# Untersuchungen zur Bildung von Quantenpunkten im Stranski-Krastanow und im Submonolagen Wachstumsmodus

vorgelegt von Diplom-Physiker Konstantin Pötschke aus Löbau

von der Fakultät II – Mathematik und Naturwissenschaften der Technischen Universität Berlin zur Erlangung des akademischen Grades Doktor der Naturwissenschaften

– Dr. rer. nat. –

genehmigte Dissertation

Promotionsausschuss:

Vorsitzender: Prof. Dr. T. Möller Berichter: Prof. Dr. Dieter Bimberg Berichter: Prof. Dr. Alois Krost

Tag der wissenschaftlichen Aussprache: 27.02.2009

Berlin 2009

D 83

#### Teile der vorliegenden Arbeit wurden bereits veröffentlicht:

- F. Guffarth, R. Heitz, A. Schliwa, K. Pötschke, D. Bimberg: Observation of monolayer-splitting for InAs/GaAs quantum dots. In: *Physica E* 21 (2003), S. 326
- F. Guffarth, S. Rodt, A. Schliwa, K. Pötschke, D. Bimberg: Many-particle effects in self-organized quantum dots. In: *Physica E* 25 (2004), S. 261
- R. Heitz, F. Guffarth, K. Pötschke, A. Schliwa, D. Bimberg, N. D. Zakharov, P. Werner: Shell-like formation of self-organized InAs/GaAs quantum dots. In: *Physical Review B* 71 (2005), S. 7
- K. Pötschke, L. Muller-Kirsch, R. Heitz, R. L. Sellin, U. W. Pohl, D. Bimberg, N. Zakharov, P. Werner: Ripening of self-organized InAs quantum dots. In: *Physica E* 21 (2003), S. 606
- K. Pötschke, D. Feise, U. W. Pohl, D. Bimberg: Epitaxy of multimodal InAs/GaAs quantum dot ensembles. In: *Journal of Crystal Growth* 298 (2006), S. 567
- U. W. Pohl, K. Pötschke, M. B. Lifshits, V. A. Shchukin, D. E. Jesson, D. Bimberg: Self-organized formation of shell-like InAs/GaAs quantum dot ensembles. In: *Applied Surface Science* 252 (2005), S. 5555
- U. W. Pohl, K. Pötschke, A. Schliwa, F. Guffarth, D. Bimberg, N. D. Zakharov, P. Werner, M. B. Lifshits, V. A. Shchukin, D. E. Jesson: Evolution of a multimodal distribution of self-organized InAs/GaAs quantum dots. In: *Physical Review B* 72 (2005), S. 7
- U. W. Pohl, K. Pötschke, A. Schliwa, M. B. Lifshits, V. A. Shchukin, D. E. Jesson, D. Bimberg: Formation and evolution of multimodal size distributions of InAs/GaAs quantum dots. In: *Physica E* 32 (2005), S. 9
- U. W. Pohl, R. Seguin, S. Rodt, A. Schliwa, K. Pötschke, D. Bimberg: Control of structural and excitonic properties of self-organized InAs/GaAs quantum dots. In: *Physica E* 35 (2006), S. 285

# Inhaltsverzeichnis

1	Einl	Einleitung			
	1.1	1 Stand der Forschung		2	
	1.2	2 Ziele der Arbeit			
	1.3	Aufbau der Arbeit		4	
2	Eigenschaften und Herstellung von Quantenpunkten				
	2.1 Halbleiter-Heterostrukturen reduzierter Dimensionalität			5	
		2.1.1 Modellierung der elektronischen und op	otischen Eigenschaf-		
		ten von Quantenpunkten		7	
	2.2	.2 Stranski-Krastanow Wachstumsmodus			
		2.2.1 Thermodynamische Beschreibung der	Quantenpunktbildung	12	
		2.2.2 Kinetische Prozesse bei der Quantenpu	ınktbildung	13	
		2.2.3 Form der Quantenpunkte		14	
	2.3	3 Deposition von Submonolagen			
		2.3.1 Strukturelle Eigenschaften von SML-S	tapeln	15	
		2.3.2 Elektronische Eigenschaften von SML	-Stapeln	16	
				-	
3	Ехр	perimentelle Verfahren		19	
3	<b>Exp</b> 3.1	perimentelle Verfahren Metallorganische Gasphasenepitaxie		<b>19</b> 19	
3	<b>Exp</b> 3.1 3.2	<b>perimentelle Verfahren</b> Metallorganische Gasphasenepitaxie Photolumineszenzspektroskopie		<b>19</b> 19 21	
3	<b>Exp</b> 3.1 3.2 3.3	perimentelle VerfahrenMetallorganische GasphasenepitaxiePhotolumineszenzspektroskopieHochauflösende Röntgendiffraktometrie	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	<b>19</b> 19 21 22	
3	Exp 3.1 3.2 3.3 3.4	perimentelle VerfahrenMetallorganische GasphasenepitaxiePhotolumineszenzspektroskopieHochauflösende RöntgendiffraktometrieTransmissionselektronenmikroskopie	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	<b>19</b> 19 21 22 23	
3	Exp 3.1 3.2 3.3 3.4 Stra	perimentelle VerfahrenMetallorganische GasphasenepitaxiePhotolumineszenzspektroskopieHochauflösende RöntgendiffraktometrieTransmissionselektronenmikroskopieranski-Krastanow Quantenpunkte	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	<ol> <li>19</li> <li>19</li> <li>21</li> <li>22</li> <li>23</li> <li>25</li> </ol>	
3	Exp 3.1 3.2 3.3 3.4 Stra 4.1	<ul> <li>perimentelle Verfahren</li> <li>Metallorganische Gasphasenepitaxie</li> <li>Photolumineszenzspektroskopie</li> <li>Hochauflösende Röntgendiffraktometrie</li> <li>Transmissionselektronenmikroskopie</li> </ul>	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	<ol> <li>19</li> <li>19</li> <li>21</li> <li>22</li> <li>23</li> <li>25</li> <li>25</li> </ol>	
3	Exp 3.1 3.2 3.3 3.4 Stra 4.1 4.2	<ul> <li>perimentelle Verfahren</li> <li>Metallorganische Gasphasenepitaxie</li> <li>Photolumineszenzspektroskopie</li> <li>Hochauflösende Röntgendiffraktometrie</li> <li>Transmissionselektronenmikroskopie</li> <li>ranski-Krastanow Quantenpunkte</li> <li>Wachstumsparameter und Struktur der Proben</li> <li>Multimodale Größenverteilung von Quantenpu</li> </ul>	nktensembles	<ol> <li>19</li> <li>19</li> <li>21</li> <li>22</li> <li>23</li> <li>25</li> <li>26</li> </ol>	
3	Exp 3.1 3.2 3.3 3.4 Stra 4.1 4.2	<ul> <li>perimentelle Verfahren Metallorganische Gasphasenepitaxie</li> <li>Photolumineszenzspektroskopie</li> <li>Hochauflösende Röntgendiffraktometrie</li> <li>Transmissionselektronenmikroskopie</li> <li>ranski-Krastanow Quantenpunkte Wachstumsparameter und Struktur der Proben Multimodale Größenverteilung von Quantenpu 4.2.1 Einfluss von Wachstumsparametern a</li> </ul>	unktensembles	<ol> <li>19</li> <li>19</li> <li>21</li> <li>22</li> <li>23</li> <li>25</li> <li>26</li> </ol>	
3	Exp 3.1 3.2 3.3 3.4 Stra 4.1 4.2	<ul> <li>perimentelle Verfahren         <ul> <li>Metallorganische Gasphasenepitaxie</li> <li>Photolumineszenzspektroskopie</li> <li>Hochauflösende Röntgendiffraktometrie</li> <li>Transmissionselektronenmikroskopie</li> <li>Transmissionselektronenmikroskopie</li> </ul> </li> <li>transki-Krastanow Quantenpunkte         <ul> <li>Wachstumsparameter und Struktur der Proben</li> <li>Multimodale Größenverteilung von Quantenpu</li> <li>4.2.1 Einfluss von Wachstumsparametern a multimodaler Quantenpunktensembles</li> </ul> </li> </ul>	unktensembles	<ol> <li>19</li> <li>19</li> <li>21</li> <li>22</li> <li>23</li> <li>25</li> <li>26</li> <li>31</li> </ol>	
3	Exp 3.1 3.2 3.3 3.4 Stra 4.1 4.2	<ul> <li>perimentelle Verfahren <ul> <li>Metallorganische Gasphasenepitaxie</li> <li>Photolumineszenzspektroskopie</li> <li>Hochauflösende Röntgendiffraktometrie</li> <li>Transmissionselektronenmikroskopie</li> <li>Transmissionselektronenmikroskopie</li> </ul> </li> <li>ranski-Krastanow Quantenpunkte <ul> <li>Wachstumsparameter und Struktur der Proben</li> <li>Multimodale Größenverteilung von Quantenpu</li> <li>4.2.1 Einfluss von Wachstumsparametern a multimodaler Quantenpunktensembles</li> <li>Reifung von Quantenpunktensembles</li> </ul> </li> </ul>	unktensembles	<ol> <li>19</li> <li>19</li> <li>21</li> <li>22</li> <li>23</li> <li>25</li> <li>26</li> <li>31</li> <li>35</li> </ol>	
3	Exp 3.1 3.2 3.3 3.4 Stra 4.1 4.2 4.3	<ul> <li>perimentelle Verfahren <ul> <li>Metallorganische Gasphasenepitaxie</li> <li>Photolumineszenzspektroskopie</li> <li>Hochauflösende Röntgendiffraktometrie</li> <li>Transmissionselektronenmikroskopie</li> <li>Transmissionselektronenmikroskopie</li> </ul> </li> <li>ranski-Krastanow Quantenpunkte <ul> <li>Wachstumsparameter und Struktur der Proben</li> <li>Multimodale Größenverteilung von Quantenpu</li> <li>4.2.1 Einfluss von Wachstumsparametern a multimodaler Quantenpunktensembles</li> <li>Reifung von Quantenpunktensembles</li> <li>A.3.1 Kinetische Beschreibung der Entwick</li> </ul></li></ul>	unktensembles	<ol> <li>19</li> <li>19</li> <li>21</li> <li>22</li> <li>23</li> <li>25</li> <li>26</li> <li>31</li> <li>35</li> </ol>	
3	Exp 3.1 3.2 3.3 3.4 Stra 4.1 4.2 4.3	<ul> <li>perimentelle Verfahren <ul> <li>Metallorganische Gasphasenepitaxie</li> <li>Photolumineszenzspektroskopie</li> <li>Hochauflösende Röntgendiffraktometrie</li> <li>Transmissionselektronenmikroskopie</li> <li>Transmissionselektronenmikroskopie</li> </ul> </li> <li>ranski-Krastanow Quantenpunkte <ul> <li>Wachstumsparameter und Struktur der Proben</li> <li>Multimodale Größenverteilung von Quantenpu</li> <li>4.2.1 Einfluss von Wachstumsparametern a multimodaler Quantenpunktensembles</li> <li>Reifung von Quantenpunktensembles</li> <li>A.3.1 Kinetische Beschreibung der Entwick Quantenpunktensembles</li> </ul> </li> </ul>	inktensembles	<ol> <li>19</li> <li>19</li> <li>21</li> <li>22</li> <li>23</li> <li>25</li> <li>26</li> <li>31</li> <li>35</li> <li>40</li> </ol>	

5	Herstellung von Quantenpunktstrukturen durch SML-Deposition					
	5.1	Einflu	ss der Wachstumsparameter auf die Emissionseigenschaften	45		
		5.1.1	InAs- und GaAs-Schichtdicken	46		
		5.1.2	Anzahl der SML-Wiederholungen	49		
		5.1.3	Wachstumstemperatur	50		
		5.1.4	Wachstumsunterbrechung	52		
		5.1.5	V/III-Verhältnis	53		
		5.1.6	Zusammenfassung	56		
	5.2	Optisc	he und elektronische Eigenschaften	57		
		5.2.1	Linienformanalyse der Lumineszenz	57		
		5.2.2	Anwendung der Linienformanalyse	62		
		5.2.3	Niederenergetische Flanke der Lumineszenz	69		
		5.2.4	Temperaturabhängiges Verhalten der Lumineszenz	73		
		5.2.5	Modellierung der elektronischen und optischen Eigenschaf-			
			ten von SML-Stapeln	76		
		5.2.6	Zusammenfassung	80		
	5.3	Kantenemittierende Laser		81		
		5.3.1	Thermische Stabilität der SML-Stapel	81		
		5.3.2	Herstellung und Charakterisierung des Kantenemitters	83		
		5.3.3	Ergebnisse und Diskussion	85		
		5.3.4	Zusammenfassung	88		
6	Zus	Zusammenfassung				
	6.1	Ausbli	ick	91		

Literaturverzeichnis

93

# Kapitel 1

# Einleitung

Der Bedarf an Bandbreite zur Übertragung von Informationen ist bereits heute enorm und steigt weltweit weiterhin stark an. Die stetig wachsende Verbreitung und Nutzung des Internets, aber auch immer höhere Datenraten erfordernde Anwendungen, wie zum Beispiel Fernsehen über das Internet (IPTV), Videotelefonie oder komplett "vernetzte" Unternehmen mit weltweiten Standorten, erfordern einen immer weitergehenden Ausbau der Übertragungskapazitäten. Dieser Ausbau erfolgt in praktisch allen Netzwerkhierarchien, also von Interkontinentalverbindungen bis zur Anbindung der einzelnen Nutzer, mit hochbitratigen Glasfaseranschlüssen. Der zukünftige Bedarf an leistungsfähigen Datenübertragungsystemen soll durch den Einsatz neuartiger Materialien und der stetigen Verkleinerung der Bauelementstrukturen gedeckt werden. Dabei stoßen konventionelle Bauelemente an die Grenzen der klassischen Physik, denn durch die Reduzierung ihrer Abmessungen gelangt man in den Bereich, in dem ihre Funktion und Arbeitsweise merklich durch quantenmechanische Effekte beeinflusst wird. Das gezielte Ausnutzen dieser Effekte eröffnet neue Wege zur Optimierung der Bauelemente.

