°C abgeschiedenen GaInNAs-Quantenfilme.	67
4.14	PL-Spektren der bei 429°C abgeschiedenen GaInNAs-Quantenfilme.	68
4.15	PL-Spektren der bei 453°C abgeschiedenen GaInNAs-Quantenfilme.	69
4.16	Lichtausbeute der GaInNAs-Quantenfilme als Funktion der Wachstumstemperatur und des Ausheilprozesses.	69
4.17	Draufsicht-TEM der bei 402°C abgeschiedenen GaInNAs-Quantenfilme. . .	71
5.1	Struktur der feldfreien InGaN-Proben.	75
5.2	Tieftemperatur-PL-Spektren der InGaN-Schichten auf Saphir- bzw. GaN-Substrat.	76
5.3	PL-Transienten der InGaN-Schichten S4, G4, S9 und G9.	78
5.4	Spektrale Abhängigkeit des PL-Abklingens, angepasst mit Gl. 4.2.	80
5.5	PL-Spektren der Strukturen S9 und G9 bei verschiedenen Temperaturen von 5 K bis 300 K, Einsätze links oben: Integrale PL Intensitäten als Funktion der Temperatur.	80
5.6	PL-Maximum als Funktion der Temperatur (Symbole), zum Vergleich die Temperaturabhängigkeit der GaN-Bandlücke (Linie).	81
5.7	Temperaturabhängigkeit der strahlenden und nichtstrahlenden Lebensdauer.	83
6.1	PL-Transienten der Struktur S9 bei $T = 5\text{K}$ für verschiedene Anregungsdichten.	86
6.2	PL-Transienten der Struktur G9 bei $T = 5\text{K}$ für verschiedene Anregungsdichten.	87
6.3	PL-Transienten der Struktur S9 bei $T = 300\text{K}$ für verschiedene Anregungsdichten.	88

6.4	PL-Transienten der Struktur G9 bei $T = 300\text{K}$ für verschiedene Anregungsdichten.	88
6.5	Integrale PL-Intensität bei Helium- bzw. Raumtemperatur als Funktion der Intensität des anregenden Lasers (doppellogarithmische Darstellung). . . .	90
6.6	Hochanregungs-PL der Strukturen S9 und G9 bei Raumtemperatur.	91
6.7	Optischer Gewinn der Strukturen S9 und G9 bei Raumtemperatur unter jeweils zwei unterschiedlichen Anregungsdichten.	92
7.1	Struktur der InGaN-Quantenpunkt-Proben.	95
7.2	Die Querschnitts-TEM der Probe QP2, mit DALI ausgewertet, zeigt die Verteilung des Indiums in der InGaN-Schicht. (Seg04b)	96
7.3	PL-Spektren von zwei InGaN QP-Ensembles.	96
7.4	Energetische Position des PL-Maximums als Funktion der Temperatur, links unten: PL-Spektren bei verschiedenen Temperaturen.	97
7.5	PL-Transiente des InGaN QP-Ensembles, rechts oben: zeitintegrierte PL. . .	99
7.6	Eine höhere Anregungsintensität führt zu keiner Veränderung der PL-Transiente des InGaN-QP-Ensembles.	100
7.7	Zeitaufgelöste PL eines einzelnen QPs, (a) Transiente, auf bzw. neben der QP-Emission aufgenommen, (b) Untergrund-bereinigte Transiente des einzelnen QPs, (c) Lebensdauern einzelner QP-Zustände und Zeitkonstanten des QP-Ensembles.	101
7.8	Verteilungsfunktion der Exziton-Lebensdauern im QP-Subensemble, die mittels inverser Laplace-Transformation aus den gemessenen PL-Transienten gewonnen wurde.	104
7.9	Verteilungsfunktion der Exziton-Lebensdauern (Falschfarbendarstellung) und die gemessenen Lebensdauern einzelner Quantenpunkte (schwarze Punkte) als Funktion der Übergangsenergie.	104
7.10	Die Zeitkonstanten als Funktion der Übergangsenergie, τ_{max} und τ^* wurden mit Gl. 4.2 angepasst.	105

7.11	Temperaturabhängige Entwicklung der Lebensdauer-Verteilung zweier QP-Subensembles. Die Übergangsenergie bei Heliumtemperatur ist jeweils im PL-Spektrum gekennzeichnet.	107
7.12	Elektron- und Lochwellenfunktionen der Einteilchenzustände im InGaN-Quantenpunkt. (Win06b)	108
7.13	Darstellung der Quantenpunkt-Modellstruktur (Schnitt senkrecht und parallel zur InGaN-Schicht). (Win06b)	110
7.14	Die berechnete strahlende Lebensdauer als Funktion des Indiumgehalts. . .	112
7.15	Die berechnete strahlende Lebensdauer als Funktion der Quantenpunktgröße.	112
7.16	Verteilungsfunktion der Exziton-Lebensdauern (Falschfarbendarstellung) und die mittels Acht-Band- $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Theorie berechneten strahlenden Lebensdauern als Funktion der Übergangsenergie.	113

1. EINFÜHRUNG

1.1 Einführung in das Themengebiet

Seitdem 1962 die Erfindung der ersten Leuchtdiode (LED) (Hol62) die Geburtsstunde der Halbleiter-Optoelektronik einläutete und 1970 der erste Halbleiterlaser kontinuierlich bei Raumtemperatur emittierte (Alf71), haben lichtemittierende Halbleiter Einzug in immer mehr Bereiche des alltäglichen Lebens gehalten. Diese Entwicklung hat gerade in den letzten Jahren enorm an Dynamik gewonnen. Inzwischen gehört die Synthetisierung und Untersuchung neuer lichtemittierender Halbleitermaterialien zu den am intensivsten erforschten Gebieten der Festkörperphysik. Dazu trug nicht zuletzt die Entwicklung moderner Epitaxieverfahren wie die Molekularstrahl-Epitaxie (Cho71) und die Metallorganische Gasphasen-Epitaxie (Man68) bei. Wichtige Meilensteine waren außerdem 1993 die Realisierung der ersten blauen LED (Nak93) und 1996 die erste blau-violette Laserdiode (LD) (Nak96), beide mit InGaN in der aktiven Schicht. Durch Mischung aus den Grundfarben rot (AlGaAs), grün (GaP) und blau (InGaN) oder durch mit Phosphor versetzte InGaN-LEDs lässt sich weißes Licht erzeugen. LEDs ersetzen daher im zunehmenden Maße herkömmliche Lichtquellen wie Glühlampen, Leuchtstoffröhren und Halogenlampen,

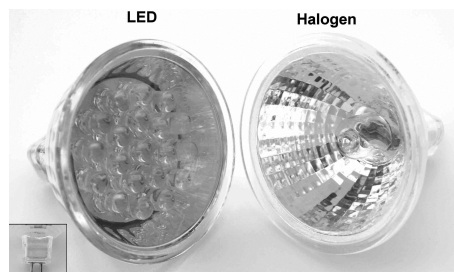


Fig. 1.1: Leuchtdioden ersetzen herkömmliche Beleuchtungsmittel.

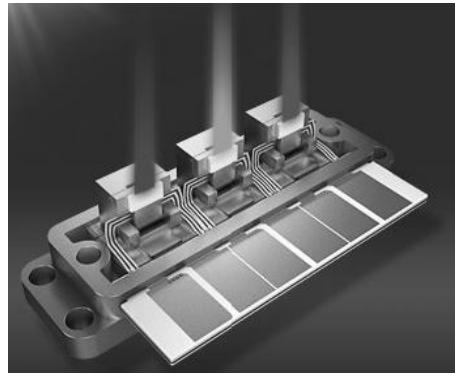


Fig. 1.2: Auf Halbleiterlaser basierende moderne Display-Technologie (Nov).

denen sie aufgrund ihrer höheren Lichtausbeute und längeren Lebensdauer weit überlegen sind. Schon heute verdrängen LCD-Displays die alten Röhrenbildschirme, doch auch diesen werden schon bald OLED-Displays auf der Basis organischer Halbleiter Konkurrenz machen. Halbleitende Polymer-Folien werden in naher Zukunft das Verlagswesen revolutionieren. Die Markteinführung der neuesten Laser-Display-Technologie auf der Basis von Laserdioden ist für dieses Jahr angekündigt. Sie wird die LCD-Projektoren ablösen und die Videoprojektoren auch im Heimbereich erfolgreich werden lassen.

Auch die rasante Entwicklung der Informationstechnologie kommt nicht mehr ohne optoelektronische Bauelemente aus. Laserdioden lesen und schreiben riesige Datenmengen auf optische Datenträger (CD-ROM, DVD, *Blu-Ray Disc*). Ein Großteil des weltweiten Informationsaustauschs geschieht bereits auf optischem Wege über Glasfaserkabel mit Datenübertragungsraten von mehreren THz. Glasfaser besitzen Absorptionsminima bei den Wellenlängen $1,3 \mu\text{m}$ und $1,55 \mu\text{m}$. Daher kommen hier bisher vor allem Infrarot-Lichtemitter auf InGaAsP-Basis zum Einsatz. Diesem Materialsystem stehen für den nahen infraroten Spektralbereich seit den 90iger Jahren zwei ernst zu nehmende Konkurrenten gegenüber, das quaternäre System GaInNAs (Kon94) und die In(Ga)As/GaAs-Quantenpunkte (Zhu98). Hier zeigt sich eine weitere revolutionäre Entwicklung in der Halbleiterphysik, der Einsatz von Nanoheterostrukturen. Die Einschränkung der Ladungsträger in zwei (Quantenfilm) (Dup78), einer (Quantendraht) oder null Raumrichtungen (Quantenpunkt) (Ara82) führt zu geringeren Schwellstromdichten und einer verbesserten Tempe-

raturstabilität. Nanostrukturen verbessern jedoch nicht nur die Leistungsmerkmale bestehender Anwendungen, sondern bringen auch neue innovative Entwicklungen auf den Weg. So werden z.B. verschränkte Photonen aus Einzel-Photonen-Emittern auf Quantenpunkt-Basis in Zukunft für einen sicheren Datenaustausch mittels der Quantenkryptographie sorgen (Eke91).

Ein Ende dieser positiven Entwicklung ist noch lange nicht in Sicht. Während das vergangene 20. Jahrhundert als elektronisches Zeitalter angesehen werden kann, erwartet uns im gerade begonnenen 21. Jahrhundert ein photonisches Zeitalter.

1.2 Zielstellung dieser Arbeit

Die wichtigste Kenngröße lichtemittierender Bauelemente ist die Lichtausbeute, genauer die externe Quanteneffizienz η_{EQE} . Sie entscheidet neben Alterungsprozessen, ob eine Struktur konkurrenzfähig ist oder nie den Weg aus den Laboren in innovative Produkte findet. Die externe Quanteneffizienz ist abhängig von der internen Quanteneffizienz $\eta_{int.}$ und der Extraktionseffizienz $\eta_{ext.}$, wobei $\eta_{EQE} = \eta_{int.} \cdot \eta_{ext.}$ gilt. In dieser Arbeit werden aktuelle Konzepte zur Erhöhung der internen Quanteneffizienz $\eta_{int.}$ (im Folgenden einfach als Lichtausbeute bezeichnet) von LEDs und LDs vorgestellt. Die Konzepte sind stark vom Materialsystem abhängig. Daher werden zwei auf den ersten Blick sehr unterschiedliche Halbleitermaterialien untersucht, die jedoch auf den zweiten Blick auch einige Gemeinsamkeiten haben.

Das erste System, GaInNAs-Quantenfilme (QW) für den Einsatz im Spektralbereich um $1,3 \mu\text{m}$, hinkt hinsichtlich seiner Lichtausbeute noch weit hinter dem in diesem Bereich bereits etablierten InGaAsP-System her. Thermische Ausheilverfahren bieten hier die Möglichkeit, die Lichtausbeute um mehrere Größenordnungen zu erhöhen. Dies wurde bisher einerseits auf das Ausheilen von Kristalldefekten, andererseits aber auch auf die Homogenisierung der chemischen Zusammensetzung in den QWs zurückgeführt. In dieser Arbeit wird anhand von zeitintegrierter und zeitaufgelöster Photolumineszenz-Spektroskopie (PL) im Vergleich mit strukturellen Untersuchungen mittels Transmissions-

elektronenmikroskopie (TEM) gezeigt, dass ein nach dem Ausheilen homogenerer Quantenfilm nicht automatisch bessere Emissionseigenschaften besitzt, sondern dass allein die Reduzierung der Defektdichte Erfolg verspricht. Aufgrund der Koexistenz verschiedener Defekttypen müssen dabei Wachstums- und Ausheilparameter geschickt aufeinander abgestimmt werden.

Das zweite untersuchte Materialsystem, InGaN, besitzt einzigartige optische Eigenschaften, deren physikalische Ursachen zu einem Großteil noch nicht vollständig geklärt sind. Trotz der im Vergleich zu anderen Halbleitern geringen Qualität der strukturellen Eigenschaften, besitzen InGaN-Emitter hervorragende Lichtausbeuten und werden daher bereits im großen Rahmen kommerziell eingesetzt (s.o.). Nichtsdestotrotz ist das Verbesserungspotential enorm. Aufgrund der Wurtzitstruktur der Kristalle und dem stark ionischen Charakter der Bindungen beeinflussen mehrere MV/cm große interne elektrische Felder (Ber99b) die Rekombinationswahrscheinlichkeit der Ladungsträger über den *Quantum Confined Stark Effect* (Men82; Mil84). Die Abschirmung der Felder, z.B. durch den Einbau von 10^{19}cm^{-3} Si-Donatoren und die damit verbundene Flutung der Heterostruktur mit freien Elektronen, kann viele der mit der statischen Polarisierung verbundenen Probleme lösen. Sie bietet andererseits aber auch die einzigartige Möglichkeit, die von der Auswirkung der elektrischen Felder unabhängigen Einflüsse zu untersuchen und damit zu einem tieferen Verständnis der Ursachen für die InGaN-typischen optischen Eigenschaften zu gelangen.

Ein weiteres Problem liegt in der Tatsache, dass bisher kaum qualitativ hochwertige und gleichzeitig bezahlbare GaN-Substrate zur Verfügung standen. Das Wachstum auf Fremdsubstraten (Saphir, SiC oder Silizium) führt aufgrund der hohen Gitterfehlpassung und des unterschiedlichen thermischen Ausdehnungskoeffizienten zu Versetzungsdichten oberhalb von 10^8cm^{-2} . Durch homoepitaktisches Wachstum auf GaN-Kristallen konnte die Anzahl der Versetzungen um mindestens eine Größenordnung reduziert werden. Die Untersuchungen an InGaN-Schichten auf Saphir- und GaN-Substrat zeigen, dass bei niedrigen Anregungsintensitäten, vergleichbar mit den Anregungsbedingungen in einer Leuchtdiode, das Substratmaterial keinen Einfluss auf die Lichtausbeute hat. Stattdessen werden auch

bei Raumtemperatur die Emissionseigenschaften alleine durch die Lokalisierung von Exzitonen bestimmt. Untersuchungen mittels optischer Gewinnspektroskopie unter Verwendung der Strichlängen-Methode zeigen dagegen, dass im Hochanregungsfall, den Anregungsbedingungen in einer Laserdiode nachempfunden, die geringere Versetzungsdichte in den Strukturen auf GaN-Substrat zu kleineren Schwellstromdichten führen. Zeitaufgelöste PL-Untersuchungen identifizieren die Sättigung bzw. die Abschirmung von Defekten durch die angeregten Ladungsträger als einen fundamentalen Gewinnmechanismus in InGaN.

Das vierte Konzept zur Erhöhung der Lichtausbeute ist der Einsatz von InGaN-Quantenpunkten (QP). Indiumreiche Fluktuationsinseln in wenige Nanometer dicken InGaN-Schichten bilden ein dichtes Quantenpunktensemble (Chi96). Es wird gezeigt, dass sie die optischen Eigenschaften der Strukturen bei tiefen Temperaturen bestimmen, bei Raumtemperatur ihr Einfluss aber verschwindet. Nichtsdestotrotz sind QP-Eigenschaften für viele der bisher ungeklärten optischen Phänomene in InGaN verantwortlich und daher auch für Anwendungen nicht zu vernachlässigen. Es wird die Rekombinationsdynamik einzelner QPe und des gesamten QP-Ensembles untersucht. Dazu wurde im Rahmen dieser Arbeit ein zeitaufgelöster Mikro-PL-Aufbau zur Einzel-QP-Spektroskopie realisiert. Die gemessenen Lebensdauern der QP-Zustände werden mit theoretischen Untersuchungen mittels der Acht-Band- $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Methode verglichen.

1.3 Aufbau der Arbeit

Die vorliegende Arbeit ist wie folgt gegliedert:

Zunächst werden in Kapitel 2 die für das Verständnis der Arbeit notwendigen **Grundlagen** beschrieben und ein kurzer Überblick über den aktuellen Stand der Forschung an GaInNAs und InGaN gegeben.

Es folgt in Kapitel 3 eine Einführung in die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten **Untersuchungsmethoden**.

Die mit den genannten Methoden erzielten **Ergebnisse** werden in den Kapiteln 4 bis 7 vorgestellt und diskutiert.

In Kapitel 8 wird eine **zusammenfassende Darstellung** und ein Ausblick auf zukünftige Experimente, die auf diese Arbeit aufbauen können, gegeben.

2. GRUNDLAGEN

In diesem Kapitel wird zunächst ein Überblick über die für das Verständnis der Arbeit notwendigen Grundlagen gegeben. Darauf folgt eine Beschreibung der grundlegenden Eigenschaften der untersuchten Materialien GaInNAs und InGaN inklusive eines kurzen Überblicks über den aktuellen Stand der Forschung.

2.1 *Die Dynamik exzitonischer Übergänge*

2.1.1 *Exzitonen*

Die optischen Eigenschaften der meisten Halbleiter mit direkter Bandlücke E_g kann durch die Erzeugung und Vernichtung von Exzitonen beschrieben werden. Exzitonen sind Anregungen eines Halbleiterkristalls mit Energien unterhalb dessen Bandlücke, bei denen das angeregte Elektron über Coulomb-Anziehung mit dem Lochzustand aus dem Valenzband wechselwirkt. Exzitonen werden als frei bewegliche, elektrisch neutrale Quasiteilchen beschrieben, die ihre Anregungsenergie im Kristall transportieren. Sie entstehen z. B. durch Absorption von Licht an kritischen Punkten der Bandstruktur, z.B. am Γ -Punkt ($k = 0$). Exzitonen in den in dieser Arbeit untersuchten Halbleitermaterialien mit starker Gitterbindung werden als Wannier-Exzitonen bezeichnet (Wan37). Da hier die Coulombwechselwirkung zwischen Elektronen und Löchern stark abgeschirmt wird, ist ihre Bindungsenergie im Vergleich zu Frenkel-Exzitonen (Fre31) gering und der Elektron-Loch-Abstand deutlich größer als die Gitterkonstante des Kristalls. Die Energieniveaus des Wannier-Exzitons und deren Dispersion (s. Abb. 2.1) lassen sich in einem Wasserstoffatom-Modell unter

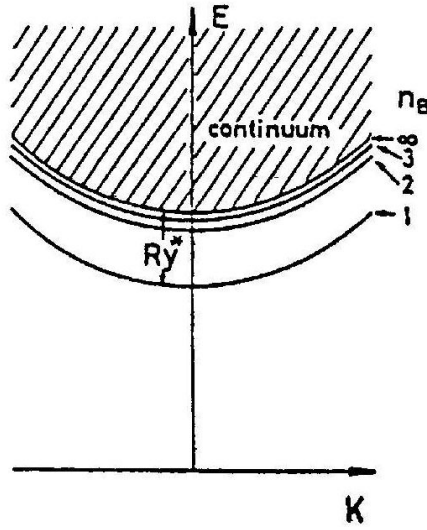


Fig. 2.1: Dispersion exzitonischer Zustände. (Yu99)

Berücksichtigung eines in $K = k_e + k_h$ quadratischen kinetischen Terms berechnen:

$$E_n = E_g - R^* \frac{1}{n^2} + \frac{\hbar^2 K^2}{2(m_e^* + m_h^*)}. \quad (2.1)$$

Die effektive Rydbergkonstante

$$R^* = \frac{\mu e^4}{32\pi^2 \hbar^2 \varepsilon^2 \varepsilon_0^2} \quad (2.2)$$

unter Verwendung der reduzierten Masse $\mu = (1/m_e^* + 1/m_h^*)^{-1}$ ist gleich der Bindungsenergie des Exzitonengrundzustandes ($n = 1$). Der Exziton-Bohrradius

$$a_B = \frac{4\pi\varepsilon\varepsilon_0\hbar^2}{\mu e^2} \quad (2.3)$$

kennzeichnet den mittleren Elektron-Loch-Abstand.

Die Exzitonenbindungsenergien sind in Breitbandhalbleitern im Allgemeinen sehr groß. In GaN betragen R^* und a_B z.B. 30 meV bzw. 2,6 nm (Bou99). Exzitonen bestimmen daher auch bei Raumtemperatur die optischen Eigenschaften von Gruppe-III-Nitriden. Für GaAs betragen die Werte zwar nur 4,2 eV bzw. 12 nm, im quaternären System GaInNAs ist die Bindungsenergie allerdings um einen Faktor 2 bis 3 größer (Buy01).

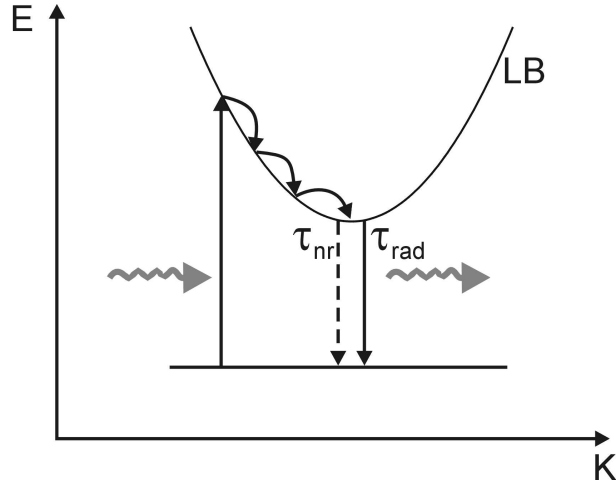


Fig. 2.2: Schematische Darstellung der Anregung, Relaxation und Rekombination von Exzitonen.

2.1.2 Rekombinationsdynamik

Die Zeit, die zwischen Anregung und Vernichtung eines Exzitons durch die Rekombination des Elektrons mit dem Loch vergeht, wird als Lebensdauer τ bezeichnet. Dieser Prozess soll anhand der Abbildung 2.2 veranschaulicht werden. Die Exzitonen werden vom Grundzustand in das Leitungsband des Halbleiters angeregt. Von dort relaxieren sie, meist über eine Wechselwirkung mit Phononen zum Leitungsbandminimum (bei direkten Halbleitern am Γ -Punkt). Dort haben sie die Möglichkeit, entweder nichtstrahlend oder strahlend unter Aussendung von Licht zu rekombinieren. Die Lebensdauer τ setzt sich daher aus einem strahlenden Anteil τ_{rad} und einem nichtstrahlenden Anteil τ_{nr} zusammen. Es gilt:

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{rad}} + \frac{1}{\tau_{nr}}. \quad (2.4)$$

Das Verhältnis aus strahlender und nichtstrahlender Rekombination bestimmt die interne Quanteneffizienz $\eta_{int.}$ und damit die Lichtausbeute.

Nach *Fermis Goldener Regel* hängt τ_{rad} vom Überlapp der Elektron- und Loch-Wellenfunktion

$$\frac{1}{\tau_{rad}} \propto \langle e|h \rangle \propto \int_V \psi_e(\vec{r}) \psi_h^*(\vec{r}) d\vec{r}^3 \quad (2.5)$$

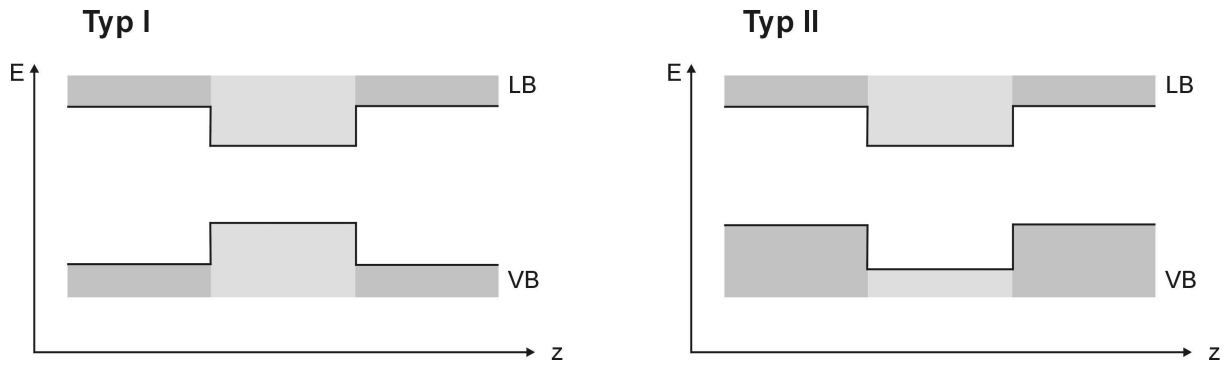


Fig. 2.3: Doppel-Heterostruktur.

und damit auch vom mittleren Elektron-Loch-Abstand, dem Exziton-Bohrradius ab.

Die nichtstrahlende Lebensdauer τ_{nr} hängt dagegen davon ab, wie schnell die Exzitonen zu nichtstrahlenden Rekombinationszentren (z.B. Kristalldefekten) gelangen. Sie wird damit von der Mobilität der Exzitonen und der Anzahl der Defekte bestimmt. Die Exzitonen geben ihre Energie dabei in Form von Wärme ab. Da dies mit einer leichten Erwärmung des Halbleiterkristalls um einige mK verbunden ist, eignet sich z.B. die *kaliometrische Absorptionsspektroskopie* (CAS) hervorragend zur Untersuchung nichtstrahlender Prozesse. Wie jedoch in den Kapiteln 4 bis 7 gezeigt werden wird, können auch anhand zeitaufgelöster Untersuchungen des emittierten Lichts wertvolle Erkenntnisse über das Verhältnis von strahlender und nichtstrahlender Rekombination gewonnen werden.

2.2 Heterostrukturen als aktive Schichten in Halbleiterlasern

2.2.1 Doppel-Heterostruktur

Um das Problem der geringen Lichtausbeute in den ersten Halbleiter-Laserstrukturen (Bas61; Hal62) aufgrund der hohen Laserschwellen und geringen Temperaturstabilität zu lösen, schlugen 1963 etwa zeitgleich Alferov et al. (Alf63) und Kroemer (Kro63) das Prinzip der Doppel-Heterostruktur (DHS) vor. Dabei wird wie in Abbildung 2.3 links dargestellt in einer Sandwich-Anordnung eine Halbleiterschicht mit kleinerer Bandlücke in einen Halbleiter größerer Bandlücke eingebettet. Es bildet sich ein Potentialtopf endlicher Tie-

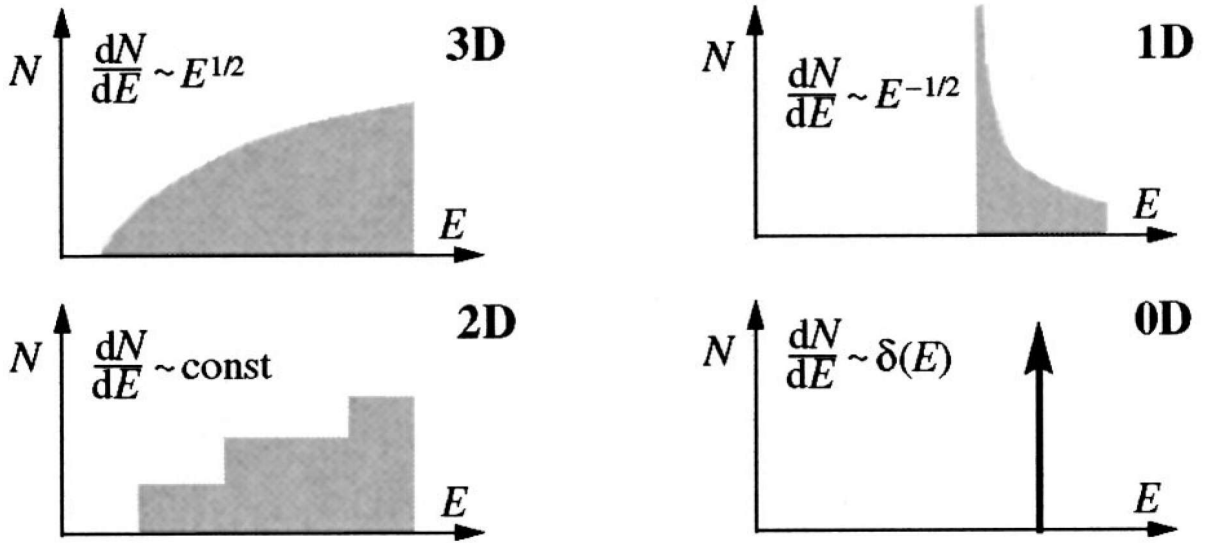


Fig. 2.4: Vergleich der Zustandsdichten in Heterostrukturen mit reduzierter Dimensionalität. (Alf01)

fe. Dadurch gelingt es, sowohl die injizierten Ladungsträger als auch das emittierte Licht in der Schicht einzuschließen (elektronisches und optisches *Confinement*), und damit die Laserschwelle deutlich zu reduzieren (Alf67). Im Falle einer gleichzeitigen energetischen Absenkung (*Band Offset*) sowohl der Leitungsbandunterkante als auch der Valenzbandoberkante spricht man von einer DHS des Typs II (Kro83). Diese hat den Vorteil, dass man extrem kleine Übergangsenergien weit im Infraroten erreicht. Durch die räumliche Trennung von Elektronen und Löchern wird jedoch deren Wellenüberlapp und damit die Rekombinationswahrscheinlichkeit verringert.

2.2.2 Niederdimensionale Heterostrukturen

Reduziert man die Dicke der DHS auf wenige nm, erhält man einen Quantenfilm (*Quantum Well* - QW) (Dup78). Die Größenordnung wird dabei einerseits durch den Exziton-Bohrradius (Gl. 2.3) und andererseits durch die De-Broglie-Wellenlänge

$$\lambda = \frac{h}{\sqrt{3m_e^*k_B T}}. \quad (2.6)$$

bestimmt. Aufgrund des *Quantum Size Effect* kommt es gemäß des quantenmechanischen Modells eines Potentialtopfs zu einer Aufspaltung (Quantisierung) der elektronischen Zustände (Din74). Die Zustände sind diskret in k_z - und parabolisch in k_x - bzw. k_y -Richtung. Die Zustandsdichte $D_2(E)$ für eine solche 2-dimensionale Schicht ist wie in Abbildung 2.4 skizziert treppenartig, mit Stufen bei den Energien entsprechend der Energieniveaus des Potentialtopfs:

$$D_2(E) = \sum_n \frac{m_e^*}{\pi \hbar^2 L_z} H(E - E_z(n) - E_g), \quad (2.7)$$

mit einer Stufenfunktion $H(E)$, für die $H(E \geq 0) = 1$ gilt, den quantisierten Energieniveaus $E_z(n)$ und der Dicke L_z des Quantenfilms.

Eine weitere Reduzierung der Dimensionalität führt zu Quantendrähten

$$D_1(E) = \sum_{n,l} \frac{\sqrt{m_e^*/2\hbar^2}}{\pi L_y L_z} \frac{1}{\sqrt{(E - E_y(l) - E_z(n) - E_g)}}, \quad (2.8)$$

sowie bei Einschränkung der Ladungsträger in allen drei Raumrichtungen zu Quantenpunkten (QP) (Ara82; Eki81; Gol85; Bim99) mit δ -förmiger Zustandsdichte

$$D_0(E) = \sum_{n,l,k} \frac{1}{L_x L_y L_z} \delta(E - E_x(k) - E_y(l) - E_z(n) - E_g). \quad (2.9)$$

Aufgrund der Ähnlichkeit zu diskreten atomaren Zuständen werden QPs oft auch als "künstliche Atome" bezeichnet.

Die Lokalisierung der Ladungsträger in niederdimensionalen Strukturen wirkt sich über zwei Effekte auf die Quanteneffizienz in Halbleitern aus:

- (i) Durch das Confinement der Ladungsträger erreicht man höhere Übergangswahrscheinlichkeiten.
- (ii) Die Reduzierung der Dimensionalität und die damit verbundene Reduzierung der Zustandsdichte erleichtert das Erreichen der Laserbedingung.

Dies führt zu geringeren Schwellstromdichten und einer höheren Temperaturstabilität (s.

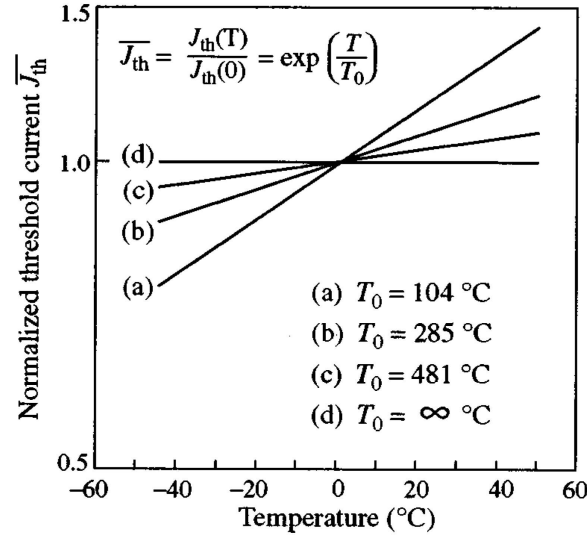


Fig. 2.5: Normalisierte Temperaturabhängigkeit der Schwellstromdichte für Halbleiterlaser mit (a) einer klassischen DHS, (b) einem Quantenfilm, (c) Quantendrähten bzw. (d) Quantenpunkten in der aktiven Schicht. (Ara82)

Abbildung 2.5) (Ara82; Bim99). Alle heute eingesetzten Laserdioden besitzen daher QWs oder QPe in der aktiven Schicht. Dies gilt auch für die auf GaInNAs und InGaN basierenden Lichtemitter. Diese beiden Verbindungshalbleiter sollen auf den folgenden Seiten vorgestellt werden.

2.3 Der quaternäre Verbindungshalbleiter GaInNAs

2.3.1 Die Bandstruktur von $\text{GaN}_x\text{As}_{1-x}$

Die Erfolge beim Wachstum qualitativ hochwertiger III-V-Verbindungshalbleiterstrukturen auf der Basis des (Al, Ga, In)(As, P)-Materialsystems und der Durchbruch beim Wachstum von Gruppe-III-Nitriden in den frühen 90ern des letzten Jahrhunderts belebte das Wachstum von III-V-Nitriden mit dem Ziel, die spektrale Lücke zwischen infrarot (Arsenide) und UV (Nitride) zu schließen und somit Lichtemitter im gesamten sichtbaren Spektralbereich herzustellen. Einerseits erwies sich jedoch der Einbau größerer Mengen Stickstoff in GaAs als schwierig. Oberhalb von 10% kommt es zu einer starken Inhomogenisierung des Materials mit Einschlüssen von GaN- und GaAs-Phasen. Die besten Ergebnisse wurden

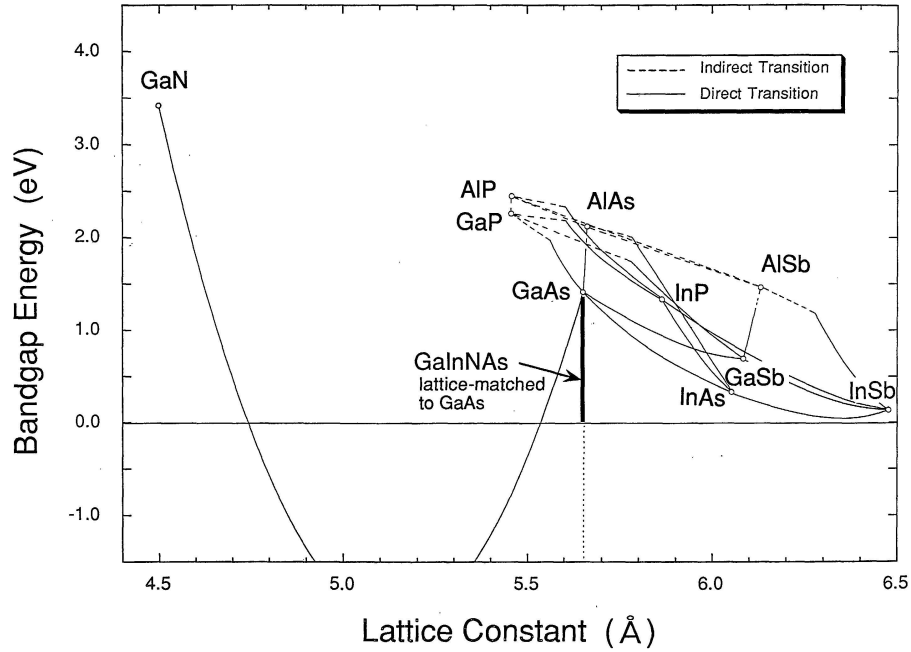


Fig. 2.6: Bandlücke verschiedener Halbleiter als Funktion der Gitterkonstante. (Kon96a)

mittels Metallorganischer Gasphasenepitaxie und Molekularstrahlepitaxie bei Temperaturen zwischen 400°C und 480°C erzielt (Tou02; Dam05; Ego99). Andererseits wurde anhand von Absorptionsmessungen (Wey92; Sat96; Kon94; Bi97; Ues97; Poz98; Ues99) und Bandkanten-nahen PL-Untersuchungen (Wey92; Fra98; Buy99; Gru99) statt der erwarteten Blauverschiebung der GaAs-Bandlücke eine deutliche Rotverschiebung beobachtet. Der Einbau von z.B. nur 2% Stickstoff führt zu einer dramatischen Abnahme der Bandlücke um etwa 0,4 eV. Die Bandlücken konventioneller ternärer Halbleiterverbindungen wie AlGaAs, InGaAs oder GaInP erhält man aus den Bandlücken der binären Verbindungen mittels

$$E_g(x) = xE_A + (1 - x)E_B - bx(1 - x). \quad (2.10)$$

Der Bowing-Parameter b beschreibt dabei eine leichte Abweichung von der einfachen linearen Interpolation. Er besitzt für die meisten Verbindungen Werte unterhalb von 1 eV und ist unabhängig von der chemischen Komposition. Im Gegensatz dazu nimmt b bei GaNAs riesige Werte an, z.B. etwa 20 eV für $x < 5\%$, und hängt sowohl vom Stickstoffgehalt

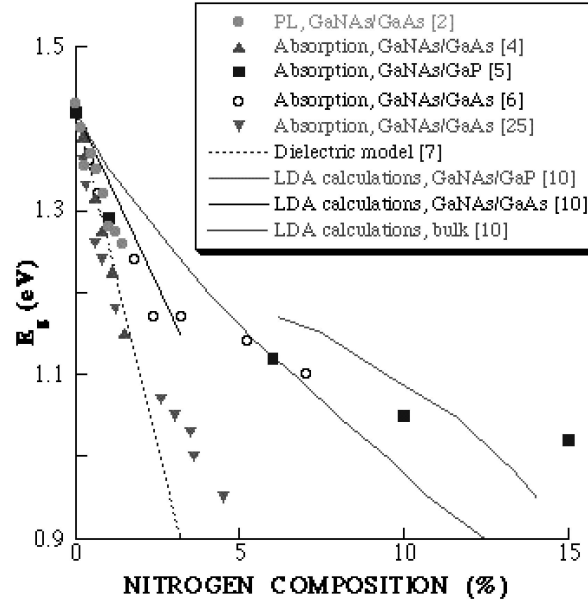


Fig. 2.7: Abhängigkeit der GaAsN-Bandlücke vom Stickstoffgehalt, experimentelle und theoretische Ergebnisse. (Buy01)

als auch von der Verspannung der GaNAs-Schicht ab (Ues99). Nimmt man b als konstant an, ergibt sich die in Abbildung 2.6 dargestellte Abhängigkeit. Eine negative Bandlücke und damit ein metallisches Verhalten wurde jedoch selbst bei einem hohen Stickstoffanteil nicht festgestellt. Stattdessen flacht die Rotverschiebung wie in Abbildung 2.7 dargestellt oberhalb von etwa 4% Stickstoff ab, b wird kleiner.