Selbstorganisierte Halbleiter-Quantenpunkte (QPe<sup>1</sup>) stellen für technologische Anwendungen besonders interessante Strukturen dar [Bim98, Bim08]. Ihre dreidimensionalen Abmessungen liegen in dem Bereich, in dem die Quantenmechanik eine entscheidende Rolle spielt. In der näheren Vergangenheit wurden QP-basierte Laser [Kir94, Liu99, Bim01] und optische Verstärker [Bim03, Aki03] demonstriert, welche die besonderen Eigenschaften der QPe zur schnelleren und effizienteren optischen Datenübertragung in Glasfasern nutzen. Darüber hinaus eignen sich QPe für den Einsatz in einer Reihe weiterer Bauelemente, wie Einzelelektrontransistoren [Zhu98], Einzelphotonenemitter [Yua02] und auch zur Speicherung von einzelnen Ladungsträgern [Gel07].

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Die Abkürzung wird in dieser Arbeit zur besseren Lesbarkeit des Textes im Plural mit QPe und QPen fallsensitiv vom Singular unterschieden.

#### 1.1 Stand der Forschung

Die Bildung von QPen im Stranski-Krastanow (SK) Wachstumsmodus wurde, speziell auch für das Materialsystem InAs/GaAs, in der Vergangenheit bereits ausführlich untersucht. Deshalb wird an dieser Stelle nur auf die vorhandene Literatur ([Shc04, Bim08] und enthaltene Referenzen) verwiesen. Die in der vorliegenden Arbeit detailliert untersuchte Aufspaltung der Lumineszenz der QPe in eine multimodale Verteilung, die zweifelsfrei mit der Aufspaltung des QP-Ensembles in Sub-Ensembles unterschiedlicher Höhen begründet werden konnte, wurde bereits von Colocci u. a. in den Spektren von mittels Molekularstrahlepitaxie<sup>2</sup> gewachsenen InAs/GaAs QPen beobachtet [Col97]. Im Übrigen wurde ein derartiges Verhalten sehr ausführlich für Schichtdickenfluktuationen in Quantenfilmen untersucht (z. B. [Wei80, Kop91, Hei98a]).

Das Herstellung von InAs/GaAs QPen erfolgt vorwiegend im SK Wachstumsmodus. Allerdings ist die erreichbare QP-Flächendichte aufgrund des beim 2D-3D-Übergang vorhandenen Zusammenhangs zwischen Volumen und Flächendichte in diesem Wachstumsmodus limitiert und sinkt mit zunehmender Emissionswellenlänge. Einen aussichtsreichen alternativen Ansatz zur Bildung von selbstorganisierten OPen stellt die Deposition von Submonolagen (SML) bzw. SML-Stapeln dar. Das große Potential der SML-Deposition ist die Herstellung von QP-Ensembles hoher Dichte [Led02, Xu03a] und deren unpolarisierter Emission aus der Fassette [Kre01]. Die unpolarisierte Emission eine wichtige Voraussetzung für den Einsatz von QPen in optischen Verstärkern. Die Polarisationseigenschaften von SK-QPen wurden bereits theoretisch [Sti99] und experimentell [Yu99, Kit06] untersucht. Dabei wurde unter anderem gezeigt, dass die Kantenemission von einzelnen SK-QP-Schichten aufgrund des geringen Aspektverhältnisses vorwiegend transversal-elektrische polarisiert ist. Die Polarisationseigenschaften können durch vertikale elektronische Kopplung von gestapelten QPen entscheidend beeinflusst werden. Bei der Herstellung von SML-Stapeln kann das Aspektverhältnis direkt über die Anzahl der SML-Wiederholungen gesteuert werden, was sich wiederum direkt auf die Polarisation der Emission auswirken sollte. So wurde von Krestnikov u. a. die transversalmagnetische Polarisation der Kantenemission als Folge der vertikalen Kopplung in SML-QPen im ZnCdSe-Materialsystem gezeigt [Kre99]. Die erfolgreiche Verwendung von InAs/GaAs SML-Stapeln als aktives Medium in Kantenemittern [Zhu99, Mik00, Kov03], Oberflächenemittern [Hop06] und Scheibenlasern [Ger08] konnte bereits unter Beweis gestellt werden.

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>engl. *Molecular Beam Epitaxy (MBE)* 

#### 1.2 Ziele der Arbeit

Lumineszenzuntersuchungen an unterschiedlichen InAs QP-Proben bei 10 K zeigen eine ungewöhnliche Unterstruktur der QP-Lumineszenz. Die im Allgemeinen gut mit einer Gauß-Verteilung beschreibbare Lumineszenz des InAs QP-Ensembles zeigt mehrere, unterschiedlich deutlich ausgeprägte Maxima. Die Ursache dieser Aufspaltung soll geklärt werden. Des Weiteren soll die Bildung und die Größenentwicklung der QPe während einer Wachstumsunterbrechung untersucht werden.

Das Wachstum von InAs/GaAs SML-QPen erfolgte bisher nur mittels MBE. Außerdem wurden bisher keine systematischen Untersuchungen veröffentlicht, die den Einfluss unterschiedlicher Wachstumsparameter beschreiben und damit den Rahmen der Möglichkeiten dieses Wachstumsmodus aufzeigen. In der vorliegenden Arbeit sollen erstmals SML-QPe auf Basis von III-V-Halbleitern mittels Metallorganischer Gasphasenepitaxie gewachsen und in ein photonisches Bauelement integriert werden. Hierbei soll insbesondere der Einfluss der wesentlichen Wachstumsparameter auf die optischen Eigenschaften dieser Strukturen untersucht werden, um den Rahmen und die Optimierungsmöglichkeiten dieses Wachstumsmodus zu demonstrieren. Dabei soll die Einstellbarkeit der Lumineszenz der SML-QPe bezüglich ihrer Wellenlänge, Halbwertsbreite und Intensität durch die geeignete Variation von Wachstumsparametern untersucht werden. Die untersuchten Parameter Wachstumstemperatur, V/III-Verhältnis und Wachstumsunterbrechung sind entscheidende Parameter des SK Wachstumsmodus und wurden deshalb auch hier untersucht. Da die in dieser Arbeit hergestellten SML-Strukturen aus einem Zyklus von InAs SML und GaAs Zwischenschichten gebildet werden, soll auch analysiert werden, in welchem Rahmen die Emissionseigenschaften durch die InAs- und GaAs-Schichtdicken, sowie die Anzahl der Wiederholungen der SML beeinflusst bzw. eingestellt werden können.

Mittels Tieftemperatur-Photolumineszenz-Untersuchungen und anschließender detaillierter Analyse der Spektren sollen im Rahmen der Arbeit Erkenntnisse zu den optischen und elektronischen Eigenschaften der SML-Stapel gewonnen werden. Die optischen Untersuchungen werden durch Modellierungen im Rahmen der 8-Band  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  Theorie in Verbindung mit der Konfigurations-Wechselwirkungs-Methode ergänzt.

Basierend auf den Ergebnissen der durchgeführten Untersuchungen sollen die SML-QPe in eine Kantenemitter-Struktur integriert und ihre Kenndaten diskutiert werden.

#### 1.3 Aufbau der Arbeit

Die vorliegende Arbeit gliedert sich in 6 Kapitel. Nach dieser Einleitung werden in Kapitel 2 die grundlegenden elektronischen Eigenschaften von Quantenpunkten beschrieben. Des Weiteren wird auf die Mechanismen der Bildung von QPen durch Selbstorganisation im SK Wachstumsmodus und durch SML-Deposition eingegangen. In Kapitel 3 werden kurz die verwendeten experimentellen Verfahren vorgestellt. Die Ergebnisse der Untersuchungen werden in den Kapiteln 4 und 5 präsentiert und diskutiert. Dabei beschäftigt sich Kapitel 4 mit der Herstellung von QPen im SK Wachstumsmodus und Kapitel 5 mit der Bildung und den elektronischen und optischen Eigenschaften von QPen die durch SML-Deposition hergestellt wurden. Am Ende folgt Kapitel 6 mit der Zusammenfassung der Arbeit und einem Ausblick auf weiterführende Untersuchungen.

# Kapitel 2

## Eigenschaften und Herstellung von Quantenpunkten

In diesem Kapitel werden die grundlegenden elektronischen Eigenschaften von Halbleiter-Heterostrukturen mit reduzierter Dimensionalität, insbesondere die von nulldimensionalen (Quantenpunkten) beschrieben. Des Weiteren wird auf die Mechanismen der Bildung von Quantenpunkten durch Selbstorganisation im Stranski-Krastanow Wachstumsmodus und Deposition von Submonolagen eingegangen.

Umfassende Übersichten der strukturellen, elektronischen und optischen Eigenschaften insbesondere von im Stranski-Krastanow Wachstumsmodus hergestellten Quantenpunkten, Anwendungsbeispiele, sowie weiterführende Literaturhinweise finden sich zum Beispiel in den Büchern von D. Bimberg u. a. [Bim98, Bim08], M. Grundmann [Gru02] und V. A. Shchukin [Shc04]. Krestnikov u. a. geben, hauptsächlich für das II-IV-Materialsystem, eine Übersicht zu Wachstum und Eigenschaften zu Quantenpunkten die sich durch Deposition von Submonolagen gebildet haben [Kre01].

#### 2.1 Halbleiter-Heterostrukturen reduzierter Dimensionalität

In Volumenhalbleitern können sich Ladungsträger in allen drei Raumrichtungen frei bewegen. Daraus folgt eine kontinuierliche Verteilung der Energiezustände und die Zustandsdichte in Abhängigkeit von der Energie D(E) hat einen wurzelförmigen Verlauf (Abb. 2.1). Eine Halbleiter-Heterostruktur entsteht durch die Kombination von Halbleitermaterialien mit unterschiedlichen Bandlücken und den daraus resultierenden Banddiskontinuitäten. Existiert zwischen den Potentialsprüngen einer Doppel-Heterostruktur ein gebundener Zustand und werden die Abmessungen des Potentialtopfes in eine Raumrichtung kleiner als die de Broglie Wellenlänge des Ladungsträgers treten Quantisierungseffekte auf, welche die elektronischen Eigenschaften der Schicht grundlegend ändern. Der Hamiltonoperator H vertauscht für die eingeschränkte Raumrichtung diskrete Energiewerte als Eigenwerte der Schrödingergleichung. Der Ladungsträger verliert durch den Einschluss seine Beweglichkeit senkrecht zu den Potentialbarrieren – er wird lokalisiert. Diese Einschränkung wird auch als *Reduktion der Dimensionalität* des Halbleiters bezeichnet.



**Abb. 2.1:** Elektronische Zustandsdichte D(E) und Besetzungswahrscheinlichkeit n(E) des Volumenhalbleiters und von Halbleiter-Heterostrukturen mit von oben nach unten reduzierter Dimensionalität: Volumenhalbleiter (3D), Quantenfilm (2D), Quantendraht (1D) und Quantenpunkt (0D).

Abbildung 2.1 zeigt die elektronische Zustandsdichte D(E) und die Ladungsträgerverteilung n(E) für T > 0 K, welche gegeben ist durch:  $n(E) = D(E) \cdot f(E)$ (wobei f(E) die Fermi-Funktion ist), des Volumenhalbleiters und von Halbleiter-Heterostrukturen reduzierter Dimensionalität.

Wird die Bewegung der Ladungsträger in der Halbleiter-Heterostruktur nur in eine Richtung eingeschränkt, spricht man von einem Quantenfilm (QF). Aufgrund der durch die Quantisierung in dieser Raumrichtung entstehenden diskreten Energieniveaus nimmt die Zustandsdichte eine Stufenfunktion an (Abb. 2.1). Eine weitere Einschränkung in einer zweiten Raumrichtung hat zur Folge, dass sich die Ladungsträger nur noch in einer Raumrichtung frei bewegen können und man spricht von einem Quantendraht. Sind die Ladungsträger in ihrer Bewegung in allen drei Raumrichtungen eingeschränkt, erhält man ein elektronisch nulldimensionales Objekt, den Quantenpunkt (QP). In QPen sind die Ladungsträger in allen drei Raumrichtungen lokalisiert und es gilt:  $[H, \mathbf{k}] \neq 0$ . Das bedeutet, dass für den Impuls keine Quantenzahlen mehr existieren. Die elektronischen Eigenschaften von QPen können ausschließlich quantenmechanisch beschrieben werden und ihre Zustandsdichte hat die Form einer  $\delta$ -Funktion, d. h. die Ladungsträger befinden sich auf diskreten Energieniveaus ( $E_i, E_{i+1}, \ldots$ ), ähnlich wie bei einem Atom (Abb. 2.1).

### 2.1.1 Modellierung der elektronischen und optischen Eigenschaften von Quantenpunkten im Rahmen von 8-Band k·p Theorie

Die 8-Band  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  Methode eignet sich für die Modellierung der elektronischen Eigenschaften von Heterostrukturen deren Bestandteile eine direkte Bandlücke aufweisen. Das trifft sowohl auf im SK-Wachstumsmodus hergestellte InAs QPe als auch durch SML-Deposition hergestellte Strukturen zu.

Auf Grundlage der 8-Band  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  Theorie in Verbindung mit der Konfigurations-Wechselwirkungs-Methode (engl.: *CI-Method*) können exzitonische Zustände von QPen berechnet werden. Die im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse berücksichtigen dabei die inhomogene Gitterverzerrung, das piezoelektrische Potential (erster und zweiter Ordnung), die Bandmischung, die Spin-Bahn-Kopplung und die Coulomb-Wechselwirkung in den Berechnungen. Eine schematische Darstellung der durchgeführten Schritte ist in Abbildung 2.2 gezeigt. Es wird folgendermaßen vorgegangen:

- 1. Der Prozess startet mit Annahmen zu Größe, Form und chemischer Zusammensetzung der Strukturen.
- 2. Die Gitterverzerrung wird berechnet.
- 3. Das piezoelektrische Feld wird berechnet.
- 4. Die Ergebnisse aus 2. und 3. werden in den verzerrungsabhängigen 8-Band k·p Hamiltonoperator integriert. Weitere Parameter die in den Hamiltonoperator Eingang finden basieren auf experimentellen Werten für die Γ-Punkt Parameter der beteiligten Volumenhalbleiter. Durch Lösen der Schrödingergleichung erhält man die gebundenen Einteilchen-Wellenfunktionen und ihre Energien.
- 5. Die Einteilchenzustände bilden die Grundlage zur Erstellung einer Basis aus Slaterdeterminanten für die Konfigurations-Wechselwirkungs-Methode. Damit werden die exzitonischen Zustände unter Berücksichtigung der direkten Coulomb-Wechselwirkung und von Austausch- und Korrelationseffekten berechnet.
- 6. Abschließend werden Absorptionsspektren mit Fermis Goldener Regel, angewendet auf die Mehrteilchen-Zustände, ermittelt.