Einen weiteren Einblick in die Bandstruktur gewähren die Ergebnisse von Photoreflexionsmessungen (PR) (Sha99b; Sha99a) und druckabhängigen PL-Untersuchungen (Jon99; Jon00). In dem in Abbildung 2.8 dargestellten PR-Spektren erkennt man den Übergang E_0 vom GaAs-Leitungsband zum obersten Valenzband, den entsprechenden Übergang E_- in GaNAs, den Übergang $E_0 + \Delta_0$ zum Spin-Bahn-aufgespaltenen unteren Valenzband und den ab etwa 1% Stickstoff zusätzlich auftretenden Übergang E_+ . Diese Beobachtungen sind auf die in Abbildung 2.9 dargestellte Bildung der Subbänder E_+ und E_- zurückzuführen. Die Verschiebung von E_- zu kleineren Energien mit zunehmendem Stickstoffanteil ist für das ungewöhnliche Verhalten der GaNAs-Bandlücke verantwortlich. Der Einfluss des Stickstoffs auf die Valenzbänder ist dagegen vernachlässigbar gering. Durch die Extrapolation

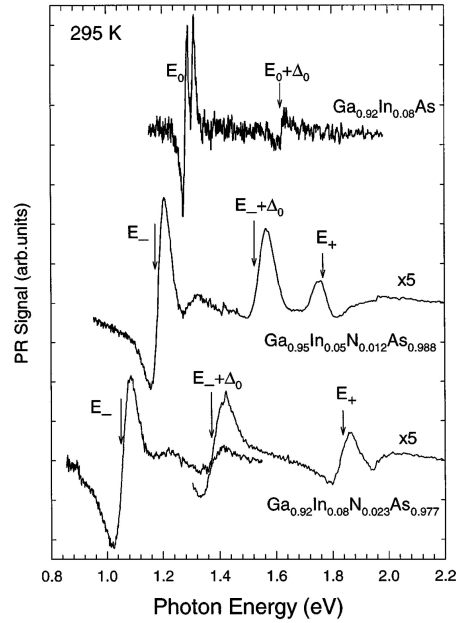


Fig. 2.8: Photoreflexionsmessungen zeigen das Aufspalten des GaAs-Leitungsbandes E_0 in zwei Subbänder E_+ und E_- (Sha99a).

des beobachteten linearen Zusammenhangs zwischen der E_+ - E_- -Aufspaltung und dem Stickstoffanteil lässt sich der Ursprung des E_+ -Subbands als Zustand E_N einer Stickstoff-Störstelle oberhalb der Bandkante von GaAs identifizieren.

Die theoretische Beschreibung mit dem *Band Anticrossing Model* (Sha99b; Sha99a) führt die Leitungsbandaufspaltung in die Subbänder E_+ und E_- daher auf eine Wechselwirkung des Leitungsbands mit dem Stickstoff-Zustand E_N zurück. Pseudopotential-Rechnungen mittels einer *Local-Density Approximation* (Mat99; Jon99; Jon00) gehen dagegen von einer starken Störung des Wirtskristalls durch N-Atome aufgrund der chemischen Unterschiede und des Größenunterschiedes zu den As-Atomen aus, die zu einer Symmetriebrechung und damit zu einer Aufspaltung und anschließenden Mischung der L- und Γ -Leitungsbandzustände führt. Beide Modelle liefern eine sehr gute Beschreibung der experimentellen Ergebnisse.

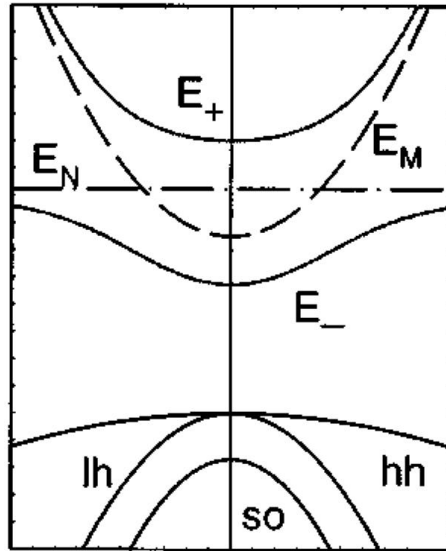


Fig. 2.9: Modell der GaAsN-Bandstruktur nach dem *Band Anticrossing Model*. (Sha99b)

2.3.2 GaInNAs/GaAs-Heterostrukturen

Durch den parallelen Einbau von Indium und Stickstoff in einem Verhältnis von etwa 3:1 gelingt es, das entstehende Material GaInNAs wie in Abbildung 2.6 angedeutet gitterangepasst auf GaAs abzuscheiden (Bel99). Dabei wird der Effekt der sich mit zunehmenden Stickstoffgehalt verringernden Bandlücke durch den gleichzeitigen Einbau von Indium noch verstärkt. Die technologische Bedeutung von GaInNAs-QW-Strukturen als aktive Schicht in Laserdioden (LD), die bei $1,3 \mu\text{m}$ emittieren, wurde zuerst von Kondow et al. gezeigt (Kon96a). In ihrer Arbeit, die Pioniercharakter auf diesem Gebiet besitzt, wird eine verbesserte Temperaturcharakteristik im Vergleich zu InGaPAs- und InGaAs-Strukturen aufgrund des größeren Elektron-Confinement vorhergesagt. Während bei GaNAs/GaAs-Heterostrukturen umstritten ist, ob die tensile Verspannung der Schicht zu einer Anhebung oder Absenkung des Valenzbandes (positiver oder negativer *Band Offset*) (Sak93) und damit zu einer Typ-I- bzw. Typ-II-Heterostruktur führt (s. 2.2.1), sorgt das Indium für einen Typ-I-Charakter der GaInNAs/GaAs-Heterostrukturen (Gal05). Da jedoch für die Anwendung in LDs ein Valenzband-*Offset* von mindestens 50 meV nötig ist (Kon96b), werden GaInNAs-Schichten oft mit einem höheren In/N-Verhältnis leicht kompressiv verspannt

gewachsen.

2.3.3 Defekte, nichtstrahlende Rekombination, thermisches Ausheilen

Unglücklicherweise ist der Einbau von Stickstoff auch immer mit einer drastischen Verschlechterung der Lichtausbeute verbunden (Wey92; Wey93; Fra98; Buy99; Xin98; Gok99; Mot99). Dies wird sowohl auf den Einbau von Defekten, die als nichtstrahlende Rekombinationszentren wirken, als auch auf die inhomogene chemische Zusammensetzung zurückgeführt. Eine Reihe von nichtstrahlenden Defekten konnte mittels *Deep-Level Transient Spectroscopy* (DLTS) nachgewiesen werden (Kwo99). Einige davon sind thermisch instabil und können nach dem Wachstum thermisch ausgeheilt und damit die Lichtausbeute nachträglich erhöht werden. Für den zusätzlichen Zusammenhang zwischen der Lichtausbeute und der Homogenität der strukturellen Parameter spricht die Beobachtung, dass eine erhöhte PL-Intensität der ausgeheilten Strukturen häufig von einer schmaleren PL-Bande begleitet wird. In Kapitel 4 wird allerdings gezeigt, dass die Homogenisierung der GaInNAs-QWs keinen Einfluss auf deren Lichtausbeute hat, sondern dass deren Verbesserung allein auf die Reduzierung nichtstrahlender Defekte zurückzuführen ist.

2.4 Der ternäre Verbindungshalbleiter InGaN

Seit der Entwicklung der ersten blauen Leuchtdiode durch Nakamura (Nak93; Nak99) sind die Gruppe-III-Nitride eins der am intensivsten erforschten Materialsysteme in der Halbleiterphysik. Während blaue, grüne und weiße LEDs und blaue LDs mit InGaN-Heterostrukturen als aktive Schicht bereits Einzug in unseren Alltag gefunden haben, sind die fundamentalen elektronischen und optischen Eigenschaften noch zu einem großen Teil unerforscht.

Gruppe-III-Nitride kristallisieren üblicherweise in der in Abbildung 2.10 dargestellten hexagonalen Wurtzitstruktur. Durch die Verwendung kubischer Substrate (z.B. GaAs) kann auch das Wachstum in der kubischen Zinkblende-Struktur erzwungen werden (Str91; Sch96). Das Wachstum kubischer Nitride ist jedoch problematisch. Die Kristalle besitzen

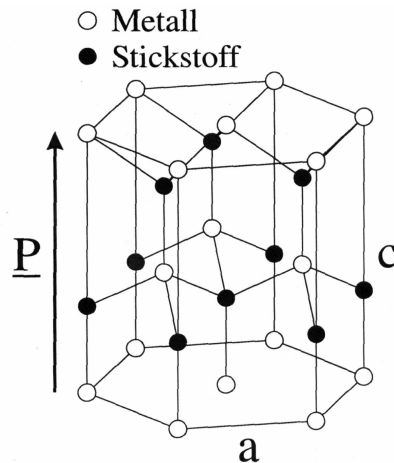


Fig. 2.10: Einheitszelle der Wurtzitstruktur. Entlang der (0001)-Achse ergibt sich aufgrund des ionischen Charakters der Bindung ein Polarisationsfeld. (Hol01)

häufig Einschlüsse der hexagonalen Phase (Sie95).

2.4.1 Interne elektrische Felder

Die hexagonalen Kristalle haben im Vergleich zu kubischen Kristallen eine reduzierte Symmetrie. Die Metall-Stickstoff-Bindungen sind in der (0001)-Richtung (c -Achse, häufig die Wachstumsrichtung bei Heterostrukturen) länger als in der $[0001]$ -Ebene. Durch den stark ionischen Charakter der Bindung ergibt sich eine Polarisation entlang der c -Achse. Im Material entsteht ein pyroelektrisches Feld. Bei InGaN/GaN-Heterostrukturen ist aufgrund der unterschiedlichen Gitterkonstanten die InGaN-Schicht in Wachstumsrichtung (meist die c -Achse des Wurtzit-Kristalls) tensil und in der Ebene kompressiv verspannt. Hieraus resultiert eine zusätzliche piezoelektrische Polarisation, die die pyroelektrischen Felder verstärkt. Die Folge sind mehrere MV/cm große elektrische Felder (Ber99b). Ihr Einfluss auf die elektronischen und optischen Eigenschaften von InGaN erfolgt über den *Quantum Confined Stark Effect* (QCSE) (Men82; Mil84). Dieser beschreibt die in Abbildung 2.11 dargestellte Verkipfung der Bänder und die daraus resultierende räumliche Trennung von Elektronen und Löchern, die zu einer Verringerung der exzitonischen Übergangsenergien und einem verminderten Elektron-Loch-Wellenüberlapp führt.

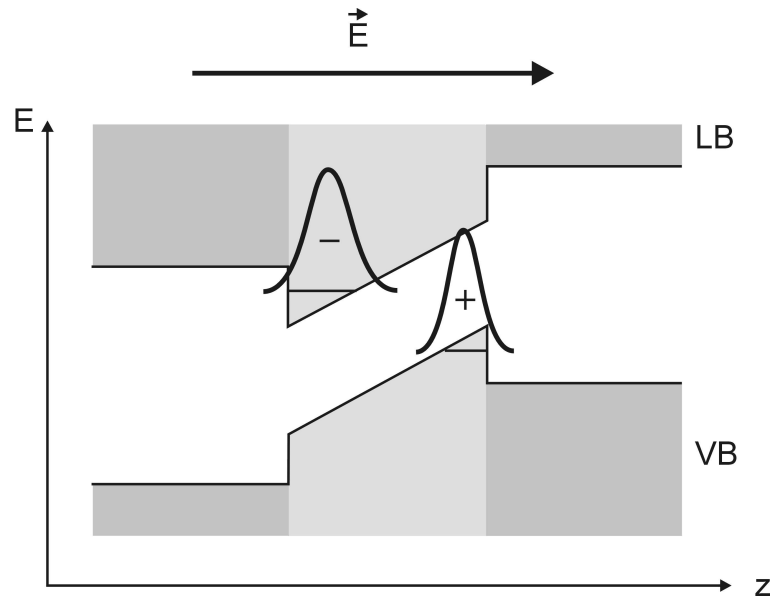


Fig. 2.11: Schematische Darstellung des *Quantum Confined Stark Effect*.

2.4.2 Lokalisierungseffekte

Das Wachstum der ternären Verbindung InGaN wird durch die schlechte Löslichkeit von Indium in GaN bzw. Gallium in InN erschwert (s. Abb. 2.12) (Ho96). So lassen sich z.B. bei typischen Wachstumstemperaturen um 800°C nur 6% Indium in GaN lösen. Wie strukturelle Untersuchungen mittels hochauflösender Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) (Nar97b; Sel99; Kre02; Ger00; Ger01; Ger03) und energiedispersiver Röntgenanalytik (EDX) (Sel99) zeigen, ist die Folge eine stark inhomogene bimodale Verteilung des Indiums in InGaN (s. Abbn. 2.13 und 2.14). Es bilden sich indiumreiche Fluktuationsinseln mit einer lateralen Ausdehnung von wenigen Nanometern.

In jüngeren Arbeiten, vorwiegend aus der Gruppe von Colin J. Humphreys in Cambridge (Sme03; Gal07), wird das Auftreten einer bimodalen Indiumverteilung angezweifelt. So behaupten z.B. Smeeton et al. (Sme03), dass InGaN-Schichten eine homogene Indiumverteilung besitzen und die in TEM sichtbaren indiumreichen Regionen erst durch eine mehrere Minuten andauernde Einwirkung des Elektronenstrahls während der TEM-Messung induziert werden. Li et al. (Li05) konnten diese Ergebnisse widerlegen. Sie untersuchten den Einfluss der Elektronenbestrahlung mit zunehmender Dauer auf die Verteilung des Indiums

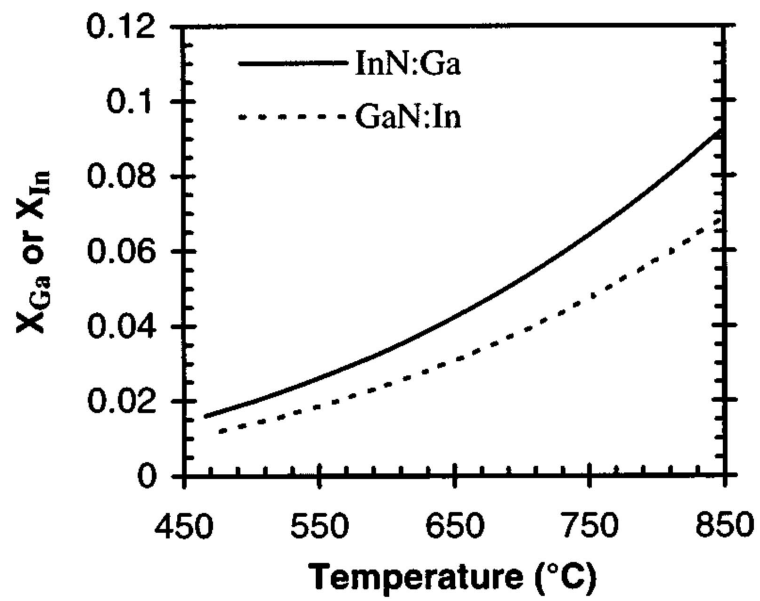


Fig. 2.12: Löslichkeitskurve für Indium in GaN bzw. Gallium in InN. (Ho96)

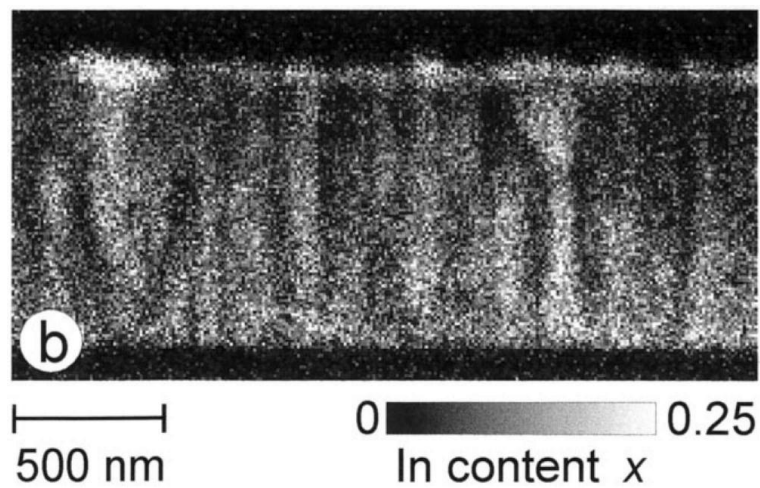


Fig. 2.13: Aus EDX-Untersuchungen bestimmter Indiumgehalt einer $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{N}$ -Schicht. (Sel99)

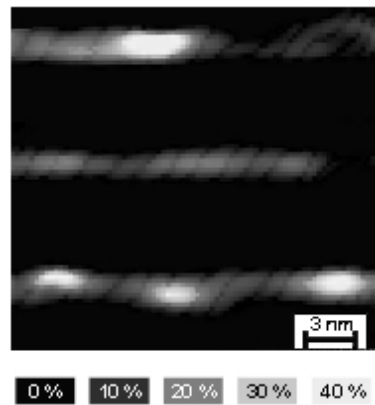


Fig. 2.14: Aus TEM bestimmter Indiumgehalt eines InGaN-Multi-Quantenfilms. (Kre02)

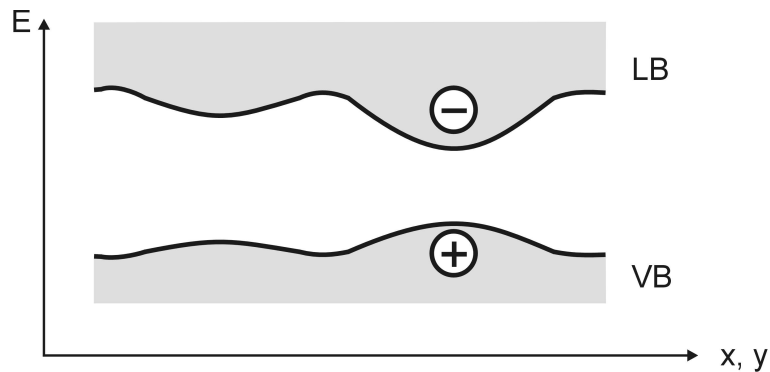


Fig. 2.15: Schematische Darstellung der Lokalisierung in Verbindungshalbleitern mit inhomogener chemischer Zusammensetzung.

und stellten fest, dass auch nach einer Bestrahlung von nur 20 s eine deutlich inhomogene Indiumverteilung nachweisbar ist. Die indiumreichen Fluktuationsinseln sind somit kein Messartefakt. Galtrey et al. (Gal07) interpretieren ihre mittels einer *3D Atom Probe* Methode ermittelten Daten als homogene Indium-Verteilung. Die erreichte Ortsauflösung von 3 nm ist allerdings erstens für diese Schlussfolgerung nicht ausreichend, zweitens lassen sich die präsentierten Daten durchaus auch als bimodale Verteilung mit Maxima bei 15% und 25% Indium interpretieren.

Die indiumreichen Fluktuationsinseln wirken als Lokalisierungszentren in InGaN, da die Bandlücke vom Indium-Gehalt abhängt. Elektronen und Löcher sammeln sich wie in Abbildung 2.15 skizziert in den Potentialmulden. Alternative Ursache der Lokalisierung, z.B. Fluktuationen der InGaN-Schichtdicke (Gra05), lassen sich anhand der beobachteten

und in Kapitel 5 dieser Arbeit beschriebenen Lokalisierung in dicken InGaN-Schichten (Dwo06) ausschließen. Somit lässt sich zweifelsfrei feststellen, dass die bimodale Indium-Verteilung Ursprung der Lokalisierung ist.

Die Lokalisierungseffekte sind verantwortlich für die enormen Lichtausbeuten von InGaN-Lichtemittern trotz der vergleichsweise schlechten Kristallqualität. Aufgrund der Tatsache, dass für das Wachstum kaum hochwertige GaN-Substrate zur Verfügung stehen, werden die Strukturen meist gitterfehlangepasst auf Saphir-, SiC- oder Si(111)-Substraten abgeschieden. Die Relaxation der dabei entstehenden Verspannung der Schichten führt zu bis zu 10^{10} Versetzungen je cm^2 . Üblicherweise wirken sich z.B. bei den Arseniden und Phosphiden bereits Versetzungsdichten von 10^3cm^{-2} drastisch auf die Qualität optoelektronischer Anwendungen aus, da die Ladungsträger an solchen Kristalldefekten nichtstrahlend rekombinieren. Die erste InGaN-LED (Nak93) zeigte jedoch bereits mit 10^{10}cm^{-2} Versetzungen (Les95) eine beachtliche Lichtausbeute. Dies wird darauf zurückgeführt, dass die lokalisierten Exzitonen die Versetzungen nicht erreichen können (Chi96; Chi97; Nar97b; Nar97a; Nak98a; O'D98).

2.4.3 Optische Eigenschaften von InGaN/GaN-Heterostrukturen

InN und GaN besitzen eine direkte Bandlücke von 0,7 eV bzw. 3,5 eV (Raumtemperatur). Die Bandlücke von InGaN erreicht je nach Indium-Gehalt den gesamten sichtbaren Spektralbereich und lässt sich mit Gleichung 2.10 berechnen. Der Bowing-Parameter beträgt 2,5 eV (Dav02).

Die optischen Eigenschaften von InGaN sowie der anderen Gruppe-III-Nitride unterscheiden sich grundlegend von denen anderer III-V-Halbleiter. Der größte Unterschied, die beachtliche Lichtausbeute trotz hoher Defektdichten, wurde bereits erwähnt, jedoch existieren in InGaN-Heterostrukturen noch eine ganze Reihe anderer außergewöhnlicher Effekte, die die Quanteneffizienz in diesen Strukturen beeinflussen (Han03):

- (i) InGaN-Heterostrukturen besitzen einen großen *Stokes Shift*. Diese Energiedifferenz zwischen Absorption und Emission nimmt bei breiteren Heterostrukturen und größerem

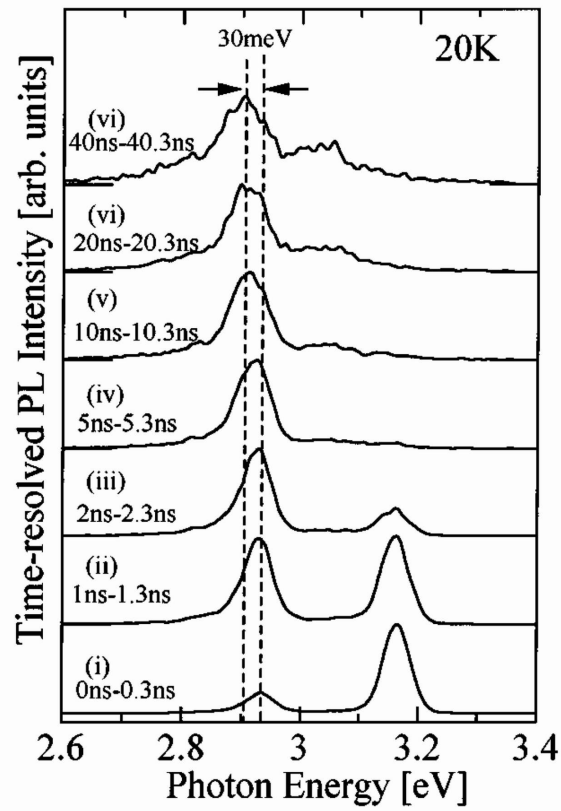


Fig. 2.16: Zeitverzögerte PL-Spektren eines InGaN-Quantenfilms. (Nar97a)

Indiumgehalt zu (Ber99a).

- (ii) Die Emissionsbande zeigt eine Blau-Verschiebung mit zunehmender Anregungsintensität (Muk99).
- (iii) Das Abklingen der Lumineszenz nach gepulster Anregung ist nicht exponentiell (Bel04; Kre02; Mor02; Rob03) und wird wie in Abbildung 2.16 zu erkennen von einer zeitlichen Rot-Verschiebung der Lumineszenzbande begleitet (Nar97b; Bel04; Kre02).
- (iv) Die Lumineszenz von InGaN besitzt eine große Halbwertsbreite, die bei breiteren Schichten und höherem Indiumgehalt zunimmt.

Zur Erklärung der aufgezählten Effekte existieren zwei konkurrierende Erklärungsmodelle, die im folgenden beschrieben werden.

Alle aufgezählten InGaN-typische optischen Eigenschaften lassen sich allein durch die Wirkung der internen elektrischen Felder über den QCSE ohne Berücksichtigung anderer Effekte erklären:

- (i) Der geringe Wellenfunktionen-Überlapp der räumlich separierten Elektronen und Löcher im Grundzustand der Heterostruktur und die damit verbundene geringe Übergangswahrscheinlichkeit führt zu einer verstärkten Absorption in den angeregten Zuständen und damit zum beobachteten *Stokes Shift*. (Han03)
- (ii) und (iii) Die angeregten Ladungsträger können die elektrischen Felder abschirmen und so die Wirkung des QCSE abschwächen. Auf diese Weise lassen sich sowohl die intensitätsabhängige Blau-Verschiebung (Tak97; Muk99) als auch das nicht exponentielle Lumineszenzabklingen und die zeitliche Rotverschiebung erklären (Bel04).
- (iv) Der Einfluss von Schichtdicken-Fluktuationen auf die durch den QCSE induzierte Rot-Verschiebung und damit auf die Emissionsenergie ist bei dickeren Schichten größer. Es gilt daher ein linearer Zusammenhang zwischen Schichtdicke und Halbwertsbreite der Emissionsbande. (Han03)

Auch die Lokalisierungseffekte liefern eine in sich konsistente Erklärung der optischen Eigenschaften von InGaN:

- (i) Die geringere Zustandsdichte der Lokalisierungszentren im Vergleich zu den 2D-QW-Zuständen ist für den Stokes-Shift verantwortlich.
- (ii) Aufgrund der geringen Zustände werden die Lokalisierungszentren bei höheren Anregungsdichten gesättigt und energetisch höhere Zustände besetzt. Die Folge ist die beobachtete Blau-Verschiebung der Emission (Muk99).
- (iii) Wie in Kapitel 7 ausführlich diskutiert werden soll, ist eine inhomogen verbreiterte Verteilung der Lebensdauern für das nicht exponentielle Abklingen der Lumineszenz verantwortlich. Ein schnelleres Abklingen auf der höherenergetischen Flanke der Lumineszenzbande sorgt für die zeitliche Rotverschiebung (Nar97b; Kre02).
- (iv) Eine inhomogene Verteilung des Indiums sorgt für Lokalisierungspotentiale unterschiedlicher Tiefe und damit für die großen Halbwertsbreiten der Lumineszenz.

Sowohl Polarisations- als auch Lokalisierungseffekte sorgen für die einzigartigen optischen Phänomene dieses Materialsystems. Ihr parallel wirkender Einfluss lässt sich nicht immer voneinander trennen. Die für diese Arbeit zur Verfügung stehenden feldfreien InGaN-Strukturen bieten die seltene Gelegenheit, den Einfluss der Lokalisierung unabhängig von Feldeffekten zu untersuchen (s. Kap. 5).

2.4.4 InGaN-Quantenpunkte

Sind die Lokalisierungszentren so klein, dass sie Quantisierungs- und *Confinement*-Effekte zeigen, bilden sie ein QP-Ensemble hoher lateraler Dichte (bis zu 10^{11}cm^{-2}) (Nak98a; O'D99; Mor00; Ara02; Kre02; Seg04b). Mittels örtlich hoch auflösender Lumineszenzspektroskopie (KL, μPL) konnten spektral scharfe Emissionslinien diskreter QP-Übergänge nachgewiesen werden (Seg04b; Rob03; Ric04; Bar04b; Sch04). Hinsichtlich ihrer Rekombinationsdynamik unterscheidet sich die InGaN-QPe stark von anderen QP-Systemen. De-

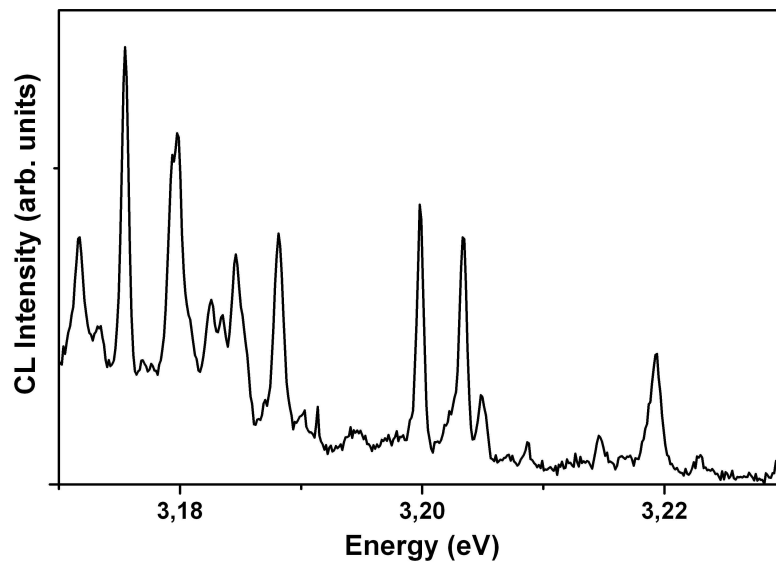


Fig. 2.17: Örtlich hochaufgelöste Kathodolumineszenz-Spektren zeigen die Emissionslinien diskreter InGaN-Quantenpunkt-Zustände. (Seg04a)

tallierte Untersuchungen der zugrunde liegenden physikalischen Prozesse sind Teil der vorliegenden Arbeit (s. Kap. 7).

2.4.5 Neue Konzepte: GaN-Substrate, feldfreie Strukturen

Die aktuelle Forschung an InGaN konzentriert sich im Moment auf zwei Hauptthemen:

(i) Feldfreie InGaN-Schichten:

Ziel ist es, den negativen Einfluss der pyro- und piezoelektrischen Felder entlang der c -Achse auf die Rekombinationswahrscheinlichkeit durch den QCSE und die damit verbundene räumliche Trennung der Ladungsträger zu unterbinden. Dazu werden zwei viel versprechende Ansätze verfolgt. Zum einen werden die elektrischen Felder durch den Einbau von 10^{19}cm^{-3} Si-Donatoren in die Barrieren der InGaN/GaN-Heterostrukturen und die damit verbundene Flutung des InGaN-Schicht mit freien Elektronen die elektrischen Felder abgeschirmt (Fra05b), zum anderen wird durch das Wachstum parallel zur c -Achse oder in der semipolaren $(11\bar{2}2)$ -Richtung das Feld in die Schicht gedreht (Mas06).

Tab. 2.1: Materialeigenschaften von GaN und den Substratmaterialien Si, SiC und Saphir. (Dad03)

Material	a (Å)	c (Å)	Thermische Leit- fähigkeit (W/cmK)	Thermischer Ausdeh- nungs- koeffizient ($10^{-6}/K$)	Gitterfehl- anpassung GaN/ Substrat (%)	Thermische Fehl- anpassung GaN/Substrat (%)
GaN	3,189	5,185	1,3	5,59	0	0
Si (111)	5,430	-	1 - 1,5	2,59	-16,9	54
6H-SiC	3,080	15,12	3,0 - 3,8	4,2	3,5	25
Saphir	4,758	12,991	0,5	7,5	16	-34

(ii) Homoepitaktisches Wachstum auf GaN-Substraten:

Kommerziell erhältliche InGaN-Strukturen werden wie bereits erwähnt aufgrund fehlender qualitativ hochwertiger und preisgünstiger GaN-Substrate immer noch auf Saphir-, SiC- oder Si(111)-Substraten hergestellt. Die hohe Gitterfehl-anpassung und der unterschiedliche thermische Ausdehnungskoeffizient (s. Tab. 2.1) führt zu Versetzungsdichten oberhalb von 10^8cm^{-2} . Homoepitaktisches Wachstum auf qualitativ hochwertigen GaN-Kristallen könnte die Anzahl der Versetzungen um mehrere Größenordnungen reduzieren. GaN-Substrate werden derzeit durch Hydrid-Gasphasen-Epitaxie (Nak98b) oder mittels einer Hochdruckmethode (Grz01) hergestellt. Verschiedene Forschergruppen berichten von verbesserten Lichtausbeuten in InGaN-Lichtemittern auf GaN-Substrat (Cao04; Nak98c; Fur06; Ski06).

3. EXPERIMENTELLE REALISIERUNG

Die Ergebnisse der vorliegenden Arbeit wurden mit zum Teil zeit- und ortsangelösten Messtechniken erzielt, die auf dem Prinzip der Photolumineszenz (PL) basieren (s. 3.1). Dabei wechselwirkt der optisch angeregte Kristall mit dem eingestrahlten Licht, indem er dieses absorbiert und die aufgenommene Energie zum Teil wiederum in Form von Licht abgibt. Die Dynamik dieses Prozesses wird mit der zeitaufgelösten PL-Spektroskopie untersucht (s. 3.2). Zur Untersuchung einzelner InGaN-Quantenpunkte wurde das Verfahren der zeitaufgelösten Mikro-PL (μ PL) entwickelt (s. 3.3). Die Erzeugung stimulierter Emission lässt sich mittels der optischen Gewinnspektroskopie unter Verwendung der Strichlängen-Methode untersuchen (s. 3.4).

3.1 *Zeitintegrierte Photolumineszenz*

3.1.1 *Das Kühlsystem*

Um ihre Lumineszenz bei tiefen Temperaturen zu untersuchen, wurde zum Kühlen der Proben ein Helium-Bad-Kryostat verwendet. Der Probenhalter mit den aufgeklebten Proben wird von oben in den Probenraum (mit Quarzglasfenstern versehener Glaskolben) eingeführt, der zuvor über ein Transfersystem (Heber) mit flüssigem Helium ($T = 4,2$ K) befüllt wurde. Durch Abpumpen des verdampfenden Heliums kühlt das Helium weiter ab und wird bei 2,17 K suprafluid (Kap38; All38). Flüssiger Stickstoff ($T = 77$ K) und ein Vakuumschild sorgen für die thermische Isolierung des Probenraums nach außen. Für temperaturabhängige Untersuchungen wurde ein Durchfluss-Kryostat verwendet. Hier wird das Helium mit Hilfe eines Heizdrahtes verdampft und umströmt einen so genannten Kältefinger, der für den Wärmetransport von der Probe sorgt. Über die Heizspannung und

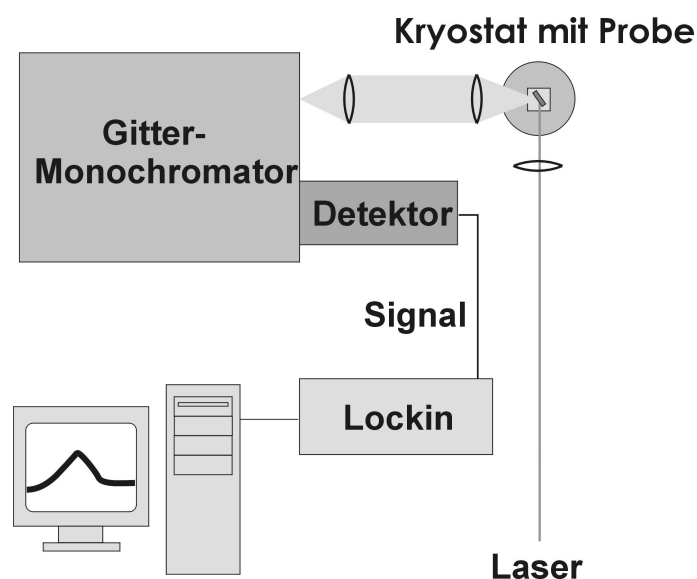


Fig. 3.1: Aufbauskitze zur zeitintegrierten PL.

den Heliumfluss kann die Probentemperatur zwischen 5 K und 300 K variiert werden.

3.1.2 Anregung und Nachweis

Die Probe wird durch ein Fenster des Kryostats optisch angeregt (s. Abb. 3.1). Als Anregungsquellen dienen verschiedene Lasersysteme (s. 3.2.1). Die Probenlumineszenz wird senkrecht zur Anregung durch ein weiteres Fenster detektiert. Die Nachweisoptik, im Allgemeinen bestehend aus 2 Sammellinsen, fokussiert das emittierte Licht auf den Eintrittsspalt eines Gittermonochromators. Am Austrittsspalt befindet ein Photomultiplier oder eine Photodiode, die das spektral aufgespaltete Licht in ein Strom- bzw. Spannungssignal umwandeln. Das Signal wird von einem Pikoamperemeter gemessen bzw. durch einen Lockin-Verstärker verstärkt und die Daten über einen Analog-Digital-Wandler an den PC ausgelesen.