Detaillierte Beschreibungen der Konfigurations-Wechselwirkungs-Methode, der 8-Band  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  Theorie und ihrer Anwendung zur Modellierung der elektronischen und optischen Eigenschaften von QPen finden sich in den Dissertationen von O. Stier [Sti00] und A. Schliwa [Sch07a].



Abb. 2.2: Schematische Darstellung der Schritte zur Modellierung der elektronischen und optischen Eigenschaften von SML-Strukturen mit 8-Band k⋅p Theorie und der Konfigurations-Wechselwirkungs-Methode.

#### 2.2 Stranski-Krastanow Wachstumsmodus

In der Heteroepitaxie werden im Allgemeinen drei Wachstumsmodi unterschieden [Bau58]: der Frank-van der Merwe [Fra49], der Volmer-Weber [Vol26] und der Stranski-Krastanow [Str37] Wachstumsmodus. In Abbildung 2.3 sind die drei Wachstumsmodi schematisch dargestellt. Sie treten aufgrund verschiedener Oberflächenenergien  $E_1$  und  $E_2$ , der Grenzflächenenergie  $E_{12}$  und der Verspannungsenergie auf. Im Fall des Frank-van der Merwe Wachstums ist es energetisch günstig, das Substrat zu benetzen  $(E_2 - E_1 + E_{12} < 0)$ , während es im Volmer-Weber Wachstumsmodus günstig ist neue Oberflächen auszubilden  $(E_2 - E_1 + E_{12} > 0)$ . Im Fall des Stranski-Krastanow Wachstumsmodus kommt zu der energetisch günstigen Benetzung noch eine Verspannung der Schicht hinzu. Die Verspannungsenergie steigt näherungsweise linear mit dem Volumen des abgeschiedenen Materials an. Oberhalb einer kritischen Schichtdicke wird es energetisch günstiger, neue Oberflächen auszubilden und dadurch die Verspannungsenergie zu minimieren [Eag90, Sny91]. Die Bildung von dreidimensionalen (3D) Inseln in verspannter Heteroepitaxie wird als Stranski-Krastanow Wachstumsmodus bezeichnet. Die Verspannung kann gegebenenfalls auch unter der Bildung von Versetzungen relaxieren.

Für den Einschluss eines Ladungsträgers in drei Raumrichtungen benötigt man den Einschluss eines Materials mit kleinerer Bandlücke in ein Material mit größerer Bandlücke. Die Bildung pseudomorph verspannter 3D Inseln wurde zuerst von Goldstein u. a. in InAs/GaAs Übergitterstrukturen beobachtet [Gol85]. Die gezielte Herstellung selbstorganisierter QPe wurde erst fünf Jahre später untersucht [Guh90]. Obwohl die Bildung von InAs/GaAs QPen im Stranski-Krastanow Wachstumsmodus inzwischen bereits intensiv untersucht wurde, konnten bisher nicht alle Fragen geklärt werden.



Abb. 2.3: Schematische Darstellung des Frank-van der Merwe, des Volmer-Weber und des Stranski-Krastanow Wachstumsmodus.  $E_1$  und  $E_2$  bezeichnen die Oberflächenenergien,  $E_{12}$  die Grenzflächenenergie.

Die Nukleation der QPe lässt sich mit einem kinetischen Modell beschreiben. Die Keimbildung von 3D Inseln lässt sich über Anfangszustände annehmen, die eine kritische Größe überschreiten müssen, damit die Auflösung eines solchen Zustandes unwahrscheinlich wird. Nach Venables u. a. kann die Sättigungsdichte der Nukleation mit einem kinetischen Ratengleichungsmodell beschrieben werden [Ven84]. Für ausreichend hohe Temperaturen ergibt sich eine exponentielle Abhängigkeit der Dichte von der Temperatur, wie auch in Experimenten für InAs<sup>1</sup> QPe beobachtet wurde [Hei98a]. Bei höheren Temperaturen wird die Auflösung von Anfangszuständen wahrscheinlicher und führt zu der beobachteten Abnahme der QP-Dichte.

In der zweiten Phase wird Material aus der 2D Benetzungsschicht in die QPe transportiert. Dabei sinkt die Dicke der Benetzungsschicht wieder, während das Volumen der QPe wächst. Die Benetzungsschicht erreicht eine Gleichgewichtsdicke, die vom Materialsystem abhängig ist. Dieses Verhalten konnte auch für das Materialsystem InAs/GaAs gezeigt werden [Ram97]. Die Gleichgewichtsdicke der Benetzungsschicht beträgt dabei genau eine Monolage.

Die letzte Phase, die Reifung der QPe, ist wesentlich für die Eigenschaften der QPe. Von den Eigenschaften des Reifungsprozesses und der Zeit, die den QPen zur Reifung zur Verfügung steht, werden das Volumen, die Volumenverteilung, die Form und die Dichte der QPe endgültig festgelegt. Das Verständnis des Reifungsprozesses ist daher wesentlich für die gezielte Herstellung von QPen. Sowohl für Grundlagenuntersuchungen, als auch für Anwendungen sind ein definiertes Volumen und häufig eine geringe Volumenverteilung der QPe wünschenswert. Der Reifungsprozess beim QP-Wachstum unterscheidet sich, aufgrund der Verspannung, von den Reifungsprozessen in der Homoepitaxie bzw. allgemein der Kristallzüchtung, der Koaleszenz und der Ostwaldreifung. Koaleszenz, das Zusammenwachsen von Inseln, wurde für QPe noch nicht berichtet. Reifungsprozesse die mit der Ostwaldreifung vergleichbar sind und zum Teil auch als Ostwaldreifung bezeichnet wurden, wurden von unterschiedlichen Autoren beschrieben [Ros98, Kam99, Raa00]. Es existieren verschiedene Modelle zum Beschreiben der Entwicklung des Volumens und der Form der QPe, die auch jeweils experimentell belegt wurden.

Die Gewinnung von strukturellen Informationen, die eine Ermittlung des Volumens der QPe ermöglichen, kann allerdings nur aus nicht überwachsenen QPen mittels Rasterkraft- oder Rastertunnelmikroskopie geschehen. Für optische und elektronische Untersuchungen und für Anwendungen benötigt man hingegen überwachsene QPe. Da sich die Eigenschaften der QPe, abhängig von der Art des Überwachsens, verändern, muss davon ausgegangen werden, dass sich überwach-

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>InAs/GaAs QPe werden im Weiteren kurz als InAs QPe bezeichnet.

sene im Allgemeinen von nicht überwachsenen QPen unterscheiden. Weiterhin ist zu beachten, dass eine strukturelle Veränderung der QPe während des Abkühlens nicht auszuschließen ist und bei Untersuchungen in Umgebungsluft die Oberfläche, abhängig vom Material mehr oder weniger stark, oxidiert. Eine Möglichkeit der Untersuchung des Reifungsprozesses überwachsener QPe ist es, verschieden lange Wachstumsunterbrechungen nach dem Abscheiden der QP-Schicht anzuwenden.

**Ostwaldreifung** Ostwald-Reifung ist die Bevorzugung größerer Partikelvolumina aufgrund des günstigeren Verhältnisses von Volumen zu Oberfläche. Der Dampfdruck größerer Partikel ist kleiner als der Dampfdruck kleinerer Partikel, so dass Atome sich bevorzugt an größeren Partikeln anlagern, bzw. sich bevorzugt von kleineren Partikeln ablösen. Partikel, deren Volumina unterhalb einer kritischen Größe liegen, lösen sich auf. Es existieren verschiedene theoretische Modelle zur Beschreibung der Ostwaldreifung, abhängig davon ob die Partikel sich in einer Lösung (3D) oder auf einer Oberfläche (2D) befinden [Cha67]. Diese Theorien beziehen sich allerdings auf unverspannte Systeme. Ganz allgemein führt Ostwaldreifung zum Sinken der Partikeldichte, zur Zunahme des durchschnittlichen Partikelvolumens und einer Verbreiterung der Volumenverteilung. Eine umfangreiche Diskussion der Ostwaldreifung und weiterführende Referenzen findet man bei Kamins u. a. [Kam99].

Bei der Reifung von verspannten Inseln kann auch die energetisch günstigere Verspannungsrelaxation in größeren Inseln eine treibende Kraft zu größeren Inseln sein. Bereits dieser Prozess lässt ein Anfitten von Daten aus verspannter Epitaxie an Theorien des unverspannten Kristallwachstums unsinnig erscheinen. Modelle zur zeitlichen Entwicklung von 3D Inseln auf Oberflächen, die explizit den Einfluss der Verspannung auf den Reifungsprozess berücksichtigen, werden in den beiden folgenden Abschnitten diskutiert.

Aufgrund der, mit dem Volumen linear ansteigenden, Verspannungsenergie können pseudomorph verspannte Inseln nicht beliebig groß werden. Nach Überschreiten einer kritischen Größe wird die Verspannungsenergie so groß, dass die Ausbildung von Gitterfehlern wahrscheinlich wird. Die Inseln relaxieren unter der Ausbildung von Versetzungen. Derartige relaxierte Inseln wachsen aber schneller als verspannte [Dru93], d. h. diese Inseln nehmen überproportional viel Material auf und machen so eine weitere Diskussion des Reifungsprozesses verspannter Inseln unmöglich.

Diese großen, versetzungsreichen Inseln, im Folgenden Cluster genannt, verschlechtern die Qualität der QP-Schicht und auch der umgebenden Schichten deutlich. Die sich ausbildenden Defekte stellen sehr effektive nichtstrahlende Rekombinationsmöglichkeiten für Exzitonen dar.

#### 2.2.1 Thermodynamische Beschreibung der Quantenpunktbildung

Shchukin u. a. zeigen, dass bei bestimmten Wachstums- bzw. Materialparametern Inseln entstehen, die stabil gegen (Ostwald)-Reifen sind [Shc95]. Für ein QP-Ensemble im thermodynamischen Gleichgewicht genügt eine thermodynamische Betrachtung, um den Zustand des Ensembles zu kennen (etwa pseudomorphes oder nicht pseudomorphes Wachstum [Dar97]). Aufgrund von energetisch optimalen Größen sind sehr homogene QP-Verteilungen zu erwarten. Ensembles von QPen mit sehr kleinen Größenverteilungen wurden beispielsweise von Ruvimov u. a. [Ruv95] und Mukhametzhanov u. a. [Muk99] an InAs QPen beobachtet.

Der einzelne QP bzw. 3D Insel kann ihre Energie durch Ausbildung bestimmter Seitenflächen und Kanten minimieren. Nach Shchukin u. a. setzen sich die wesentlichen Energiebeiträge aus drei Termen zusammen [Shc95]:

$$E_{Insel} = E_{Oberfläche} + E_{Kanten} + E_{Verspannung}$$
(2.1)

Dabei ist  $E_{Oberfläche}$  die Summe der Oberflächenenergien der Inseln sowie der unbedeckten GaAs-Oberfläche und daher nicht von der Inselgröße abhängt.  $E_{Kanten}$ beschreibt die Energie der Summe aller Inselgrenzen, und ist daher proportional zu 1/L, wobei L die Basislänge der Insel ist. Die Energie  $E_{Verspannung}$  ist das Resultat der Verspannung, hervorgerufen durch den Gradienten der Verspannungstensoren an den Inselgrenzen. Dieser Effekt ist ähnlich dem der Oberflächenspannung von Flüssigkeiten und wird in [Shc99] beschrieben.

Die Gestalt der QPe im Gleichgewicht kann durch eine energetische Minimierung dieser Terme unter Berücksichtigung aller möglichen Formen gefunden werden. Für InAs QPe ergaben sich Pyramiden mit {101} Seitenflächen und einer Orientierung entlang der [100] Richtungen als günstigste Form. Diese Ergebnisse wurden durch quadratische Verspannungskontraste vergrabener InAs QPe in Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) Bildern, die auf eine solche Form zurückgeführt werden können, sowie durch Querschnitts-TEM-Aufnahmen an freistehenden QPen unterstützt. Die tatsächliche Form, insbesondere die überwachsener QPe, ist aber aufgrund der ungenügenden Zugänglichkeit mit mikroskopischen Methoden noch immer Gegenstand der Diskussion.

Damit sich ein thermodynamischer Gleichgewichtszustand einstellen kann, dürfen kinetische Barrieren das Erreichen des totalen Gleichgewichtszustandes nicht behindern. Insbesondere müssen QPe, die im Verhältnis zur günstigsten Konfiguration zu groß sind, Material wieder an die Wachstumsoberfläche zurückgeben. QPe, die keinen günstigen Abstand zum nächsten Nachbarn haben, müssen sich wieder auflösen und neu bilden können. Der Prozess der QP Bildung muss also *reversibel* sein, damit die Gestalt des QP-Ensembles nur durch die Temperatur und die Minimierung der freien Energie gegeben ist. Eine Verkleinerung von QPen zugunsten einer Homogenisierung der Größenverteilung konnte beispielsweise bei mittels MBE hergestellten InAs QPen beobachtet werden [Mad98]. Um die Änderung des Gleichgewichtszustandes mit der Temperatur zu bestimmen, wurden von Shchukin u. a. nach Abscheiden einer InAs QP Schicht verschiedene Wachstumsunterbrechungen angewendet: Die Temperatur wurde zunächst erhöht und die Schicht zugedeckt, und im zweiten Fall vor dem Zudecken der Schicht einmal erhöht und wieder erniedrigt [Shc00]. Dabei wurde eine Änderung der QP Dichte beobachtet. Während der langen Wachstumsunterbrechungen kam es zur Bildung von Versetzungen. Das stellt die Vergleichbarkeit der Proben in Frage (siehe Abschnitt 2.2). Es konnte daher nicht eindeutig gezeigt werden, dass die strukturellen Eigenschaften der QP-Ensembles nur von thermodynamischen Größen bestimmt werden.

#### 2.2.2 Kinetische Prozesse bei der Quantenpunktbildung

Auf atomarer Ebene treten während der Epitaxie eine Vielzahl verschiedener Prozesse auf. Diese Prozesse treten, unter anderem abhängig von der Temperatur, verschieden häufig auf. Einzelne unterscheidbare Prozesse sind beispielsweise Adsorption der Moleküle der chemischen Ausgangsstoffe und Atome, Chemisorption der Moleküle der Ausgangsstoffe, Desorption der Atome von der Kristalloberfläche, Adsorption und Desorption an zweidimensionalen Wachstumsinseln und an QPen, Chemisorption der Ausgangsstoffe auf den Oberflächen der QPe, und Austausch der Komponenten zwischen den Schichten senkrecht zur Wachstumsoberfläche.