3.2 Zeitaufgelöste Photolumineszenz

Um die Lebensdauer der angeregten Ladungsträger zu messen, wird die Probe mit einem Laserpuls angeregt, dessen Pulsbreite nur einige Pikosekunden beträgt, und der zeit-

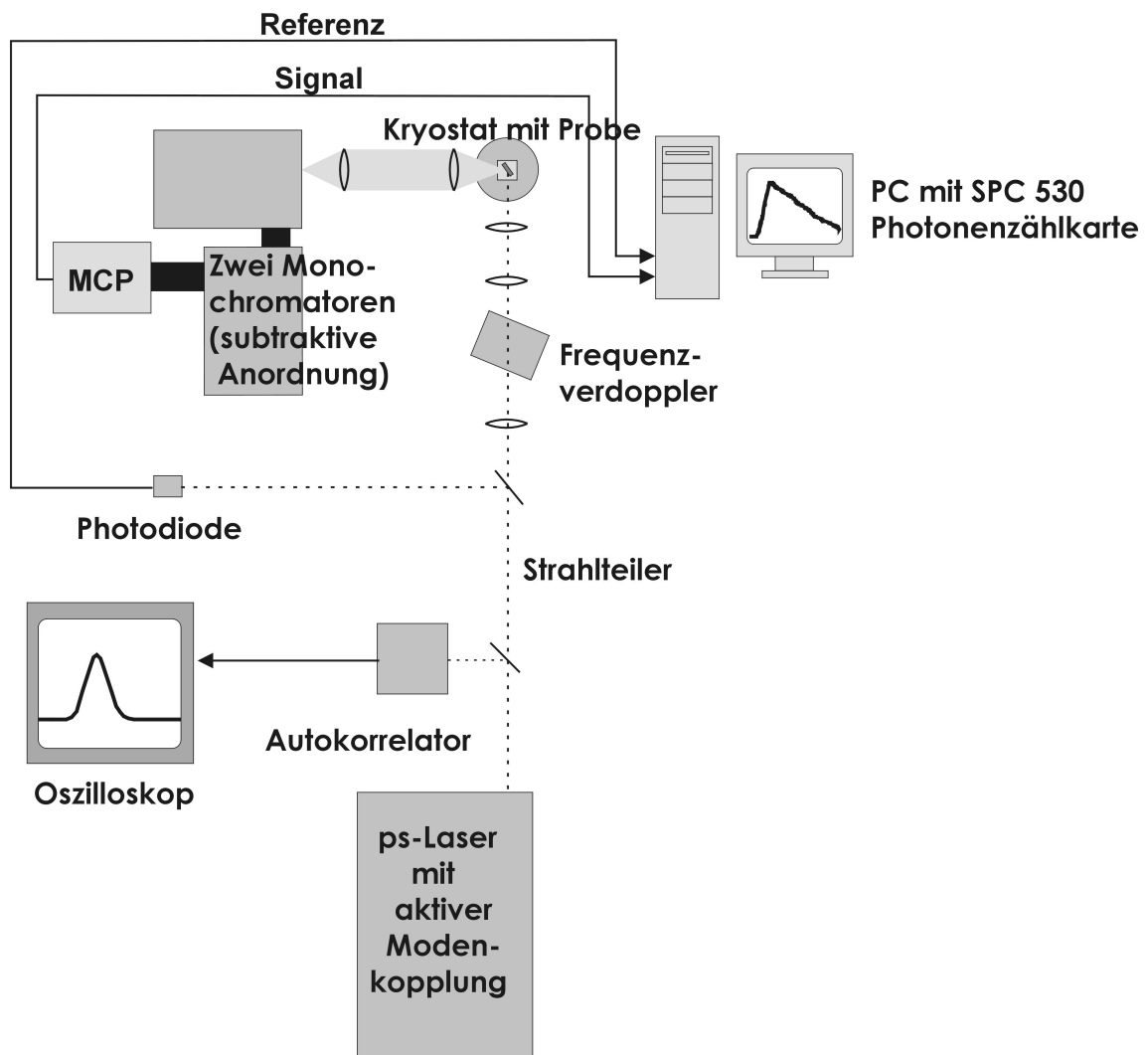


Fig. 3.2: Aufbauskitze zur zeitaufgelösten PL

liche Verlauf der Photolumineszenz untersucht. Der Monochromator wird dazu auf die gewünschte Nachweiswellenlänge eingestellt. Die Anordnung des verwendeten Anregungs- und Nachweissystems ist in Abbildung 3.2 dargestellt.

3.2.1 Anregung

Für die Anregung der InGaN-Proben wurden die mittels eines LiB_3O_5 -Kristalls frequenzverdoppelten Laserpulse eines modengekoppelten Titan-Saphir-Lasers (Modell Tsunami, Fa. Spectra Physics) verwendet. Die Wellenlänge kann mit dem verwendeten Spiegelsatz zwischen 700 und 840 nm (nach der Verdopplung 350 - 420 nm) variiert werden. Die Pulslänge wurde durch einen Autokorrelator zu 1 ps bestimmt. Die Repetitionsfrequenz des Lasers beträgt 80 MHz, das daraus resultierende Zeitfenster zwischen zwei Pulsen 12,5 ns. Dieses reichte für das sehr viel längere PL-Abklingen der untersuchten GaInNAs-Quantenfilme nicht aus. Daher wurden diese Proben mit einem Farbstofflasersystem (Fa. Coherent) angeregt. Dieses Lasersystem besteht aus einem Antares 76-s Nd:YAG-Laser mit aktiver Modenkopplung (1064nm, 100 ps-Laserpulse, Repetitionsfrequenz: 76 MHz) als Pumplaser, einer Frequenzverdopplung und einem Farbstofflaser Modell 701 mit Cavity Dumper. Durch das zeitlich synchrone Pumpen des verwendeten Farbstoffs Rhodamin6G (Emissionsmaximum: 585 nm, von 560 - 610 nm durchstimmbare) werden Pulsdauern von wenigen Pikosekunden erreicht. Dazu muss die Resonatorlänge des Farbstofflasers ein ganzzahliges Vielfaches der Resonatorlänge des Pumplasers betragen. Die Auskoppelung des Laserpulses geschieht hier nicht über einen teildurchlässigen Endspiegel, sondern durch den Cavity Dumper. Nur jeder n-te Puls ($n = 1 \dots 20$) verlässt den Resonator. Das hat den Vorteil, dass man nicht von der 13.2 ns-Zeitspanne zwischen zwei Nd:YAG-Laserpulsen abhängig ist, sondern gerade für Messungen längerer Abklingzeiten ein Zeitfenster von z.B. 264 ns ($n = 20$) zur Verfügung hat.

3.2.2 Nachweissystem

Das im oberen Teil der Abbildung 3.3 skizzierte Nachweissystem besteht aus zwei McPherson-Einfachgitter-Monochromatoren, einem Photodetektor (Multi Channel Plate) und einem PC mit einer Becker & Hickl-Einsteckkarte, Modell SPC 530 zum Einzelphotonennachweis. Die subtraktive Anordnung der Monochromatoren sorgt dafür, dass Weg- und damit Zeitunterschiede im ersten Monochromator durch den zweiten ausgeglichen werden. Eine Verbesserung der spektralen Auflösung gegenüber einem einzelnen Monochromator wird dadurch nicht erreicht. Bei der Messung der Transienten werden einzelne Photonen der Probenlumineszenz registriert und der Zeitpunkt ihres Nachweises im Detektor gemessen. Die Zeitmessung beruht auf einer Messung der Verzögerung zwischen Referenzsignal und ankommendem Signal. Aufgrund der variierenden Pulshöhe des Signals wird zur Triggerung ein Constant Fraction Discriminator (CFD) verwendet. Dieser triggert nicht das Erreichen einer absoluten Pulshöhe, sondern das Erreichen eines bestimmten Bruchteils der Maximalhöhe des Pulses. Durch einen Time to Amplitude Converter (TAC) wird die Zeitdifferenz in eine Spannungsamplitude umgewandelt. Der Signalpuls lässt eine Sägezahnspannung loslaufen (z. B. durch Aufladen eines Kondensators). Der nächste Referenzpuls stoppt die Spannungsrampe bei einem Wert, der proportional zur Zeitdifferenz ist. Ein Analog-Digital-Konverter (ADC) wandelt diese Ausgangsspannung des TAC in eine Kanalnummer (0...4095) um. Der entsprechende Kanalzähler wird daraufhin um 1 erhöht. Die Zählrate über der Kanalnummer ergibt am Ende die Transiente der Lumineszenz. Messfehler könnten dadurch entstehen, dass innerhalb der Totzeit des Systems (Zeit, in der auf den Referenzpuls gewartet wird) ein weiteres Photon den Detektor erreicht, das nicht registriert wird. Da der Detektor aber nur bei Zählraten unter 10^4s^{-1} betrieben wird, ist das Auftreffen von zwei Photonen im Zeitintervall zwischen zwei Pulsen äußerst unwahrscheinlich.¹

¹ Die Repetitionsrate des Titan-Saphir-Lasers beträgt z.B. 80 MHz ($8 \cdot 10^7 \text{Pulse/s}$). Bei einer Zählrate von 10^4s^{-1} erreichen also im Mittel $1.25 \cdot 10^{-4}$ Photonen den Detektor zwischen zwei Laserpulsen.

3.2.3 Auswertung der Transienten

Die gemessene Transiente $I(t)$ ist nicht die reine Lumineszenz $P(t)$ der Probe, sondern deren Faltung mit der Gerätefunktion $G(t)$:

$$I(t) = \int_0^t P(t - \theta)G(\theta)d\theta. \quad (3.1)$$

Die Gerätefunktion setzt sich wiederum aus dem anregenden Laserpuls $L(t)$ und der Antwortfunktion $A(t)$ der Nachweiselektronik gemäß $G(t) = (A * L)(t)$ zusammen und lässt sich bestimmen, indem man den Laserpuls direkt vermisst. Anstatt die Faltung rückgängig zu machen, z. B. unter Ausnutzung der Fouriertransformation, nimmt man für $P(t)$ ein exponentielles Abklingen mit einer oder mehreren Komponenten oder ein anderes physikalisches Modell an und faltet diese Modellfunktion mit der gemessenen Gerätefunktion $G(t)$. Das Ergebnis dieser Faltung wird an die gemessene Transiente angepasst. Als Ergebnis der Anpassung erhält man z. B. die Abklingzeiten der Lumineszenz.

3.3 Spektroskopie an einzelnen Quantenpunkten

Zur Untersuchung einzelner InGaN-Quantenpunkte (QP) wurde im Rahmen dieser Arbeit ein Mikro-PL-Aufbau (μ PL) realisiert. Dieser ermöglichte es, in Kombination mit Schattenmasken eine Ortsauflösung von 200nm zu erreichen und so die PL einzelner QPe sowohl zeitintegriert als auch zeitaufgelöst zu untersuchen.

Herzstück des Aufbaus ist ein Mikroskop (Fa. Olympus) mit Erweiterungen wie in Abbildung 3.3 dargestellt. Zur optische Abbildung ist es mit zwei *long working distance* UV-Objektiven (20x und 100x) ausgestattet. Zusammen mit der 20X Vergrößerung des Okulars kann somit eine zweitausendfache Vergrößerung erreicht werden. Hierbei wird das optische Limit von etwa $0,5 \mu\text{m}$ erreicht. Strahlen innerhalb des Mikroskops verlaufen parallel und es können beliebig weitere Module eingefügt werden. Eine solche Erweiterung ermöglicht das Einkoppeln der Anregung über ein mit dielektrischen Schichten bedampftes Glasplättchen. Es sind dadurch zwei Anregungsmodi möglich: die Anregung A_1 ist ma-

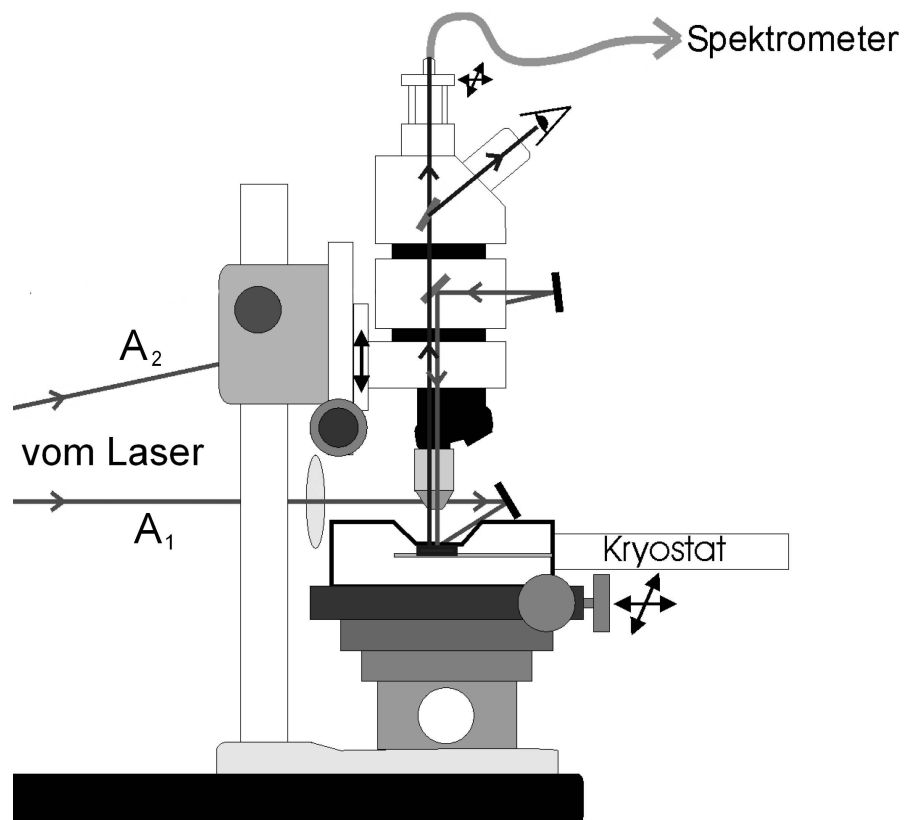


Fig. 3.3: Schematischer Aufbau der μ -PL.

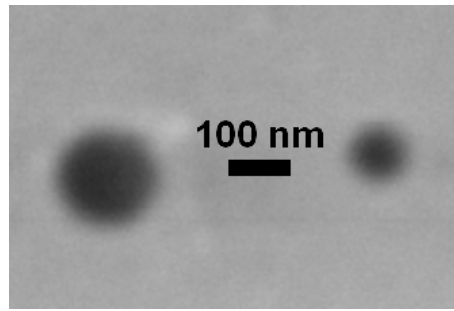


Fig. 3.4: Raster-Elektronen-Mikroskop-Aufnahme der Platin-Maske mit einer 100 nm- und einer 200 nm-Apertur.

kroskopisch, da sie nur durch eine Linse mit $f_1 = 160$ mm fokussiert wird, A_2 wird in den Strahlengang des Objektivs eingekoppelt und regt die Probe mikroskopisch an. Die Lumineszenz wird in ein Glasfaserbündel eingekoppelt, das auf dem obersten Modul gefestigt ist. Werden alle Fasern bis auf eine abgedeckt, ist mit dem 100x Objektiv die örtliche Auflösung besser als ein Mikrometer. Über Umkehrung des Strahlenganges, d.h. durch Bestrahlen des freien Endes der Glasfaser, kann der Nachweis bequem auf der Probenoberfläche mittels Mikrometerschrauben positioniert werden. Das andere Ende der Glasfaser wird mittels einer Einkoppel-Optik auf den Eingangsspalt des Monochromators abgebildet. Zur Probenhalterung wurde ein Mikroskoptisch (Fa. Märzhäuser) installiert, der sich mit Schrittmotoren auf etwa $0,5 \mu\text{m}$ genau verstellen lässt. Auf diesem Tisch wurde ein Mikroskop-Kryostat (Fa. Oxford) befestigt.

Um die Lumineszenz einzelner InGaN-Quantenpunkte zu detektieren, wurde eine 70 nm dicke Platin-Schattenmaske auf die Probe aufgetragen, in der Aperturen von einigen 100 nm freigelassen werden (Seg04a). Anregung und Nachweis geschehen nur noch über diese Öffnungen und es wird so eine Auflösung erreicht, die über der optischen Mikroskopie liegt. Die Masken schwächen das Licht um einen Faktor 1000 ab. Da der Nachweis der μPL jedoch $1 \mu\text{m}^2$ abdeckt, wird z.T. auch transmittiertes Licht der umliegenden Quantenpunkte detektiert (s.a. 7.2).

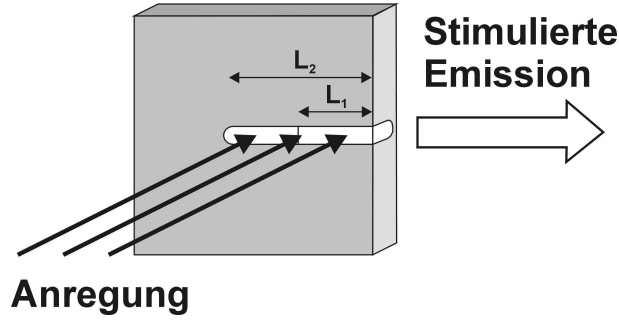


Fig. 3.5: Das Prinzip der Strichlängenmethode.

3.4 Gewinnspektroskopie - Die Strichlängen-Methode

Der Messaufbau der Gewinnspektroskopie unterscheidet sich zur Standard PL (s. 3.1) vor allem durch die höhere Anregungsintensität, die für die Erzeugung stimulierter Emission nötig ist. Zur Generation der hohen Leistungsdichten wurde ein Excimer-Laser (LPX 200, Fa. Lambda Physik, XeFl, 351 nm) verwendet. Für die Bestimmung der optischen Verstärkung wurde die Strichlängenmethode angewendet (alG69; Sha73). Mittels einer Blende, einer Zylinderlinse und eines variablen Spalts wird das anregende Laserlicht als wenige μm breiter Strich auf die Probe abgebildet (s. Abb. 3.5). Die Strichlängenmethode nutzt die räumliche Abhängigkeit der stimulierten Emission von der Geometrie des angeregten Bereiches auf der Probe. Die Länge L des angeregten Bereiches wird durch den Spalt bestimmt. Bei homogener Intensitätsverteilung des Anregungsflecks auf der Probe gilt zwischen L und der Intensität I der stimulierten Emission folgende Beziehung:

$$I(L) = I_0[\exp(g(E) \cdot L) - 1]. \quad (3.2)$$

Die stimulierte Emission wird hauptsächlich parallel zur Kristalloberfläche aus der Probenkante ausgestrahlt. Bei Variation der Strichlänge ergibt sich die optische Verstärkung zu:

$$g(E) = \frac{I_0(L_1, E)}{I_0(L_2, E)} = \frac{\exp(g(E) \cdot L_1) - 1}{\exp(g(E) \cdot L_2) - 1}. \quad (3.3)$$

Für den Spezialfall $L_2 = 2 \cdot L_1$ hat Gleichung 3.3 die analytische Lösung:

$$g(E) = \frac{1}{L_1} \ln \left[\frac{I(2L_1, E)}{I(L_1, E)} - 1 \right]. \quad (3.4)$$

Aus den gemessenen Hochanregungs-PL-Spektren lässt sich damit der optische Gewinn berechnen.

Die im Rahmen dieser Arbeit mittels der beschriebenen Techniken erzielten Ergebnisse werden in den folgenden Kapiteln vorgestellt und diskutiert.

4. DIE LICHTAUSBEUTE IN GAINNAS-QUANTENFILMEN

Wie bereits in Kapitel 2 dargelegt hat der Einbau geringer Mengen Stickstoff in InGaAs gravierende Änderungen der optischen und elektronischen Eigenschaften zur Folge. Die Bandlücke des entstehenden quaternären Systems GaInNAs und damit auch die Emissionswellenlänge GaInNAs-basierender Lichtemitter wird ins Infrarote geschoben, in den Bereich um $1,3\ \mu\text{m}$, der dieses Material interessant für Telekommunikationsanwendungen macht. Zugleich ist damit jedoch auch eine drastische Verschlechterung der Lichtausbeute verbunden. Erst das thermische Ausheilen der Strukturen, in-situ (während des Wachstums) oder ex-situ (nach dem Wachstum), führt zu einer nachträglichen Erhöhung der Quanteneffizienz. Damit aber GaInNAs-Strukturen wirklich wettbewerbsfähig werden können gegenüber den in diesem Spektralbereich bereits etablierten InGaAsP-Strukturen (Bog74) und den in den letzten Jahren stark aufholenden In(Ga)As-Quantenpunkten (Bim99; Zhu98), muss die Lichtausbeute noch deutlich erhöht werden. Dies kann z.B. durch eine weitere Optimierung der Ausheilverfahren erreicht werden.

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten GaInNAs-Quantenfilmstrukturen wurde in der Infineon AG von Dr. Lutz Geelhaar hergestellt und von Dr. Massimo Galluppi mittels zeitintegrierter PL vorcharakterisiert. Die Proben sind Teil einer umfangreichen Studie, die das Ziel hat, sowohl das Wachstum als auch den Ausheilungsprozess zu optimieren und beide Verfahrensschritte optimal miteinander zu kombinieren. (Gee06; Gee07) Die Quantenfilme (QWs) sind mittels *Solid-Sorce* Molekularstrahl-Epitaxie (MBE) auf GaAs(001)-Substrat bei Wachstumstemperaturen T_{Growth} zwischen 360°C und 480°C abgeschieden worden, unter Verwendung einer *radio frequency* Plasma-Quelle für den Stickstoff. Die Probenstruktur ist schematisch in Abbildung 4.1 dargestellt. Der Indium-Gehalt der etwa $6,5\ \text{nm}$ breiten GaInNAs-QWs beträgt 37%, ihr Stickstoffgehalt 1,7 %. Sie sind auf beiden

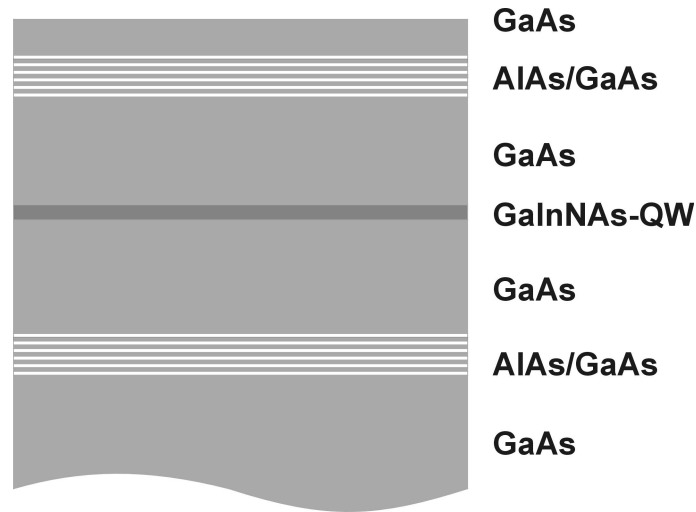


Fig. 4.1: Struktur der GaInNAs-Quantenfilm-Proben.

Seiten von 200 nm GaAs und 30 nm AlAs/GaAs-Übergittern eingeschlossen. Nach dem Wachstum wurden die Proben geteilt und einem thermischen Ausheilprozess unterzogen. Als Ausheilatmosphäre wurde jeweils Argon oder Wasserstoff verwendet.

Strukturelle Untersuchungen mittels Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) durch Dr. Martin Albrecht und Dr. Thilo Remmele am Institut für Kristallzüchtung in Berlin (Gri01; Gee06) zeigen mit zunehmender Wachstumstemperatur einen Übergang vom 2D-Schichtwachstum zu einem 3D-Inselwachstum (s. Abb. 4.2). Die Grenzflächenrauigkeit insbesondere für die obere Grenzfläche nimmt zu und die Indium- und Stickstoff-Verteilung im QW wird inhomogener. Es konnten allerdings kaum Unterschiede zwischen den Querschnitts-TEM-Aufnahmen der ausgeheilten und der unbehandelten Proben festgestellt werden. Die bei $T_{\text{Growth}} = 402^{\circ}\text{C}$, 429°C bzw. 453°C gewachsenen Proben-Serien wurden uns daher für optische Untersuchungen zur Verfügung gestellt. Sie werden in dieser Arbeit nach ihrer Wachstumstemperatur und der Ausheilatmosphäre benannt. Ziel dieser Probenserie war es nicht, den Ausheilprozess mit dem jeweiligen Atmosphärendruck zu optimieren, sondern das Argon- und das Wasserstoffausheilen miteinander zu vergleichen. Ausheiltemperatur und -dauer sind deshalb bei allen nachträglich behandelten Proben (4**ar und 4**h) gleich (109 min, 680°C).

Gegenstand dieses Kapitels sind die optischen Untersuchungen an diesen Strukturen

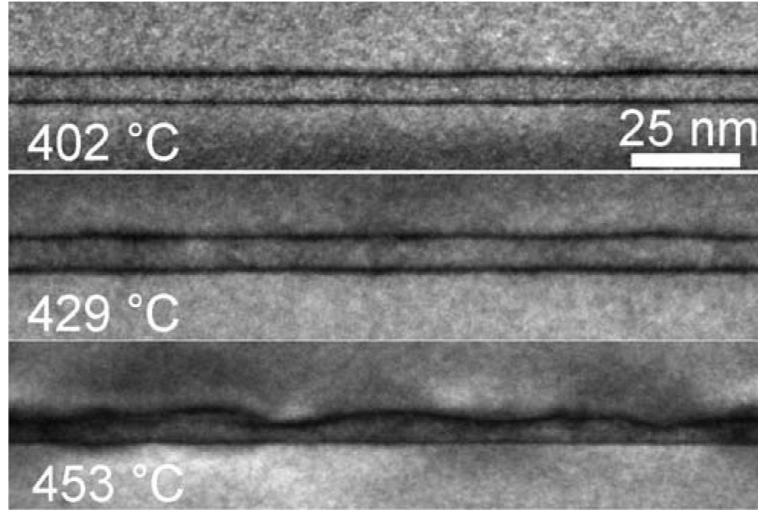


Fig. 4.2: TEM-Dunkelfeldaufnahmen der Proben 402, 429 und 453 (chemisch sensitiver (002)-Reflex).

mittels zeitintegrierter und zeitaufgelöster Photolumineszenzspektroskopie (PL). Kombiniert mit strukturellen Untersuchungen mittels Draufsicht-TEM zeigen sie, wie die strukturellen Eigenschaften der QWs durch Wachstum und Ausheilprozess beeinflusst werden, und über welche Mechanismen sich dies auf die Lichtausbeute auswirkt.

4.1 Der Einfluss der Wachstumstemperatur

Bei tiefen Temperaturen ($T < 20\text{K}$) werden die optischen Eigenschaften von GaInNAs-QWs durch die Lokalisierung von Exzitonen bestimmt, da die inhomogene Verteilung des Stickstoffs und des Indiums zu einer komplexen Potentiallandschaft unterschiedlich tiefer Lokalisierungszentren führt. Wie die Ergebnisse der Querschnitts-TEM zeigen, hängt die Inhomogenität der Strukturen und damit die Tiefe der Potentiale in erster Linie von der Wachstumstemperatur ab. Dies spiegelt sich auch in den PL-Spektren wieder. Abbildung 4.3 zeigt die Tieftemperatur-PL-Spektren der unbehandelten Strukturen 402, 429 und 453. Trotz gleicher QW-Dicke und gleichem Indium- bzw. Stickstoffgehalt unterscheiden sich die Lumineszenzbanden in der Emissionsenergie, ihrer Intensität und der Halbwertsbreite (FWHM). Mit einem PL-Maximum bei 1,00 eV und einer FWHM von 25,8 eV hat der

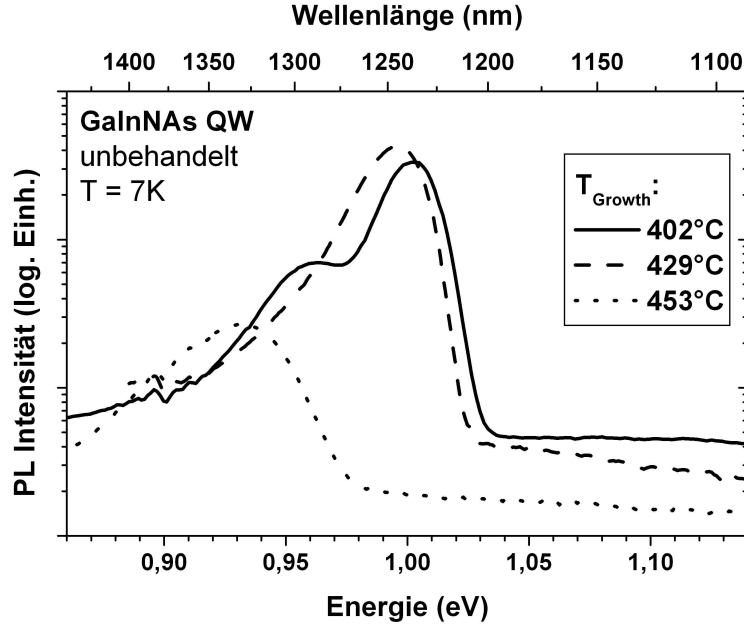


Fig. 4.3: PL-Spektren der unbehandelten GaInNAs-Quantenfilme.

glatte QW 402 die energetisch höchste und schmalste PL-Bande. Der raue QW 429 besitzt dagegen die intensivere Lumineszenz. Die PL der Inselstruktur 453 unterscheidet sich am stärksten von denen der anderen beiden Proben. Sie ist nicht nur etwa eine Größenordnung schwächer und zeigt die breiteste Bande (FWHM = 49,9 meV), sondern hat ihr Maximum mit 0,932 eV auch bei der kleinsten Energie. Der Zusammenhang zwischen Emissionsenergie und FWHM (je breiter die PL-Bande desto kleiner die Energie des PL-Maximums) zeigt, dass diese Rotverschiebung mit zunehmender Grenzflächenrauigkeit direkt auf die tiefer werdenden Lokalisierungspotentiale zurückgeführt werden kann. Je rauer also der QW, desto inhomogener ist auch die Verteilung der chemischen Zusammensetzung und umso tiefer sind damit die Lokalisierungspotentiale. Diesen Zusammenhang illustriert Abb. 4.4 sehr gut. Hier sind für die drei unbehandelten Strukturen normalisierte PL-Spektren unter unterschiedlichen Anregungsbedingungen aufgetragen. Die Proben wurden dazu jeweils mit einer Halogen-Lampe, mit einem HeNe-Laser (cw, ca. 100 W/cm²) bzw. mit dem Farbstofflaser (ps-Pulse, 10⁻⁸ J, 10⁷ W/cm², 10⁷ Ladungsträger pro μm²) angeregt. Bei den drei Strukturen zeigt sich ein identisches Verhalten: Mit zunehmender Anregungsintensität ver-

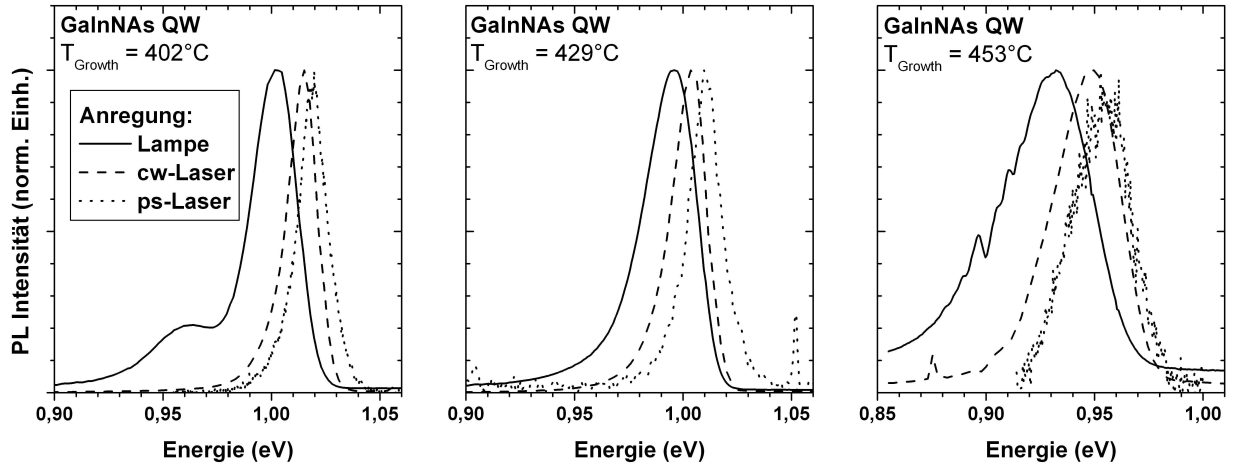


Fig. 4.4: PL-Spektren der unbehandelten GaInNAs-Quantenfilme unter verschiedenen Anregungsbedingungen

schiebt sich die PL-Bande zu höheren Energien. Der Grund dafür sind Auffüllprozesse: Bei höheren Anregungsintensitäten werden so viele Exzitonen erzeugt, dass die tieferen Lokalisierungszentren gesättigt und flachere Lokalisierungszentren bzw. 2D-artige QW-Zustände bevölkert werden. Die Insel-Struktur 453 mit den tiefsten Potentialtöpfen zeigt daher auch die größte Blauverschiebung.

Die starke Lokalisierung in dieser Struktur steht allerdings im Widerspruch zur beobachteten geringen PL-Intensität. Man erwartet im Allgemeinen, dass lokalisierte Ladungsträger keine Defekte erreichen, die als nichtstrahlende Rekombinationszentren wirken könnten. Sie sollten daher die aufgenommene Energie ausschließlich durch strahlende Rekombination abgeben. Damit lässt sich zwar erklären, dass die stärkere Lokalisierung im rauen QW 429 im Vergleich zum glatten QW 402 bei tiefen Temperaturen zu einem Anstieg der PL-Intensität führt. Der Einbruch der Lichtausbeute in der Inselstruktur 453 lässt sich damit allerdings nicht erklären.

Eine geeignete Methode zur Untersuchung strahlender und nichtstrahlender Prozesse in Halbleitern liefert die zeitaufgelöste PL-Spektroskopie. Wie im folgenden gezeigt wird, ist sie außerdem in der Lage, zusätzlich wertvolle Informationen über die strukturellen Eigenschaften der GaInNAs-QWs zu liefern. Abbildung 4.5 zeigt den zeitlichen Verlauf der

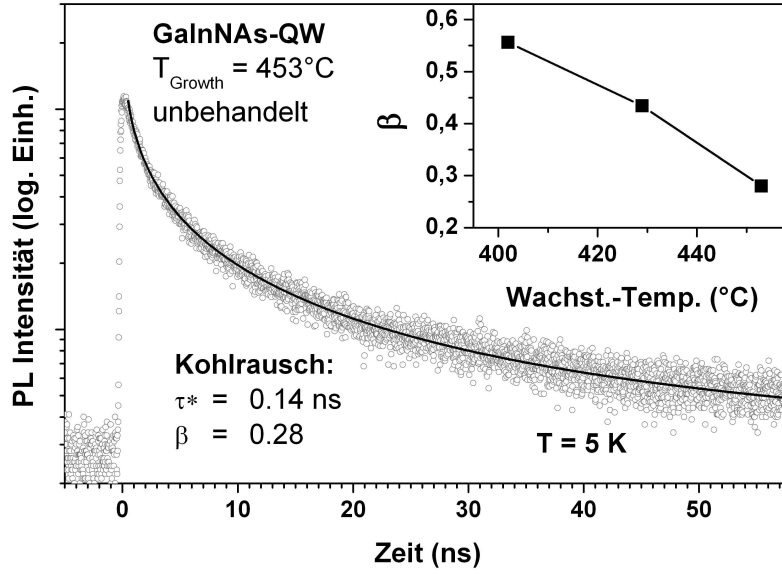


Fig. 4.5: Die nicht exponentielle PL-Transiente der GaInNAs-Probe 453. Die experimentellen Werte wurden mit der Kohlrausch-Funktion (Gl. 4.1) angepasst.

PL der Probe 453 nach der Anregung durch einen ps-Laserpuls. Die Anregung erfolgte mit 2,12 eV deutlich oberhalb der Bandlücke des Matrix-Materials GaAs. Das Anklingen der Lumineszenz ist mit wenigen ps kürzer als die Zeitauflösung der Messapparatur und zeugt von einer effizienten, z.B. phonon-assistierten, Relaxation der Ladungsträger in die QW-Zustände. Das nicht exponentielle Abklingen der PL-Transiente, dass bei allen untersuchten GaInNAs-Strukturen beobachtet wurde, ist ein typisches Verhalten ungeordneter Halbleitersysteme. Es lässt sich mit der Kohlrausch-Funktion (Koh54)

$$I(t) = I_0 \exp[-(t/\tau^*)^\beta], \quad (4.1)$$

anpassen, wobei τ^* eine charakteristische Zeitkonstante und β der Streckparameter mit Werten zwischen 0 und 1 ist. Die Differenz $1 - \beta$ ist dabei ein Maß für die Unordnung im System, genauer gesagt, für die inhomogene Verteilung des Indiums und des Stickstoffs im QW. In Abbildung 4.5 rechts oben ist β als Funktion der Wachstumstemperatur aufgetragen. Es bestätigt sich der Trend, den bereits die bisher diskutierten Ergebnisse zeigen: Mit

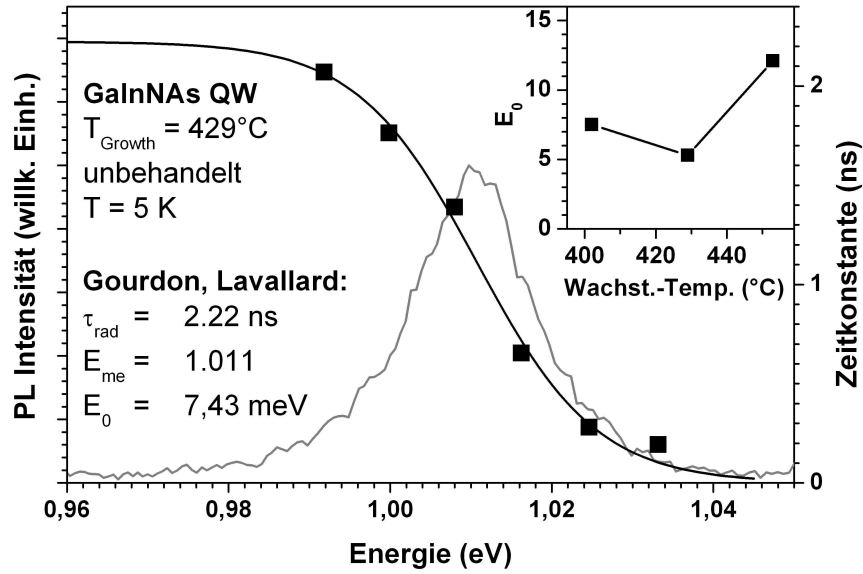


Fig. 4.6: Spektrale Abhängigkeit der Zeitkonstanten (Probe 429), mit Gl. 4.2 angepasst.

zunehmender Wachstumstemperatur erhält man ein kleineres β , d.h. der GaInNAs-QW wird inhomogener.

Es bleibt die Frage, wie die geringe Lichtausbeute der Inselstruktur 453 erklärt werden kann, d.h. wie lokalisierte Exzitonen nichtstrahlende Rekombinationszentren erreichen. Einen Hinweis darauf, dass auch lokalisierte Ladungsträger immer noch eine gewisse Mobilität behalten, liefert die spektrale Abhängigkeit der Abklingzeiten. Die charakteristische Zeitkonstante τ^* aus Gl. 4.1 ist in Abbildung 4.6 exemplarisch für die Struktur 429 als Funktion der Emissionsenergie dargestellt. Mit zunehmender Energie fällt τ^* ab. Die Zeitkonstante ist ein reiner Fitparameter ohne echte physikalische Bedeutung. Dennoch beschreibt er in diesem Fall die Entwicklung der Transienten mit zunehmender Übergangsenergie recht gut. Abnehmende Zeitkonstanten mit zunehmender Energie sind bereits seit längerem von verschiedenen Misch-Halbleiter-Systemen bekannt (Kre02; Str02). Gourdon und Lavallard (Gou89) führen dieses Verhalten auf einen Transfer der Exzitonen von flachen zu tieferen Lokalisierungspotentialen über Tunnelprozesse zurück, wie es schematisch in Abbildung 4.7 dargestellt ist. Dabei nehmen sie eine Zustandsdichte (DOS) proportional zu $\exp(-E/E_0)$

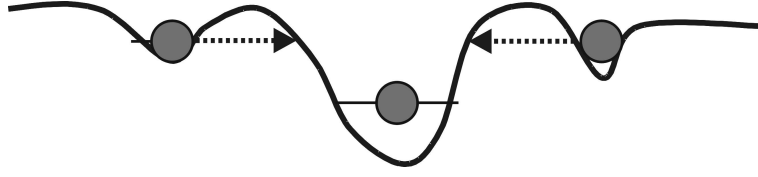


Fig. 4.7: Prinzipskizze der Transferprozesse nach Gourdon und Lavallard (Gou89).

an. Die PL-Abklingzeit als Funktion der Detektionsenergie wird beschrieben durch:

$$\tau(E) = \frac{\tau_{rad}}{1 + \exp[(E - E_{me})/E_0]}, \quad (4.2)$$

wobei τ_{rad} die strahlende Lebensdauer ist. E_{me} ist die Energie, bei der die strahlende Lebensdauer gleich der Transferzeit ist, und E_0 eine charakteristische Energie für die DOS der lokalisierenden Zustände. Der letzte Parameter ist ein Maß für die mittlere Lokalisierungsenergie. Sein Wert für den QW 453 ist deutlich größer als bei den anderen beiden unbehandelten Strukturen. (s. Abb. 4.6 rechts oben) Auch hier zeigt sich wieder der Trend, dass die Lokalisierung mit steigender Wachstumstemperatur zunimmt. E_{me} bezeichnet den Übergang von in allen Raumrichtungen eingeschränkten zu im QW frei beweglichen Exzitonen. Oberhalb dieser Energie ist der Transfer der Exzitonen wahrscheinlicher als ihre strahlende Rekombination. Diese Mobilität der Exzitonen ist dafür verantwortlich, dass sie nicht nur benachbarte Lokalisierungszentren, sondern auch Defekte erreichen. Offensichtlich nimmt die Anzahl dieser nichtstrahlenden Rekombinationszentren mit höherer Wachstumstemperatur zu. Dies führt zu der deutlich geringeren Lichtausbeute des bei 453°C gewachsenen GaInNAs-QW bei tiefen Temperaturen.

Eine sehr viel größere Rolle als die Lumineszenzeigenschaften bei tiefen Temperaturen spielt für die Anwendung von GaInNAs-QWs in Lichtemittern deren Verhalten bei Raumtemperatur. Abbildung 4.8 zeigt exemplarisch die PL-Spektren der Struktur 453 bei Temperaturen zwischen 5 K und 300 K. Auffällig ist einerseits der starke Abfall der PL-Intensität mit steigender Temperatur und andererseits das ungewöhnliche Verhalten des PL-Maximums. Während sich die PL-Bande mit steigender Temperatur zu kleineren Energien verschiebt, wächst auf der hochenergetischen Flanke ein neues PL-Maximum heraus.

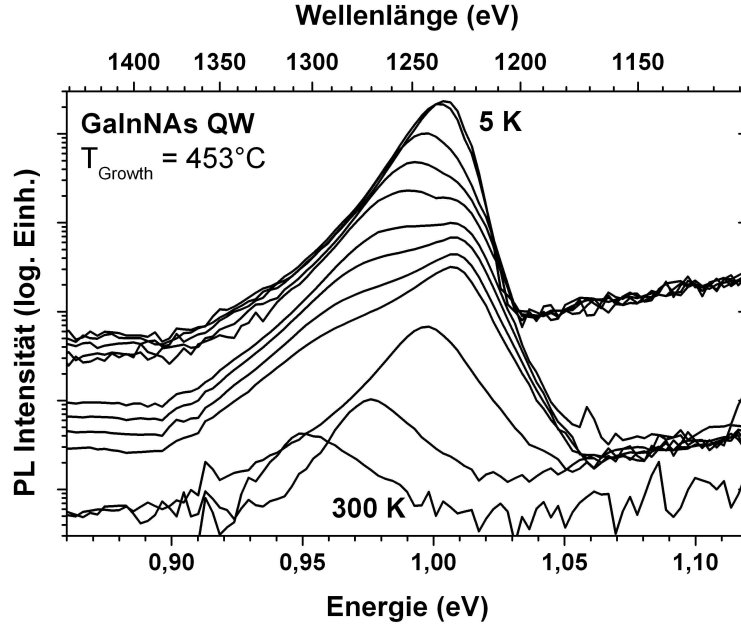


Fig. 4.8: PL-Spektren des GaInNAs-Quantenfilms 453 bei verschiedenen Temperaturen zwischen 5 K und Raumtemperatur.

Auch dieses verschiebt mit steigender Temperatur ins Rote.

Dieses Verhalten ist deutlich in Abbildung 4.9 erkennbar. Die PL-Maxima der drei unbehandelten Proben 402, 429 und 453, aufgetragen als Funktionen der Temperatur, zeigen nicht die parabolische Abhängigkeit der Bandlücke typischer Halbleiter nach Varshni (Var67). Die Emissionsenergie fällt bei tiefen Temperaturen stark ab, um bei höheren Temperaturen wieder anzusteigen. Erst oberhalb von 150 K bis 200 K nähert sich die Funktion einem Varshni-Verhalten an.

Dieses *S-Shape*-Verhalten kann, wie in Abbildung 4.10 schematisch dargestellt, mit einer thermisch aktivierten Umverteilung der Exzitonen erklärt werden.

$T < T_{akt.}$: Mit steigender Temperatur gelangen Exzitonen aufgrund ihrer thermischen Energie über den jeweiligen Potentialwall in benachbarte tiefer lokalisierende Potentialminima. Die Emissionsenergie schiebt daher stärker zu kleineren Energien als das herkömmliche Bandlückenverhalten des idealen Volumenhalbleiters.

$T > T_{akt.}$: Oberhalb einer Temperatur $T_{akt.}$, die der mittleren Lokalisierungsenergie ent-

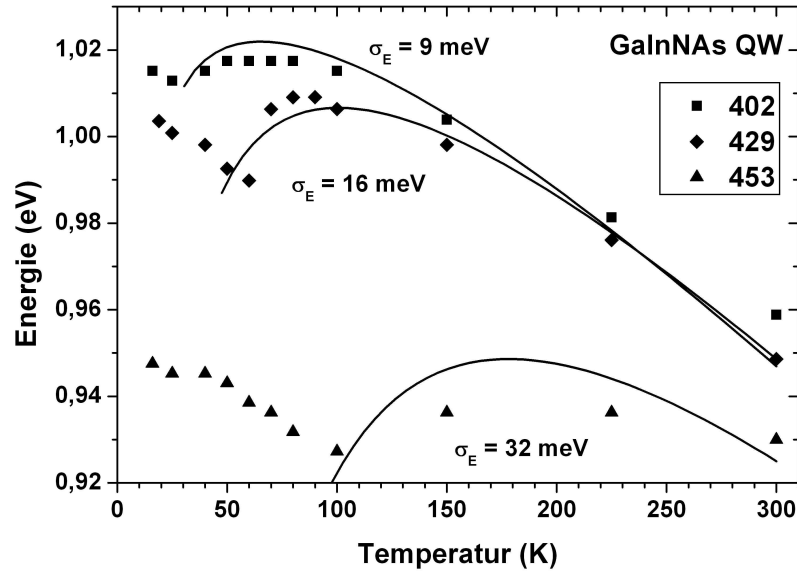


Fig. 4.9: Temperaturabhängigkeit des PL-Maximums, mit Gl. 4.3 angepasst.

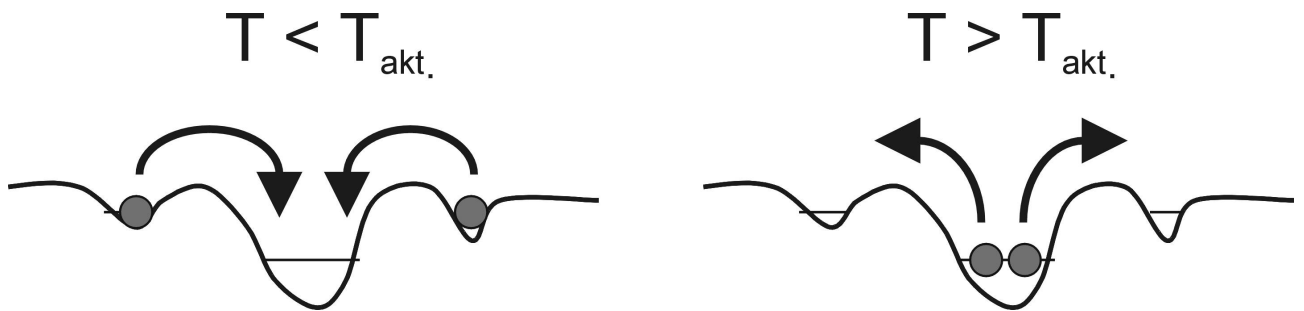


Fig. 4.10: Prinzipskizze der thermisch aktivierten Umverteilung.

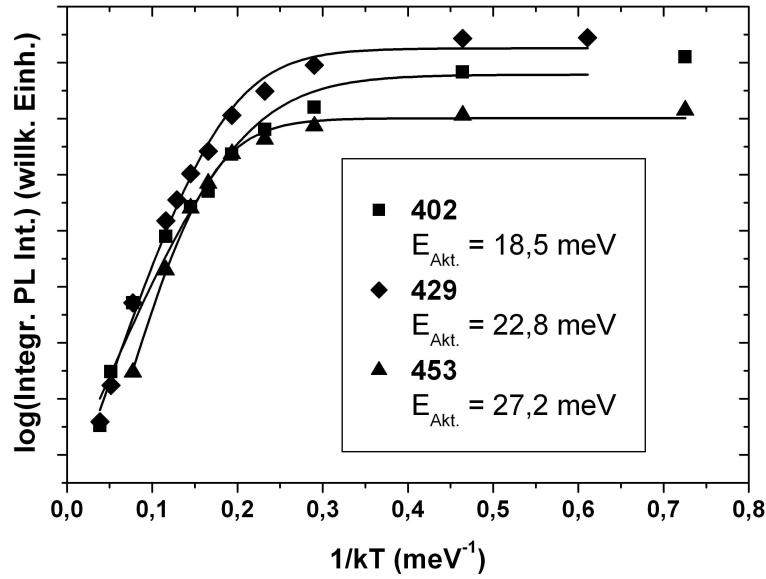


Fig. 4.11: Integrale PL-Intensität der unbehandelten GaInNAs-Quantenfilme als Arrhenius-Plot.

spricht, gelangen die Exzitonen auch aus den tiefen Lokalisierungspotentialen zu energetisch höheren 2D-artigen QW-Zuständen. Sie können sich nun frei im QW bewegen. Die Emissionsenergie zeigt eine Blauverschiebung.

Die Anpassung des *S-Shape*-Verhaltens oberhalb von $T_{akt.}$ mit

$$E(T) = E_g - \frac{\alpha \cdot T^2}{\beta + T} - \frac{\sigma_E^2}{k_B \cdot T} \quad (4.3)$$

liefert die Standardabweichung σ_E der Potentialfluktuationen, ein weiteres Maß für die Lokalisierungsenergie (Bel03). Dabei ist E_g die Bandlücke bei $T = 0$ K und k_B die Boltzmann-Konstante. Für die Materialparameter wurde $\alpha = 5 \cdot 10^{-4}$ und $\beta = 225$ K angenommen.

Die Delokalisierung der Ladungsträger mit zunehmender Temperatur sorgt für eine Zunahme nichtstrahlender Prozesse und damit für das rapide Absinken der Lichtausbeute. Dieser Zusammenhang lässt sich gemäß (Bim71) folgendermaßen beschreiben:

$$I(T) = \frac{I_0}{1 + \sum_n A_n \exp\left(-\frac{E_{akt.,n}}{k_B \cdot T}\right)}. \quad (4.4)$$

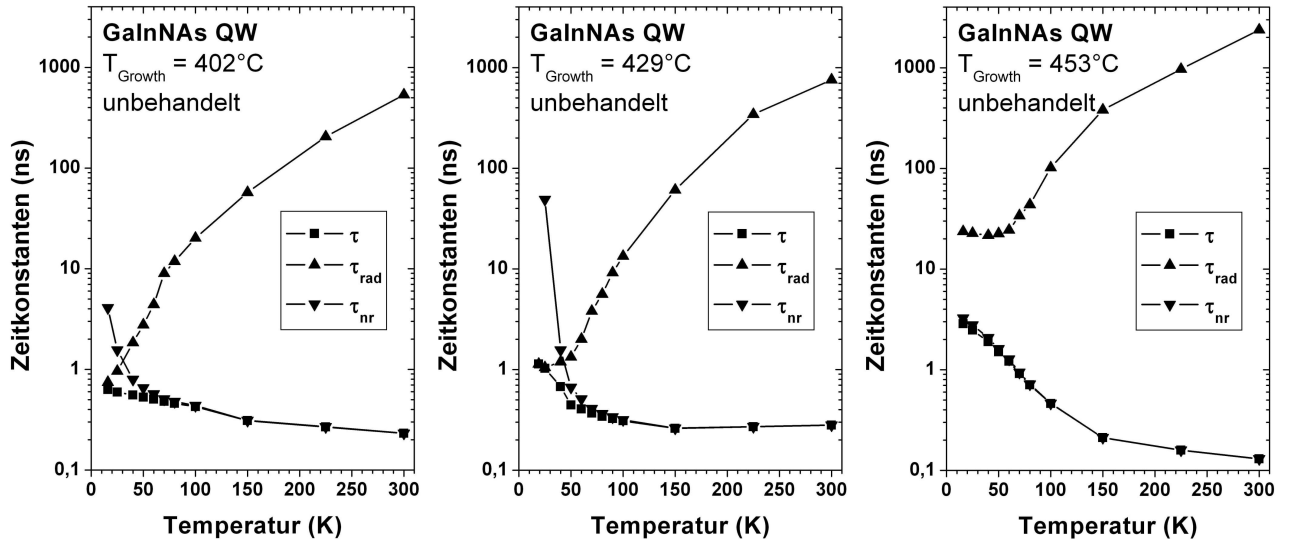


Fig. 4.12: PL-Abklingzeit τ , strahlende Lebensdauer τ_{rad} und nichtstrahlende Lebensdauer τ_{nr} der unbehandelten GaInNAs-Quantenfilme als Funktion der Temperatur.

$E_{akt.,n}$ und A_n sind die Aktivierungsenergien bzw. die Wichtungsfaktoren der einzelnen thermisch aktivierten Umverteilungsprozesse. Die temperaturabhängigen integralen Intensitäten der GaInNAs-QWs, in Abbildung 4.11 als *Arrhenius*-Plot über $1/k_B T$ aufgetragen, lassen sich mit einer einzigen Aktivierungsenergie E_{akt} anpassen. Auch diese ist ein weiteres Maß für die Lokalisierungsenergie.

Die Temperaturabhängigkeit der integralen PL-Intensität und der Abklingzeiten der PL-Transienten bietet die Möglichkeit, das Verhältnis von strahlender und nichtstrahlender Rekombination im Detail zu untersuchen. Aus Gleichung 2.4 ergeben sich für die strahlende Lebensdauer τ_{rad} und die nichtstrahlende Lebensdauer τ_{nr} die einfachen Zusammenhänge

$$I(T) = I_0 \eta_0 \frac{\tau}{\tau_{rad}} \quad (4.5)$$

und

$$\tau_{nr} = \frac{\tau \cdot \tau_{rad}}{\tau_{rad} - \tau}. \quad (4.6)$$

Dabei bezeichnet η_0 die Quanteneffizienz bei $T = 0$ K. Ihr Wert spiegelt sich in der integra-

Tab. 4.1: Zusammenstellung der experimentellen Ergebnisse der PL-Untersuchungen an den un-behandelten GaInNAs-Proben.

Probe	402	429	453
PL-Maximum	1,001 eV	0,996 eV	0,932 eV
E_{me}	1,008 eV	1,014 eV	0,964 eV
Integrale PL-Intensität (willk. Einheiten)	126	149	18
FWHM	26 meV	28 meV	50 meV
β	0,56	0,43	0,28
E_0	7,5 meV	5,3 meV	12,1 meV
σ_E	9 meV	16 meV	32 meV
$E_{Akt.}$	18,5 meV	22,8 meV	27,2 meV
τ_{nr} bei T = 5 K	4,08 ns	∞	3,25 ns
τ_{nr} bei T = 300 K	230 ps	280 ps	130 ps

len PL-Intensität der Tieftemperatur-Spektren wieder. Vereinfacht soll daher angenommen werden, die Struktur mit der größten Lichtausbeute (hier der QW 429) habe eine Quanteneffizienz von 100%. Die ermittelten Zeitkonstanten τ_{rad} und τ_{nr} besitzen dadurch zwar alle den gleichen systematischen Fehler, dennoch lassen sich die Zeitkonstanten innerhalb der Probenserie gut miteinander vergleichen. Vergleicht man τ_{rad} und τ_{nr} der Inselstruktur 453, aufgetragen als Funktion der Temperatur (s. Abb. 4.12), mit den Werten für die anderen beiden unbehandelten Strukturen, lässt sich ein deutlicher Unterschied hinsichtlich der Rekombinationsdynamik erkennen. Während für die Strukturen 402 und 429 bei tiefen Temperaturen τ_{nr} noch deutlich größer ist als τ_{rad} , ist in der Struktur 453 bereits hier die nichtstrahlende Rekombination sehr viel wahrscheinlicher als die strahlende. Damit ist der endgültige Beweis erbracht, dass bereits bei tiefen Temperaturen die Wechselwirkung der Exzitonen mit Defekten zu der deutlich schlechteren Lichtausbeute der Insel-artigen Struktur 453 führt. Dieser Effekt wird bei erhöhten Temperaturen aufgrund der thermisch aktivierten Delokalisierung noch verstärkt. Auch hier besitzt die Struktur 453 den kleinsten Wert für τ_{nr} , verglichen mit den anderen beiden unbehandelten GaInNAs-QWs.

In Tabelle 4.1 sind die Ergebnisse der zeitintegrierten und zeitaufgelösten PL-Untersuchungen zusammengefasst. Sie zeigen einstimmig, dass mit zunehmender Wachstumstemperatur nicht nur die Grenzflächen des GaInNAs-QW rauer werden, sondern auch seine

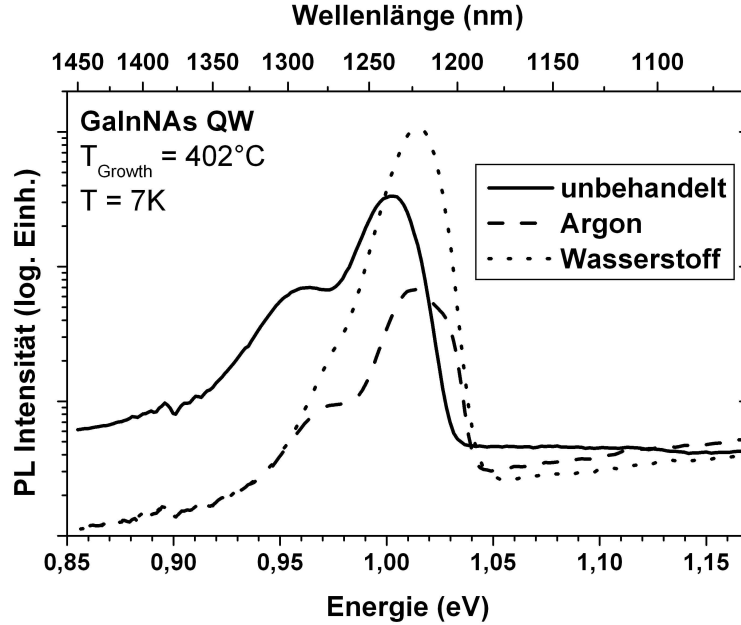


Fig. 4.13: PL-Spektren der bei 402°C abgeschiedenen GaInNAs-Quantenfilme.

chemische Zusammensetzung inhomogener. Dies führt zu einer stärkeren Lokalisierung der Exzitonen bei tiefen Temperaturen. Nichtsdestotrotz gelangen die Exzitonen über laterale Transferprozesse bereits hier zu nichtstrahlenden Rekombinationszentren. Dieser Effekt wird durch thermisch aktivierte Umverteilungsprozesse bei höheren Temperaturen noch begünstigt. Sowohl bei Helium- als auch bei Raumtemperatur ist offensichtlich die Anzahl der Defekte entscheidend für die Lichtausbeute in GaInNAs-QWs.

4.2 Der Einfluss des Ausheilprozesses

Mit dem Verfahren des thermischen Ausheilens wird im Allgemeinen das Ziel verfolgt, die strukturellen Eigenschaften des behandelten Kristalls zu verbessern. Durch das Erwärmen und die damit verbundene erhöhte Mobilität der Gitteratome haben diese die Möglichkeit, energetisch günstigere Gitterplätze zu erreichen. Oft gelingt es dadurch, Kristallfehler auszugleichen sowie die chemische Zusammensetzung zu homogenisieren. Wie im letzten Abschnitt erläutert, ist weniger die Homogenität des GaInNAs-QWs, sondern vielmehr die Anzahl der Defekte entscheidend für die Lichtausbeute. Daher ist beim Ausheilen vor al-

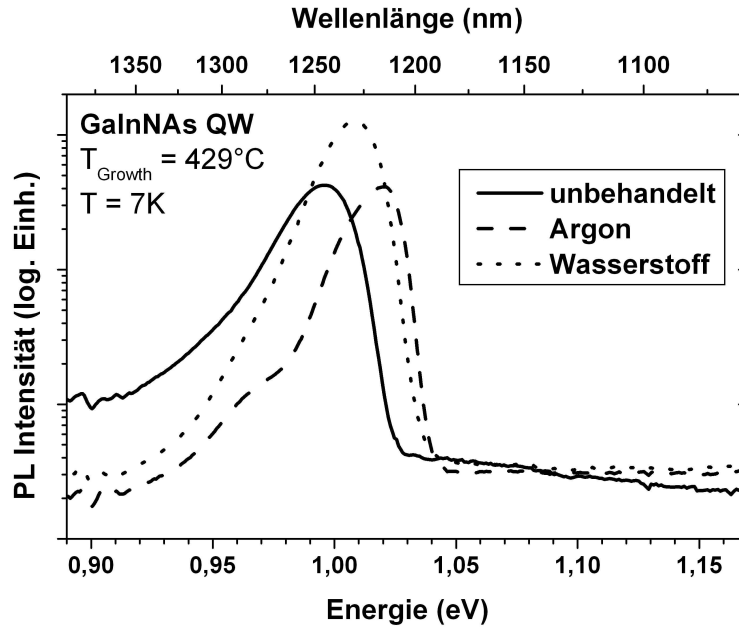


Fig. 4.14: PL-Spektren der bei 429°C abgeschiedenen GaInNAs-Quantenfilme.

lem die Reduzierung der Defekte das entscheidende Kriterium. Im folgenden soll gezeigt werden, in welchem Maße und durch welche Mechanismen dies durch das Ausheilen unter Argon- bzw. Wasserstoffatmosphäre gelingt

Dazu sind zunächst in den Abbildungen 4.13 bis 4.15 die PL-Spektren aller 9 untersuchten GaInNAs-Strukturen, geordnet nach der Wachstumstemperatur, dargestellt. Unabhängig von der Wachstumstemperatur der Ausgangsstruktur führt das Ausheilen sowohl unter Wasserstoff als auch unter Argon zu einer Verschiebung der PL-Banden zu größeren Emissionsenergien und einer Reduzierung der FWHM.

Die Blauverschiebung wurde in der Vergangenheit bereits eingehend untersucht und kann auf eine Interdiffusion der Stickstoffatome (Alb02) und eine Änderung der Konfiguration ihrer nächsten Nachbaratome (Tou02; Kur01; Kla01) zurückgeführt werden. Im Fall des Wasserstoff-Ausheilens kann auch eine Formierung von N-H-Komplexen und eine daraus resultierende Verringerung des effektiven Stickstoffgehalts (Bal01) in Betracht gezogen werden.

Die schmalen PL-Banden der ausgeheilten Proben sind ein deutliches Zeichen dafür,

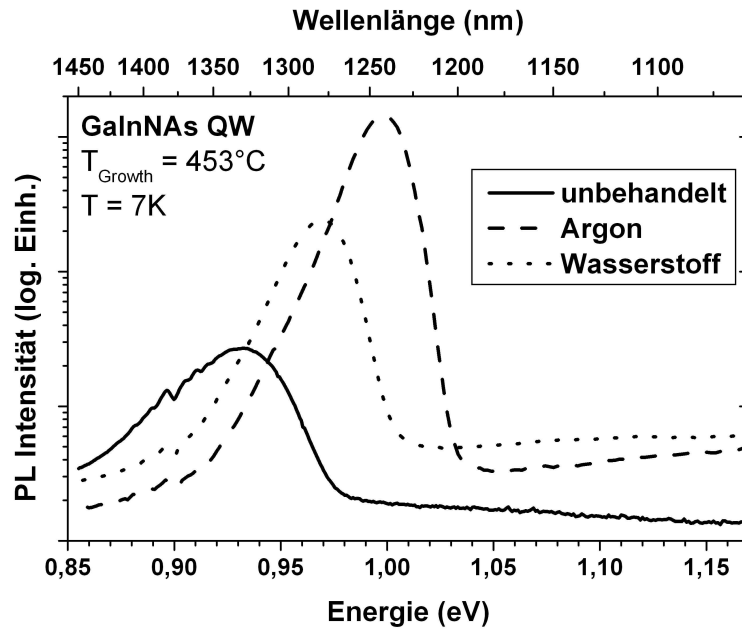


Fig. 4.15: PL-Spektren der bei 453°C abgeschiedenen GaInNAs-Quantenfilme.

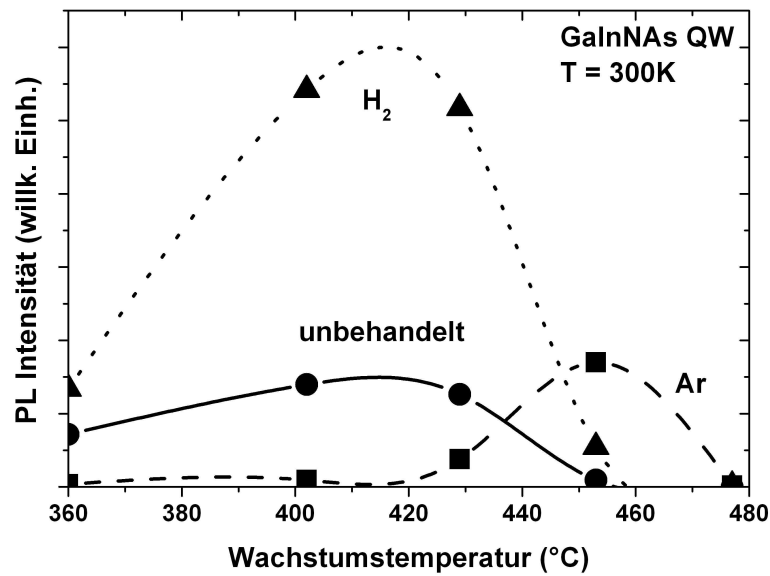


Fig. 4.16: Lichtausbeute der GaInNAs-Quantenfilme als Funktion der Wachstumstemperatur und des Ausheilprozesses.

Tab. 4.2: Zusammenstellung der experimentellen Ergebnisse der PL-Untersuchungen an den unbehandelten und den ausgeheilten GaInNAs-Proben.

Probe	β	E_0	σ_E	$E_{Akt.}$	τ_{nr} (T = 300 K)
402	0,56	7,5 meV	9,0 meV	18,5 meV	230 ps
402ar	0,61	4,8 meV	7,7 meV	16,1 meV	387 ps
402h	0,73	7,3 meV	8,5 meV	14,8 meV	977 ps
429	0,43	5,3 meV	15,8 meV	22,8 meV	280 ps
429ar	0,56	4,1 meV	10,4	18,3 meV	155 ps
429h	0,83	5,1 meV	12,1 meV	18,1 meV	338 ps
453	0,28	12,1 meV	32,2 meV	27,2 meV	130 ps
453ar	0,45	7,7 meV	14,0 meV	23,1 meV	373 ps
453h	0,65	7,2	22,2 meV	29,9 meV	162 ps

dass das Ausheilen zu einer deutlichen Homogenisierung der chemischen Zusammensetzung in den QWs führt. Diesen Trend bestätigen auch die in Tabelle 4.2 zusammengefassten Ergebnisse der zeitaufgelösten und temperaturabhängigen PL-Untersuchungen. Der steigende Wert des Kohlrausch-Parameters β zeigt, dass der Grad der Unordnung abnimmt. E_0 , σ_E und $E_{Akt.}$, jeweils Maße für die Tiefe der Lokalisierungspotentiale, werden durch das Ausheilen verringert. Das Ausheilen führt also eindeutig zu einem homogenen GaInNAs-QW.

Betrachtet man jedoch den Einfluss des Ausheilens auf die Lichtausbeute bei Raumtemperatur, ergibt sich kein Zusammenhang zwischen dieser und der höheren Homogenität des QWs. In Abbildung 4.16 ist die PL-Intensität der unbehandelten, der Argon-ausgeheilten und der Wasserstoff-ausgeheilten Proben als Funktion der Wachstumstemperatur aufgetragen. Hier zeigt sich, dass das Ausheilen nicht automatisch zu einer höheren Lichtausbeute führt. So wird z.B. die PL-Intensität der bei tiefen Temperaturen abgeschiedenen Strukturen durch das Argon-Ausheilen nicht verbessert, sondern sogar verschlechtert, obwohl ein homogenerer QW entsteht. Das Wasserstoff-Ausheilen führt bei diesen Strukturen dagegen zu einer deutlichen Erhöhung der PL-Intensität. Bei den Strukturen, die bei höheren Temperaturen gewachsen wurden, zeigt sich ein entgegengesetztes Verhalten. Hier führt das Argon-Ausheilen zu der höheren Lichtausbeute. Die Beobachtung an den unbehandelten Proben, dass zwischen der Homogenität des QWs, also seinen Lokalisierungseigenschaften,

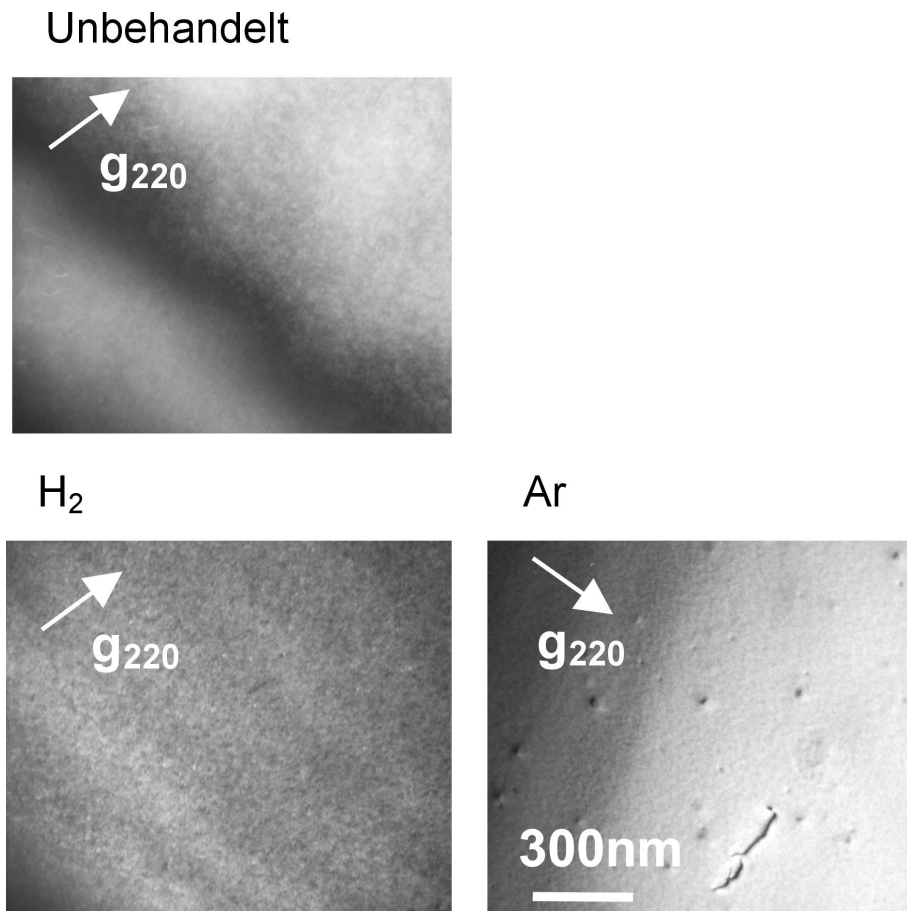


Fig. 4.17: Draufsicht-TEM der bei 402°C abgeschiedenen GaInNAs-Quantenfilme.

und der Lichtausbeute keinerlei Zusammenhang besteht, kann also auch anhand der Untersuchungen an den ausgeheilten Proben bestätigt werden. Offensichtlich führt alleine eine Verringerung der Defektdichte zu einer Verbesserung der Lumineszenzeigenschaften.

Die Ursache der entgegengesetzten Reaktion der Tief- und Hochtemperaturproben auf den Ausheilprozess liegt in der unterschiedlichen mikroskopischen Natur der beim Wachstum eingebauten Kristalldefekte. Draufsicht-TEM-Bilder des bei 402°C abgeschiedenen GaInNAs-QWs (Abb. 4.17) zeigen das Auftreten von Schraubenversetzungen nach dem Argon-Ausheilen, während für das Wasserstoff-Ausheilen dieser Effekt nicht beobachtet werden kann. Auch die bei höheren Temperaturen gewachsenen Strukturen zeigen keine zusätzlichen Versetzungen nach dem Ausheilen. Eine detaillierte Kontrastanalyse der TEM-Ergebnisse zeigen, dass Vakanzen im Kristallgitter der Ursprung dieser Schraubenverset-

zungen sind. Das Verhalten der QWs während des Ausheilens wird also durch die Existenz zweier konkurrierender Defekte bestimmt. Während der vorwiegend bei niedrigen Wachstumstemperaturen eingebaute Defekt als Vakanz identifiziert werden konnte, konnte die mikroskopische Natur des in den Hochtemperaturproben vorherrschende Defekt im Rahmen dieser Arbeit nicht bestimmt werden. Thinh et al. berichten von einer Bildung zweier nicht-strahlender Rekombinationszentren (AsGa-Antisite-Komplex und ein unbekannter Defekt) während des Wachstums von GaAsN (Thi01). In GaInNAs-QW-Strukturen kann von einer ähnlichen Situation ausgegangen werden. Die Bildung des ersten Defekts, der Vakanz, wird durch das Wachstum bei tiefen Temperaturen fern vom thermischen Gleichgewicht begünstigt. Dieser führt während des Argon-Ausheilens zu den beobachteten Schraubenversetzungen. Auch Ramsteiner et al. deuten bereits die Entstehung zusätzlicher Defekte während des Ausheilens an (Ram04). Unter Wasserstoffatmosphäre dagegen kann es zu einer Passivierung des Defekts kommen, vergleichbar mit einem ähnlichem Effekt, der von Baldassari et al. beobachteten Wasserstoff-induzierten Passivierung von Stickstoff (Bal01). Der zweite Defekt dominiert dagegen die Rekombinationsmechanismen in den bei hohen Temperaturen abgeschiedenen GaInNAs-QWs. Die Anzahl dieser Defekte kann äußerst wirksam durch das Argon-Ausheilen reduziert und somit die Lichtausbeute des bei 453°C abgeschiedenen QWs deutlich erhöht werden.

Fasst man die Ergebnisse der strukturellen und spektroskopischen Untersuchungen an den GaInNAs-QWs zusammen, lässt sich feststellen, dass deren Lichtausbeute kaum durch Lokalisierungseffekte bestimmt wird. Nicht die Homogenisierung der chemischen Zusammensetzung in den QWs, sondern allein eine Reduzierung der nichtstrahlenden Rekombinationszentren führt zu einer Verbesserung der Lumineszenzeigenschaften. Das unterschiedliche Verhalten der bei tiefen bzw. hohen Temperaturen abgeschiedenen QWs während des Ausheilens unter Argon- bzw. Wasserstoffatmosphäre lässt sich auf den Einbau zweier konkurrierender Defekttypen während des Wachstums zurückführen. Damit erhält das als Ausheilatmosphäre verwendete Gas die Bedeutung eines unbedingt zu berücksichtigenden

Ausheilparameters. Um also den Ausheilprozess zu optimieren und damit die Lichtausbeute in GaInNAs-basierenden Laserdioden deutlich zu erhöhen, ist es notwendig, die Parameter Wachstumstemperatur, Ausheiltemperatur, Ausheilzeit und Ausheilatmosphäre geschickt miteinander zu kombinieren. Über aktuelle Ergebnisse zu diesem Thema wird in (Gee06) und (Gee07) berichtet.

5. REKOMBINATIONSDYNAMIK LOKALISierter EXZITONEN IN FELDFREIEN INGAN-SCHICHTEN

Wie in Kapitel 2 beschrieben werden die optischen Eigenschaften von InGaN-Schichten durch die Defektdichte, interne pyro- und piezoelektrische Felder, sowie die Lokalisierung von Exzitonen in Potentialfluktuationen der inhomogenen Schicht bestimmt. Viele der InGaN-typischen Effekte können dabei sowohl der Wirkung der elektrischen Felder über den QCSE, als auch Lokalisierungseffekten zugeschrieben werden.