Die Modellierung eines solchen komplexen Systems erfordert die genaue Kenntnis aller Prozesse auf einer atomaren Ebene, die Kenntnis der zugehörigen Aktivierungsenergien für Platzwechsel und viel Rechenzeit für Monte-Carlo (MC) Simulationen. Unter *kinetisch limitiertem Wachstum* wird im Weiteren verstanden, dass einer dieser Prozesse so langsam ist, dass er die Gesamtgeschwindigkeit maßgeblich bestimmt und der Gleichgewichtszustand nicht erreicht wird. Das kann beispielsweise der Transfer von Material aus einem QP in die Benetzungsschicht sein, bei dem die Atome den energetisch günstigen QP verlassen und eine Barriere überwinden müssen.

Das Fehlen von (Ostwald)-Reifung und das Entstehen homogener QP-Ensemble in verspannter Heteroepitaxie lassen sich auch durch ein einfaches kinetisches Modell erklären [Dru93, Kob96, Jes98]. Das Verspannungsfeld um den QP verringert die Oberflächendiffusion lokal, so dass die Rate, mit der Atome einen QP erreichen, für große QPe geringer ist als für kleine. Dadurch ergeben sich eine Homogenisierung der Größenverteilung und ein selbstlimitierendes Wachstum der QPe. Weitere Hinweise für die Bedeutung von kinetischen Prozessen für das Wachstum von InAs QPen ergeben sich aus der Temperaturabhängigkeit der QP-Dichte [Mad94], und der Abhängigkeit von der Wachstumsrate [Mad98, Nak00]. Mit sinkender Temperatur und steigender Wachstumsrate werden höhere QP-Dichten beobachtet. Dieses Temperaturverhalten steht im Gegensatz zu thermodynamischen Voraussagen für den Gleichgewichtszustand, die eine umgekehrte Abhängigkeit erwarten lassen [Shc98a, Shc00]. Ein weiterer Hinweis für das Vorhandensein kinetischer Barrieren bei der Bildung von QPen ist die Unterdrückung der Inselbildung bei niedrigen Temperaturen [Eke91].

#### 2.2.3 Form der Quantenpunkte

Die Form der QPe hat einen deutlichen Einfluss auf seine elektronischen Eigenschaften [Sti00, Sch07b]. Die tatsächliche Form überwachsener QPe ist derzeit noch nicht ausreichend geklärt. Es existieren verschieden Veröffentlichungen, die sich sowohl theoretisch als auch experimentell mit der Form von QPen auseinandersetzen.

Shchukin berechnete Pyramiden mit {101} Seitenflächen als günstigste Form für InAs QPe [Shc95]. Daruka u. a. zeigen in ihrer Arbeit umfangreiche Phasendiagramme für die Form von QPen in Abhängigkeit vom Volumen der QPe und den Oberflächenenergien [Dar99]. Moll u. a. errechneten abgeschnittene Pyramiden als günstigste Form für InAs/GaAs QPe und postulierten eine Volumenabhängigkeit der Form der QPe, wobei QPe mit größeren Volumina steilere Seitenflächen und ein größeres Verhältnis von Basislänge zu Höhe (Aspektverhältnis) haben [Mol98].

Mukhametzhanov u. a. beschreiben die Entwicklung von InAs QPen in zwei Stufen. Zuerst wachsen die QPe in Basislänge und Höhe. Nach dem Erreichen einer bestimmten Basislänge bleibt diese stabil und die QPe wachsen nur noch in der Höhe, vergrößern also ihr Aspektverhältnis [Muk99]. Saito u. a. untersuchten ebenfalls die Abhängigkeit der Höhe von der Basislänge von InAs QPen. Sie beobachten eine Erhöhung des Aspektverhältnis mit steigender Basislänge [Sai99].

Grundsätzlich ist die Ermittlung der Form von überwachsenen QPen schwierig. Zur Bestimmung der Form überwachsener QPe eigenen sich STM-Untersuchungen an Querschnittsflächen (XSTM). Im Allgemeinen wird von einer pyramidalen Form der QPe ausgegangen. Eisele u. a. haben in XSTM Untersuchungen an MOCVD gewachsenen InGaAs/GaAs QPen trapezförmige Querschnitte gezeigt, die auf die Form von abgeschnitten Pyramiden hindeuten [Eis02]. In Abschnitt 4.2 (Abb. 4.4) dieser Arbeit vorgestellten XTEM-Aufnahmen zeigen ebenfalls trapezförmige Querschnitte von QPen.

#### 2.3 Deposition von Submonolagen

Die Deposition von SML ist ein zum SK-Wachstumsmodus alternativer Ansatz zur Herstellung von selbstorganisierten QPen. Im folgenden Abschnitt wird die Bildung derartiger Strukturen erläutert. Außerdem werden die wesentlichen strukturellen und elektronischen Eigenschaften von SML-Stapeln diskutiert.

#### 2.3.1 Strukturelle Eigenschaften von SML-Stapeln

Aus der Deposition einer SML, also der Deposition von weniger als einer ML, InAs auf GaAs resultiert die Bildung von quasi zweidimensionalen<sup>2</sup> (2D) Inseln. Wenn zwei Phasen (zwei unterschiedliche Materialien in einem heteroepitaktischen System) mit unterschiedlichen Verspannungstensoren auf einer Kristalloberfläche koexistieren, kommt es zur Bildung einer Anordnung von 2D Inseln (Abbildung 2.4 links). Dieses Verhalten ist für InAs/GaAs in der Literatur ausführlich belegt (z. B. [BH94, Bel96, Bel97]). Die Inselgröße ist dabei durch das Energieminimum der Gesamtenergie der Inselgruppe gegeben. Die Gesamtenergie kann, wie bereits bei den SK-Inseln (Gleichung 2.1 und Erläuterungen), durch:  $E_{Insel} = E_{Oberfläche} + E_{Kanten} + E_{Verspannung}$  beschrieben werden. Während  $E_{Oberfläche}$  nur von der Menge des abgeschiedenen Materials abhängt, hängen  $E_{Kanten}$  und  $E_{Verspannung}$  von der Größe der Inseln ab [Shc99, Kre01].



Abb. 2.4: Links: Aus der SML-Deposition von InAs auf GaAs resultiert die Bildung einer Anordnung von 2D Inseln. Rechts: Bildung eines SML-Stapels durch vertikale Korrelation der 2D Inseln.

Nach dem Überwachsen der 2D Inseln mit GaAs, wird das Wachstum der nächsten 2D Inseln durch die Verspannung der darunterliegenden Inseln beeinflusst. Daraus ergibt sich ein zusätzlicher Term  $E_{Verspannung}^{WW}$  in Gleichung 2.1. Dieser Term beschreibt die elastische Energie der Wechselwirkung zwischen den Inseln an der Oberfläche und den bedeckten Inseln. Ist diese Wechselwirkung vernachlässigbar, sind die Inseln auf der Oberfläche relativ zu den bedeckten Inseln willkürlich angeordnet und die Inselgröße wird wiederum durch Gleichung 2.1 bestimmt. Ist

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>Genau genommen sind natürlich auch Inseln mit einer Höhe von einer ML dreidimensional. Sie werden aber im Folgenden, zur besseren Unterscheidbarkeit von Inseln mit einer Höhe von mehr als einer ML, als 2D Inseln bezeichnet.

 $E_{Verspannung}^{WW}$  nicht vernachlässigbar, gibt es im Allgemeinen zwei Möglichkeiten wie sich die Inseln vertikal anordnen: vertikal korreliert bzw. vertikal antikorreliert. In der vertikal korrelierten Anordnung sind die Inseln auf der Oberfläche genau über den bedeckten Inseln angeordnet und bilden einen SML-Stapel (Abb. 2.4 rechts). Im Gegensatz dazu befinden sich in der vertikal antikorrelierten Anordnung die Inseln auf der Oberfläche genau zwischen den bedeckten Inseln. Shchukin u. a. zeigen, dass die Korrelation eine Funktion der Dicke der GaAs Schicht zwischen den Inseln ist [Shc98b, Shc99].

Strukturelle Untersuchungen in Form von TEM-Aufnahmen von InAs/GaAs SML-Stapeln werden in [Led02, Led07] gezeigt. In [Led02] wird eine Insel-Dichte von >  $10^{11}$  cm<sup>-2</sup> abgeschätzt. Außerdem werden in [Led07] XTEM-Aufnahmen von vertikal korrelierten SML-Stapel gezeigt. In [Xu03a] wird ebenfalls aus einer Aufsichts-TEM-Aufnahme eine Insel-Dichte von  $5, 2 \cdot 10^{11}$  cm<sup>-2</sup> ermittelt. Die Autoren ziehen aus diesen TEM-Aufnahmen auch Rückschlüsse auf die elektronischen Eigenschaften der dort untersuchten SML-Stapel. Neben den In-reichen Inseln gibt es auch Bereiche die durch ein In-Ga-Gemisch mit geringerem In-Anteil charakterisiert sind. Aus diesen strukturellen Daten schließen die Autoren dass es sich bei den untersuchten Strukturen um eine Quantenpunkt-Quantenfilm-Struktur handeln muss.

#### 2.3.2 Elektronische Eigenschaften von SML-Stapeln

Im Allgemeinen ist die Lokalisierungsenergie<sup>3</sup> für Elektronen wegen ihrer kleinen effektiven Masse in einer einzelnen Lage von 2D Inseln nicht ausreichend, das heißt es existieren keine gebundenen Zustände. Das Elektron wird nur durch das attraktive Coulomb-Potential an das Loch gebunden. Daher wird auch keine starke Lokalisierung für Exzitonen erwartet [Kre01]. Die Bildung von SML-QPen erfolgt durch das oben erläuterte Stapeln von 2D Inseln bzw. dem Bilden eines SML-Stapels (Abb. 2.4 rechts). Neben der vertikalen strukturellen Korrelation soll auch eine vertikale elektronische Kopplung der 2D Inseln der einzelnen Lagen und damit die Ausbildung SML-QPen mit einer entsprechend höheren Lokalisierungsenergie für die Exzitonen erfolgen [Kre01, Led07].

In [Mik00] und [Led07] veröffentlichte Untersuchungen zeigen, dass sich die Emission von SML-QPen durch eine schmale Linienbreite auszeichnet. Aus den, für die selbstorganisierte Bildung von QPen außerordentlich geringen, beobachteten Halbwertsbreiten der Lumineszenz von 4–5 meV (bei 7 K) wird geschlossen, dass die SML-QPe eine hohe Gleichförmigkeit in Größe und Form besitzen. Die Existenz einer dreidimensionalen Lokalisierung der Ladungsträger wurde durch

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>Häufig wird auch im deutschen Sprachraum der englische Begriff *confinement* Energie verwendet.

µPL-Messungen (ebenfalls bei 7 K) nachgewiesen [Led07]. Das Beobachten von scharfen Emissionslinien in hochaufgelösten Lumineszenzspektren ist charakteristisch für die Emission einzelner QPe [Gru95].

In [Xu03b, Xu06] werden, trotz nominell sehr ähnlicher Wachstumsbedingungen (jeweils  $10 \times (0,5 \text{ ML InAs und } 2,5 \text{ ML GaAs})$ ), abweichende Beobachtungen beschrieben. Die Existenz einer dreidimensionalen Lokalisierung der Exzitonen in QPen wird ebenfalls durch diskrete Linien im  $\mu$ -PL-Spektrum motiviert. Die durchgeführten anregungsdichteabhängigen  $\mu$ PL-Messungen können allerdings nur dadurch erklärt werden, dass die QPe in einen QF eingebettet sind. Diese elektronische Eigenschaft steht mit den genannten strukturellen Untersuchungen in [Xu03a] in Übereinstimmung. Es existieren also In-reiche Bereiche in denen Ladungsträger lokalisiert sind in einem QF mit geringerer In-Konzentration. Die Halbwertsbreite der Emission des QP-Ensembles bei 10 K wird mit 78 meV angegeben, was sie deutlich von den 4–5 meV wie sie in [Led07] und [Mik00] berichtet werden unterscheidet.

Eine mögliche laterale elektronische Kopplung der SML-Stapel wird, trotz der durch die hohen Dichten bedingten geringen Abstände zwischen einzelnen SML-Stapeln, in der vorhanden Literatur nicht in Erwägung gezogen. In diesem Fall erwartet man, dass die Lumineszenzeigenschaften der SML-Stapel denen eines InGaAs QFes mit Kompositionsfluktuationen entsprechen.

# Kapitel 3

## Experimentelle Verfahren

In diesem Kapitel werden die experimentellen Techniken die dieser Arbeit zu Grunde liegen, beschrieben. Da es sich ausschließlich um bereits etablierte Verfahren handelt, wird auf eine detaillierte Beschreibung verzichtet und auf entsprechende Referenzen verwiesen.

#### 3.1 Metallorganische Gasphasenepitaxie

Als Epitaxie wird ein geordnetes Kristallwachstum auf einer Trägerschicht (im Allgemeinen Substrat genannt) bezeichnet. Die von einem einkristallinen Substrat vorgegebene kristallographische Ordnung wird auf die wachsende Schicht übertragen. Abhängig davon, ob Substrat und Schicht(en) aus dem gleichen oder aus unterschiedlichen Materialien bestehen, werden die Bezeichnungen Homobeziehungsweise Heteroepitaxie verwendet.

Alle in dieser Arbeit beschriebenen Proben wurden mithilfe von Metallorganischer Gasphasenepitaxie (MOCVD<sup>1</sup>) hergestellt. Dabei werden Hydride oder metallorganische Ausgangsstoffe verdünnt in einem Trägergas (typischerweise H<sub>2</sub> oder N<sub>2</sub>) über das Substrat geleitet, welches sich auf einem erhitzten Graphitsuszeptor in der Wachstumskammer (Reaktor) befindet. Durch katalytische und thermische Zerlegung der Ausgangsstoffe die aus der übersättigten Gasphase, aufgrund des Konzentrationsgradienten, zur Substratoberfläche diffundieren, stehen dem Kristall Atome der gewünschten Komponenten zum Wachstum zur Verfügung. Ein stark vereinfachtes Schema einer MOCVD Anlage und ein Schnitt durch den Reaktor sind in Abbildung 3.1 dargestellt.

Gasförmige Ausgangsstoffe werden dem Trägergas direkt beigefügt oder in einer Verdünnerstufe verdünnt. Flüssige oder feste metallorganische Ausgangsstoffe werden in Waschflaschen (engl. *bubbler* oder auch als Quellen engl. *source* bezeichnet) von einem definierten Trägergasfluss  $Q_s$  durchströmt. Bei einer durch ein Temperaturbad stabilisierten Quellentemperatur  $T_s$  und einem vom Reaktordruck unabhängigen Quellendruck  $p_s$  ergibt sich über den Gleichgewichtsdampfdruck  $p_G$  in der Quelle eine definierte Stoffmenge im Gasfluss.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>engl.: *metalorganic chemical vapor deposition* 



Abb. 3.1: Stark vereinfachte, schematische Darstellung einer MOCVD Anlage. a) Gaseinlass, b) Thermoelement, c) Substrat, d) Suszeptor.

Um einen konstanten Trägergasfluss durch die Quellen zu gewährleisten, besitzt die Anlage ein so genanntes *vent-run*-System. Das Schalten in den Reaktor erfolgt durch Umschalten des Flusses kurz vor dem Reaktor von der *vent-* in die *run*-Leitung. In der *vent*-Leitung geht der Gasfluss am Reaktor vorbei direkt zur Pumpe. Der Fluss durch die Quelle ist dadurch konstant und unabhängig vom Aufschalten der Quelle in den Reaktor. In den Leitungen kann sich ein konstanter Stoffmengenfluss ausbilden. Das *vent-run*-System ermöglicht die für das Abscheiden dünner Schichten benötigten kurzen Schaltzeiten (<100 ms).

Die beiden Gasströme, in denen jeweils die Gruppe V und Gruppe III Komponenten enthalten sind, werden erst am Reaktoreingang gemischt, um eventuelle Vorreaktionen in den Leitungen zu vermeiden. Die Gasgeschwindigkeit im Reaktor ist so gewählt, dass das Gas laminar über den Suszeptor strömt. Die Druckbereiche und Gasmengen, die einen laminaren Gasstrom erzeugen, hängen vom spezifischen Design des Reaktors ab.

Der horizontale Suszeptor der mit einem, mittels eines Gasstromes drehbaren, Graphitteller ausgestattet ist, wird geheizt. Die tatsächliche Temperatur der Substratoberfläche ist geringer als die angezeigte Temperatur des Ni/CrNi Thermoelements, das sich in einer Glasstange unterhalb des Tellers im Suszeptor befindet, und wurde mit einem Aluminiumbeschichteten Siliziumwafer (eutektische Temperatur T=577 °C) bestimmt. In dieser Arbeit sind alle Temperaturen bezüglich dieser Kalibration korrigiert angegeben.

Arsenide werden normalerweise mit einem hohen Überangebot von Atomen der

Gruppe V (im Verhältnis zu den Atomen der Gruppe III) gewachsen ( $p_V >> p_{III}$ ), da sie einen hohen Dampfdruck besitzen und nur die benötigten Mengen (stöchiometrisch) in den Kristall eingebaut werden. Die Wachstumsrate wird in diesem Fall durch das Angebot der Gruppe III Atome bestimmt.

Als Ausgangsstoffe für die Gruppe III Elemente wurden die Metallorganika Trimethylgallium (TMGa), Triethylgallium (TEGa), Trimethylaluminium (TMAl) und Trimethylindium (TMIn) verwendet. Als Arsen-Ausgangsstoff wurde entweder das Hydrid Arsin (AsH<sub>3</sub>) oder Tertiärbutylarsen (TBAs) verwendet. TBAs zerlegt sich bei tieferen Temperaturen deutlich besser als Arsin [Sto00]. Insbesondere bei der Epitaxie von In(Ga)As SK-QPen und SML-Stapeln, die bei Temperaturen abgeschieden werden, bei denen Arsin nur zu einem sehr geringen Anteil zerlegt wird (typisch sind 470 °C bis 530 °C), ist das von Vorteil. Demgegenüber steht der Nachteil einer potentiell höheren Hintergrunddotirung durch Sauerstoff- und Kohlenstoffeinbau, insbesondere bei Al-haltigen Schichten [Sek97, Leu98]. Aus diesen Gründen wurde für das Wachstum der SK-QP- und der SML-Schichten TBAs verwendet, alle anderen Schichten wurden mit AsH<sub>3</sub> als Arsen-Ausgangsstoff hergestellt.

Der Wachstumsprozess ist auf atomistischer Ebene sehr komplex und kann, nicht zuletzt aufgrund der schwierigen experimentellen Zugänglichkeit, nicht vollständig beschrieben werden. Gesucht werden daher makroskopische Prozessparameter, wie Partialdrücke und Verhältnisse der Ausgangstoffe und Temperatur, mit denen sich das Kristallwachstum beschreiben und steuern lässt.

Detaillierte und ausführliche Beschreibungen der Grundlagen der MOCVD finden sich beispielsweise in den Büchern G. B. Stringfellow und W. Richter [Str99, Ric86]. Alle in dieser Arbeit vorgestellten Proben wurden mit kommerziell erhältlichen Anlagen vom Typ AIXTRON 200 RF bzw. AIXTRON 200/4 hergestellt.

#### 3.2 Photolumineszenzspektroskopie

Photolumineszenzspektroskopie (PL) ist die am häufigsten für diese Arbeit verwendete Charakterisierungsmethode. Die Probe wird optisch angeregt, dabei ist die Energie der anregenden Photonen  $hv_1$  im Allgemeinen größer oder gleich der Übergangsenergien der zu untersuchenden Struktur. Die photo-generierten Ladungsträger relaxieren (im Allgemeinen) in den tiefsten freien Energiezustand und rekombinieren dort strahlend. Die detektierte Photonenergie  $hv_2 < hv_1$  entspricht der, um exzitonische Effekte korrigierten, Übergangsenergie des Zustandes.

Als Anregungsquelle wurde die 514,5 nm Linie eines Ar<sup>+</sup> Lasers verwendet, der während der Durchführung dieser Untersuchungen durch einen diodengepumpten, frequenzverdoppelten Nd:YVO<sub>4</sub> Laser (Emission bei 532 nm) mit gleicher Ausgangsleistung ersetzt wurde. Der anregende Laserstrahl wurde auf einen Durchmesser von ca. 50 µm fokussiert. Für die Detektion wurde eine, mit flüssigem Stickstoff gekühlte, Germanium-pin-Diode und ein Lock-In Verstärker verwendet. Der Monochromator besitzt eine fokale Länge von 50 cm und ist mit einem Gitter mit 600 Linien/mm ausgestattet, das eine Blaze-Wellenlänge von 1 µm besitzt.

Die Anregungsdichte konnte durch die Verwendung von Graufiltern in einem Bereich von 0,5 Wcm<sup>-2</sup> bis 5 kWcm<sup>-2</sup> eingestellt werden. Dabei geben Spektren bei kleinen Anregungsdichten Auskunft über die Qualität der Schicht, da Defekte sehr effektive, nichtstrahlende Rekombinationskanäle für Ladungsträger darstellen. Diese stehen für strahlende Rekombination nicht mehr zur Verfügung. Bei hohen Anregungsdichten werden im Allgemeinen die Defekte und der Grundzustand der Quantenstruktur gesättigt. Aufgrund der Sättigung des Grundzustandes kommt es zur Besetzung von angeregten Zuständen und der Emission aus diesen. Anhand der integralen Lumineszenz des Grundzustandes erhält man eine qualitative Information über die Dichte der QPe.

Zur Messung von PL-Spektren bei tiefen Temperaturen stand ein Helium-Fluss-Kryostat zur Verfügung. Der Kryostat erlaubt temperaturabhängige Messungen zwischen 10 K und Raumtemperatur. Bei tiefen Temperaturen ist eine thermische Anregung von Ladungsträgern aus flacheren Lokalisationszentren zugunsten von tieferen Lokalisationszentren unterdrückt.

Eine umfassende Darstellung der Spektroskopie von Halbleitern liefert das Buch von C. F. Klingshirn [Kli97]. Details zur Spektroskopie von QPen finden sich bei Pohl u. a. [Poh08].

#### 3.3 Hochauflösende Röntgendiffraktometrie

Die Röntgendiffraktometrie dient der zerstörungsfreien Analyse von Volumenkristallen, dünnen Schichten, Grenz- und Oberflächen. Die Charakterisierungsmethode basiert auf der Beugung und Interferenz von Röntgenstrahlen an den periodischen angeordneten Gitteratomen. Der einfallende Röntgenstrahl wird durch Streuung an den Gitteratomen in viele Sekundärwellen zerlegt, die sich zur reflektierten Welle summieren. Konstruktive Interferenz einzelner Teilstrahlen unter bestimmten Winkeln tritt auf, wenn die Bragg-Bedingung:  $\lambda = 2d_{hkl} \sin(\Theta)$  erfüllt ist.

Die mechanische Verstellbarkeit von Probe und Detektor ist bis zu  $10^{-4}$  Grad genau möglich und begrenzt die Auflösung des Diffraktometers. Zusätzlich hängt die Auflösung des Diffraktometers von der Monochromatisierung des Einfallsstrahls ab. Dieser setzt sich aus der Bremsstrahlung und der charakteristischen Strahlung (Kupfer K<sub> $\alpha$ 1</sub>, K<sub> $\alpha$ 2</sub>, K<sub> $\beta$ </sub>-Linien) zusammen und wird mittels eines Hybrid-

Monochromators<sup>2</sup> auf die  $K_{\alpha 1}$ -Linie reduziert.

Aus einer  $\omega 2\theta$ -Messung kann, anhand der Lage der Intensitätsmaxima und der Frequenz der Interferenzoszillationen, die Komposition und Dicke der untersuchten Schicht(en) bestimmt werden. Zur Simulation der Spektren wurde eine Software verwendet, die Lösungen der Takagi-Taupin-Gleichungen [Tak62] der dynamischen Streutheorie für eine vorgegebene Struktur berechnet.

Detaillierte und ausführliche Beschreibungen der Grundlagen der Röntgendiffraktometrie finden sich beispielsweise in den Referenzen [Kro96, Bow98, Hol99]. Die Bestimmung von Schichtdicke und Verspannung eines  $In_xGa_{1-x}As/GaAs$  QFes mittels Röntgendiffraktometrie wird zum Beispiel in Chen u. a. [Che93] gezeigt.

#### 3.4 Transmissionselektronenmikroskopie

Die Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) ermöglicht strukturelle Untersuchungen von Kristallstrukturen mit bis zu atomarer Auflösung. Mittels aufwendiger Probenpräparation sind Untersuchungen von Schichten in planarer und Querschnittsprojektion möglich. Alle in dieser Arbeit gezeigten TEM-Aufnahmen wurden am Max-Planck-Institut für Mikrostrukturphysik in Halle durchgeführt. Zwei verschiedene elektronenmikroskopische Kontrastverfahren wurden für die Untersuchungen genutzt: das Phasenkontrast- und das Amplitudenkontrastverfahren.

Für eine Amplitudenkontrastabbildung wird generell nur ein Strahl verwendet. Nutzt man den ungebeugten Strahl, spricht man von einer *Hellfeldabbildung*. Für eine *Dunkelfeldabbildung* wählt man einen gebeugten Strahl. Die Intensität bei einer Beugungskontrastabbildung wird im Wesentlichen durch zwei Beiträge bestimmt, den Verzerrungskontrast und den Extinktionskontrast. Ersterer wird insbesondere in der planaren Projektion durch die Änderung der Orientierung der zur Beugung beitragenden Netzebenen hervorgerufen. Der Kristall kann so verkippt werden, dass die verbogenen Netzebenen um die QPe gerade die Braggbedingungen erfüllen. Die Orientierung wird dabei so gewählt, dass nur zwei Reflexe stark angeregt sind. Der stärkste Kontrast für die Abbildung der InAs/GaAs QPe konnte mit dem (220) Reflex bei leichter Probenverkippung erreicht werden, zu dessen Intensität die Verzerrung der {220}-Netzebenen beiträgt. Für planare Ansichten wurden daher meist (220) Dunkelfeld (DF) Abbildungen verwendet. Somit wird mit dieser Methode nicht der QP selbst, sondern das ihn umgebende Spannungsfeld sichtbar gemacht.

Umfassende Darstellungen der Transmissionselektronenmikroskopie finden sich in den Referenzen [Aga87, Rei93].

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>Germanium-Einkristalle, die zum Einfallswinkel entsprechend der Bragg-Bedingung für einen bestimmten Reflex ausgerichtet sind

# Kapitel 4

# Der Bildungsprozess von Quantenpunkten im Stranski-Krastanow Wachstumsmodus

In diesem Kapitel wird die Bildung multimodaler QP-Ensembles erstmals gezielt untersucht. Dabei können die optischen Eigenschaften dieser QPe hervorragend theoretisch beschrieben werden. Der Bildungsprozess selbst hingegen lässt Rückschlüsse auf die Kinetik der QP-Bildung zu. In den folgenden Abschnitte werden verschiedene Wachstumsparameter, welche die Bildung derartiger multimodaler Ensembles beeinflussen untersucht und die Entwicklung der QPe während der Wachstumsunterbrechung analysiert.

#### 4.1 Wachstumsparameter und Struktur der Proben

Die typische Struktur der Proben für PL-Untersuchungen ist in Abbildung 4.1 schematisch dargestellt. Die Proben wurden mit einer MOCVD Anlage vom Typ Aixtron 200/4 bei 101/min Gesamtfluss und 100 mbar Reaktordruck hergestellt. Die Substrate (undotierte, nominell exakt (100) orientierte GaAs Substrate) wurden *epiready* verwendet. Ein vorheriges Präparieren der Substrate durch Anätzen der Oberfläche hat sich als nicht notwendig erwiesen.

Nach einem Ausheizen des Substrates von 5 min bei 715 °C (mit As Stabilisierung) wurde eine GaAs Pufferschicht von 300 nm bei 625 °C abgeschieden, gefolgt von einer 60 nm dicken Al<sub>0.6</sub>Ga<sub>0.4</sub>As Schicht. Diese dient als Diffusionsbarriere für

10nm GaAs, 600°C
20nm AlGaAs, 600°C
50nm GaAs
90nm GaAs, 625°C
60nm AlGaAs, 625°C
300nm GaAs, 625°C
GaAs (100) s.i. Substrat



Photo-generierte Ladungsträger zum Substrat und den dort vorhandenen Störstellen, die sonst als nichtstrahlende Rekombinationszentren dienen. Nach dem Abscheiden von weiteren 90 nm GaAs wurde die Reaktortemperatur für das Abscheiden der InAs-Schicht auf 485 °C verringert. Nach 150 s Stabilisierungsphase mit TBAs-Fluss wurde die InAs-Schicht abgeschieden. Nach einer Wachstumsunterbrechung, ohne Angebot von Ausgangsstoffen, wurde eine Deckschicht von 5 nm GaAs bei der gleichen Wachstumstemperatur wie die der InAs-Schicht abgeschieden. Anschließend wurde die Wachstumstemperatur auf 600 °C erhöht und weitere 45 nm GaAs abgeschieden, gefolgt von einer 20 nm dicken Al<sub>0.33</sub>Ga<sub>0.67</sub>As Schicht, um für PL-Messungen bei Raumtemperatur die Diffusion von Ladungsträgern an die Probenoberfläche zu verhindern, gefolgt von einer 10 nm dicken GaAs Schicht als Oxidationsschutz für das Al<sub>0.33</sub>Ga<sub>0.67</sub>As.