Die in dieser Arbeit untersuchten 4,5 nm bzw 9,5 nm dicken InGaN-Schichten wurden am *High Pressure Research Center 'Unipress'* in Warschau mittels Metallorganischer Gasphasen-Epitaxie (MOCVD) entweder auf Saphir- oder auf GaN-Substrat abgeschieden. Trimethyl-Gallium, Trimethyl-Indium und Ammoniak wurden als Precursor für das Abscheiden von InGaN verwendet. Schichten gleicher Dicke stammen aus demselben Wachstumszyklus, was ihre Vergleichbarkeit sicherstellt. Die Struktur der Proben ist in Abbildung 5.1 schematisch dargestellt. Mittels Röntgendiffraktometrie wurde in allen InGaN-Schichten ein Indiumgehalt von $10 \pm 2\%$ nachgewiesen. Die GaN-Substrate wurden bei Unipress mittels eines Verfahrens hergestellt, bei dem ein hoher Druck von bis zu 20 kBar verwendet wird, um aus flüssigem Gallium und Stickstoff GaN-Kristalle mit vergleichsweise hoher Kristallqualität herzustellen (Grz01). Durch das homoepitaktische Wachstum auf GaN-Substrat erreicht man eine deutliche Reduzierung der Versetzungen im Kristall. Mittels einer *etch pit density counting* Methode kann die Versetzungsdichte bestimmt werden. Sie beträgt $2 - 4 \cdot 10^8 \text{cm}^{-2}$ für die Saphir-Proben S4 und S9 und 10^7cm^{-2} für die GaN-Proben G4 und G9. Um die pyro- und piezoelektrischen Felder entlang der Wachstumsrichtung (s. 2.4.1) abzuschirmen, sind die Pufferschichten mit Si-Atomen auf Gruppe-III-Plätzen stark

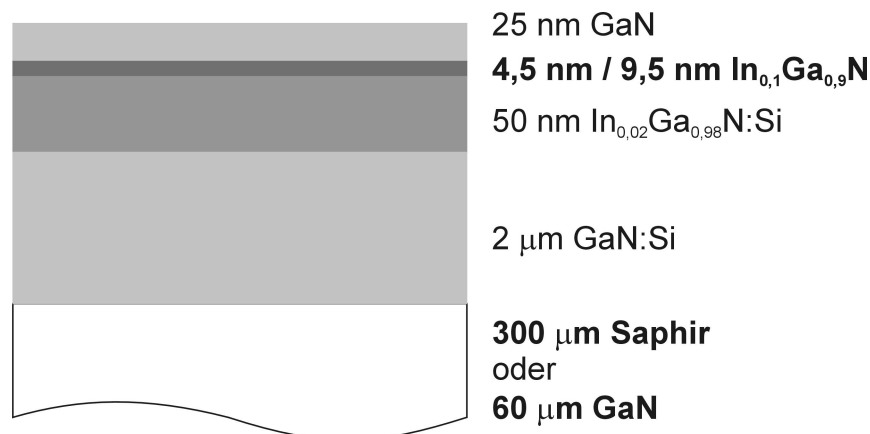


Fig. 5.1: Struktur der feldfreien InGaN-Proben.

Tab. 5.1: Übersicht über die untersuchten InGaN-Schichten.

Probe	In-Gehalt	Schichtdicke	Substrat	Versetzungsdichte
S4	$10 \pm 2\%$	4,5 nm	Saphir	$4 \cdot 10^8 \text{cm}^{-2}$
S9	$10 \pm 2\%$	9,5 nm	Saphir	$2 \cdot 10^8 \text{cm}^{-2}$
G4	$10 \pm 2\%$	4,5 nm	GaN	10^7cm^{-2}
G9	$10 \pm 2\%$	9,5 nm	GaN	10^7cm^{-2}

n-dotiert (10^{19}cm^{-3}). Der daraus resultierende Überschuss an freien Elektronen schirmt die elektrischen Felder ab (Sus04; Fra05b). Dies eröffnet einerseits die einzigartige Möglichkeit, Lokalisierungseffekte unabhängig vom Einfluss elektrischer Felder zu untersuchen, andererseits erhofft man sich vom Einsatz feldfreier Schichten in InGaN-basierenden Lichtemittern die Reduktion unerwünschter Effekte wie z.B. die durch den QCSE verringerten Oszillatorstärken und die Blauverschiebung der Emission bei hohen Anregungsdichten. Darüber hinaus soll in diesem Kapitel untersucht werden, wie sich der Einsatz hochwertiger GaN-Substrate und die damit verbundene Reduktion der Versetzungsdichte um eine Größenordnung auf die Lichtausbeute und deren Temperaturstabilität auswirkt. Dabei wird hier vorerst der Niederanregungsfall, vergleichbar mit den Anregungsdichten in einer LED, betrachtet.

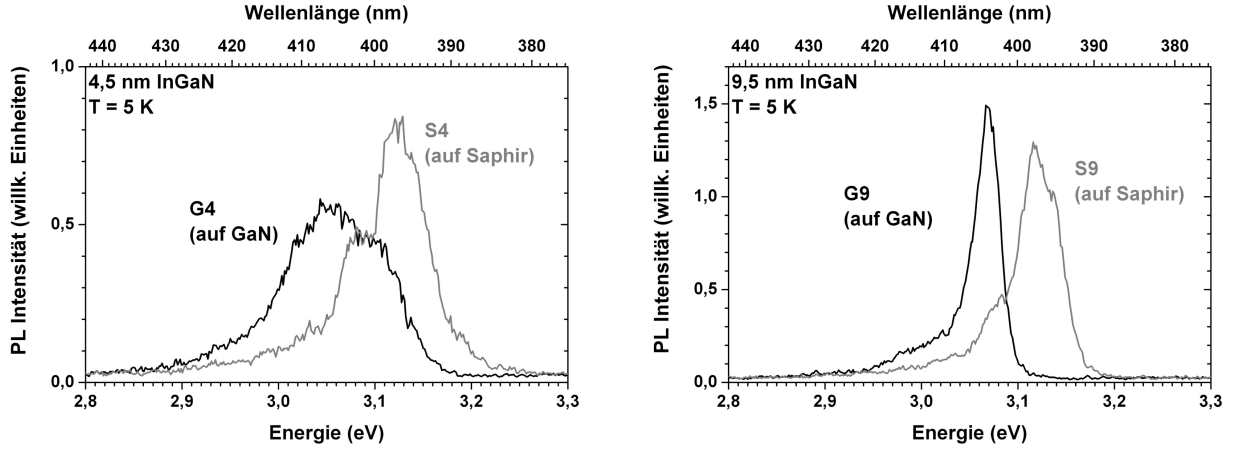


Fig. 5.2: Tieftemperatur-PL-Spektren der InGaN-Schichten auf Saphir- bzw. GaN-Substrat.

5.1 Rekombination lokalisierter Exzitonen bei tiefen Temperaturen

5.1.1 Zeitintegrierte PL

Die PL-Spektren der Proben S4, G4, S9 und G9 bei $T = 5\text{ K}$ (Abb. 5.2) wurden bei einer Wellenlänge von 353 nm (3,51 eV) angeregt. Sie zeigen einen deutlichen Einfluss des Substratmaterials auf die Emissionsenergie (s. Tab. 5.2). Beide auf GaN-Substrat abgeschiedenen InGaN-Schichten emittieren bei kleineren Energien. Trotz identischer Wachstumsbedingungen lässt sich dieser Effekt auf einen höheren Indium-Gehalt in diesen Schichten schließen, verglichen mit den Strukturen auf Saphir-Substrat. Tatsächlich wird vermutet, dass während des gleichzeitigen Wachstums auf 60 μm dickem GaN bzw. 200 μm dickem Saphir das dünnere GaN-Substrat aufgrund der Verspannung durch das Abscheiden von InGaN stärker verbiegt. Die daraus resultierende geringere Auflage auf dem Suszeptor erschwert den Wärmefluss zur Probe. In den kühleren Strukturen auf GaN wird daher mehr Indium eingebaut (Sus05). Eine Grobe Abschätzung des Indium-Gehalts mit Gleichung 2.10 ergibt jedoch Unterschiede unterhalb der Messgenauigkeit von 2 % der chemischen Analyse mittels Röntgendiffraktometrie.

Während die Wahl des Substratmaterials die Energie des PL-Maximums indirekt beeinflusst, kann kein Unterschied der Emissionsenergie zwischen dicken und dünnen Schichten beobachtet werden, obwohl sowohl theoretische als auch experimentelle Untersuchun-

gen bei vergleichbaren Strukturen eine feldinduzierte Blauverschiebung der Lumineszenz mit zunehmender Schichtdicke zeigen. Die vorhergesagte Verschiebung der Emission beim Übergang von 4,5nm dünnen zu 9,5nm dicken Schichten beträgt ca. 200meV (Han03). Für feldfreie Strukturen wird dagegen, wie hier zu beobachten, kaum Verschiebung vorhergesagt. Erst bei noch dünneren InGaN-Schichten setzt der entgegengesetzte Effekt einer Blauverschiebung mit kleiner werdender Schichtdicke aufgrund des Confinement der Ladungsträger in Wachstumsrichtung ein (Fel87). Die hier untersuchten InGaN-Schichten sind damit einerseits frei vom Einfluss elektrischer Felder und besitzen andererseits keine Quantenfilm-Eigenschaften. Es handelt sich also um gewöhnliche Doppel-Heterostrukturen (s. 2.2.1).

Die auffällig großen Unterschiede in der Halbwertsbreite (FWHM) der Lumineszenzbanden lassen sich sowohl durch die stark inhomogene chemische Zusammensetzung als auch durch örtliche Schwankungen der Schichtdicke erklären. Letzterer Effekt wirkt bei dünneren Schichten stärker, worauf die insgesamt größere FWHM der 4,5nm-Schichten im Vergleich zu der FWHM der 9,5nm-Schichten zurückzuführen ist. Die FWHM zeigt eine entgegengesetzte Entwicklung von den Saphir- zu den GaN-Proben bei den dicken bzw. den dünnen Schichten. Während bei den 9,5nm-Schichten das Wachstum auf GaN zu einer homogenen Schicht, gekennzeichnet durch eine schmalere PL-Bande, führt, zeigt die 4,5nm-Schicht auf GaN die größte FWHM aller vier Proben. Dies zeigt, dass das homoepitaktische Wachstum auf GaN-Substrat nicht automatisch zu homogenen InGaN-Schichten führt. Ob es sich allerdings bei der Probe G4 nur um einen *Ausreißer* handelt und welche Wachstumsparameter tatsächlich für die Homogenität der Schicht verantwortlich sind, kann anhand dieser begrenzten Probenserie nicht geklärt werden.

Der Einfluss der verringerten Defektdichte auf die Lichtausbeute ist bei tiefen Temperaturen gering. Die über den gesamten Spektralbereich integrierte PL-Intensität ist bei allen Proben annähernd gleich (s. Tab. 5.2). Die lokalisierten Exzitonen gelangen nicht zu den Defekten, sondern geben ihre Energie vollständig über strahlende Rekombination als Licht ab.

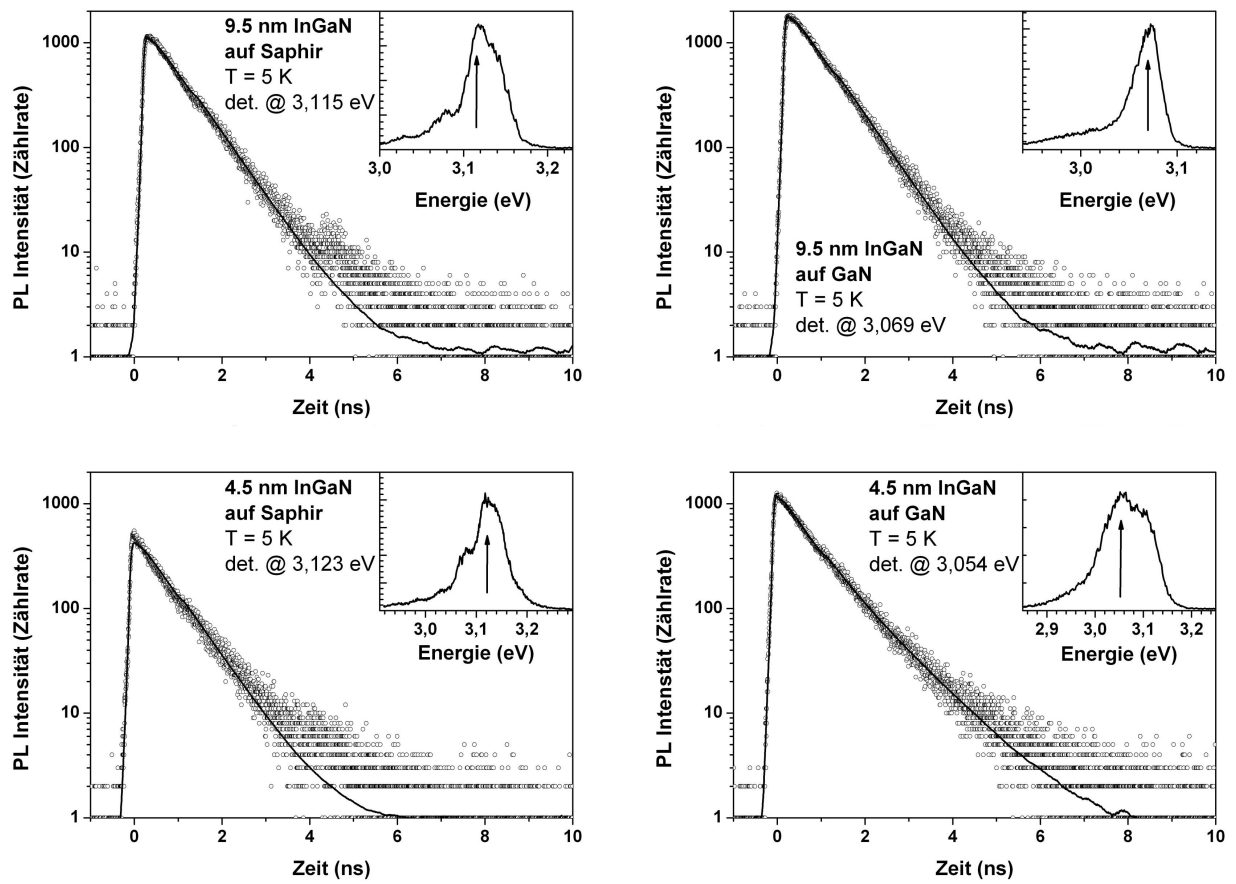


Fig. 5.3: PL-Transienten der InGaN-Schichten S4, G4, S9 und G9.

5.1.2 Zeitaufgelöste PL

Abbildung 5.3 zeigt den zeitlichen Verlauf der oben diskutierten Lumineszenz. Das auf den ersten Blick nicht weiter erstaunliche exponentielle Abklingen bei allen vier Strukturen ist für InGaN durchaus bemerkenswert. Nahezu alle bisher untersuchten InGaN-Strukturen zeigten ein mehr oder weniger ausgeprägtes nicht exponentielles Abklingen (Kre02; Mor02; Onu03; Got03; Rob03; Bar04b). Anders als beim GaInNAs (s. 4.1) wird dieser Effekt bei InGaN-Schichten dieser Dicke im allgemeinen der Wirkung der elektrischen Felder zugeschrieben (Onu03; Got03) (s.a. 7.1.3). Der beobachtete Effekt beweist damit zusätzlich das erfolgreiche Abschirmen dieser Felder.

5.2 Lateraler Transfer lokalisierter Exzitonen

Die PL-Abklingzeiten als Funktion der Emissionsenergie (Abb. 5.4) zeigen das bereits aus Kapitel 4 bekannte Abnehmen der Zeitkonstanten mit steigender Energie. Auch hier kann das Modell von Gourdon und Lavallard (Gou89) für den lateralen Transfer von Exzitonen zu tieferen Lokalisierungspotentialen angewendet werden. Die spektrale Abhängigkeit der Zeitkonstante wurde daher mit Gleichung 4.2 angepasst. Die dabei ermittelten Werte für die Energie E_{me} , die den Übergang von lokalisierten zu frei beweglichen Exzitonen beschreibt, sind bei allen Strukturen größer als die entsprechenden PL-Maxima. Die Lumineszenz bei $T = 5$ K wird also von der Rekombination lokalisierter Exzitonen beherrscht. E_0 , ein Maß für die mittlere Lokalisierungsenergie, variiert innerhalb der Probenserie stark. Betrachtet man die dünnen und dicken Schichten unabhängig voneinander, lässt sich ein einfacher Zusammenhang zwischen der FWHM der PL-Bande und E_0 erkennen (s. Tab. 5.2). So sind z.B. die Exzitonen in der homogeneneren Schicht der Struktur G9 auf GaN-Substrat deutlich schwächer lokalisiert als in der gleich dicken Schicht der Struktur S9 auf Saphir.

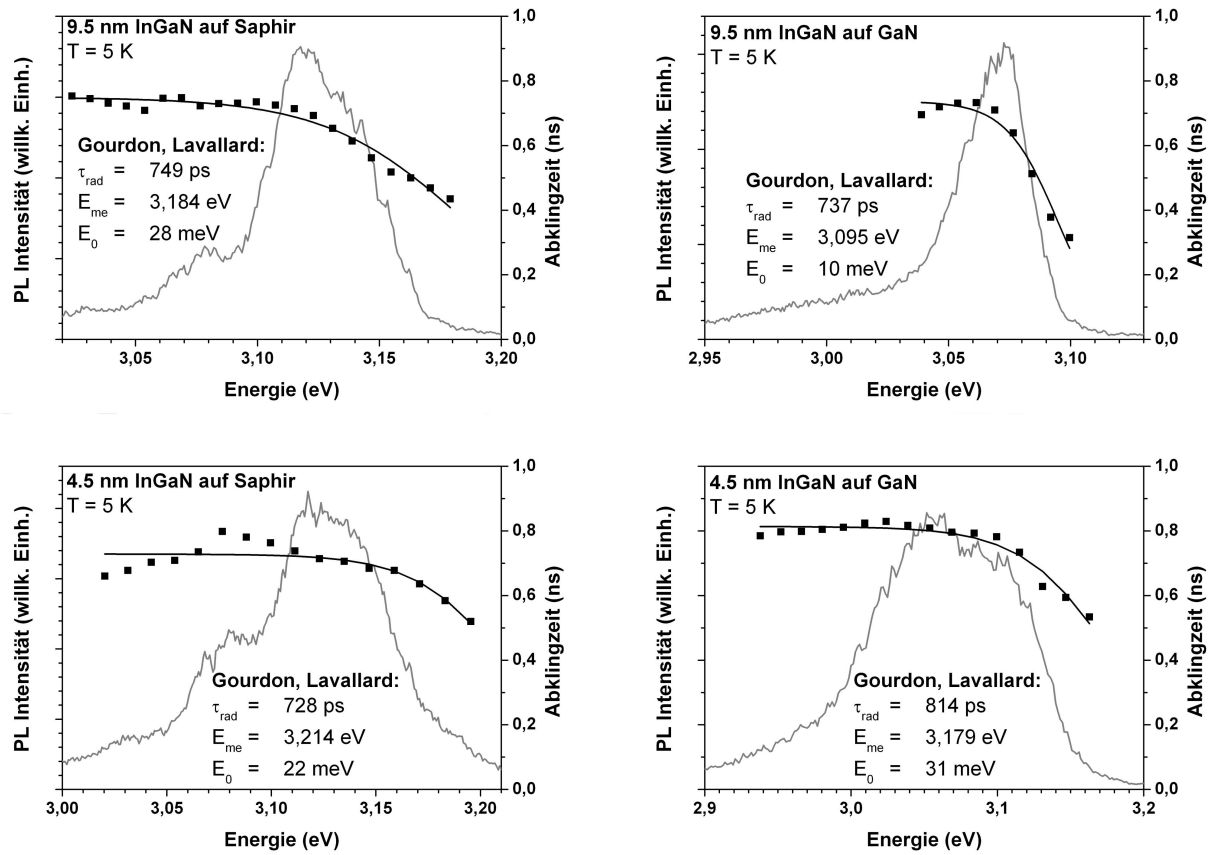


Fig. 5.4: Spektrale Abhängigkeit des PL-Abklingens, angepasst mit Gl. 4.2.

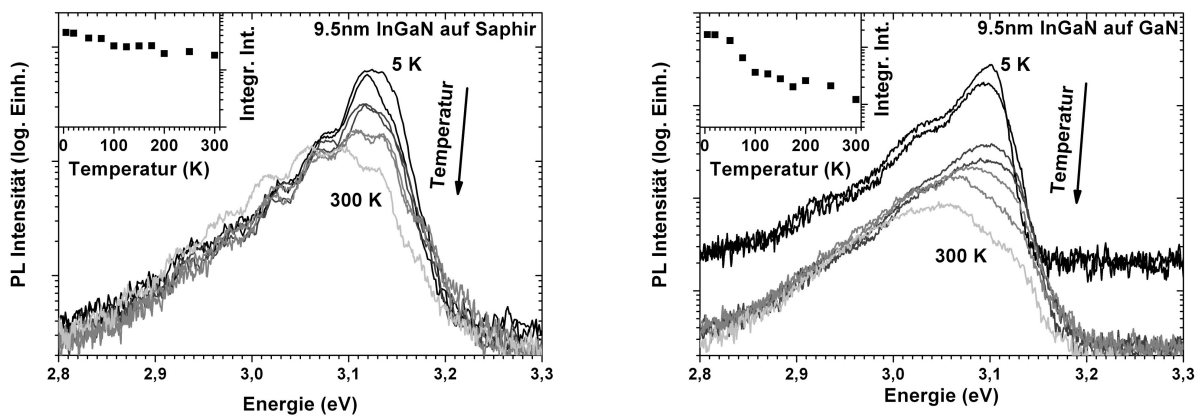


Fig. 5.5: PL-Spektren der Strukturen S9 und G9 bei verschiedenen Temperaturen von 5 K bis 300 K, Einsätze links oben: Integrale PL Intensitäten als Funktion der Temperatur.

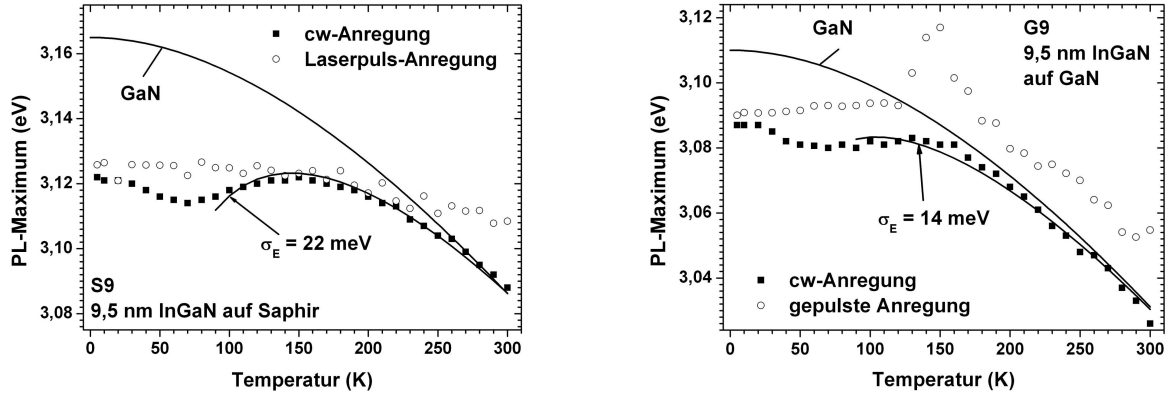


Fig. 5.6: PL-Maximum als Funktion der Temperatur (Symbole), zum Vergleich die Temperaturabhängigkeit der GaN-Bandlücke (Linie).

5.3 Der Einfluss struktureller Eigenschaften auf die Temperaturstabilität der Lichtausbeute

Im folgenden soll der Einfluss der Versetzungsdichte und der Lokalisierung auf die Lumineszenzeigenschaften bei erhöhten Temperaturen bis zu Raumtemperatur am Beispiel der dicken InGaN-Schichten behandelt werden. Die beschriebenen Effekte sind von der Schichtdicke unabhängig und konnten auch bei den dünnen Schichten beobachtet werden. Abbildung 5.5 zeigt die Entwicklung der Lumineszenz mit steigender Temperatur. Die PL-Bande wird bei beiden Strukturen breiter und verschiebt sich zu kleineren Energien. Jeweils links oben ist die integrale PL-Intensität als Maß für die Lichtausbeute über der Temperatur aufgetragen. Während die Lichtausbeute in der Struktur S9 nahezu konstant bleibt, fällt sie in der Struktur G9 von Helium- zu Raumtemperatur um etwa eine Größenordnung ab. Die größte Lichtausbeute bei Raumtemperatur besitzt also nicht die Struktur mit der geringeren Versetzungsdichte, sondern die Struktur mit der stärkeren Ladungsträger-Lokalisierung.

Die temperaturabhängige PL bietet die Möglichkeit, die Lokalisierungseigenschaften insbesondere bei erhöhten Temperaturen weiter zu untersuchen, z.B. anhand der Temperaturabhängigkeit des PL-Maximums. Deren Bestimmung wird in unserem Fall allerdings durch

Tab. 5.2: Zusammenstellung der experimentellen Ergebnisse der PL-Untersuchungen.

Probe	S4	G4	S9	G9
PL-Maximum	3,12 eV	3,04 eV	3,12 eV	3,07 eV
E_{me}	3,21 eV	3,18 eV	3,18 eV	3,10 eV
Integrale PL-Intensität (willk. Einheiten)	0,095	0,091	0,101	0,084
FWHM	85 meV	129 meV	50 meV	32 meV
σ_E	25 meV	28 meV	22 meV	14 meV
E_0	22 meV	31 meV	28 meV	10 meV

das Auftreten von Fabry-Perot-Oszillationen (FPOs) in den PL-Banden erschwert. FPOs entstehen durch Vielfachreflexionen an den Grenzflächen GaN-Luft und GaN-Saphir ($n(\text{GaN}) = 2,29$; $n(\text{Saphir}) = 1,8$). Die Proben bilden dadurch einen Resonator, in dem bestimmte Wellenlängen konstruktiv interferieren. Der Nachweis der FPOs kann z.B. durch winkelabhängige PL-Messungen erbracht werden (Hum07; Hum04; Bar04a). Die Energie des Lumineszenzmaximums konnte erst durch eine Fourieranalyse und anschließende Aufbereitung der Spektren unter Verwendung eines Tiefpasses ermittelt werden. Die Ergebnisse dieser Auswertung sind in Abbildung 5.6 dargestellt. Aufgetragen ist die Energie des PL-Maximums über der Temperatur, erstens unter Niederanregung mit einem HeCd-Laser (325 nm, cw-Betrieb) und zweitens unter Hochanregung mit den frequenzverdoppelten ps-Pulsen des Titan-Saphir-Lasers (353 nm). Zum Vergleich ist auch die Temperaturabhängigkeit der GaN-Bandlücke nach Varshni aufgetragen. Im Niederanregungsfall zeigen die PL-Maxima beider Proben ein ausgeprägtes S-Shape-Verhalten. Wie bereits in 4.1 erläutert resultiert dieser Effekt aus der thermisch induzierten Umverteilung lokalisierter Exzitonen bei erhöhter Temperatur. Die experimentellen Ergebnisse können mit Gleichung 4.3 angepasst werden. Der ermittelte Wert für σ_E , auch hier ein weiteres Maß für die mittlere Lokalisierungsenergie, bestätigt die stärkere Lokalisierung in der Struktur S9, die auch bei Raumtemperatur noch die Lumineszenz beeinflusst und damit für die Temperaturstabilität der Lichtausbeute verantwortlich ist.

Der Einfluss der Lokalisierung auf das Verhältnis von strahlender und nichtstrahlender Rekombination wird in Abbildung 5.7 verdeutlicht. Hier sind die aus den PL-Abklingzeiten (schwarze Punkte) und den integralen PL-Intensitäten (s. Abb. 5.5) ermittelte strahlende

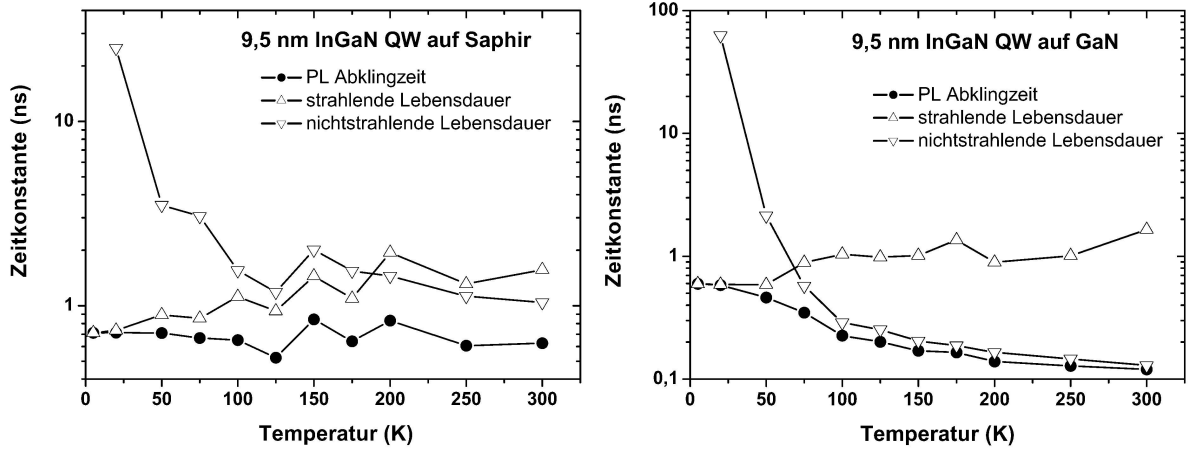


Fig. 5.7: Temperaturabhängigkeit der strahlenden und nichtstrahlenden Lebensdauer.

Lebensdauer τ_{rad} und nichtstrahlenden Lebensdauer τ_{nr} (Dreiecke) der Exzitonen aufgetragen (s.a. 4.1). Für die Probe S9 sind τ_{rad} und τ_{nr} bei Raumtemperatur etwa gleich. Für die Probe G9 ist τ_{nr} dagegen ungefähr eine Größenordnung kleiner als τ_{rad} . Während bei der Saphir-Probe also ein Großteil der Exzitonen bei Raumtemperatur immer noch lokalisiert ist, die Defekte nicht erreicht, und daher strahlende und nichtstrahlende Rekombination etwa gleich wahrscheinlich sind, ist für die delokalisierten, frei beweglichen Exzitonen in der InGaN-Schicht der GaN-Probe die nichtstrahlende Rekombination an Defekten etwa zehn mal so wahrscheinlich wie die strahlende Rekombination.

Es wurde gezeigt, dass im Niederanregungsfall die Verringerung der Versetzungsdichte durch den Einsatz hochwertiger GaN-Substrate keinen Einfluss auf die Lichtausbeute der feldfreien InGaN-Schichten hat. Deren Lumineszenzeigenschaften werden alleine von Lokalisierungseffekten bestimmt. Vom technologischen Standpunkt aus betrachtet, scheint der Einsatz von GaN-Substraten in der InGaN-LED-Produktion keine Verbesserung der Lichtausbeute zu bringen. Erhöht man dagegen die Inhomogenität der Indiumgehalts, führt dies zu helleren LEDs (Bau01). Nichtsdestotrotz berichten Cao et al. (Cao04) von LED-Strukturen auf GaN mit verbesserter Lichtausbeute im Vergleich zu auf Saphir abgeschiedenen LED-Strukturen. Diese Verbesserung wird allerdings nicht auf eine erhöhte Quan-

teneffizienz in den InGaN-Schichten, sondern auf die effizientere Ableitung der Wärme und die bessere Verteilung des elektrischen Stroms in der Struktur zurückgeführt.

Während sich bei niedrigen Anregungsdichten die Lokalisierung als der entscheidende Mechanismus herausgestellt hat, wird erwartet, dass bei höheren Anregungsdichten die unterschiedliche Versetzungsdichte eine größere Rolle spielt. In Abbildung 5.6 zeigt die Temperaturabhängigkeit der PL-Maxima bei Anregung mit einem gepulsten Laser kein S-Shape-Verhalten mehr. Die Lokalisierungszentren sind mit Ladungsträgern gesättigt. Die Exzitonen können sich frei in der InGaN-Schicht bewegen. Lokalisierungseffekte spielen nur noch eine geringe Rolle. Wie sich die erhöhte Mobilität auf die Rekombinationsdynamik und die Lichtausbeute in den feldfreien InGaN-Schichten auswirkt, wird im folgenden Kapitel beschrieben.

6. GEWINNMECHANISMEN IN FELDFREIEN INGAN-QUANTENFILMEN

InGaN-Schichten werden bereits seit längerem kommerziell in Laserdioden (LDs) für den blauen und ultravioletten Spektralbereich eingesetzt, obwohl die zugrunde liegenden physikalischen Prozesse bisher kaum verstanden werden. Während in anderen Materialsystemen bereits Versetzungsdichten von 10^2 cm^{-2} zu einer signifikanten Reduzierung der internen Quanteneffizienz führen, zeigen InGaN-LEDs und -LDs mit bis zu einigen 10^9 Versetzungen pro cm^2 hervorragende Ausgangsleistungen. Während im Niederanregungsfall einer LED dies wie in Kapitel 5 ausgeführt durch die Lokalisierung der Ladungsträger in Indium- bzw. Schichtdickenfluktuationen erklärt werden kann, spielt unter hohen Anregungsdichten in einer LD die Lokalisierung nur noch eine untergeordnete Rolle. Die Ladungsträger sind frei beweglich und erreichen die Defekte. Es kann also angenommen werden, dass eine Verringerung der Versetzungsdichte um eine Größenordnung zu deutlich verbesserten optischen LD-Eigenschaften wie z.B. einer geringeren Laserschwelle führt. Tatsächlich berichten verschiedene Gruppen von LD-Strukturen, die auf GaN-Substrat abgeschieden wurden (Nak98c; Ski06; Fur06). Die in diesem Kapitel vorgestellten Ergebnisse der zeitaufgelöste PL-Untersuchungen unter hohen Anregungsdichten an den feldfreien InGaN-Schichten von Unipress beantworten zunächst die fundamentale Frage, wie trotz hoher Defektdichten die Laserbedingung erreicht werden kann. Die Untersuchung des optischen Gewinns mittels der Strichlängenmethode zeigt, wie die Laserschwelle durch den Einsatz von GaN-Substraten verringert werden kann. Die Effekte werden am Beispiel der 9,5nm breiten InGaN-Schichten S9 und G9 erläutert. Die Ergebnisse sind jedoch unabhängig von der Schichtdicke und wurden auch bei den 4,5nm breiten Schichten der Proben S4 und G4

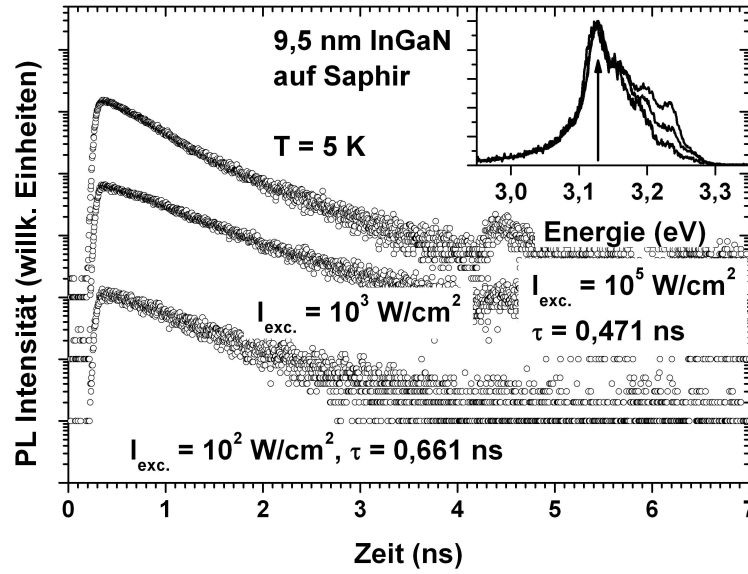


Fig. 6.1: PL-Transienten der Struktur S9 bei $T = 5 \text{ K}$ für verschiedene Anregungsdichten.

beobachtet.

6.1 Rekombinationsdynamik bei hohen Anregungsdichten

Die Abbildungen 6.1 und 6.2 zeigen das bereits in Kapitel 5 diskutierte exponentielle Abklingen der PL-Intensität bei $T = 5 \text{ K}$ für verschiedene Anregungsdichten zwischen 10^2 W/cm^2 und 10^5 W/cm^2 .¹ Es sind nur geringe Änderungen der PL-Transienten mit zunehmender Anregungsdichte erkennbar. Während sich die Form der Transienten nicht ändert und für die Struktur G9 auch die Abklingzeit konstant bleibt, verkürzt sich die Zeitkonstante der Struktur S9 bei der höchsten Anregungsdichte leicht. Die zeitintegrierte PL (jeweils rechts oben) zeigt eine Verbreiterung der Emissionsbande mit steigender Anregungsintensität aufgrund der Sättigung der lokalisierten Zustände und der zunehmenden Population energetisch höherer Zustände. Dies erklärt die abnehmende Zeitkonstante der Struktur S9 aufgrund der Zunahme nichtstrahlender Rekombination. Delokalisierte Exzitonen können sich in der Schicht frei bewegen und erreichen Defekte (z.B. Versetzungen),

¹ Bei der höchsten Anregungsdichte regt ein Laserpuls 10^7 Ladungsträger je μm^2 an.

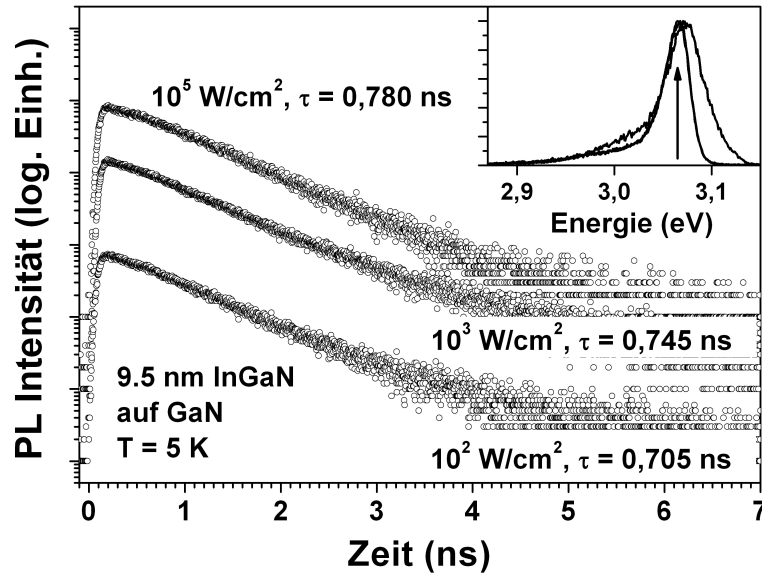


Fig. 6.2: PL-Transienten der Struktur G9 bei $T = 5 \text{ K}$ für verschiedene Anregungsdichten.

wo sie nichtstrahlend rekombinieren. Aufgrund der geringeren Versetzungsdichte in der Struktur G9 bleibt die Zeitkonstante hier annähernd konstant.