#### Wachstumsparameter der Quantenpunktschichten

Als Ausgangspunkt für die Untersuchung der QPe wurden Parameter aus vorangegangenen Untersuchungen des Wachstums von InAs QPen, die von R. Sellin an der gleichen Anlage durchgeführt wurden [Sel03], übernommen. Die Parameter (Wachstumsrate InAs 0,4 ML/s; Dauer der Materialdeposition 4,75 s; Wachstumsrate GaAs-Deckschicht 1 ML/s; Wachstumstemperatur 485 °C; As/In Verhältnis 1,5; Dauer der Wachstumsunterbrechung 5 s) wurden für alle folgenden Experimente beibehalten, falls es nicht anders angegeben ist.

#### 4.2 Multimodale Größenverteilung von Quantenpunktensembles

PL-Untersuchungen unterschiedlicher InAs QP-Proben bei 10 K zeigen eine ungewöhnliche Unterstruktur der QP-Lumineszenz. Die im Allgemeinen gut mit einer Gauß-Verteilung beschreibbare Lumineszenz der InAs QP-Ensembles zeigt mehrere, unterschiedlich deutlich ausgeprägte Maxima. In Abbildung 4.2 ist ein Beispiel mit sehr deutlich ausgeprägten Maxima gezeigt. Die den einzelnen Maxima zugrundeliegende Lumineszenzverteilung konnte jeweils gut mit einem Gaußfit angepasst werden, die Lumineszenz des QP-Ensembles teilt sich in acht Subensembles auf. Die Ursache dieser Aufspaltung soll in diesem Abschnitt geklärt werden.

Interferenzeffekte können sicher ausgeschlossen werden. Die einzelnen Maxima sind auf der Energieachse nicht äquidistant, die Modulation der Lumineszenz ist unabhängig vom Winkel der Probe während der Messung und bei ansonsten identischer Probenstruktur abhängig von der Art der QPe.

Eine Nichtgleichgewichtsverteilung der Ladungsträger kann ebenfalls ausgeschlossen werden. Die Abstände der einzelnen Maxima zwischen 29 und 51 meV



Abb. 4.2: PL-Spektrum von InAs QPen mit 8 Maxima der QP-Lumineszenz, aufgenommen bei 7 K und mit niedriger Anregungsdichte. Zusätzlich sind 8 Gaußfits der einzelnen Subensembles und der daraus resultierende Summenfit gezeigt.

deuten weder auf LO-Phononen assistierte Übergänge, noch auf Übergänge aus angeregten Zuständen hin. Angeregte Zustände als Ursache können auch aufgrund von anregungsdichteabhängigen PL-Messungen ausgeschlossen werden. Die Modulation der PL ist auch bei niedrigen Anregungsdichten, die zu deutlich weniger als einem generierten Exziton pro QP führen, vorhanden. Von F. Guffarth durchgeführten PLE-Messungen (Abb. 4.3) zeigen eindeutig, dass es sich nicht um angeregte Zustände handel kann. Im Gegenteil, die einzelnen Subensembles besitzen jeweils eigene angeregte Zustände.

Eine weitere Möglichkeit für die Aufspaltung der QP-Lumineszenz sind strukturelle Eigenschaften der QPe. Bimodale Verteilungen in QP-Ensembles wurden mehrfach in der Literatur beschrieben. Diese wurden mit bimodalen Verteilungen der Größe, des Aspektverhältnisses und der Komposition der QPe erklärt (z. B. [Hei98a, Lee98, SG01, Zha01, And02]). Für die in dieser Arbeit vorgestellten Untersuchungen wird die multimodale Verteilung der PL auf die Bildung von Sub-Ensembles unterschiedlicher Höhen der QPe (in ML-Stufen) zurückgeführt.

Hochaufgelöste XTEM Untersuchungen bestätigen die Annahme von flachen QPen mit scharfen Grenzflächen. In Abbildung 4.4 sind drei unterschiedliche QPe mit 4, 5 und 6 ML Höhe aus der vorgestellten Probe gezeigt. Basislänge und Höhe der QPe nehmen gleichermaßen zu, was besonders deutlich von 4 ML auf 5 ML Höhe zu beobachten ist. Es ist ein Nachteil des XTEM das pro Präparation nur wenige (typischerweise ein bis zehn) QPe untersucht werden und aufgrund des nötigen hohen Aufwands bei der Probenpräparation und der Messung diese in



Abb. 4.3: ∆E-Kontourplot bestehend aus einer Serie von PLE-Spektren. Aufgetragen ist die PL-Intensität in Falschfarben über die Detektionsenergie und die Differenz der Anregungsenergie zur Detektionsenergie. (Nach [Guf04])

der Regel nicht mehrmals durchgeführt werden. Man muss also beachten, das nur wenige QPe untersucht wurden und die Auswahl der QPe zufällig ist. Aussagen zum QP-Ensemble können demzufolge nur eingeschränkt vorgenommen werden. Alle drei hier gezeigten QPe zeigen einheitlich die Form eines Pyramidenstumpfes, scharfe Grenzflächen und haben ein niedriges Aspektverhältnis.

Eine derartige Monolagen-Aufspaltung wurde sehr ausführlich für QFe untersucht (z. B. [Wei80, Kop91, Hei98a]). Colocci u. a. berichten ein ähnliches Verhalten bei mittels MBE gewachsenen InAs/GaAs QPen [Col97]. Sie beobachteten drei Maxima in der von den QPen stammenden Lumineszenz. Diese verschiebt sich, abhängig von den abgeschiedenen Materialmengen, zu niedrigeren Energien, wobei die Struktur im Wesentlichen erhalten bleibt. Die Struktur der Lumineszenz wurde dort ebenfalls als ML-Aufspaltung interpretiert.

Bei flachen QPen ist die Lokalisierung in z-Richtung maßgeblich für die Übergangsenergie, während der laterale Ladungsträgereinschluss eine untergeordnete Rolle spielt. Voraussetzung für die geringen Halbwertsbreiten der Emission der einzelnen Subensembles sind QPe mit scharfen unteren und oberen Grenzflächen und einer geringen Variation der Basislängen.

Auf Basis der 8-Band  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  Theorie und der Konfigurations-Wechselwirkungs-Methode wurden von A. Schliwa Rechnungen durchgeführt die zeigen das für sehr flache QPe (3 bis 5 ML Höhe) die Zunahme der Höhe um eine ML eine deutliche Änderung der Exzitonenübergangsenergie bewirkt, während sich diese





für höhere QPe (> 9ML) nur noch wenig ändert. Die Rechnungen wurden für pyramidale QPe mit {111}-Facetten mit Basislängen von 10,2 nm und 13,6 nm durchgeführt, wobei die Pyramide von oben abgeschnitten wurde, so das nur noch n ML übrigbleiben. Das Volumen der QPe ändert sich entsprechend der entfernten Materialmenge. Die Ergebnisse der Rechnungen sind in Abbildung 4.5 dargestellt. Für flache QPe mit 3 bis 5 ML Höhe wird eine gute Übereinstimmung zwischen experimentellen Daten und den für 10,2 nm Basislänge berechneten Werten erzielt. Die für 13,6 nm Basislänge berechneten Werte nähern sich für höhere QPe den experimentell bestimmten Werten an.

Diese Beobachtung legt ein sogenanntes *Schalenmodell* nahe. Die Basislänge des QPes wird mit Zunahme der Höhe um eine ML um zwei ML vergrößert (Abb. 4.5 oben). Die für diese Konfiguration der QPe berechneten Übergangsenergien zeigen über den gesamten Bereich der angenommenen QP-Höhen eine sehr gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten. Das gilt sowohl für den Grundund den angeregten Zustand, als auch die Energieseparation zwischen Grund- und angeregtem Zustand.

Strukturelle Informationen zur Höhe von überwachsenen QPen erhält man sonst nur aus XSTM- oder XTEM-Untersuchungen. Die in den bei 10 K durchgeführten PL-Untersuchungen beobachtete ML-Aufspaltung gibt Hinweise auf strukturelle



Abb. 4.5: Berechnete Übergangsenergien E<sub>x</sub> des Grund- (Quadrate) und des ersten angeregten Zustands (Kreise), für n Monolagen hohe Quantenpunkte mit {111}-Facetten und einer Basislänge von 10,2 nm (blau), 13,6 nm (rot) und von 10,2 nm beginnend pro ML Höhenzunahme eine um 2 ML vergrößerte Basislänge (grün).

Eigenschaften des gesamten QP-Ensembles, da bei tiefen Temperaturen alle QPe zur Lumineszenz beitragen. Es können aber keine absoluten Aussagen zur Höhe der QPe getätigt werden. Bestenfalls kann eine Abschätzung aufgrund der energetischen Lage der Maxima erfolgen. Die ML-Aufspaltung ermöglicht aber, sofern sie unter den gegebenen Wachstumsbedingungen ausgeprägt ist, detailliertere Aussagen zum Einfluss von Wachstumsparametern in Probenserien. Die qualitative Veränderung des gesamten QP-Ensembles kann für überwachsene QPe ohne aufwendige strukturelle Untersuchungen beschrieben werden.
# 4.2.1 Einfluss von Wachstumsparametern auf die Ausbildung multimodaler Quantenpunktensembles

Um die Ursachen der Aufspaltung der Lumineszenz der QP-Ensemble in eine multimodale Verteilung zu klären, wurde der Einfluss verschiedener Wachstumsparameter darauf untersucht.

#### InAs Schichtdicke

In Abbildung 4.6 sind die bei 10 K gemessenen PL-Spektren von InAs QP-Proben mit unterschiedlichen InAs Abscheidedauern dargestellt. Für die Abscheidedauer von 4 s ist nur die von der 2D Benetzungsschicht stammende Lumineszenz bei 1,41 eV zu erkennen. Die kritische Schichtdicke für die Bildung von QPen wurde nicht überschritten. Ab einer Abscheidedauer von 4,25 s ist die deutlich ML-aufgespaltene Lumineszenz der QP-Ensemble zu erkennen. Mit steigender Abscheidedauer ist eine Rotverschiebung der Lumineszenz und gleichzeitig eine leichte Abschwächung der ML-Aufspaltung zu erkennen.

Die ML-Aufspaltung ermöglicht die Erklärung der Rotverschiebung der Lumineszenz durch die sichtbare Zunahme der Höhe der QPe. Die Abschwächung der Aufspaltung erklärt sich mit der, durch die Zunahme der Höhe der QPe, abnehmenden Lokalisierung in z-Richtung und der daraus resultierenden Abnahme der Differenz der Übergangsenergien zwischen QPen mit n und n + 1 ML Höhe. Die Menge des abgeschiedenen Materials beeinflusst das Auftreten der ML-Aufspaltung nur bedingt durch die Zunahme der Höhen der QPe. Die Variation der abgeschiedenen InAs Materialmenge zeigt das bei Colocci u. a. beschriebene Verhalten [Col97].



 Abb. 4.6: PL-Spektren eines InAs QFes (4 s Abscheidedauer) und von QPen mit variierter InAs Schichtdicke, aufgenommen bei 10 K und mit niedriger Anregungsdichte. Die Variation der Menge des abgeschiedenen InAs zeigt keinen ausgeprägten Einfluss auf die ML-Aufspaltung der QPe.

#### Wachstumstemperatur

In Abbildung 4.7 sind die bei 10 K gemessenen PL-Spektren von InAs QPen, die mit unterschiedlichen Wachstumstemperaturen der QPe hergestellt wurden, dargestellt. Mit steigender Wachstumstemperatur ist eine Abnahme der ML-Aufspaltung zu beobachten. Die bei 530 °C hergestellten QPe zeigen keine ML-Aufspaltung mehr.

Die höheren Wachstumstemperaturen führen zu einem verstärkten In–Ga Austausch, so das die QPe keine scharfen Grenzflächen mehr ausbilden. Die Erhöhung der Temperatur führt aber auch zu einer Veränderung der thermodynamischen Verhältnisse und der Kinetik auf der Oberfläche. Das könnte zu QPen mit geringerem Aspektverhältnis führen – mit entsprechend geringerer Lokalisierung der Wellenfunktion in z-Richtung, oder QPe-Ensembles mit der gleichen Höhe besitzen unterschiedliche Basislängen. Es ist davon auszugehen das daraus die energetische Verschiebung der Lumineszenz der einzelnen Subensembles bei den Proben mit 500 °C und 510 °C, sowie die Verschiebung der Lumineszenz des gesamten Ensembles zu geringeren Energien bei steigender Wachstumstemperatur resultiert.



Abb. 4.7: PL-Spektren von InAs QPen hergestellt bei Wachstumstemperaturen von 500 °C, 510 °C und 530 °C, aufgenommen bei 10 K und mit niedriger Anregungsdichte. Mit steigender Wachstumstemperatur ist eine Abnahme der ML-Aufspaltung zu beobachten.

#### Wachstumsrate der GaAs Deckschicht

In Abbildung 4.8 sind die bei 10 K gemessenen PL-Spektren von InAs QPen, bei denen das GaAs zum Bedecken der QPe nach der Wachstumsunterbrechung mit unterschiedlichen Wachstumsraten abgeschieden wurde, dargestellt. Während die Probe mit der Wachstumsrate von 1 ML/s eine deutliche ML-Aufspaltung zeigt, verschwindet diese bei Halbierung auf 0,5 ML/s bereits fast vollständig.



Abb. 4.8: PL-Spektren von InAs QPen aufgenommen bei 10 K und mit niedriger Anregungsdichte. Das GaAs zum Bedecken der QPe nach der Wachstumsunterbrechung wurde mit Wachstumsraten von 0,5 ML/s (schwarz) und 1 ML/s (rot) abgeschieden.

Offensichtlich ist die Art des Überwachsens der QPe ein wesentlicher Parameter für das Auftreten von ML-Aufspaltung. Es existieren eine Reihe von Veröffentlichungen, die sich mit der Veränderung der Form und der Größe von QPen während des Überwachsens beschäftigen. Im Allgemeinen muss davon ausgegangen werden das sich Form und Größe von QPen während des Überwachsens verändern, wie diese Untersuchung bestätigt. Es ist einfach nachzuvollziehen, dass höhere Wachstumsraten beim Bedecken zu geringeren Veränderungen der Form der QPe führen.

#### Modifikation der Oberflächenenergie durch die Zugabe von Antimon

In Abbildung 4.9 sind die bei 10 K gemessenen PL-Spektren von InAs QP-Proben, wobei bei einer der Proben während des Wachstums der InAs-Schicht und der Wachstumsunterbrechung zusätzlich eine geringe Menge Antimon angeboten wurde, dargestellt. Durch die Zugabe von Antimon wird die ML-Aufspaltung noch deutlicher, während die Breite der einzelnen Subensembles sinkt, nimmt die Breite der gesamten Emission deutlich zu. Antimon wirkt im InAs/GaAs Materialsystem als Tensid (engl. *surfactant*). Es senkt die Oberflächenspannung und beeinflusst damit entscheidend den Prozess der QP-Bildung.

Deutlich ist, wie bei der Veränderung der Wachstumstemperatur, eine energetische Verschiebung von Subensembles die gleichen Höhen zugeordnet werden können zu erkennen. Die Ursache ist wiederum in der Änderung der thermodynamischen Verhältnisse und der Kinetik auf der Oberfläche, diesmal aufgrund der Modifikation der Oberflächenenergien, zu suchen.



**Abb. 4.9:** PL-Spektren von InAs QPen mit hergestellt mit und ohne Sb, aufgenommen bei 10 K und mit niedriger Anregungsdichte. Deutlich ist eine energetische Verschiebung von Subensembles die gleichen Höhen zugeordnet werden können zu erkennen.

#### Zusammenfassung

Voraussetzungen für das Auftreten der ML-Aufspaltung sind nicht zu hohe Wachstumstemperaturen und das schnelle Überwachsen der QPe nach der Wachstumsunterbrechung, während die Menge des abgeschiedenen InAs keinen sichtbaren Einfluss zeigt. Die Modifikation der Oberflächenenergie durch die Zugabe von Antimon führt zu einem besonders deutlichen Auftreten der ML-Aufspaltung. Auf den Einfluss der Wachstumsunterbrechung als weiteren wesentlichen Parameter der QP-Bildung wird im nächsten Abschnitt im Rahmen der Diskussion des Reifungsverhaltens der QPe eingegangen.

# 4.3 Reifung von Quantenpunktensembles im Stranski-Krastanow Wachstumsmodus

Die Bildung von QPen und deren Entwicklung während einer Wachstumsunterbrechung nach Abscheiden der InAs Schicht wurden untersucht, indem die Dauer der Wachstumsunterbrechung von 0 s bis 270 s variiert wurde. Ziel dieser Untersuchung war es festzustellen, ob die QPe einen Gleichgewichtszustand erreichen. Es wird davon ausgegangen, dass bei einer Veränderung der strukturellen Eigenschaften, insbesondere der Größe der QPe, auch eine Veränderung der Lumineszenzeigenschaften stattfindet. Deshalb wird das Erreichen eines Gleichgewichtszustandes damit identifiziert, dass keine Veränderung der QP-Lumineszenz mehr zu beobachten ist.

Es wurden 1,9 ML InAs mit einer Wachstumsrate von 0,4 ML/s und einem V/III-Verhältnis von 1,5 bei 485 °C abgeschieden und die Dauer der Wachstumsunterbrechung von 0 s bis 270 s variiert. Abbildung 4.10 zeigt die PL-Spektren dieser Probenserie, aufgenommen bei Raumtemperatur und mit niedriger Anregungsdichte. Ohne Wachstumsunterbrechung kann keine Lumineszenz von QPen beobachtet werden, die Lumineszenz bei ~1,3 eV wird aufgrund ihrer energetischen Lage der Benetzungsschicht zugeordnet. Für die maximal verwendete Wachstumsunterbrechung von 270 s liegt das Maximum der Lumineszenz der QPe bei 0,98 eV (1260 nm). Allerdings ist eine deutliche Verschlechterung der Lumineszenzintensität der QPe bei niedriger Anregungsdichte und der QPe, der Benetzungsschicht und der GaAs Matrix bei hoher Anregungsdichte (Abb. 4.11) zu beobachten. Die deutliche Ab-



**Abb. 4.10:** Raumtemperatur PL-Spektren von InAs QP-Proben mit Wachstumsunterbrechungen von 0 s bis 270 s, aufgenommen mit niedriger Anregungsdichte.



Abb. 4.11: Raumtemperatur PL-Spektren von InAs QP-Proben mit Wachstumsunterbrechungen von 0 s bis 270 s, aufgenommen mit hoher Anregungsdichte.

nahme der Lumineszenzintensitäten kann nur auf die Ausbildung von Defekten zurückgeführt werden.

Die Defektbildung ist mit dem Überschreiten einer kritischen Größe der QPe zu erklären, nach der eine Verspannungsrelaxation ohne die Ausbildung von Gitterfehlern nicht mehr möglich ist. Auf das Vorhandensein großer QPe deutet auch die Wellenlänge von 1260 nm des Maximums der Emission der QPe in dieser Probe. Mukhametzhanov u. a. geben die maximal erreichte Wellenlänge für eine einfache InAs QP-Schicht, die in ihrem Fall mit MBE hergestellt wurde, mit 1250 nm an, wobei eine selbstlimitierende Basislänge der QPe angenommen wurde [Muk99]. Durch die Defektbildung erfolgt ein überproportionaler Materialtransfer in diese Inseln (siehe Abschnitt 2.2) der zu weiteren Defekten führt und es entstehen große defektreiche Inseln – Cluster.

Die Verschiebung der Lumineszenz der QPe zu größeren Wellenlängen vollzieht sich bis zur maximal untersuchten Dauer der Wachstumsunterbrechung von 270 s, eine Erweiterung der Probenserie darüber hinaus war aufgrund der Defektbildung nicht sinnvoll. Offensichtlich entwickeln sich die QPe in der untersuchten Zeitspanne nicht in einen Gleichgewichtszustand. Die Entwicklung der QPe geschieht relativ langsam, die Wachstumsunterbrechung bei InAs QPen in anderen Untersuchungen liegt typischerweise im Bereich von einigen Sekunden [Hei98a]. Die langsame Entwicklung ist möglicherweise durch das niedrige V/III-Verhältnis verursacht. Ein weiterer Grund für die langsame Entwicklung des QP-Ensembles könnte das nur geringe Überschreiten der kritischen Schichtdicke für die Bildung von InAs QPen (1,6 ML [Hei97]) sein.



**Abb. 4.12:** Aufsicht-TEM (220) Dunkelfeldaufnahmen der InAs/GaAs QP-Proben mit 5 s (links), 90 s (Mitte) und 270 s (rechts) Wachstumsunterbrechung.

Bei hohen Anregungsdichten ist eine kontinuierliche Abnahme der Lumineszenzintensität des QP-Grundzustandes mit Verlängerung der Wachstumsunterbrechung (Abb. 4.11) zu beobachten. Das ist ein deutliches Zeichen für die Abnahme der Dichte der QP während der Wachstumsunterbrechung, da bei der verwendeten hohen Anregungsdichte (5 kW/cm<sup>2</sup>) die Grundzustände aller QPe besetzt sind und somit zur Lumineszenz beitragen. Die berechneten Ozillatorstärken unterscheiden sich für die untersuchten QPe nur sehr gering, so dass deren unterschiedliche Größen für diese Betrachtung keine Rolle spielen.

Die Abnahme der Dichte der QPe wird durch Aufsicht-TEM-Aufnahmen der Proben mit 5 s, 90 s und 270 s Wachstumsunterbrechung bestätigt. Die Probe mit 5 s Wachstumsunterbrechung hat eine QP-Dichte von  $4 \cdot 10^{10}$  cm<sup>-2</sup>, diese sinkt für 90 s auf  $1,7 \cdot 10^{10}$  cm<sup>-2</sup>, und für 270 s auf  $0,9 \cdot 10^{10}$  cm<sup>-2</sup>. Die Probe mit 270 s Wachstumsunterbrechung zeigt zusätzlich deutlich Defekte, diese haben eine Dichte von  $2 \cdot 10^8$  cm<sup>-2</sup>.

Die energetische Lage und damit auch die Dicke der Benetzungsschicht ändert sich ab einer Wachstumsunterbrechung von 2 s nicht mehr. Das zeigen Abbildung 4.11 und hier nicht gezeigte PLE-Untersuchungen eindeutig. Der Materialtransfer aus der Benetzungsschicht in die QPe findet zumindest in dieser Untersuchung in den ersten 2 s der Wachstumsunterbrechung statt. Anschließend kann ein Materialaustausch nur noch zwischen QPen stattfinden. Die Verschiebung der Lumineszenz des Grundzustands zu kleineren Energien und damit die Vergrößerung von QPen kann nur noch auf Kosten anderer QPe, die schrumpfen bzw. sich auflösen, stattfinden. Die daraus resultierende Abnahme der Dichte der QPe bei Verlängerung der Wachstumsunterbrechung wurde bereits eindeutig gezeigt.

Einen genaueren Einblick in die Bildung der QPe liefern bei 10 K aufgenommene PL-Spektren, die eine deutliche Aufspaltung der Lumineszenz zeigen (Abb. 4.13 und 4.14). Dabei handelt es sich um zwei Probenserien die mit nominell gleichen



Abb. 4.13: PL-Spektren von InAs QP-Proben mit Wachstumsunterbrechungen von 0 s bis 5 s, aufgenommen bei 10 K und mit niedriger Anregungsdichte. Die kursiven Zahlen geben die Höhe der InAs QPe in Monolagen an.

Wachstumsparametern hergestellt wurden. Trotzdem sind geringe Abweichungen zwischen den Spektren mit gleichen Wachstumsunterbrechungen erkennbar, die aber für die Interpretation der Ergebnisse vernachlässigbar sind.

Die Einfügung in Abbildung 4.13 zeigt in halblogarithmischer Darstellung die Lumineszenz die der Benetzungsschicht zugeordnet wird. Dabei ist für 0,5 s Wachstumsunterbrechung, im Vergleich zu der Probe ohne, eine leichte Verschiebung der Lumineszenz zu geringeren Energien, gleichbedeutend mit einer Abnahme der Schichtdicke, und die Ausbildung einer Schulter auf der niederenergetischen Flanke der Lumineszenz zu beobachten. Die sich ausbildende Schulter stammt von den sich bildenden QPen. Die weitere Entwicklung kann in Abbildung 4.13 nachvollzogen werden. Die den einzelnen Maxima zugeordnete Höhe der QPe ist in kursiven Zahlen über diesen angegeben. Die Probe mit 0,8 s Wachstumsunterbrechung zeigt eine deutliche Abnahme der Intensität der Lumineszenz der Benetzungsschicht, ein Teil der Ladungsträger rekombiniert in den sich ausbildenden QPen. Diese haben initial eine Höhe von einer ML (jeweils zuzüglich 1 ML Benetzungsschicht). Das Maximum der Höhenverteilung verschiebt sich mit Verlängerung der Wachstumsunterbrechung zu immmer größeren Werten, wie auch in Abbildung 4.14 deutlich sichtbar ist.

Die Verschiebung der Lumineszenz einzelner, gleichen QP-Höhen zugeordneter, Sub-Ensembles zu größeren Energien mit Verlängerung der Wachstumsunterbrechung wird mit der Abnahme der mittleren Basislänge der QPe im Sub-Ensemble begründet. QPe mit im Vergleich großen Basislängen werden tendenziell höher,



**Abb. 4.14:** PL-Spektren von InAs QP-Proben mit Wachstumsunterbrechungen von 0 s bis 270 s, aufgenommen bei 10 K und mit niedriger Anregungsdichte.

während sich QPe mit geringeren Basislängen eher auflösen.

Die für längere Wachstumsunterbrechungen beobachtete Abschwächung der Aufspaltung erklärt sich mit der, durch die Zunahme der Höhe der QPe, abnehmenden Quantisierung in z-Richtung und der daraus resultierenden Abnahme der Differenz der Übergangsenergien zwischen QPen mit n und n + 1 ML Höhe. Einen zusätzlichen Effekt könnte eine breitere Verteilung der Basislängen der einzelnen Sub-Ensemble mit Verlängerung der Wachstumsunterbrechung haben.

Die Entwicklung des QP-Ensembles aus einem überkritischen QF konnte nur unter Verwendung von PL-Spektroskopie nachvollzogen werden. Die QPe bilden sich über Anfangszustände aus der Benetzungsschicht und durchlaufen dann eine Zunahme der Höhe in ML-Stufen. Die durchschnittliche Größe der QPe steigt, während ihre Dichte abnimmt.

# 4.3.1 Kinetische Beschreibung der Entwicklung multimodaler Quantenpunktensembles

Die Entwicklung des verspannten QP-Ensembles während der Wachstumsunterbrechung wird durch QPe, deren Form als die eines Pyramidenstumpfes angenommen wird und die von einem Adatom-See umgeben sind, beschrieben.



Abb. 4.15: Schematisch Darstellung der Probenoberfläche mit Benetzungsschicht (1 ML hoch), 2 QPen (2 und 3 ML hoch) und Adatom-See.

Die QPe wachsen oder schrumpfen durch Adatomanlagerung oder -ablösung. Die Adatomkinetik wird durch die Konzentration der Verspannung an den Außenkanten der verspannten QPe kontrolliert. Mit der Zunahme der Höhe der QPe erhöhen sich, bei gegebener Basislänge, die Barrieren [Jes98].

Das System besteht anfänglich aus einer breiten Verteilung flacher, 1 ML hoher QPe mit einer breiten Verteilung der Basislängen. Es wird angenommen, dass sich aus den Adatomen keine neuen QPe bilden. Sobald sich 2 ML hohe QPe bilden, erhöht sich die Barrieren und die Zunahme der Basislänge wird unterdrückt. Das Wachstum wird dann bevorzugt über die Bildung von ML-Keimen auf den Pyramidenstümpfen stattfinden. Die Basislänge bleibt unverändert und die Höhe der QPe nimmt nacheinander in ML-Schritten zu. Unterschiedliche Subensembles von QPen unterschiedlicher anfänglicher Basislängen entwickeln sich unabhängig voneinander.