Bei Raumtemperatur verändert sich das Verhalten komplett (s. Abb. 6.3 und 6.4). Für niedrige Anregungsdichten von 10^2 W/cm^2 zeigt die PL immer noch ein exponentielles Abklingen. Da die Zeitkonstante durch nichtstrahlende Rekombination über Defekte dominiert wird (s. 5.3), ist das Abklingen sehr viel kürzer als bei tiefen Temperaturen. Mit zunehmender Anregungsdichte wird das Abklingen langsamer und die Form der Transiente ändert sich. Aus dem exponentiellen Abklingen wird ein nicht exponentielles Abklingen. Dieses ist jedoch nicht die bekannte, für InGaN typische nicht exponentielle PL-Transiente, die mit einem sehr schnellen Abklingen startet, das dann langsamer wird (Kre02; Mor02; Onu03; Got03; Rob03; Bar04b) (s.a. 7.1.3). Hier startet die Transiente langsam und wird dann im Verlauf schneller. Dieser Effekt wurde sowohl bei Anregung oberhalb der GaN-Bandkante als auch unter resonanter Anregung (375 nm) beobachtet. Ein möglicher Einfluss eines Ladungstransports durch die Pufferschicht (Kor06) kann daher ausgeschlossen werden. Ein weiterer möglicher Erklärungsansatz ist die Bildung eines

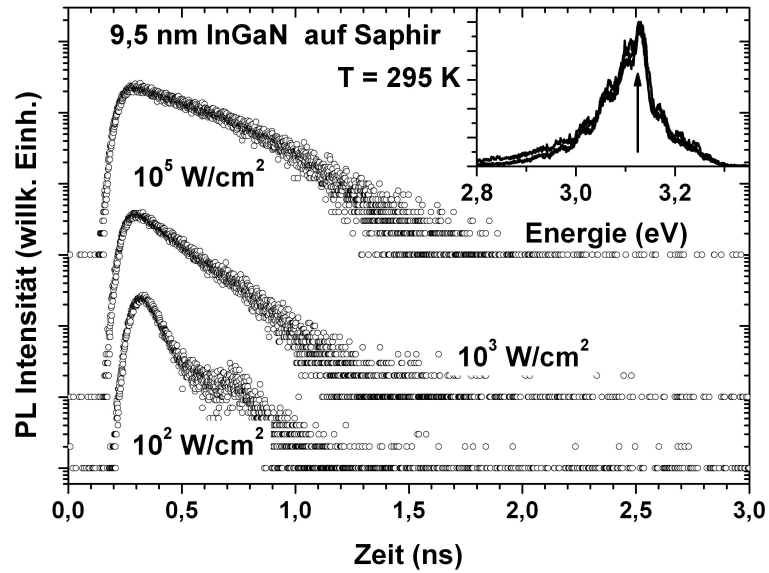


Fig. 6.3: PL-Transienten der Struktur S9 bei T = 300K für verschiedene Anregungsdichten.

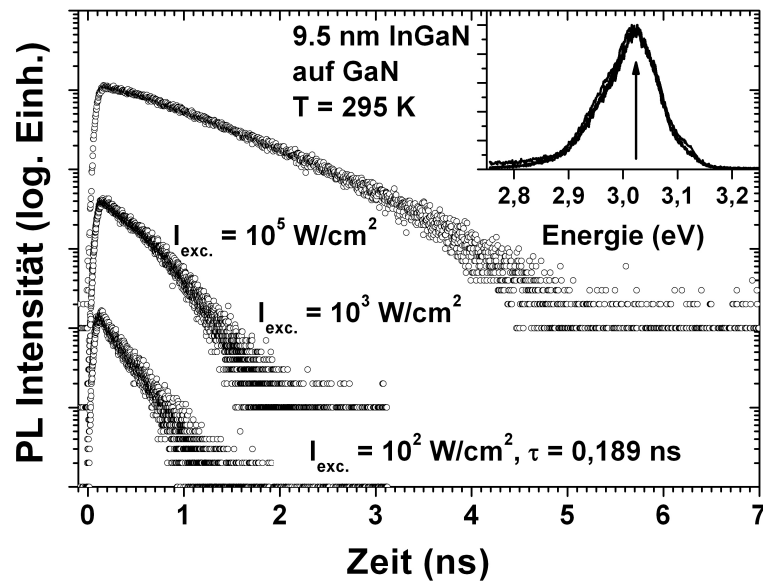


Fig. 6.4: PL-Transienten der Struktur G9 bei T = 300K für verschiedene Anregungsdichten.

Elektron-Loch-Plasmas bei Ladungsträgerdichten oberhalb der Mott-dichte (Mot68) von einigen 10^{18} cm^{-3} (Bin99). Diese würde zu einer Abschirmung der Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektron und Loch führen, begleitet von einer Vergrößerung der Lebensdauer. Da jedoch die zeitintegrierte PL (jeweils rechts oben) weder eine dafür typische Verbreiterung der Lumineszenzbande noch eine Verschiebung der PL mit zunehmender Anregungsintensität zeigt, kann auch die Bildung eines Elektron-Loch-Plasmas ausgeschlossen werden. Auch eine Befüllung höherer Zustände kann nicht beobachtet werden. Die normierten PL-Spektren bei verschiedenen Anregungsdichten passen perfekt übereinander. Dies lässt sich mit der deutlich höheren Zustandsdichte der 2D-artigen Zustände im Vergleich zu den Lokalisierungszentren erklären. Daher muss, ausgehend von der Beobachtung, dass die Ladungsträger frei beweglich sind und die Defekte erreichen, die Wechselwirkung der delokalisierten Ladungsträger mit den Defekten für die nach oben gebogene PL-Transiente verantwortlich sein. Der außergewöhnliche Effekt lässt sich durch die Unterdrückung nichtstrahlender Rekombination über eine Sättigung der Defekte erklären. Bei hohen Anregungsdichten befinden sich so viele Ladungsträger in der InGaN-Schicht, dass sie die nichtstrahlenden Rekombinationszentren (z.B. Versetzungen) sättigen oder zumindest abschirmen können. Die verringerte Wahrscheinlichkeit nichtstrahlender Prozesse führt zu längeren Lebensdauern und damit zu dem langsameren PL-Abklingen. Rekombinieren die Ladungsträger, nimmt ihre Population ab, und die Sättigung bzw. Abschirmung der Defekte lässt nach. Das PL-Abklingen wird dadurch im zeitlichen Verlauf immer schneller.

Illustriert wird die Abnahme der nichtstrahlenden Rekombination z.B. durch die integrale Intensität als Funktion der Anregungsdichte (Abb. 6.5). Der überlineare Anstieg der PL-Intensität bei Raumtemperatur zeigt deutlich, dass der Anteil der strahlenden Rekombination gegenüber der nichtstrahlenden zunimmt.

6.2 Der Einfluss der Versetzungsdichte auf den optischen Gewinn

Der Mechanismus der Sättigung/Abschirmung der Defekte kann sowohl bei den InGaN-Schichten auf GaN-Substrat als auch bei den Strukturen auf Saphir beobachtet werden.

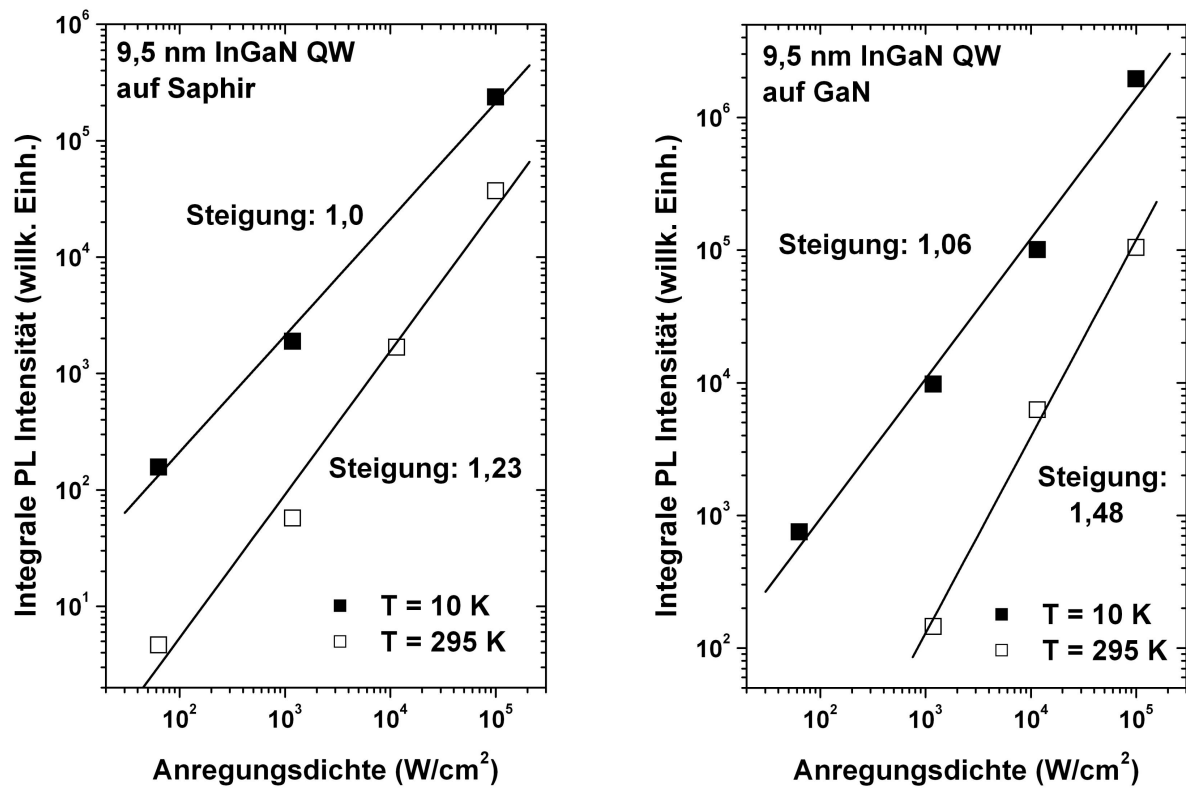


Fig. 6.5: Integrale PL-Intensität bei Helium- bzw. Raumtemperatur als Funktion der Intensität des anregenden Lasers (doppellogarithmische Darstellung).

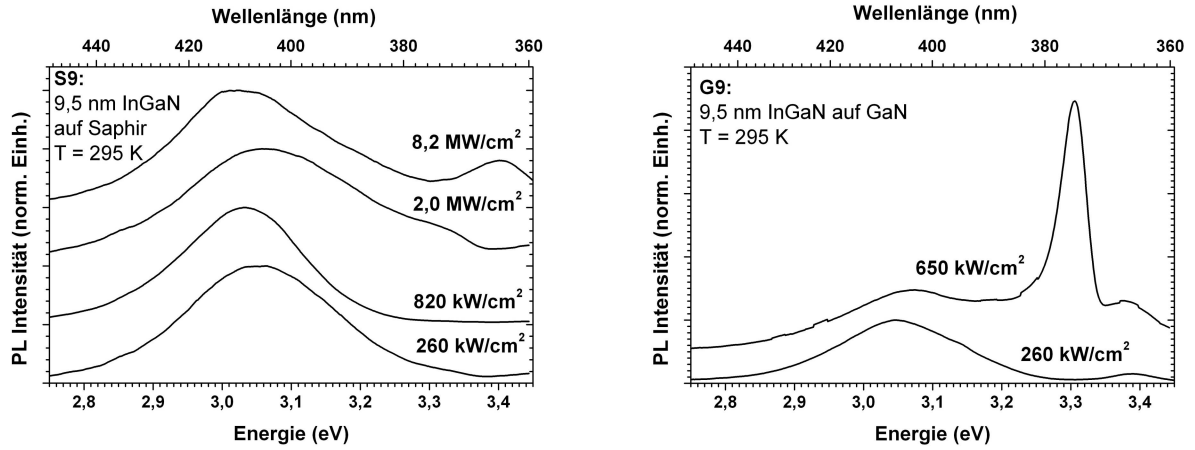


Fig. 6.6: Hochanregungs-PL der Strukturen S9 und G9 bei Raumtemperatur.

Man könnte unter Umständen in dem stärkeren Anstieg der PL-Intensität der GaN-Probe bei Raumtemperatur (Abb. 6.5) einen Einfluss der geringeren Versetzungsdichte erkennen. Eine genauere Beschreibung dieses Einflusses liefern jedoch erst die Ergebnisse der Hochanregungs-PL und der optischen Gewinnspektroskopie.

Abbildung 6.6 zeigt die Emission der Strukturen S9 und G9 für unterschiedliche Anregungsintensitäten zwischen 280 kW/cm^2 und 8 MW/cm^2 .² In den Spektren der Probe S9 zeigt sich deutlich der fehlende Einfluss elektrischer Felder. Es ist keine Blauverschiebung mit zunehmender Anregungsintensität zu beobachten. Schwankungen der Emissionsenergie und der Halbwertsbreite haben rein apparative Ursachen und sind auf eine zusätzliche Inhomogenität der strukturellen Eigenschaften und der chemischen Zusammensetzung in der InGaN-Schicht auf einer μm -Skala zurückzuführen (Fra05a). Außerdem kann beobachtet werden, dass bei den höchsten Anregungsintensitäten zusätzlich zur Lumineszenz der aktiven Schicht das umliegende Matrixmaterial aufgrund von Auffüllprozessen bei etwa 3,4 eV zu emittieren beginnt. Das 650 kW/cm^2 -Spektrum der 9,5 nm dicken Schicht auf GaN zeigt bei 3,31 eV das Auftreten einer Laserlinie, die energetisch zwischen der InGaN-Lumineszenz und der PL des Matrixmaterials liegt. Sie kann damit angeregten Zuständen der InGaN-Schicht zugeordnet werden und zeigt, dass hier bereits der optische Gewinn

² Die Anregungsintensitäten sind nur schwer vergleichbar mit der gepulsten Anregung der zeitaufgelösten PL. Die Pulslänge beträgt hier 20 ns, deutlich länger als das PL-Abklingen. Damit kann bei der Hochanregungs-PL von einer cw-Anregung ausgegangen werden.

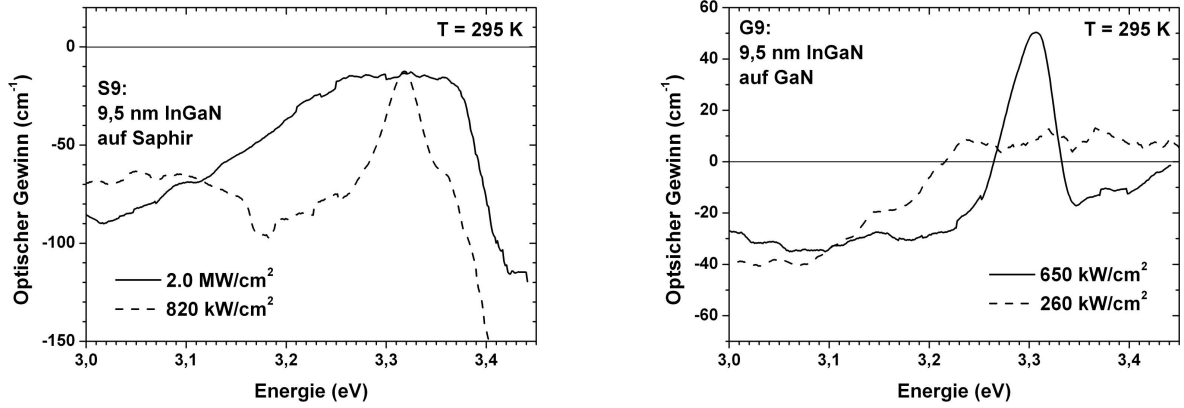


Fig. 6.7: Optischer Gewinn der Strukturen S9 und G9 bei Raumtemperatur unter jeweils zwei unterschiedlichen Anregungsdichten.

gegenüber den internen Verlusten überwiegt.

Ein genaueres Bild darüber liefern die Gewinnspektren in Abbildung 6.7. Hier ist der optische Gewinn der Strukturen S9 (Abb. 6.7 links) und G9 (rechts) als Funktion der Emissionsenergie für jeweils zwei verschiedene Anregungsintensitäten aufgetragen. Während in der Schicht auf Saphir-Substrat selbst bei Anregungsintensitäten von einigen MW/cm die internen Verluste überwiegen, zeigt die Schicht auf GaN-Substrat bereits bei der kleinsten verwendeten Anregungsdichte (280 kW/cm^2) einen positiven optischen Gewinn von etwa 10 cm^{-1} . Damit ist die Anregungsschwelle für optischen Gewinn der Struktur G9 mit der geringeren Versetzungsdichte (10^7 cm^{-2}) mehr als eine Größenordnung kleiner verglichen mit der Struktur S9 mit der höheren Versetzungsdichte ($2 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-2}$). Für die 4,5 nm dicken InGaN-Schichten S4 und G4 wurden ähnliche Ergebnisse erzielt.

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass sowohl mit der Verwendung von GaN-Substraten als auch mit der Abschirmung der elektrischen Felder die gewünschten Ergebnisse erzielt wurden. Die Sättigung/Abschirmung von Defekten ist ein entscheidender Gewinnmechanismus in InGaN. Die Anregungsschwelle für die Erzeugung von stimulierter Emission hängt daher eindeutig von der Kristallqualität ab. Das Wachstum auf GaN-Substraten und die damit verbundene Reduzierung der Versetzungen senkt den Schwellwert und wird in Zu-

kunft zu sparsameren und leistungstärkeren InGaN-Laserdioden führen. Die Verwendung von feldfreien InGaN-Schichten löst zusätzlich das leidige Problem der mit zunehmender Anregungsintensität zu kürzeren Wellenlängen verschiebenden Emission.

7. INGAN-QUANTENPUNKTE

Werden Ladungsträger in sehr dünnen InGaN-Schichten (Dicke $< 3\text{nm}$) nicht nur lokalisiert, sondern zeigen sie auch Quantisierungs- und Confinementeffekte, so spricht man von InGaN-Quantenpunkten (QP). Indium-reiche Domänen mit einer lateralen Ausdehnung von wenigen Nanometern bilden bei tiefen Temperaturen ein solches QP-Ensemble hoher lateraler Dichte (10^{11} cm^{-2}) (Nak98a; O'D99; Mor00; Ara02; Kre02; Seg04b). Ihr Anwendungspotential bei Raumtemperatur ist umstritten wie in Abschnitt 7.1 erläutert werden wird. Nichtsdestotrotz führt die Untersuchung sowohl einzelner QPe (s. Abschnitt 7.2) als auch des ganzen QP-Ensembles zu einem tieferen Verständnis der Prozesse, die für viele InGaN-typische optische Eigenschaften verantwortlich und damit auch für InGaN-basierte Anwendungen nicht zu vernachlässigen sind. In Abschnitt 7.3 wird dabei besonders auf die breite Verteilung der exzitonischen Lebensdauern als Ursprung des nicht exponentiellen PL-Abklingens eingegangen. Theoretische Untersuchungen mittels der Acht-Band- $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Methode (s. Abschnitt 7.4) zeigen, dass die ungeordneten strukturellen QP-Parameter für die breite Lebensdauer-Verteilung verantwortlich sind.

Die beiden InGaN-Quantenpunkt-Proben QP1 und QP2 wurden von Dipl.-Phys. Lars Reißmann und Dr. André Strittmatter an der TU Berlin an einer Aixtron 200 MOCVD-Anlage in einem Niederdruck-Reaktor hergestellt. Ihre Struktur ist in Abbildung 7.1 grob skizziert. Vor dem Epitaxie-Prozess wurde das Silizium-Substrat mit chemischem Nass-Ätzen behandelt, um eine Oxid-freie und Wasserstoff-terminierte Si(111)-Oberfläche zu erhalten. Da sich GaN nicht ohne weiteres auf Silizium abscheiden lässt, diente eine AlN-Schicht als Nukleationsschicht, die durch einen in (Str99) beschriebenen Umwandlungsprozess von AlAs zu AlN erhalten wird. Darauf wurden die AlGaN/GaN-Pufferschichten bei $T_{\text{Growth}} = 1150^\circ\text{C}$ aufgetragen. Als Precursor für die InGaN-Schicht wurden Trimethyl-

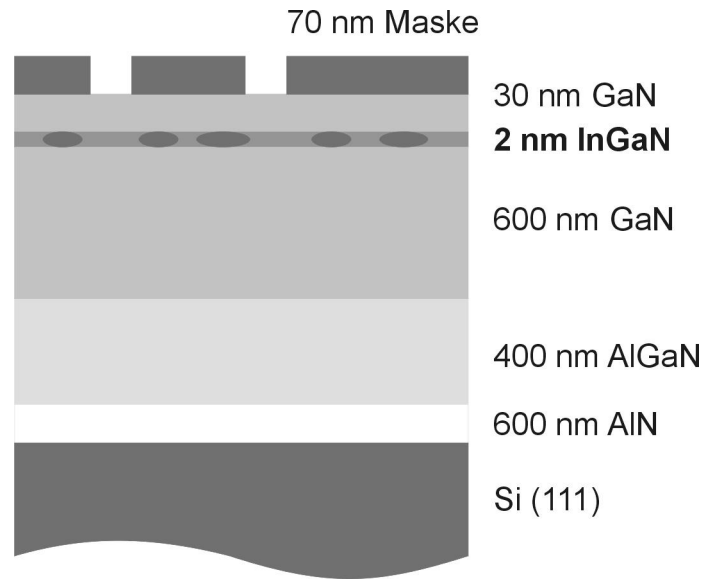


Fig. 7.1: Struktur der InGaN-Quantenpunkt-Proben.

Gallium, Trimethyl-Indium und Ammoniak verwendet. Die Schicht wurde bei $T_{\text{Growth}} = 800^\circ\text{C}$ und einem Reaktordruck von 400 mbar abgeschieden. Der Epitaxieprozess wurde durch das Aufbringen einer 20 nm dicken GaN-Deckschicht bei 1150°C abgeschlossen (Seg04b). Die Proben unterscheiden sich durch den Trimethyl-Indium-Fluss, der beim Abscheiden der InGaN-Schicht verwendet wurde. Dieser war beim Wachstum der Probe QP2 doppelt so hoch wie bei der Probe QP1.

Strukturelle Untersuchungen dieser Proben wurden in der Arbeitsgruppe von Frau Prof. Dr. Dagmar Gerthsen an der Universität Karlsruhe mittels hochauflösender Querschnitts-Transmissionselektronenmikroskopie durchgeführt. Die Ergebnisse wurden mit dem *digital analysis of lattice images* Verfahren (DALI) (Ros99; Ger03) ausgewertet und damit die Verteilung des Indiums in der Struktur bestimmt. Ein solches DALI-Bild der Probe QP2 zeigt Abbildung 7.2. Die Verteilung des Indiums in der 2 nm breiten InGaN-Schicht ist sehr inhomogen. Es existieren 3 - 5 nm große Indium-reiche Domänen. Diese bilden das Quantenpunkt-Ensemble.

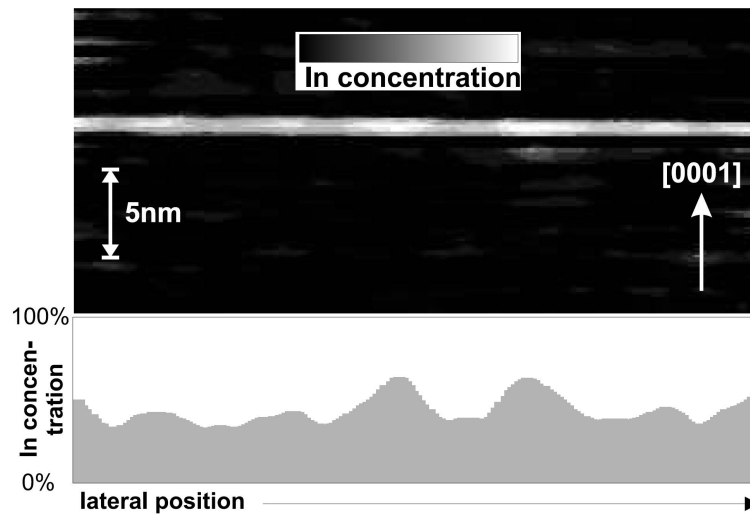


Fig. 7.2: Die Querschnitts-TEM der Probe QP2, mit DALI ausgewertet, zeigt die Verteilung des Indiums in der InGaN-Schicht. (Seg04b)

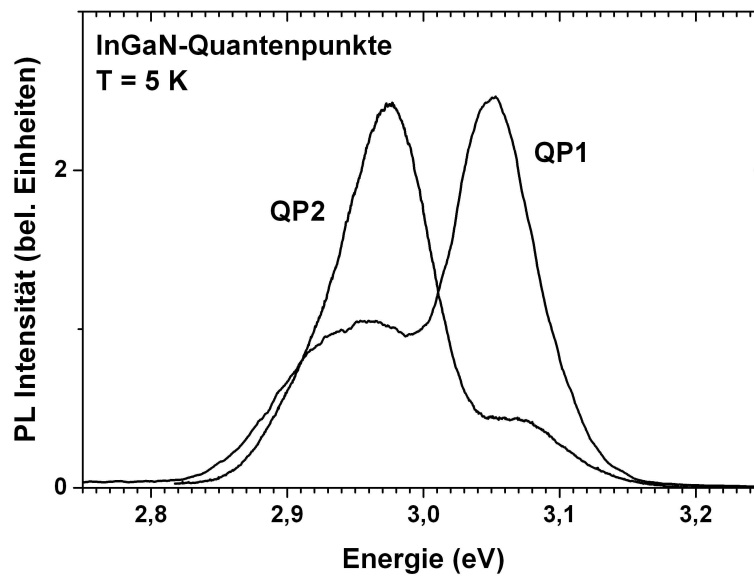


Fig. 7.3: PL-Spektren von zwei InGaN QP-Ensembles.

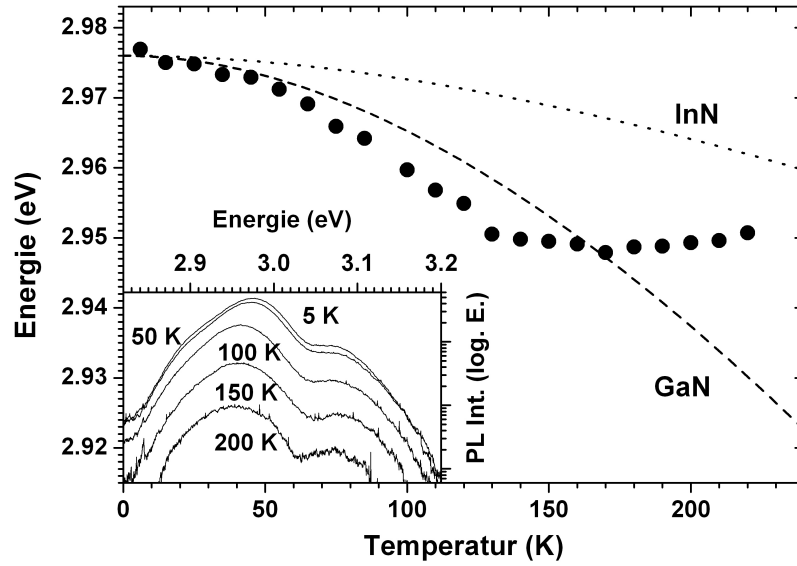


Fig. 7.4: Energetische Position des PL-Maximums als Funktion der Temperatur, links unten: PL-Spektren bei verschiedenen Temperaturen.

7.1 Lumineszenzeigenschaften des Quantenpunkt-Ensembles

7.1.1 Emissionsverhalten bei tiefen Temperaturen

Abbildung 7.3 zeigt die Lumineszenz-Spektren der Proben QP1 und QP2 bei tiefen Temperaturen. Das Licht wurde hier aus unmaskierten Bereichen der Proben aufgenommen und stammt daher jeweils vom gesamten QP-Ensemble. Die PL-Maxima liegen bei 3,05 eV bzw. 2,98 eV. Das deutet auf einen etwas höheren Indiumgehalt in der Probe QP2 hin. Beide Lumineszenzbanden haben eine Halbwertsbreite FWHM ~ 80 eV, resultierend aus der stark inhomogenen Verteilung des Indiums.

7.1.2 Das Verschwinden der Quantenpunkteigenschaften bei Raumtemperatur

Auch bei den PL-Banden der InGaN-QP-Strukturen sind die in Abschnitt 5.3 beschriebenen Fabri-Perot-Strukturen erkennbar. Diese sind bei der Probe QP2 schwächer ausgeprägt. Das macht es möglich, das PL-Maximum als Funktion der Temperatur (s. Abb. 7.4) ohne vorherige Fourieranalyse (s. 5.3) zu untersuchen. Links unten sind PL-Spektren bei ver-

schiedenen Temperaturen zwischen 5 K und 200 K dargestellt. Das PL-Maximum verschiebt sich bei tiefen Temperaturen stärker zu kleineren Energien als die Volumenhalbleiter GaN und InN nach Varshni, um oberhalb von $T \sim 130$ K weniger rot- bzw. sogar zu höheren Energien zu verschieben. Es beschreibt damit das bereits erläuterte S-Shape-Verhalten (s. 4.1), das auf thermisch induzierte Umverteilung der lokalisierten Exzitonen oberhalb von ca. 130 K zurückzuführen ist. Oberhalb dieser Temperatur sind die Ladungsträger nicht mehr lokalisiert, sondern können sich senkrecht zur Wachstumsrichtung frei bewegen. Die InGaN-Schicht besitzt keine QP-Eigenschaften mehr. Möchte man also QP-Eigenschaften für InGaN-basierte Anwendungen, z. B. Laserdioden mit verbesserter Temperaturstabilität, nutzen, muss man die Tiefe der Lokalisierungspotentiale, also den Indiumgehalt in den QPen deutlich erhöhen bzw. im Barrierenmaterial verringern. Dies wäre z.B. durch spannungsinduziertes Wachstum indiumreicher Inseln möglich, ähnlich dem Stranski-Krastanov-Wachstumsmodus von In(Ga)As- oder CdSe-QPen (Shc99; Sch00). Sénès et al. (S07) berichten von Fortschritten in diese Richtung mittels Molekularstrahlepitaxie. Ihre 15 nm breiten und 2 hohen $\text{In}_{0,15}\text{Ga}_{0,85}\text{N}$ -Inseln zeigen eine stabile Lokalisierung und Confinement bis 200 K.

7.1.3 Besonderheiten des PL-Abklingens

Die in Abbildung 7.5 dargestellte PL-Transiente des QP-Ensembles der Probe QP1 zeigt das nicht exponentielle Abklingen, das bei fast allen InGaN-Schichten beobachtet wird (Kre02; Rob03; Bel04; Mor02). Auch dieses Abklingen lässt sich mit der Kohlrauschformel (Gl. 4.1, s. 4.1) anpassen. Für dieses Verhalten existieren mehrere Erklärungsansätze:

- (i) Bisher wurde das langsamer werdende Abklingen oft als eine zeitliche Abhängigkeit der Exzitonen-Lebensdauer interpretiert, die auf das Abschirmen elektrischer Felder zurückzuführen sei (Pop99; Onu03; Got03; Rea03). Im nicht angeregten Zustand wirkt aufgrund der riesigen piezo- und pyroelektrischen Felder entlang der Wachstumsrichtung (c-Achse des Wurtzit-Kristalls) der *Quantum Confined Stark Effekt* auf die Ladungsträger (QCSE, s. 2.4.1). Elektronen und Löcher sind räumlich voneinan-

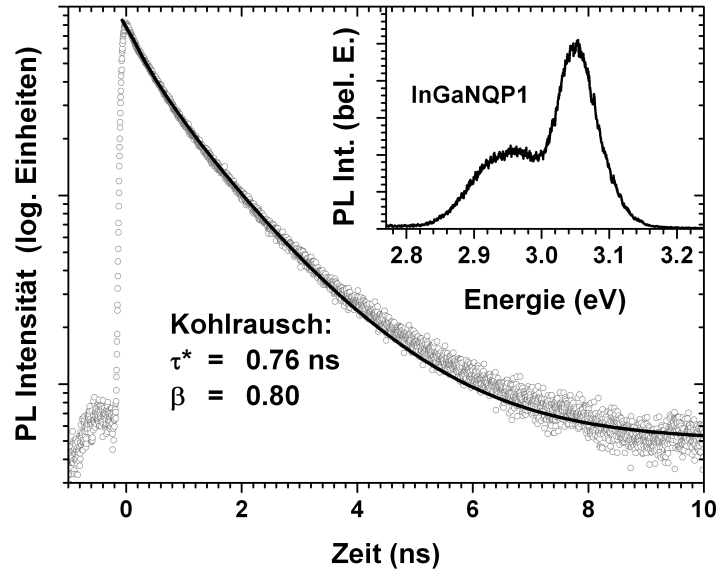


Fig. 7.5: PL-Transiente des InGaN QP-Ensembles, rechts oben: zeitintegrierte PL.

der getrennt. Ihr Wellenfunktionenüberlapp ist reduziert und damit die Lebensdauer der Exzitonen lang (Onu03). Wird das System durch einen kurzen Laser-Puls angeregt, können die Ladungsträger die elektrischen Felder abschirmen. Ihre Lebensdauer verringert sich. Das Abklingen beginnt daher schnell und wird langsamer, während Elektronen und Löcher rekombinieren und die Wirkung des QCSE wieder einsetzt. Dieser Effekt sollte von der Intensität der Anregung abhängen (Got03). Eine höhere Intensität des anregenden Lasers sollte zu einem schnelleren Abklingen zu Beginn der Transiente führen. Abbildung 7.6 zeigt das Ergebnis einer solchen Untersuchung. Bei der Anregung der Probe QP1 wurde dazu die Laserintensität um mehr als 2 Größenordnungen variiert. Es konnte kein Einfluss auf die PL-Transiente beobachtet werden. Abschirmungseffekte können daher ausgeschlossen werden.

- (ii) Bell et al. konnten anhand von zeitaufgelösten KL-Untersuchungen zeigen, dass diese Abschirm-Effekte nur bei dickeren InGaN-Schichten ($> 8\text{nm}$) eine Rolle spielen. Bei dünneren Schichten wie in unserem Fall wird das nicht exponentielle Lumineszenz-Abklingen durch Lokalisierungseffekte verursacht. (Bel04)

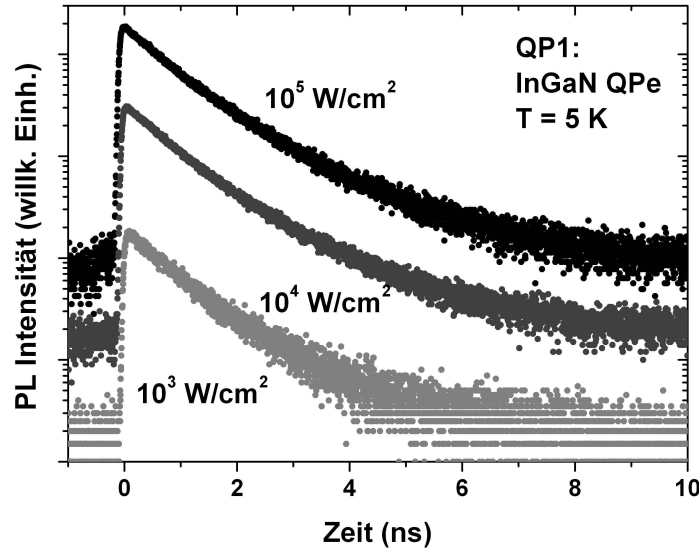


Fig. 7.6: Eine höhere Anregungsintensität führt zu keiner Veränderung der PL-Transiente des InGaN-QP-Ensembles.

- (iii) Eine alternatives Modell stammt von Morel et al.. Dieses beschreibt die Lokalisierung der Ladungsträger ähnlich dem Modell von Thomas und Hopfield für Donator-Akzeptor-Paare (DAP) (Tho65). In diesem *Pseudo-DAP*-Modell befinden sich Elektronen und Löcher in unterschiedlichen Lokalisierungspotentialen. Die Exzitonen-Lebensdauer hängt damit vom Abstand der Lokalisierungszentren ab. Dies führt zu einer breiten Verteilung unterschiedlicher Lebensdauern. (Mor02)

Tatsächlich ist die Ursache des nicht exponentiellen PL-Abklingens sowohl auf Lokalisierungseffekte als auch auf eine breite Verteilung der Exzitonen-Lebensdauern zurückzuführen. Dazu müssen Elektronen und Löcher jedoch nicht in unterschiedlichen QPen lokalisiert sein. Die Erklärung ist sehr viel einfacher und lässt sich in den Übergangswahrscheinlichkeiten einzelner QP-Zustände finden.

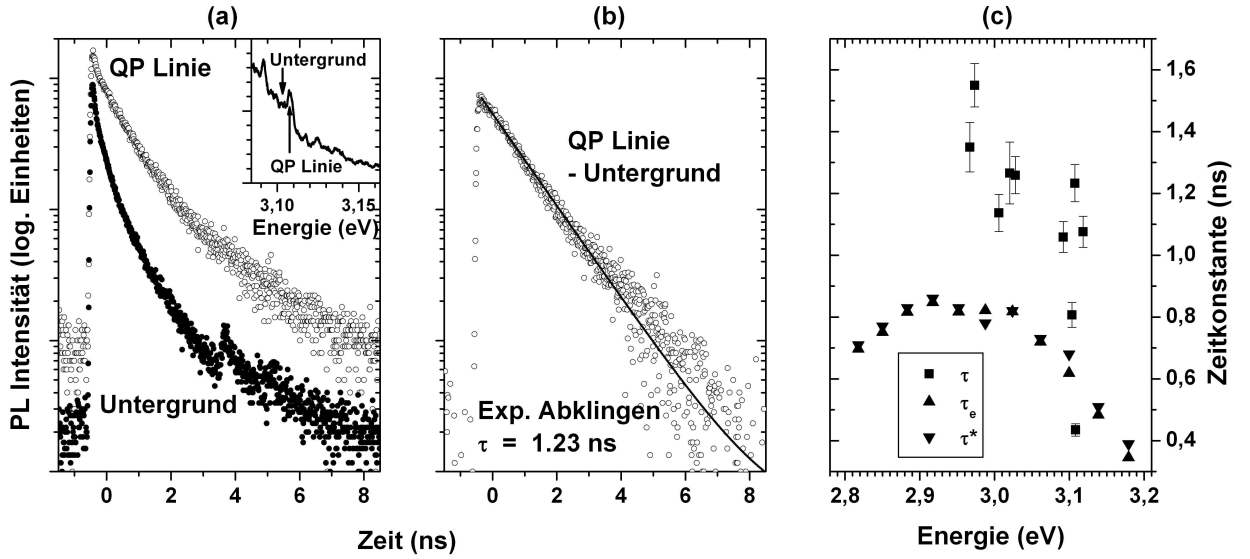


Fig. 7.7: Zeitaufgelöste PL eines einzelnen QPs, (a) Transiente, auf bzw. neben der QP-Emission aufgenommen, (b) Untergrund-bereinigte Transiente des einzelnen QPs, (c) Lebensdauern einzelner QP-Zustände und Zeitkonstanten des QP-Ensembles.

7.2 Rekombinationsdynamik in einzelnen Quantenpunkten

Detektiert man das emittierte Licht einiger weniger QPe durch eine 200 nm große Apertur einer auf die Probe aufgedampften Metallmaske (s. 3.3), erkennt man im PL-Spektrum auflösungsbegrenzte Emissionslinien einzelner QP-Zustände mit δ -förmiger Zustandsdichte (s. Abb. 7.7 (a) rechts oben). Die Linien heben sich nur 10 - 20% von einem breiten PL-Untergrund ab, der vom übrigen QP-Ensemble stammt. Um die PL-Transiente eines einzelnen QP-Zustands zu erhalten, wurde, wie von Robinson et al. vorgeschlagen (Rob03), sowohl eine Transiente auf der QP-Linie, als auch eine Referenztransiente vom Untergrund möglichst nahe der Linie aufgenommen (s. Abb. 7.7 (a)). Zieht man von der Transiente der QP-Linie die Referenztransiente ab, so erhält man die Emission eines einzelnen QP-Zustands als Funktion der Zeit (s. Abb. 7.7 (b)). Diese klingt im Gegensatz zur PL des Ensembles exponentiell ab. Die Emission eines einzelnen InGaN-QP-Zustands lässt sich also in erster Näherung durch ein Ratengleichungssystem für ein 2-Niveau-System beschreiben. In Abbildung 7.7 (c) sind die gemessenen Exzitonen-Lebensdauern von 10 verschiedenen QPen als Funktion der Übergangsenergie dargestellt. Zum Vergleich ist auch die spek-

trale Abhängigkeit des Fitparameters τ^* aus Gleichung 4.1 und der 1/e-Abklingzeit τ_e dargestellt. Fast alle Ergebnisse der Einzel-QP-Messungen liegen oberhalb dieser Werte. Hier zeigt sich bereits, dass τ^* und τ_e die Rekombinationsdynamik des QP-Ensembles nur unzureichend beschreiben. Auffällig an den Lebensdauern der einzelnen QP-Zustände ist einerseits die breite Streuung der Zeiten zwischen 0,4 ns und 1,6 ns und andererseits die Tatsache, dass die Größen Lebensdauer und Übergangsenergie bei InGaN-QPen im Gegensatz zu anderen QP-Systemen nicht miteinander korreliert sind. Z.B. besteht ein In(Ga)As-QP-Subensemble mit einer festen Übergangsenergie des QP-Grundzustands aus QPen mit identischer Form, Größe und chemischer Zusammensetzung (Hei01). Daher ist auch die exzitonische Lebensdauer in einem solchen QP-Subensemble für alle QPe gleich und damit Lebensdauer und Übergangsenergie miteinander korreliert. Dies ist im InGaN-QP-Ensemble nicht der Fall. Die vier QP-Zustände, die etwa bei der gleichen Energie von 3,1 eV emittieren, besitzen Exzitonen-Lebensdauern zwischen 0,4 ns und 1,2 ns. Hierbei handelt es sich offensichtlich um QPe, deren unterschiedliche Kombination aus Größe und chemischer Zusammensetzung zur gleichen Übergangsenergie, jedoch zu unterschiedlichen exzitonischen Lebensdauern führt. Damit wird klar, dass die breite Verteilung von τ für das nicht exponentielle PL-Abklingen des QP-Ensembles verantwortlich ist, welches sich als Summation sehr vieler exponentieller Abklingen mit unterschiedlichen Zeitkonstanten interpretieren lässt.

7.3 Die breite Verteilung der Exzitonen-Lebensdauern

7.3.1 Numerische Bestimmung der Verteilungsfunktion

QPe mit der gleichen Übergangsenergie bilden ein QP-Subensemble innerhalb des gesamten QP-Ensembles. In diesem Subensemble sei die Zahl der QPe mit einer bestimmten Exzitonen-Lebensdauer τ beschrieben durch die Verteilungsfunktion $f(\tau)$. Es gibt zwei Möglichkeiten, $f(\tau)$ aus dem Experiment zu bestimmen. Die zeit- und arbeitsaufwändigere von beiden wäre es, mehr als tausend QP-Zustände mit der gleichen Übergangsenergie mittels zeitaufgelöster PL zu vermessen. Andererseits kann man $f(\tau)$ leicht aus der PL-

Transiente des Subensembles bestimmen. Wie bei den meisten InGaN-Schichten lassen sich wie in Abbildung 7.5 zu sehen auch die Transienten der Probe QP1 mit der Kohlrausch-Funktion (Koh54) (s. 4.1, Gl. 4.1) anpassen, wobei τ^* der zeitliche Fit-Parameter und β der Steckparameter mit Werten zwischen 0 und 1 ist. Die Differenz $1 - \beta$ ist wie bereits in Kapitel 4.1 dargestellt ein Maß für die Unordnung in unserem System. Von Subensemble zu Subensemble variieren beide Parameter. Da die nicht exponentiell abklingende Lumineszenzintensität ein Integral über alle exponentiellen Einzel-QP-Abklingen ist, kann man Gleichung 4.1 auch schreiben als

$$\int_0^\infty f(\tau) \tau \exp(-t/\tau) d\tau \propto \exp[-(t/\tau^*)^\beta]. \quad (7.1)$$

Mit Hilfe einer inversen numerischen Laplace-Transformation kann $f(\tau)$ direkt aus den experimentellen Daten ermittelt werden. Ein ähnlicher Ansatz wurde auch von van Driel et al. (vD07) zur Beschreibung der Rekombinationsdynamik in CdSe-Quantenpunkten verfolgt. Das Resultat für das InGaN-QP-System QP1 ist in Abbildung 7.8 für insgesamt 11 QP-Subensemble mit verschiedenen Übergangsenergien (rechte vertikale Achse) dargestellt. Zusätzlich ist in Abbildung 7.9 die spektrale Abhängigkeit von $f(\tau)$ als Falschfarbenplot dargestellt. Es zeigt sich, dass $f(\tau)$ eine hervorragende Beschreibung der experimentellen Ergebnisse der Einzel-QP-Spektroskopie (schwarze Punkte in Abbildung 7.9) liefert. Es können hauptsächlich zwei Effekte beobachtet werden:

- (i) $f(\tau)$ ist inhomogen verbreitert und wird mit zunehmender Übergangsenergie noch breiter. Dabei verändert sich auch die Form der Funktion.
- (ii) Das Maximum von $f(\tau)$, also die im QP-Subensemble am häufigsten auftretende Lebensdauer τ_{max} , verschiebt mit steigender Übergangsenergie zu kleineren Werten.

7.3.2 Der Einfluss lateraler Transferprozesse

Die abnehmende Zeitkonstante mit zunehmender Energie könnte auf den ersten Blick wie in 4.1 mit der Theorie von Gourdon und Lavallard beschrieben werden. (s. Abb. 7.10).

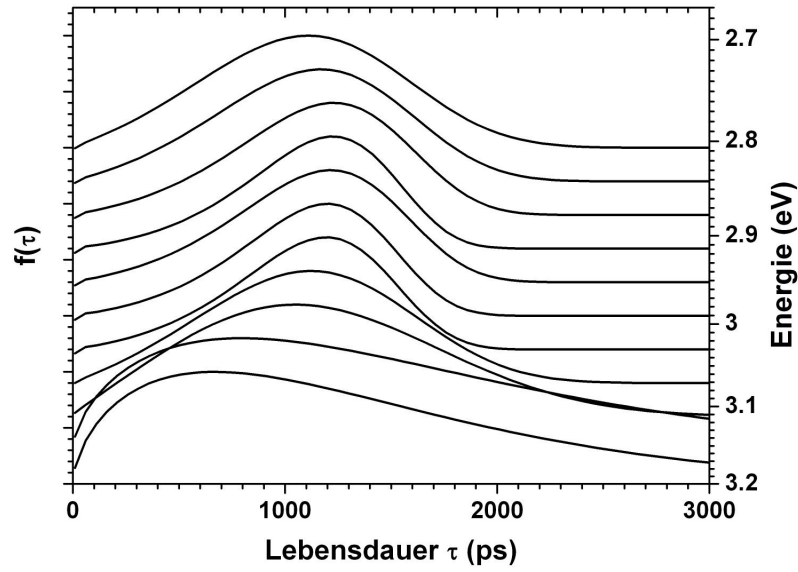


Fig. 7.8: Verteilungsfunktion der Exziton-Lebensdauern im QP-Subensemble, die mittels inverser Laplace-Transformation aus den gemessenen PL-Transienten gewonnen wurde.

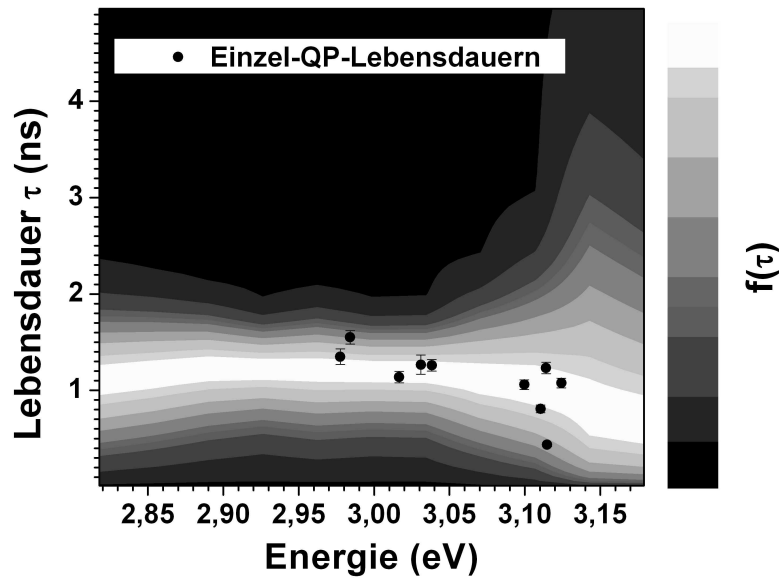


Fig. 7.9: Verteilungsfunktion der Exziton-Lebensdauern (Falschfarbendarstellung) und die gemessenen Lebensdauern einzelner Quantenpunkte (schwarze Punkte) als Funktion der Übergangsenergie.

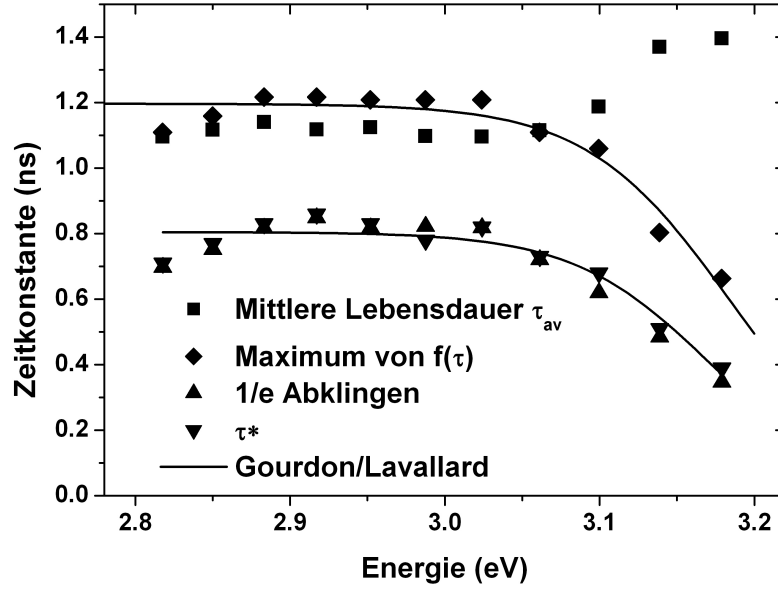


Fig. 7.10: Die Zeitkonstanten als Funktion der Übergangsenergie, τ_{max} und τ^* wurden mit Gl. 4.2 angepasst.

Tatsächlich können sowohl τ^* , τ_e , als auch τ_{max} mit Gleichung 4.2 angepasst werden. Allerdings ist τ^* ein reiner Fit-Parameter, der keinerlei physikalische Bedeutung besitzt, τ_e beschreibt nur den Beginn der Transiente und damit die kleinsten Lebensdauern. Selbst τ_{max} beschreibt aufgrund der sich ändernden unsymmetrischen Form von $f(\tau)$ die Dynamik des Ensembles nur unzureichend. Das zeigt spätestens die spektrale Abhängigkeit der mittleren Lebensdauer des QP-Subensembles:

$$\tau_{av} = \frac{\int_0^\infty f(\tau)\tau \exp(-t/\tau)d\tau}{\int_0^\infty f(\tau) \exp(-t/\tau)d\tau}. \quad (7.2)$$

Die spektrale Abhängigkeit dieser Zeitkonstante folgt nicht Gleichung 4.2, sondern zeigt einen leichten Anstieg von 1,1 ns zu 1,4 ns mit zunehmender Energie. Dieses Ergebnis schließt Transferprozesse jedoch nicht unbedingt aus. Vielmehr hängt der laterale Transfer von Ladungsträgern zwischen zwei benachbarten QPen sowohl vom räumlichen Abstand der beiden QPe als auch von der Potentialbarriere, somit von der chemischen Zusammen-

setzung der QPe und ihrer Umgebung, ab. Innerhalb eines ungeordneten Systems wie das des InGaN QP-Ensembles sind diese Parameter breit gestreut. Damit tragen die Transferprozesse zur inhomogen verbreiterten Lebensdauer-Verteilungsfunktion $f(\tau)$ bei.

Die Ergebnisse der zeitaufgelösten PL-Spektroskopie an einzelnen InGaN-QPen und am gesamten InGaN-QP-Ensemble bei tiefen Temperaturen führen zu folgenden Ergebnissen:

- (i) Für das nicht exponentielle Abklingen der PL ist eine inhomogen verbreiterte Verteilung der Exzitonen-Lebensdauern innerhalb des InGaN-QP-Ensembles verantwortlich.
- (ii) Die Rekombinationsdynamik in InGaN-QPen kann durch eine einzelne Zeitkonstante nicht adäquat beschrieben werden. Vielmehr ist es nötig, aus den experimentellen Daten die Verteilungsfunktion $f(\tau)$ der Lebensdauern zu bestimmen.
- (iii) Obwohl auch hier der laterale Transfer von Ladungsträgern eine nicht zu vernachlässigende Rolle spielt, kann das Modell von Gourdon und Lavallard, entwickelt für *Tail States* unterhalb der Bandkante von ausgedehnten Misch-Halbleitern, nicht ohne weiteres auf das InGaN-QP-System übertragen werden.

7.3.3 Nichtstrahlende Rekombination

Während nichtstrahlende Prozesse bei tiefen Temperaturen allein auf den Transfer der Exzitonen von flach lokalisierenden QPen zu tiefer lokalisierenden QPen bestimmt werden, können wie bereits mehrfach beschrieben bei höheren Temperaturen die thermisch aktivierten Exzitonen energetisch höhere Zustände erreichen (s.a. 4.1, 5.3, 7.1.2). Auch der Einfluss der thermisch induzierten Umverteilungsprozesse lässt sich mithilfe des soeben dargelegten statistischen Ansatzes beschreiben. Dies soll im Folgenden anhand zweier ausgewählten QP-Subensembles geschehen. Während das Subensemble 1 aus flach lokalisierenden Quantenpunkten besteht und bei $T = 5$ K eine Übergangsenergie von 3,13 eV besitzt, emittieren die tiefer lokalisierenden QPe des Subensembles 2 bei 2,82 eV. Ihre zeitaufgelöste PL wurde bei verschiedenen Temperaturen gemessen und mittels des oben beschriebenen Verfahrens

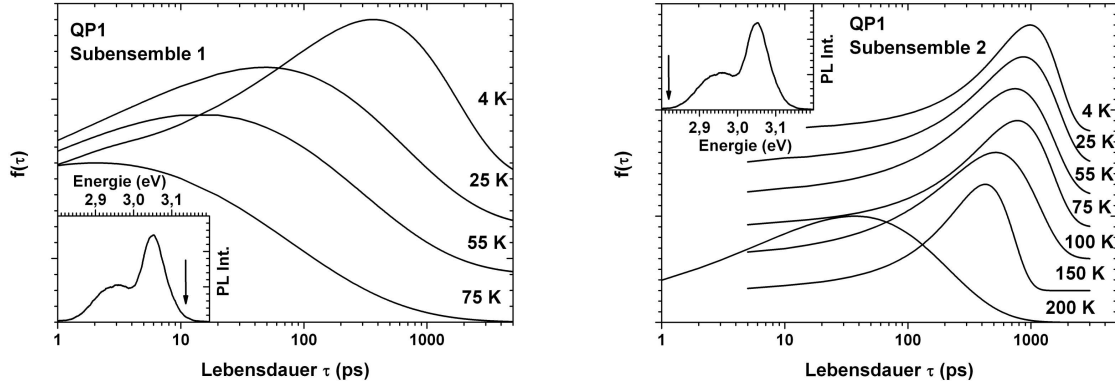


Fig. 7.11: Temperaturabhängige Entwicklung der Lebensdauer-Verteilung zweier QP-Subensembles. Die Übergangsenergie bei Heliumtemperatur ist jeweils im PL-Spektrum gekennzeichnet.

die Verteilungsfunktion $f(\tau)$ der Exzitonen-Lebensdauern bestimmt. Um sicherzustellen, dass unabhängig von der Temperatur das zuvor ausgewählte QP-Subensemble untersucht wird, wurde die Detektionsenergie für jede Temperatur anhand des Bandkantenverhaltens des Matrixmaterials GaN korrigiert. Abbildung 7.11 zeigt die Temperaturentwicklung von $f(\tau)$ für beide Subensembles in halblogarithmischer Darstellung. Das einzelne Subensemble ist jeweils im Tieftemperatur-PL-Spektrum durch einen Pfeil gekennzeichnet. Folgende Effekte können beobachtet werden:

- (i) Beide Subensembles zeigen qualitativ das gleiche Verhalten. Mit zunehmender Temperatur verschiebt sich $f(\tau)$ zu kleineren Lebensdauern. Dies lässt sich auf die Zunahme der nichtstrahlenden Rekombination zurückführen: Thermisch aktivierte Ladungsträger erreichen 2D-artige Quantenfilm-Zustände, können sich daher frei in der Schicht bewegen und erreichen Defekte, wo sie nichtstrahlend rekombinieren. Offensichtlich sind die nichtstrahlenden Prozesse sehr viel wahrscheinlicher als die strahlende Rekombination im QP, wodurch die Gesamtlebensdauer τ um mehrere Größenordnungen verringert wird.
- (ii) Während dieser Effekt beim Subensemble 1 bereits bei einer leichten Erhöhung der Temperatur zu beobachten ist, verändert sich $f(\tau)$ beim Subensemble 2 bis $T = 75$ K

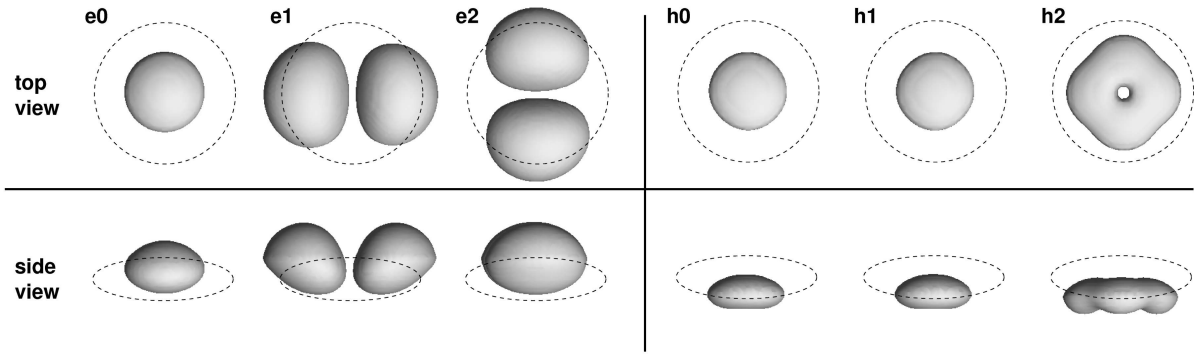


Fig. 7.12: Elektron- und Lochwellenfunktionen der Einteilchenzustände im InGaN-Quantenpunkt. (Win06b)

aufgrund der stärkeren Lokalisierung kaum. Erst bei höheren Temperaturen ist eine Delokalisierung der Ladungsträger, gekennzeichnet durch eine deutliche Verschiebung von $f(\tau)$ zu kleineren Zeitkonstanten, erkennbar. QPe mit kleineren Übergangsenergien besitzen demnach im Mittel eine größere Lokalisierungsenergie, ihre Lumineszenz damit eine höhere Temperaturstabilität.

- (iii) Nichtsdestotrotz besitzen die Lebensdauern auch bei erhöhten Temperaturen eine inhomogen verbreiterte Verteilungsfunktion $f(\tau)$. Wie bereits bei den Tieftemperatur-Transferprozessen trägt auch hier die nichtstrahlende Lebensdauer τ_{nr} zu $f(\tau)$ bei. Dies zeigt, dass die Lokalisierungsenergie und damit die Aktivierungsenergie der thermisch induzierten Umverteilung weniger von der absoluten Übergangsenergie, sondern sehr viel stärker vom Potentialgefälle zwischen QP und seiner näheren Umgebung abhängt. Somit zeigt sich auch hier der starke Einfluss der ungeordneten Verteilung der strukturellen QP-Parameter.

7.4 Berechnung der Lebensdauern mittels der Acht-Band- $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Methode

Wie bereits in 2.1.2 beschrieben hängt die strahlende Lebensdauer vom Überlapp der Elektron- und Lochwellenfunktionen ab. Die Wellenfunktionen der Einteilchenzustände wurden unter Verwendung der Acht-Band- $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Theorie berechnet. Das Modell berücksichtigt

sowohl Verspannungs- und Polarisierungseffekte, die Spin-Bahn- und Kristallfeld-Aufspaltung der Valenzbänder, als auch die Kopplung der Valenzbänder und des Leitungsbandes¹. Eine detaillierte Beschreibung der Methode geben Stier et al. (Sti99). Ihre Anwendung auf InGaN-QPe wird durch Winkelkemper et al. (Win06b) beschrieben. Abbildung 7.12 zeigt die Orbitale der Einteilchenzustände. Aus diesen lassen sich die Mehrteilchenzustände (z.B. Exzitonen) mittels der Hartree-Näherung berechnen (Ash76). Dazu wurde in mehreren Iterationsschritten die Deformierung des Einteilchenpotentials durch die Anwesenheit eines weiteren anwesenden geladenen Teilchens berücksichtigt und das Einteilchenproblem neu gelöst. Austausch- und Korrelationseffekte werden nicht berücksichtigt. Ihr Einfluss ist klein aufgrund der geringen Anzahl der lokalisierten Zustände im einzelnen InGaN-QP. Durch die Kenntnis der Wellenfunktionen und deren Überlapp lassen sich die Übergangswahrscheinlichkeiten und damit die strahlenden Lebensdauern berechnen. Im folgenden sollen die Ergebnisse dieser Berechnungen in Abhängigkeit von strukturellen QP-Parametern wie der QP-Größe und des Indiumgehalts innerhalb und außerhalb der QPs beschrieben werden.

7.4.1 Der Modell-Quantenpunkt

Das Modell eines InGaN-QPs wurde so gewählt, dass er möglichst gut der in den DALI-Bildern (Ros99; Ger03; Seg04b) wiedergegebenen Form und Indiumverteilung entspricht. Wie in Abbildung 7.13 skizziert besitzt der Modell-QP die Form einer 2 nm dicken Linse mit einem lateralen Durchmesser d . Der QP ist in einen ebenso 2 nm dicken Quantenfilm (QW) mit einem Indiumgehalt x_w eingebettet. Der Indiumgehalt innerhalb des QPs steigt linear von x_w bis zu einem Wert x_c im Zentrum des QP. Die Werte d , x_c und x_w dienen im Folgenden als die zu variierenden QP-Strukturparameter. Die simulierten QP-Serien und die Ergebnisse für die Übergangsenergie und die strahlende Lebensdauer sind in Tabelle 7.1 zusammengefasst.

¹ (1 Leitungsband + 3 Valenzbänder) · 2 Spinzustände = 8 Bänder

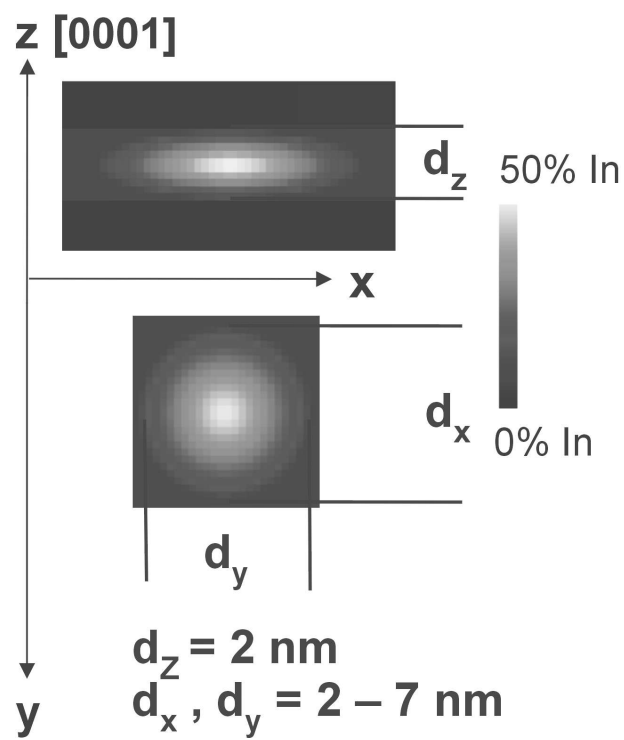


Fig. 7.13: Darstellung der Quantenpunkt-Modellstruktur (Schnitt senkrecht und parallel zur InGaN-Schicht). (Win06b)

Tab. 7.1: Mittels Acht-Band- $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Theorie untersuchte InGaN-Quantenpunktserien.

d (nm)	x_c (%)	x_w (%)	Übergangsenergie (eV)	τ_{rad} (ns)
2,8	50	5	3,221	1,85
4,0	50	5	3,095	1,79
5,2	50	5	3,001	1,91
6,4	50	5	2,933	2,19
7,6	50	5	2,863	2,56
2,8	50	10	3,089	3,10
4,0	50	10	2,980	2,83
5,2	50	10	2,895	3,10
6,4	50	10	2,831	3,37
7,6	50	10	2,760	3,92
5,2	30	5	3,228	2,00
5,2	40	5	3,122	1,88
5,2	50	5	3,001	1,91
5,2	60	5	2,859	2,04
5,2	30	10	3,094	4,32
5,2	40	10	3,004	3,43
5,2	50	10	2,894	3,10
5,2	60	10	2,759	3,02

7.4.2 Einfluss der strukturellen Quantenpunkt-Parameter auf die exzitronische Lebensdauer

Die berechneten Zeitkonstanten als Funktion des Indiumgehalts x_c im Zentrum des QPs ist in Abbildung 7.14 für zwei verschiedene Umgebungswerte x_w dargestellt. In einer $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{N}$ -Umgebung ($x_w = 10\%$) fällt die Lebensdauer τ_{rad} mit steigendem x_w aufgrund des größer werdenden Confinement-Potentials leicht von 4,2 ns nach 3,0 ns ab. In einer QW-Umgebung mit $x_w = 5\%$ Indium ist das Confinement sogar noch größer. Dies führt zu einer kleineren Lebensdauer von 2,0 ns, die nur noch geringfügig von x_c abhängt.

Abbildung 7.15 zeigt τ_{rad} als Funktion des lateralen QP-Durchmessers d . Das schwächere Confinement in großen und sehr kleinen QPen resultiert in einer größeren Zeitkonstante. Auch hier hat der Indiumgehalt des umgebenden Materials den größten Einfluss, τ_{rad} nimmt mit kleiner werdendem x_w ab.

Diese Ergebnisse führen zu der Erkenntnis, dass das Zusammenspiel von x_c und x_w ent-

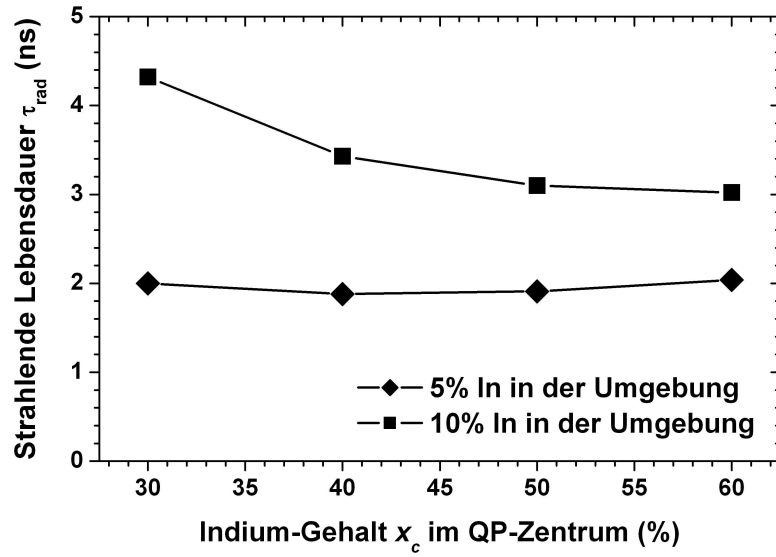


Fig. 7.14: Die berechnete strahlende Lebensdauer als Funktion des Indiumgehalts.

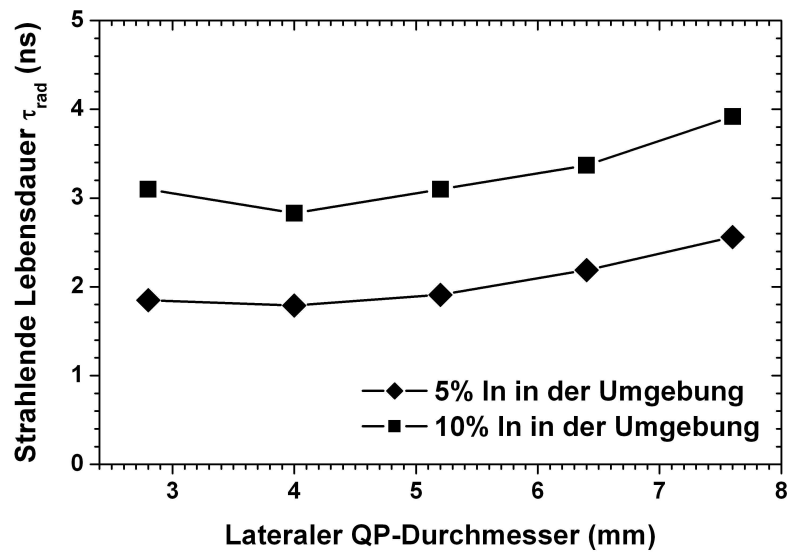


Fig. 7.15: Die berechnete strahlende Lebensdauer als Funktion der Quantenpunktgröße.

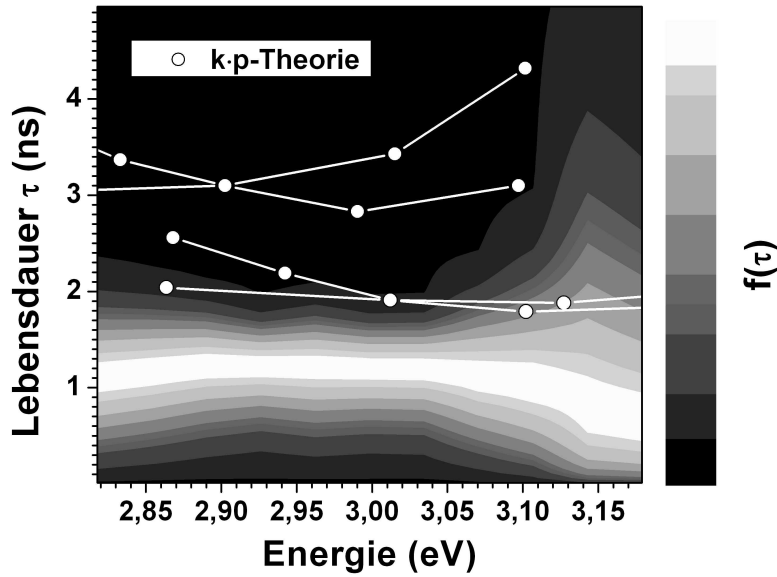


Fig. 7.16: Verteilungsfunktion der Exziton-Lebensdauern (Falschfarbendarstellung) und die mittels Acht-Band- $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Theorie berechneten strahlenden Lebensdauern als Funktion der Übergangsenergie.

scheidend für die Beschreibung von τ_{rad} ist. Das Confinement-Potential wird nicht durch den absoluten Indiumgehalt im QP, sondern vielmehr durch dessen Unterschied zum Material in der nächsten Umgebung bestimmt. Aufgrund der ungeordneten Verteilung des Indiums in der Schicht sind Confinement-Energie und Übergangsenergie nicht miteinander korreliert. Ein QP-Subensemble mit einer bestimmten Übergangsenergie besteht daher aus Quantenpunkten mit einer breiten Verteilung der Übergangswahrscheinlichkeiten.

Ein Vergleich der theoretischen und experimentellen Ergebnisse ist in Abbildung 7.16 dargestellt. Hier sind die berechneten Zeitkonstanten der vier QP-Serien (weiße Punkte) und die aus den PL-Transienten bestimmte Lebensdauer-Verteilung $f(\tau)$ (Falschfarbenplot) als Funktion der Übergangsenergie aufgetragen. Insgesamt sind die theoretisch ermittelten Werte größer als die experimentellen Daten. Dies kann einerseits an einem systematischen Fehler des Modells, z.B. aufgrund überschätzter Polarisationsseffekte (Win06a), liegen, andererseits spielt hier auch die Tatsache eine Rolle, dass das 8-Band- $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Modell keine Transferprozesse berücksichtigt. Nichtsdestotrotz gibt die Simulation sehr gut die

experimentell beobachtete Streuung der Lebensdauern bei fester Übergangsenergie wieder.

In diesem Kapitel wurden die optischen Eigenschaften stark inhomogener InGaN-Schichten untersucht, deren indiumreiche Fluktuationsinseln bei tiefen Temperaturen ein dichtes QP-Ensemble bilden. Es wurde gezeigt, dass die QP-Eigenschaften bei Raumtemperatur aufgrund der geringen Lokalisierungsenergien verschwinden und daher nicht zur Verbesserung der Lichtausbeute in InGaN-basierenden Halbleiterlasern beitragen. Zur Untersuchung der Rekombinationsdynamik in InGaN QPen wurde die zeitaufgelöste PL einzelner QPe, des gesamten QP-Ensembles und einzelner QP-Subensembles mit fester Übergangsenergie gemessen. Die Ergebnisse zeigen, dass im Gegensatz zu anderen QP-Systemen Exzitonen-Lebensdauer und Übergangsenergie nicht miteinander korreliert sind. Stattdessen zeigen QP-Zustände gleicher Übergangsenergie eine breite Streuung der Lebensdauern. Mit einer einzelnen Zeitkonstante lassen sich die Rekombinationsprozesse in InGaN-QPen daher nicht beschreiben. Mittels einer einfachen numerischen Analyse der experimentellen Ergebnisse lässt sich die inhomogen verbreiterte Verteilung der Lebensdauern im QP-Ensemble bestimmen. Die erhaltene Verteilungsfunktion $f(\tau)$ ermöglicht eine vollständige Beschreibung der Rekombinationsdynamik. Untersuchungen der Abhängigkeit der Lebensdauer-Verteilung von der Übergangsenergie und der Temperatur zeigen einen deutlichen Einfluss von Umverteilungsprozessen der Exzitonen innerhalb des QP-Ensembles. Mittels 8-Band- $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Theorie wurden die strahlenden Exzitonen-Lebensdauern berechnet. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen zeigen, dass die ungeordnete Verteilung der strukturellen QP-Parameter für die inhomogen verbreiterte Lebensdauer-Verteilung verantwortlich ist.

8. ZUSAMMENFASSUNG

In dieser Arbeit wurden vier verschiedene Konzepte zur Erhöhung der Lichtausbeute in Halbleiter-Laserdioden mit verschiedenen optischen Spektroskopiemethoden untersucht und die Ergebnisse teilweise mit den Resultaten struktureller sowie theoretischer Untersuchungen verglichen. Da sich die einzelnen Konzepte nicht auf jedes beliebige Halbleitermaterial erfolgreich anwenden lassen, geschah dies exemplarisch an zwei auf den ersten Blick sehr unterschiedlichen Materialsystemen, den Mischhalbleitern GaInNAs und InGaN.

Bei der Untersuchung thermischer Ausheilprozesse an GaInNAs-Quantenfilmen (QW), wurde festgestellt, dass der Erfolg dieses Konzepts stark von der geeigneten Kombination von Wachstums- und Ausheilprozess abhängt. Dabei spielen insbesondere die Wachstumstemperatur und die Ausheilatmosphäre eine entscheidende Rolle. Zeitintegrierte und zeitaufgelöste Photolumineszenz (PL), kombiniert mit den Ergebnissen der Transmissionselektronenmikroskopie, zeigten, dass mit zunehmender Wachstumstemperatur der GaInNAs-QW rauer und seine chemische Zusammensetzung inhomogener wird. Gleichzeitig nimmt die Anzahl der Kristalldefekte zu. Die Lumineszenzeigenschaften bei tiefen Temperaturen wird durch die Lokalisierung von Exzitonen in Indium- und Stickstoffreichen Zentren des QWs bestimmt. Gleichzeitig gelangen die Exzitonen jedoch bereits hier über Tunnelprozesse zu den Defekten, die als nichtstrahlende Rekombinationszentren wirken. Dies führt zu einer geringeren Lichtausbeute der bei höheren Temperaturen abgeschiedenen Strukturen. Ein zusätzlicher thermisch aktivierter Umverteilungsprozess der Exzitonen bei höheren Temperaturen verstärkt den Einfluss nichtstrahlender Prozesse. Nach dem Wachstum wurden die GaInNAs-QWs unter zwei verschiedenen Atmosphären (Argon oder Wasserstoff) thermisch ausgeheilt und der Einfluss des Ausheilprozesses auf die Lichtausbeute untersucht. Dabei zeigte sich, dass die durch das Ausheilen erzielte Homogenisierung der chemischen

Zusammensetzung im QW nicht wie bisher angenommen automatisch zu einer höheren Lichtausbeute führt. Einzig und allein eine Reduzierung der nichtstrahlenden Rekombinationszentren führt zu einer Verbesserung der optischen Eigenschaften der Strukturen. Die Effizienz des Argon- bzw. des Wasserstoffausheilens hängt von der Wachstumstemperatur ab. Während für die bei tiefen Temperaturen abgeschiedenen QWs alleine das Wasserstoffausheilen die Lumineszenzintensität deutlich erhöht, ist für die Hochtemperaturstrukturen das Argonausheilen das effizientere Verfahren. Es wurde gezeigt, dass sich dieses Verhalten auf den Einbau zweier konkurrierender Defekttypen während des Wachstums zurückführen lässt. Zukünftig wird eine Optimierung des Herstellungsprozesses von GaInNAs-Laserdioden (LD), bestehend aus einer geeigneten Kombination von Wachstum und Ausheilprozess, zu einer weiteren Verbesserung der Lichtausbeute in diesen Strukturen führen. Die Frage, ob diese Anstrengungen dazu führen, dass GaInNAs-LDs gegenüber den konkurrierenden Systemen InGaAsP und InGaAs wettbewerbsfähig wird, lässt sich allerdings zu diesem Zeitpunkt nicht abschließend beantworten.

Die Wettbewerbsfähigkeit von InGaN in den aktiven Schichten blau und ultraviolett emittierender LDs ist dagegen unbestritten. Doch auch hier existieren Konzepte, um deren Effizienz zu erhöhen. Es wurden 4,5 nm und 9,5 nm dicke InGaN-Doppelheterostrukturen untersucht, die entweder heteroepitaktisch auf dem Fremdsubstrat Saphir oder homoepitaktisch auf GaN abgeschieden wurden. Dabei stellte sich heraus, dass im Niederanregungsfall (vergleichbar mit den Anregungsbedingungen in einer Leuchtdiode) das Substratmaterial keinen Einfluss auf die Lichtausbeute hat. Vielmehr werden die Lumineszenzeigenschaften durch die Lokalisierung der Exzitonen in indiumreichen Fluktuationsinseln bestimmt. Das entscheidende Kriterium für eine hohe interne Quanteneffizienz in einer InGaN-Leuchtdiode ist daher eine stark inhomogene Verteilung des Indiums, die eine stabile Lokalisierung der Ladungsträger auch bei Raumtemperatur garantiert. Bei hohen Anregungsdichten in einer InGaN-LD spielen Lokalisierungseffekte dagegen keine Rolle. Die Ladungsträger können sich in der Schicht frei bewegen und gelangen zu den in InGaN reichlich vorhandenen nichtstrahlenden Rekombinationszentren. Durch zeitaufgelöste PL-Untersuchungen bei verschiedenen Anregungsdichten und die Beobachtung eines

ungewöhnlichen nicht exponentiellen PL-Abklingens konnte die Sättigung bzw. Abschirmung dieser nichtstrahlenden Defekte als entscheidender Gewinnmechanismus in InGaN-LDs identifiziert werden. Die Anregungsschwelle für die Erzeugung stimulierter Emission hängt daher eindeutig von der Kristallqualität ab. Durch die Untersuchung des optischen Gewinns in den auf Saphir bzw. GaN abgeschiedenen InGaN-Strukturen mittels der Strichlängenmethode konnte gezeigt werden, dass das homoepitaktische Wachstum auf GaN-Substraten und die damit verbundene Reduzierung der Versetzungsdichte um etwa eine Größenordnung zu deutlich geringeren Schwellstromdichten und damit in Zukunft zu effizienteren und leistungstärkeren InGaN-LDs führt. Ob GaN-Substrate jedoch schon bald die Fremdsubstrate Saphir und SiC in der industriellen Fertigung von InGaN-LDs ablösen, wird stark davon abhängen, ob sie sich kostengünstig herstellen lassen. Während die GaN-Substrate für die hier vorgestellten Strukturen mit einer aufwändigen und kostenintensiven Hochdruckmethode hergestellt wurden, scheint die Herstellung mittels Hydridgasphasenepitaxie das Erfolg versprechendere Konzept zu sein. Dieses Verfahren garantiert gegenüber anderen Epitaxieverfahren ausreichend hohe Wachstumsraten bei vergleichsweise geringen Versetzungsdichten (ca. 10^6 cm^{-2}).

Eine weitere Verbesserung InGaN-basierender Lichtemitter kann mit der Abschirmung der internen pyro- und piezoelektrischen Felder erreicht werden. Die optischen Eigenschaften feldfreier InGaN-Schichten werden nicht durch den *Quantum Confined Stark Effect* beeinflusst und zeigen daher auch keine Blauverschiebung mit zunehmender Anregungsdichte. Die Emissionswellenlänge hängt also nur noch vom Indiumgehalt ab. Dies könnte mittelfristig den Weg zur seit langem angestrebten Realisierung grün emittierender InGaN-LDs ebnen.

Das vierte Konzept, der Einsatz von Quantenpunkten (QP) mit dem Ziel, durch die Kombination von Lokalisierungs-, Quantisierungs- und Confinement-Effekten geringere Schwellstromdichten und eine höhere Temperaturstabilität der Lichtausbeute in LDs zu erreichen, wurde anhand eines InGaN-QP-Ensembles hoher lateraler Dichte (10^{11} cm^{-2}) untersucht. Dieses besteht aus 3 - 5 nm großen indiumreichen Fluktuationsinseln. Hinsichtlich ihrer Rekombinationsdynamik unterscheiden sich InGaN-QPe stark von anderen

QP-Systemen. Zeitaufgelöste PL-Untersuchungen an einzelnen QPen ergaben ein exponentielles PL-Abklingen eines einzelnen QP-Zustands im Gegensatz zum nicht exponentiellen Abklingen der QP-Ensemble-Lumineszenz. Anders als z.B. bei In(Ga)As-QPen existiert jedoch bei InGaN-QPen kein fester Zusammenhang zwischen der Lebensdauer und der Übergangsenergie. Wie durch die Berechnung der strahlenden exzitonischen Lebensdauer unter Verwendung der Acht-Band- $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Theorie und die Modellierung einer möglichst realitätsnahen QP-Struktur gezeigt werden konnte, können InGaN-QPe unterschiedlicher Größe und chemischer Zusammensetzung identische Übergangsenergien und gleichzeitig unterschiedliche Lebensdauern besitzen. Somit sind die strukturellen QP-Parameter für die breite Verteilung von τ verantwortlich, die zu dem beobachteten nicht exponentiellen PL-Abklingen des QP-Ensembles führt. Eine Beschreibung der Rekombinationsdynamik ist daher nicht mit einer einzelnen Zeitkonstante, sondern nur anhand der Verteilungsfunktion $f(\tau)$ möglich. Diese wurde mittels eines einfachen statistischen Ansatzes aus der zeitaufgelösten PL des QP-Ensembles gewonnen. Die Ausnutzung der QP-Eigenschaften in InGaN-Lichtemittern wird durch die geringen Lokalisierungsenergien begrenzt. Die untersuchten InGaN-Fluktuationsinseln verlieren aufgrund ihres geringen Indiumgehalts ihre QP-Eigenschaften bereits bei ca. 130 K. Entscheidend für die Realisierung von InGaN-QP-Lasern wird in Zukunft daher eine deutliche Erhöhung des Indiumgehalts in den QPen sein. Erste Fortschritte in diese Richtung sind bereits erkennbar. Sénès et al. (S07) berichten beispielsweise von verspannungsinduziert gewachsenen InGaN-3D-Inseln, die ihre QP-Eigenschaften erst oberhalb von 200 K verlieren. Voraussetzung für die Ausnutzung von QP-Eigenschaften in InGaN-Lichtemittern ist jedoch die Herstellung von QP-Strukturen, in denen die Lokalisierung von Exzitonen auch bei Raumtemperatur gegeben ist.

9. DANKSAGUNG

An dieser Stelle möchte ich all denen danken, die in irgendeiner Weise am Gelingen dieser Arbeit mitgewirkt haben. Einige davon möchte ich besonders erwähnen:

- Meinen Doktorvater, Herrn Priv.-Doz. Dr. Axel Hoffmann, für das Ermöglichen dieser Arbeit, seine grenzenlose Geduld und seine Unterstützung, auch bei nicht-physikalischen Problemen.
- Herrn Prof. Dr. Michael Kneissl für die Begutachtung dieser Arbeit, die fruchtbare Diskussion zu den Gewinn- und Verlustmechanismen in InGaN und die wertvollen Tipps.
- Herrn Prof. Dr. Erwin Sedlmayr für die Übernahme des Prüfungsvorsitzes.
- Meine Mitstreiter, die Herren Dipl.-Phys. Til Bartel, Patrick Zimmer, Thomas Stempel Pereira, Radowan Hildebrant und Max Bügler, für ihr Engagement und die stets freundschaftliche Zusammenarbeit.
- Herrn Dipl.-Phys. Momme Winkelkemper für die Einführung in die Geheimnisse der Acht-Band- $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ -Theorie.
- Herrn Dr. Sven Rodt und Herrn Dipl.-Phys. Robert Seguin für die Zusammenarbeit bei der orts aufgelösten Spektroskopie.
- Meine ehemaligen und aktuellen *Mitbewohner* im P-N 518, Frau Dipl.-Phys. Ute Haboeck und Herrn Dipl.-Phys. Markus R. Wagner.

-
- Die Herren Heiner Perls und Bernd Schöler stellvertretend für alle, die durch ihre Hilfe zur Realisierung der experimentellen Aufbauten beigetragen haben. Ihre Hilfsbereitschaft und die kollegial-freundschaftliche Atmosphäre ließen jedes noch so große Problem überschaubar werden.
 - Ulrike Grupe, Ines Rudolph, Doreen Nitsche und Marianne Heinold für die Unterstützung bei der Bewältigung vieler organisatorischer Probleme.
 - Alle bisher nicht namentlich genannten Mitglieder der Arbeitsgruppen Hoffmann/Thomsen und Bimberg, die ausschlaggebend für das freundliche, offene und kreative Arbeitsklima waren.
 - Unsere Kooperationspartner bei Qimonda, Dr. Lutz Geelhaar und Dr. Massimo Galluppi, und bei Unipress, Prof. Dr. Tadek Suski und Gijs Franssen, für die Bereitstellung der untersuchten Proben.
 - Herrn Dr. Martin Albrecht für die elektronenmikroskopischen Untersuchungen.
 - Herrn Dr. Martin Straßburg für die langreichweitige Wechselwirkung.
 - Meine Familie, ohne deren Unterstützung diese Arbeit nicht möglich gewesen wäre.
 - Meine Lebensgefährtin Anne Schilawa für ihre Liebe, ihr Verständnis für z.T. ungewöhnliche Arbeitszeiten und ihre Geduld.

Ich widme diese Arbeit meinen Töchtern Kara und Lina.

LITERATURVERZEICHNIS

- [Alb02] M. Albrecht, V. Grillo, T. Remmele, H. P. Strunk, A. Y. Egorov, G. Dumitras, H. Riechert, A. Kaschner, R. Heitz, and A. Hoffmann, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 2719 (2002).
- [Alf63] Z. I. Alferov and R. F. Kazarinov, *Semiconductor laser with electric pumping*, Inventor's Certificate **No. 181737**, Application No. 950840 (1963).
- [Alf67] Z. I. Alferov, *Sov. Phys. Semicond.* **1**, 358 (1967).
- [Alf71] Z. I. Alferov, V. M. Andreev, D. Z. Garbuzov, Y. V. Zhilyaev, E. P. Morozov, E. L. Portnoi, and V. G. Trofim, *Sov. Phys. Semicond.* **4**, 1573 (1971).
- [Alf01] Z. I. Alferov, *Rev. Mod. Phys.* **73**, 767 (2001).
- [alG69] C. B. a la Guillaume, J. Debever, and F. Salvan, *Phys. Rev.* **177**, 567 (1969).
- [All38] J. F. Allen and A. D. Misener, *Nature* **141**, 75 (1938).
- [Ara82] Y. Arakawa and H. Sakaki, *Appl. Phys. Lett.* **40**, 939 (1982).
- [Ara02] Y. Arakawa, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron* **8**, 823 (2002).
- [Ash76] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solid State Physics*, Saunders College Publishing (1976).
- [Bal01] G. Baldassarri, M. Bissiri, A. Polimeni, M. Capizzi, M. Fischer, M. Reinhardt, and A. Forchel, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 3472 (2001).

-
- [Bar04a] T. Bartel, *Optische Eigenschaften von Exzitonen in InGaN-Quantenstrukturen*, Master's thesis, Technische Universität Berlin (2004).
- [Bar04b] T. Bartel, M. Dworzak, M. Strassburg, A. Hoffmann, A. Strittmatter, and D. Bimberg, Appl. Phys. Lett. **85**, 1946 (2004).
- [Bas61] N. G. Basov, O. N. Krokhin, and Y. M. Popov, Sov. Phys. JETP **12**, 1033 (1961).
- [Bau01] J. Baur, U. Strauss, G. Bruederl, D. Eisert, B. Hahn, H.-J. Lugauer, S. Bader, U. Zehnder, M. Fehrer, and V. Härle, J. Cryst.Gr. **230**, 507 (2001).
- [Bel99] L. Bellaiche, Appl. Phys. Lett. **75**, 2578 (1999).
- [Bel03] A. Bell, J. Christen, S. Srinivasan, C. Plumlee, H.Omiya, and F.A.Ponce, J. Appl. Phys. **95**, 4670 (2003).
- [Bel04] A. Bell, J. Christen, F. Bertram, F. Ponce, H. Marui, and S. Tanaka, Appl. Phys. Lett. **84**, 58 (2004).
- [Ber99a] E. Berkowicz, D. Gershoni, G. Bahir, A. C. Abare, S. P. D. Baars, and L. A. Coldren, phys. stat. sol. (b) **216**, 291 (1999).
- [Ber99b] F. Bernadini, V. Fiorentini, F. D. Salla, A. D. Carlo, and P. Lugli, Phys. Rev. B **60**, 8849 (1999).
- [Bi97] W. G. Bi and C. W. Tu, Appl. Phys.Lett. **70**, 1608 (1997).
- [Bim71] D. Bimberg, M. Sondergeld, and E. Grobe, Phys. Rev. B **4**, 3451 (1971).
- [Bim99] D. Bimberg, M. Grundmann, and N. N. Ledentsov, *Quantum Dot Heterostructures*, Wiley New York (1999).
- [Bin99] F. Binet, J. Y. Duboz, J. Off, and F. Scholz, Phys. Rev. B **60**, 4715 (1999).
- [Bog74] A. P. Bogatov, L. M. Dolginov, L. V. Druzhinina, P. G. Eliseev, L. N. Sverdlova, and E. G. Shevchenko, Sov. J. Quantum Electron. **1**, 1281 (1974).

-
- [Bou99] Bougrov, *Properties of Advanced Semiconductor Materials GaN, AlN, InN, BN, SiC, SiGe*, Wiley & Sons New York (1999).
- [Buy99] I. A. Buyanova, W. M. Chen, G. Pozina, J. P. Bergman, B. Monemar, H. P. Xin, and C. W. Tu, Appl. Phys. Lett. **75**, 501 (1999).
- [Buy01] I. A. Buyanova, W. M. Chen, and B. Monemar, MRS Internet J. Nitride Semicond. Res. **6**, 2 (2001).
- [Cao04] X. A. Cao, S. F. LeBoeuf, M. P. D'Evelin, S. D. Arthur, J. Kretchmer, C. Yan, and Z. H. Yang, Appl. Phys. Lett. **84**, 4313 (2004).
- [Chi96] S. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota, and S. Nakamura, Appl. Phys. Lett. **69**, 4188 (1996).
- [Chi97] S. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota, and S. Nakamura, Appl. Phys. Lett. **70**, 2822 (1997).
- [Cho71] A. Y. Cho, J. Vac. Sci. Technol. **8**, 31 (1971).
- [Dad03] A. Dadgar, A. Strittmatter, J. Bläsing, M. Poschenrieder, O. Contreras, P. Veit, T. Riemann, F. Bertram, A. Reiher, A. Krtschil, A. Diez, T. Hempel, T. Finger, A. Kasic, M. Schubert, D. Bimberg, F. A. Ponce, J. Christen, and A. Krost, phys. stat. sol. (c) **0**, 1583 (2003).
- [Dam05] B. Damilano, J. Barjon, J.-Y. Duboz, J. Massies, A. Hierro, J.-M. Ulloa, and E. Calleja, Appl. Phys. Lett. **86**, 071105 (2005).
- [Dav02] V. Y. Davydov, A. A. Klochikhin, V. V. Emtsev, D. A. Kurdyukov, S. V. Ivanov, V. A. Vekshin, F. Bechstedt, J. Furthmüller, J. Aderhold, J. Graul, A. V. Mudryi, H. Harima, A. Hashimoto, A. Yamamoto, and E. E. Haller, phys. stat. sol (b) **234**, 787 (2002).
- [Din74] R. Dingle, W. Wiegmann, and C. H. Henry, Phys. Rev. Lett. **33**, 827 (1974).

-
- [Dup78] R. D. Dupuis, P. D. Dapkus, J. N. Holonyak, E. A. Rezek, and R. Chin, Appl. Phys. Lett. **32**, 295 (1978).
- [Dwo06] M. Dworzak, T. Stempel, A. Hoffmann, G. Franssen, S. Grzanka, T. Suski, R. Czernecki, M. Leszczynski, and I. Grzegory, phys. stat. sol. (c) **6**, 2078 (2006).
- [Ego99] A. Y. Egorov, D. Bernklau, D. Livshits, V. Ustinov, Z. I. Alferov, and H. Riechert, Electron. Lett. **35**, 1643 (1999).
- [Eke91] A. K. Ekert, *Quantum cryptography based on Bell's theorem*, Phys. Rev. Lett. **67** (6), 661 (1991).
- [Eki81] A. I. Ekimov and A. A. Onushchenko, JETP Lett. **34**, 345 (1981).
- [Fel87] J. Feldman, G. Peter, E. O. Göbel, P. Dawson, K. Moore, C. Foxon, and R. J. Elliott, Phys. Rev. Lett. **59**, 2337 (1987).
- [Fra98] S. Francoeur, G. Sivaraman, Y. Qiu, S. Nikishin, and H. Temkin, Appl. Phys. Lett. **72**, 1857 (1998).
- [Fra05a] G. Franssen, S. Grzanka, R. Czernecki, T. Suski, L. Marona, T. Riemann, J. Christen, H. Teisseyre, P. Valvin, P. Lefebvre, P. Perlin, M. Leszczynski, and I. Grzegory, J. Appl. Phys. **97**, 103507 (2005).
- [Fra05b] G. Franssen, T. Suski, P. Perlin, R. Bohdan, A. Bercha, W. Trzeciakowski, I. Markarowa, P. Prystawko, M. Leszczynski, I. Grzegory, S. Porowski, and S. Kokenyesi, Appl. Phys. Lett. **87**, 041109 (2005).
- [Fre31] J. I. Frenkel, Phys. Rev. **37**, 17 (1931).
- [Fur06] M. Furitsch, A. Avramescu, C. Eichler, K. Engel, A. Leber, A. Miler, C. Rumbolz, G. Brüderl, U. Strauß, A. Lell, and V. Härle, phys. stat. sol. (a) **203**, 1797 (2006).
- [Gal05] M. Galluppi, L. Geelhaar, and H. Riechert, Appl. Phys. Lett. **86**, 131925 (2005).

-
- [Gal07] M. J. Galtrey, R. A. Oliver, M. J. Kappers, C. J. Humphreys, D. J. Stokes, P. H. Clifton, and A. Cerezo, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 061903 (2007).
- [Gee06] L. Geelhaar, M. Galluppi, G. Jaschke, R. Averbek, H. Riechert, T. Remmele, M. Albrecht, M. Dworzak, R. Hildebrant, and A. Hoffmann, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 011903 (2006).
- [Gee07] L. Geelhaar, M. Galluppi, R. Averbek, G. Jaschke, and H. Riechert, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 071913 (2007).
- [Ger00] D. Gerthsen, E. Hahn, B. Neubauer, A. Rosenauer, O. Schön, M. Heuken, and A. Rizzi, *phys. stat. sol. (a)* **177**, 145 (2000).
- [Ger01] D. Gerthsen, B. Neubauer, A. Rosenauer, T. Stephan, H. Kalt, O. Schön, and M. Heuken, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2552 (2001).
- [Ger03] D. Gerthsen, E. Hahn, B. Neubauer, V. Potin, A. Rosenauer, and M. Schowalter, *phys. stat. sol. (c)* **0**, 1668 (2003).
- [Gok99] M. R. Gokhale, J. Wei, H. Wang, and S. R. Forrst, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 1287 (1999).
- [Gol85] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse, and G. L. Roux, *Appl. Phys. Lett.* **47**, 1099 (1985).
- [Got03] H. Gotoh, T. Tawara, Y. Kobayashi, N. Kobayashi, and T. Saitoh, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 4791 (2003).
- [Gou89] C. Gourdon and P. Lavallard, *Phys. Stat. Sol. b* **153**, 641 (1989).
- [Gra05] M. Graham, A. Soltani-Vala, P. Dawson, M. J. Godfrey, T. M. Smeeton, J. S. Barnard, M. J. Kappers, C. J. Humphreys, , and E. J. Thrush, *J. Appl. Phys.* **97**, 103508 (2005).

-
- [Gri01] V. Grillo, M. Albrecht, T. Remmele, H. P. Strunk, A. Y. Egorov, and H. Riechert, J. Appl. Phys. **90**, 3792 (2001).
- [Gru99] H. Gruning, L. Chen, T. Hartmann, P. J. Klar, W. Heimbrodt, F. Höhnsdorf, J. Koch, and W. Stolz, phys. stat. sol. (b) **215**, 39 (1999).
- [Grz01] I. Grzegory, M. Bockowski, S. Krukowski, B. Lucznik, M. Wroblewski, J. L. Weyher, M. Leszczynski, P. Prystawko, R. Czernecki, J. Lehnert, G. Nowak, P. Perlin, H. Teisseyre, W. Purgal, W. Krupczynski, T. Suski, L. Dmowski, E. Litwin-Staszewska, C. Skierbiszewski, S. Lepkowski, and S. Porowski, Acta Phys. Pol. **100**, 229 (2001).
- [Hal62] R. H. Hall, G. E. Fenner, J. D. Kingsley, T. J. Soltys, and R. O. Carlson, Phys. Rev. Lett. **9**, 366 (1962).
- [Han03] A. Hangleiter, phys. stat. sol. (c) **0**, 1816 (2003).
- [Hei01] R. Heitz, H. Born, F. Guffarth, O. Stier, A. Schliwa, A. Hoffmann, and D. Bimberg, Phys. Rev. B **64**, 241305 (2001).
- [Ho96] I. Ho and G. B. Springfellow, Appl. Phys. Lett. **69**, 2701 (1996).
- [Hol62] J. Holonyak and S. F. Bevacqua, Appl. Phys. Lett. **1**, 82 (1962).
- [Hol01] J. Holst, *Optische Eigenschaften hochangeregter Nitrid-Halbleiter*, Ph.D. thesis, Technische Universität Berlin (2001).
- [Hum04] C. Hums, *Optische Charakterisierungen von InGaN-Heterostrukturen*, Master's thesis, Technische Universität Berlin (2004).
- [Hum07] C. Hums, T. Finger, T. Hempel, J. Christen, A. Dadgar, A. Hoffmann, and A. Krost, J. Appl. Phys. **101**, 033113 (2007).
- [Jon99] E. D. Jones, N. A. Modine, A. A. Allerman, S. R. Kurtz, A. F. Wright, S. T. Torez, and X. Wei, Phys. Rev. B **60**, 4430 (1999).

-
- [Jon00] E. D. Jones, A. A. Allerman, S. R. Kurtz, N. A. Modine, K. K. Bajaj, S. T. Torez, and X. Wei, *Phys. Rev. B* **62**, 7144 (2000).
- [Kap38] P. Kapitsa, *Nature* **141**, 74 (1938).
- [Kla01] P. J. Klar, H. Grüning, J. Koch, S. Schäfer, K. Volz, S. Stolz, W. Heimbrod, A. M. K. Saadi, A. Lindsay, and E. P. O'Reilly, *Phys. Rev. B* **64**, 121203R (2001).
- [Koh54] Kohlrausch, *Pogg. Ann. Phys. Chem.* **91**, 179 (1854).
- [Kon94] M. Kondow, K. Uomi, K. Hosomi, and T. Mozume, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**, L1056 (1994).
- [Kon96a] M. Kondow, K. Uomi, A. Niwa, T. Kitani, S. Watahiki, and Y. Yazawa, *Jpn. J. Appl. Phys.* **35**, 1273 (1996).
- [Kon96b] M. Kondow, K. Uomi, A. Niwa, T. Kitani, S. Watahiki, and Y. Yazawa, *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **3**, 719 (1996).
- [Kor06] K. P. Korona, C. Skierbiszewski, M. Siekacz, A. Feduniewicz, T. Suski, G. Franssen, I. Grzegory, J. Borysiuk, and M. Leszczynski, *phys. stat. sol. (c)* **3**, 1926 (2006).
- [Kre02] I. L. Krestnikov, N. N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, A. V. Sakharov, W. V. Lundin, A. F. Tsatsul'nikov, A. S. Usikov, Z. I. Alferov, Y. G. Musikhin, and D. Gerthsen, *Phys. Rev. B* **66**, 155310 (2002).
- [Kro63] H. Kroemer, *Proc. IEEE* **51**, 1782 (1963).
- [Kro83] H. Kroemer and G. Griffiths, *IEEE Electron Device Lett.* **EDL-4**, 20 (1983).
- [Kur01] S. Kurtz, J. Webb, L. Gedvilas, D. Friedman, J. Geisz, J. Olson, R. King, D. Joslin, and N. Karam, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 748 (2001).
- [Kwo99] D. Kwon, R. J. Kaplar, S. A. Ringel, A. A. Allerman, S. R. Kurtz, and E. D. Jones, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 2830 (1999).

-
- [Les95] S. D. Lester, F. A. Ponce, M. G. Graford, and D. A. Steigerwald, *Appl. Phys. Lett.* **66**, 1687 (1995).
- [Li05] T. Li, E. Hahn, D. Gerthsen, A. Rosenauer, A. Strittmatter, L. Reißmann, and D. Bimberg, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 241911 (2005).
- [Man68] H. M. Manasevit, *Appl. Phys. Lett.* **12**, 156 (1968).
- [Mas06] H. Masui, T. J. Baker, M. Iza, H. Zhong, S. Nakamura, and S. P. DenBaars, *J. Appl. Phys.* **100**, 113109 (2006).
- [Mat99] T. Mattila, S. H. Wei, and A. Zunger, *Phys. Rev. B* **60**, R11245 (1999).
- [Men82] E. Mendez, G. Bastard, L. Chang, L. Esaki, H. Morkoc, and R. Fischer, *Phys. Rev. B* **26**, 7101 (1982).
- [Mil84] D. A. B. Miller, D. S. Chemia, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood, and C. A. Burrus, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 2173 (1984).
- [Mor00] O. Moriwaki, T. Someya, K. Tachibana, S. Ishida, and Y. Arakawa, *Appl. Phys. Lett.* **76** (17), 2361 (2000).
- [Mor02] A. Morel, P. Lefebvre, T. Taliercioa, T. Bretagnona, B. Gila, N. Grandjean, B. Damilano, and J. Massies, *Phys. E* **17**, 64 (2002).
- [Mot68] N. F. Mott, *Rev. Mod. Phys.* **40**, 677 (1968).
- [Mot99] A. Moto, S. Tanaka, N. Ikoma, T. Tanabe, S. Takagishi, M. Takahashi, and T. Katsuyama, *Jpn J. Appl. Phys.* **38**, 1015 (1999).
- [Muk99] T. Mukai, M. Yamada, and S. Nakamura, *Jpn J. Appl. Phys.* **38**, 3976 (1999).
- [Nak93] S. Nakamura, T. Mukai, M. Senoh, S. Nagahama, and N. Iwasa, *J. Appl. Phys.* **74**, 3911 (1993).

-
- [Nak96] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, and Y. Sugimoto, Jpn. J. Appl. Phys. **35**, L74 (1996).
- [Nak98a] S. Nakamura, Science **281**, 956 (1998).
- [Nak98b] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, Y. Sugimoto, T. Kozaki, H. Umemoto, M. Sano, and K. Chocho, Appl. Phys. Lett. **73**, 832 (1998).
- [Nak98c] S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, Y. Sugimoto, T. Kozaki, H. Umemoto, M. Sano, and K. Chocho, Appl. Phys. Lett. **72**, 2014 (1998).
- [Nak99] S. Nakamura and G. Fasol, *The Blue Laser Diode*, Springer, Berlin (1999).
- [Nar97a] Y. Narukawa, Y. Kawakami, S. Fujita, S. Fujita, and S. Nakamura, Phys. Rev. B **55**, R1938 (1997).
- [Nar97b] Y. Narukawa, Y. Kawakami, M. Funato, A. Fujita, S. Fujita, and S. Nakamura, Appl. Phys. Lett. **70**, 981 (1997).
- [Nov] www.novalux.com.
- [O'D98] K. P. O'Donnell, J. F. W. Mosselmans, R. W. Martin, S. Pereira, and M. E. White, J. Phys. Cond. Matter **13**, 6977 (1998).
- [O'D99] K. P. O'Donnell, R. W. Martin, and P. G. Middleton, *Origin of Luminescence from InGaN Diodes*, Phys. Rev. Lett. **82** (1), 237 (1999).
- [Onu03] T. Onuma, S. F. Chichibu, T. Aoyama, K. Nakajima, P. Ahmet, T. Azuhata, T. Chikyow, T. Sota, S. Nagahama, and T. Mukai, Jpn. J. Appl. Phys. **42**, 7276 (2003).
- [Pop99] M. Pophristic, F. H. Long, C. Tran, I. T. Ferguson, and R. F. K. Jr., Appl. Phys. Lett. **86** (2), 1114 (1999).

-
- [Poz98] G. Pozina, I. Ivanov, B. Monemar, J. V. Thordson, and T. G. Andersson, *J. Appl. Phys.* **84**, 3830 (1998).
- [Ram04] M. Ramsteiner, D. S. Jiang, J. S. Harris, and K. H. Ploog, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 1859 (2004).
- [Rea03] A. Reale, G. Massari, A. D. Carlo, P. Lugli, A. Vinattieri, D. Alderighi, M. Colloci, F. Semond, N. Grandjean, and J. Massies, *J. Appl. Phys.* **93**, 400 (2003).
- [Ric04] J. H. Rice, J. W. Robinson, A. Jarjour, R. A. Taylor, R. A. Oliver, G. A. D. Briggs, M. J. Kappers, and C. J. Humphreys, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 4110 (2004).
- [Rob03] J. W. Robinson, J. H. Rice, A. Jarjour, J. D. Smith, R. A. Taylor, R. A. Oliver, G. A. D. Briggs, M. J. Kappers, C. J. Humphreys, and Y. Arakawa, *Appl. Phys. Lett.* **83** (13), 2674 (2003).
- [Ros99] A. Rosenauer and D. Gerthsen, *Adv. Imaging Electron Phys.* **107**, 121 (1999).
- [S07] M. Sénès, K. L. Smith, T. M. Smeeton, S. E. Hooper, and J. Heffernan, *Phys. Rev. B* **75**, 045314 (2007).
- [Sak93] S. Sakai, Y. Ueta, and Y. Terauchi, *Jpn J. Appl. Phys.* **32**, 4413 (1993).
- [Sat96] M. Sato, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **395**, 285 (1996).
- [Sch96] D. Schikora, M. Hankeln, D. J. As, K. Lischka, T. Litz, A. Waag, T. Buhrow, and F. Henneberger, *Phys. Rev. B* **54**, R8381 (1996).
- [Sch00] D. Schikora, S. Schwedhelm, D. J. As, K. Lischka, D. Litvinov, A. Rosenauer, D. Gerthsen, M. Strassburg, A. Hoffmann, and D. Bimberg, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 418 (2000).
- [Sch04] H. Schomig, S. Halm, A. Forchel, G. Bacher, J. Off, and F. Scholz, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 106802 (2004).

-
- [Seg04a] R. Seguin, *Untersuchung einzelner InGaN/GaN und In(Ga)As/GaAs Quantenpunkte mittels Kathodolumineszenzspektroskopie*, Master's thesis, Technische Universität Berlin (2004).
- [Seg04b] R. Seguin, S. Rodt, A. Strittmatter, T. Bartel, A. Hoffmann, D. Bimberg, E. Hahn, and D. Gerthsen, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 823 (2004).
- [Sel99] H. Selke, M. Amirsawadkouhi, P. L. Ryder, T. Böttcher, S. Einfeldt, D. Hommel, F. Bertram, and J. Christen, *Mat. Sci. Eng. B* **59**, 279 (1999).
- [Sha73] K. Shaklee, R. Nahory, and R. Leheny, *J. Lumin.* **7**, 284 (1973).
- [Sha99a] W. Shan, W. Walukiewicz, , J. W. A. III, E. E. Haller, J. F. Geisz, D. J. Friedman, J. M. Olson, , and S. R. Kurtz, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1221 (1999).
- [Sha99b] W. Shan, W. Walukiewicz, , J. W. A. III, E. E. Haller, J. F. Geisz, D. J. Friedman, J. M. Olson, , and S. R. Kurtz, *J. Appl. Phys.* **86**, 2349 (1999).
- [Shc99] V. A. Shchukin and D. Bimberg, *Rev. Mod. Phys.* **71** (4), 1125 (1999).
- [Sie95] H. Siegle, L. Eckey, A. Hoffmann, C. Thomsen, B. K. Meyer, D. Schikora, M. Hankeln, and K. Lischka, *Solid State Communications* **96**, 943 (1995).
- [Ski06] C. Skierbiszewski, P. Wisniewski, M. Siekacz, P. Perlin, A. Feduniewicz-Zmuda, G. Nowak, I. Grzegory, M. Leszczynski, and S. Porowski, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 221108 (2006).
- [Sme03] T. M. Smeeton, M. J. Kappers, J. S. Barnard, M. E. Vickers, and C. J. Humphreys, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 5419 (2003).
- [Sti99] O. Stier, M. Grundmann, and D. Bimberg, *Phys. Rev. B* **59**, 5688 (1999).
- [Str91] S. Strite, J. Ruan, Z. Li, A. Salvador, H. Chen, D. J. Smith, and W. J. Choyke, *J. Vac. Sci Technol. B* **9**, 1924 (1991).

-
- [Str99] A. Strittmatter, A. Krost, M. Strassburg, V. Türck, D. Bimberg, J. Blaesing, and J. Christen, Appl. Phys. Lett. **74**, 1242 (1999).
- [Str02] M. Strassburg, M. Dworzak, H. Born, R. Heitz, A. Hoffmann, M. Bartels, K. Lischka, D. Schikora, and J. Christen, Appl. Phys. Lett. **80**, 473 (2002).
- [Sus04] T. Suski, G. Franssen, P. Perlin, R. Bohdan, A. Bercha, P. Adamiec, F. Dybala, W. Trzeciakowski, P. Prystawko, M. Leszczynski, I. Grzegory, and S. Porowski, Appl. Phys. Lett. **84**, 1236 (2004).
- [Sus05] T. Suski and R. Czernecki, *Persönliche Mitteilung auf der ICPS6 in Bremen* (2005).
- [Tak97] T. Takeuchi, S. Sota, M. Katsuragawa, M. Komori, H. Takeuchi, and H. A. I. Akasaki, Jpn. J. Appl. Phys. **36**, L382 (1997).
- [Thi01] N. Q. Thinh, I. A. Buyanova, W. M. Chen, H. P. Xin, and C. W. Tu, Appl. Phys. Lett. **79**, 3089 (2001).
- [Tho65] D. G. Thomas, J. J. Hopfield, and W. M. Augustyniak, Phys. Rev. **140**, A202 (1965).
- [Tou02] E. Tournié, M.-A. Pinault, and A. Guzman, Appl. Phys. Lett. **80**, 4148 (2002).
- [Ues97] K. Uesugi and I. Suemune, Jpn. J. Appl. Phys. **36**, L1572 (1997).
- [Ues99] K. Uesugi, N. Morooka, and I. Suemune, Appl. Phys. Lett. **74**, 1254 (1999).
- [Var67] Y. P. Varshni, Physica **34**, 149 (1967).
- [vD07] A. F. van Driel, I. S. Nikolaev, P. Vergeer, P. Lodahl, D. Vanmaekelbergh, and W. L. Vos, Phys. Rev. B **75**, 035329 (2007).
- [Wan37] G. H. Wannier, Phys. Rev. **52**, 191 (1937).
- [Wey92] M. Weyers, M. Sato, and H. Ando, Jpn. J. Appl. Phys. **31**, L853 (1992).

-
- [Wey93] M. Weyers and M. Sato, Appl. Phys. Lett. **62**, 1396 (1993).
- [Win06a] M. Winkelnkemper, *Persönliche Mitteilung* (2006).
- [Win06b] M. Winkelnkemper, A. Schliwa, and D. Bimberg, Phys. Rev. B **74**, 155322 (2006).
- [Xin98] H. P. Xin and C. W. Tu, Appl. Phys. Lett. **72**, 2442 (1998).
- [Yu99] P. Y. Yu and M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors*, Springer, Berlin (1999).
- [Zhu98] A. E. Zhukov, V. M. Ustinov, A. Y. Egorov, A. R. Kovsh, A. F. Tsatsul'nikov, M. V. Maximov, N. N. Ledentsov, S. V. Zaitsev, N. Y. Gordeev, V. I. Kopchatov, Y. M. Shernyakov, P. S. Kop'ev, D. Bimberg, and Z. I. Alferov, J. Electron. Mater. **27**, 106 (1998).

ANHANG

A. MATHEMATICA-SKRIPT ZUR NUMERISCHEN LAPLACE-RETRANSFORMATION

```
NumericalMath`NumericalInversion`  
Verteilung[x_, b_, tau_] := x^2 Weeks[Exp[-(t/tau)^b], t, x]  
Betatest = 0.54933;  
TauStern = 343.1;  
Taufunktion[y_, beta_, taustern_] := Verteilung[1/y, beta, taustern]  
Tabelle = Table[x, Taufunktion[x, Betatest, TauStern], x, 10, 5000, 50];  
Export[Exportfile, Tabelle]
```

Das Paket *NumericalInversions* kann von www.wolframresearch.com kostenfrei heruntergeladen werden.