Das Wachstum jeder folgenden ML auf dem Pyramidenstumpf stellt eine Änderung der Gibbschen freien Energie des Systems  $\delta \Phi_{Insel}$  als Folge der Bildung eines Keimes, der teilweise die Oberfläche bedeckt, dar. Die Keimbildung beginnt mit  $\delta \Phi_{Insel} > 0$  (Abb. 4.16). Wenn der Keim eine kritische Größe  $\Delta \Phi_{Barierre}$  überschreitet sinkt  $\delta \Phi_{Insel}$  bei weiterer Vergrößerung wieder. Ab einer Größe wird  $\delta \Phi_{Insel}$ negativ, d. h. die Ausbildung des Keimes senkt die freie Energie des Systems. Da die QPe die Form von Pyramidenstümpfen haben, sinkt die Größe der oberen Facette während des Wachstums jeder weiteren ML. Ab einer bestimmten Höhe ist die Größe der oberen Facette nicht mehr groß genug, um attraktiv für die Ausbildung des nächsten Keimes zu sein. Das Wachstum dieses QPes endet und seine Größe bleibt stabil. QPe mit größeren anfänglichen Basislängen beenden ihr Wachstum deshalb bei größeren Höhen.

Das Modell der QP-Entwicklung berücksichtigt die elementaren Wachstumsprozesse eines QPes mit der Basislänge L und der Höhe h mit der Zunahme der Höhe



**Abb. 4.16:** Schematischer Verlauf der Änderung der Gibbs-Energie  $\delta \Phi_{Insel}$  durch die Ausbildung eines ML-Keims auf dem Pyramidenstumpf.

um 1 ML  $(h \rightarrow h + 1)$  oder der teilweisen Auflösung mit einer Abnahme der Höhe um 1 ML  $(h \rightarrow h - 1)$ . Die Prozesse werden, unter Einbeziehung der Überwindung der Barrieren die einer Arrhenius-Abhängigkeit folgen, durch eine Ratengleichung beschrieben. Wachstum oder Auflösung der QPe erfolgt über Materialaustausch zwischen den QPen und dem Adatomsee und es gilt Massenerhaltung. Mit dem Wachstum der QPe reduziert sich die Anzahl der Adatome im Adatomsee, dadurch reduziert sich das chemische Potential  $\mu$ . Letzteres führt zu einer Zunahme der kritischen Keimgröße und das Höhenlimit der QPe wird reduziert. Dies trägt zusätzlich zum Abbruch des QP-Wachstums bei.

In Abbildung 4.17 sind die Ergebnisse der numerischen Modellierung, die von M. B. Lifshits und V. A. Shchukin durchgeführt wurden, für unterschiedliche Phasen der Entwicklung des QP-Ensembles gezeigt. Die linke Seite der Abbildung zeigt die Basislängen- und Höhenverteilung des QP-Ensembles in Falschfarben, wobei dunkelrot maximaler und dunkelblau minimaler Häufigkeit entspricht. Die rechte Seite zeigt die Höhenverteilung des QP-Ensembles normiert auf das relative Maximum. Zu Beginn ( $t = t_1$ ) besteht das System überwiegend aus 1 ML hohen QPen mit einer breiten Verteilung der Basislänge. Höhere QPe sind nur in einer geringen Dichte vorhanden. Zum späteren Zeitpunkt  $t_2$  hat sich die Dichte der 1 ML hohen QPen im Vergleich zu  $t_1$  deutlich reduziert. Ein Teil hat sich aufgelöst, während andere in der Höhe gewachsen sind. Das Maximum der Verteilungsfunktion befindet sich nun bei QPen mit einer Höhe von 2 ML und die Verteilung ist breiter geworden.

Die weitere Entwicklung  $(t_3-t_5)$  der QP-Verteilungsfunktion beinhaltet das langsame Wachstum von QPen mit einer größeren Basislänge auf Kosten der Auflösung kleinerer QPe. Das Maximum der Verteilungsfunktion verschiebt sich zu größeren Höhen und die Höhenverteilung wird breiter. Die Dichte flacherer QPe, die erst steigt, sinkt wieder, da sich flache QPe entweder auflösen oder ihre Höhe zunimmt.

Die numerische Modellierung, die das Wachstum und die Auflösung von QPen durch Materialaustausch zwischen den QPen und dem Adatomsee beschreibt, ist in



Abb. 4.17: Simulation der Entwicklung eines multimodalen QP-Ensembles. Links die Basislängen- und Höhenverteilung in Falschfarben, wobei dunkelrot maximaler und dunkelblau minimaler Häufigkeit entspricht. Rechts die Höhenverteilung, normiert auf das relative Maximum, zu einem gegebenen Zeitpunkt.

sehr guter Übereinstimmung mit den experimentellen Beobachtungen der Entwicklung von QP-Ensembles (Abbildungen 4.14 und 4.13). Insbesondere kann auch die Bildung und Auflösung von Subensembles von QPen gut beschrieben werden.

#### 4.4 Zusammenfassung

Die Bildung multimodaler QP-Ensembles wurde erstmals gezielt untersucht. Dabei konnte gezeigt werden, dass Voraussetzungen für das Auftreten der Aufspaltung der Lumineszenz in eine multimodale Verteilung nicht zu hohe Wachstumstemperaturen und das schnelle Überwachsen der QPe nach der Wachstumsunterbrechung sind, während die Menge des abgeschiedenen InAs keinen sichtbaren Einfluss zeigt. Die Modifikation der Oberflächenenergie durch die Zugabe von Antimon führte zu einem besonders deutlichen Auftreten der ML-Aufspaltung. Des weiteren konnte die Entwicklung der QPe während der Wachstumsunterbrechung analysiert werden.

Die in den optischen Untersuchungen gefundenen Eigenschaften dieser QPe konnten sehr gut theoretisch beschrieben werden und ermöglichten Rückschlüsse auf die strukturellen Eigenschaften. Der Bildungsprozess selbst hingegen ließ Rückschlüsse auf die Reifung der QPe zu, die ausführlich diskutiert wurde und mit einem kinetischen Modell gut beschrieben werden konnte.

# Kapitel 5

# Herstellung von Quantenpunktstrukturen durch SML-Deposition

Untersuchungen zur Herstellung von Quantenpunkten durch Abscheiden von Submonolagen basierend auf III-V-Halbleitern wurden bisher nur von wenigen Gruppen veröffentlicht [Kre01, Xu03a, Xu03b]. Diese Arbeiten wurden mit MBE durchgeführt. Die vorhandenen Veröffentlichungen gelangen teilweise zu unterschiedlichen Ergebnissen und die vorgestellten Interpretationen der elektronischen Eigenschaften sind nicht in jedem Fall eindeutig. Veröffentlichungen zu systematischen Untersuchungen des Einflusses von Wachstumsparametern auf die elektronischen und optischen Eigenschaften existieren derzeit nicht.

Deshalb wurden systematische Untersuchungen zum Wachstum von InAs/GaAs SML-Stapeln mit MOCVD durchgeführt. Diese werden im ersten Abschnitt dieses Kapitels vorgestellt. Im zweiten Abschnitt werden die elektronischen und optischen Eigenschaften der hergestellten SML-Strukturen diskutiert und erste Modellierungen basierend auf der 8-Band  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  Theorie dazu vorgestellt. Im letzten Abschnitt dieses Kapitels wird exemplarisch die Anwendung von SML-Stapeln als aktive Zone von Laserstrukturen untersucht und deren grundlegende Laser-Kenndaten diskutiert.

# 5.1 Der Einfluss der Wachstumsparameter auf die Emissionseigenschaften von SML-Stapeln

In diesem Abschnitt wird gezeigt wie und in welchen Grenzen die Wellenlänge, die Halbwertsbreite und die Intensität der Lumineszenz von SML-Stapeln durch die Wahl von Wachstumsparametern eingestellt werden kann. Parameter, die auf die genannten Eigenschaften Einfluss haben können, sind die Wachstumstemperatur, das V/III-Verhältnis, Wachstumsunterbrechungen vor bzw. nach der SML-Deposition, die InAs und GaAs Wachstumsraten und Schichtdicken, sowie die Anzahl der SML-Wiederholungen. Der Einfluss dieser Parameter wird in diesem Abschnitt dargestellt. Damit können auch Grenzen und Optimierungsmöglichkeiten für den Einsatz in Bauelementen aufzeigt werden.

#### Probenstruktur

Die Proben wurden mit einer MOCVD Anlage vom Typ Aixtron 200 RF bei 5 l/min Gesamtfluss und 20 mbar Reaktordruck hergestellt. Die Substrate (undotierte, nominell exakt (100) orientierte GaAs Substrate) wurden *epiready* verwendet.

Die im Folgenden beschriebenen SML-Stapel bestehen aus einer alternierenden Folge von InAs- und GaAs-Schichten (in der Regel 10 Zyklen), wobei die Wachstumsparameter der einzelnen Schichten jeweils konstant waren. Als Gruppe-III Ausgangsmaterialien dienten im Allgemeinen TMIn und TMGa. Für die SML-Stapel wurde ausnahmslos TBAs anstatt AsH<sub>3</sub> als Gruppe-V Vorläufersubstanz verwendet, da sich dieses bei den verwendeten niedrigen Temperaturen (in der Regel 500 °C) besser thermisch zerlegt. Dadurch bleibt das effektive V/III-Verhältnis weitestgehend unabhängig von der Temperature.

Als Wachstumsraten wurden 0,25 ML/s für InAs und 0,5 ML/s für GaAs eingestellt. Im Fall niedriger Wachstumsraten wird die unerwünschte Interdiffusion von In- und Ga-Atomen wahrscheinlicher. Demgegenüber führen, insbesondere bei den hier verwendeten tiefen Temperaturen, hohe Wachstumsraten zu einer schlechteren Kristallqualität. Des Weiteren würden die sonst üblichen höheren Wachstumsraten von 1–2 ML/s zu sehr kurzen Abscheidedauern (im Bereich der Schaltgenauigkeit der Anlage) der SML führen. Die verwendeten Wachstumsraten stellen daher einen Kompromiss zwischen diesen beiden Grenzfällen dar. Die Wachstumsraten bzw. Schichtdicken von InAs und GaAs wurden jeweils durch Röntgendiffraktometrie an einem 10-fach Stapel kontrolliert und gegebenenfalls korrigiert.

Nach der Deposition der InAs und der GaAs Schicht wurde in der Regel eine Wachstumsunterbrechung von einer Sekunde durchgeführt. Der Arsenfluss wurde während der Wachstumsunterbrechungen beibehalten. Der Einfluss der Wachstumsunterbrechungen auf die Emissionseigenschaften der SML-Stapel wurde im Rahmen dieser Arbeit untersucht und wird in Abschnitt 5.1.4 diskutiert.

#### 5.1.1 Einfluss der InAs- und GaAs-Schichtdicken

Die Menge des abgeschiedenen InAs und die Dicke der GaAs Zwischenschicht beeinflusst wesentlich die Lokalisation der Ladungsträger in den SML-Stapeln. Neben der Größe der Lokalisierung von Ladungsträgern in den SML-Stapeln sollte die GaAs Zwischenschichtdicke außerdem die vertikale Korrelation der SML-Inseln beeinflussen. Der in Folge dessen entstehende Zusammenhang zwischen diesen Parametern und der Emissionswellenlänge der Strukturen soll im Folgenden untersucht werden.

#### Variation der GaAs Zwischenschichtdicke bei 0,3 ML InAs

In dieser Probenserie wurde die Dicke der GaAs Zwischenschicht von 1,2 ML auf 2,4 ML und 3,5 ML bei gleich bleibender Dicke der InAs-Schicht von 0,3 ML vergrößert. Nach dem Abscheiden der InAs-SML wurde eine Wachstumsunterbrechung von einer Sekunde durchgeführt. Der SML-Stapel besteht aus 10 Wiederholungen und wurde bei einer Temperatur von 500 °C gewachsen. Das V/III Verhältnis betrug jeweils 20 für die GaAs und InAs Schichten.

In Abbildung 5.1 sind die PL-Spektren der 3 Proben, aufgenommen bei Raumtemperatur und niedriger Anregungsdichte, gezeigt. Neben den Intensitätsmaxima der Lumineszenz der SML-Stapel ist, wie auch in allen folgenden Untersuchungen, ein weiteres Maximum geringerer Intensität bei ~1,42 eV zu erkennen: die bandkantennahe Lumineszenz von GaAs. Bei Raumtemperatur emittieren die SML-Stapel in einem Wellenlängenbereich von 930 nm bis 970 nm. Es ist zu erkennen, dass sich die Intensitätsmaxima mit steigender GaAs Schichtdicke zu kleineren Wellenlängen verschieben. Da eine Zunahme der Dicke der SML-Struktur zu einer Verschiebung der Intensitätsmaxima zu größeren Wellenlängen führen sollte, scheint der gegenläufige Effekt, die Abnahme des mittleren In-Gehalts, zu dominieren. Die Halbwertsbreite der Lumineszenz der SML-Stapel beträgt bei allen drei Strukturen 17±1 meV. Die maximale und die integrierte Intensität der Raumtemperatur-PL sinken mit zunehmender GaAs-Schichtdicke. Die zunehmende strahlende Rekombination in den SML-Proben mit dünneren GaAs-Schichten kann mit der zunehmenden Lokalisierung von Ladungsträgern in den SML-Stapeln begründet werden. Diese erklärt die sichtbare Abnahme der GaAs-Lumineszenz und kann auch zur Unterdrückung nichtstahlender Rekombinationsprozesse führen. Eine Zunahme der PL-Intensität



**Abb. 5.1:** PL-Spektren von SML-Stapeln mit  $10 \times (0,3 \text{ ML InAs und } 1,2 \text{ bis } 3,5 \text{ ML GaAs})$ , aufgenommen bei Raumtemperatur und mit niedriger Anregungsdichte.

bei SML-Stapeln (II-VI-Halbleiter) mit geringerer Zwischenschichtdicke wird auch in [Kre99] beschrieben. Dort wird die Intensitätszunahme mit einer verstärkten vertikalen elektronischen Kopplung der SML-Inseln, welche einen verstärkten Überlapp der Elektron-Loch Wellenfunktionen hervorruft, begründet.

#### Variation der GaAs Schichtdicke bei 0,5 ML InAs

Die vorliegenden Veröffentlichungen geben für ihre Untersuchungen die Deposition von 0,5 ML InAs an. Im vorherigen Abschnitt wurden SML-Stapel mit 0,3 ML InAs und variierender GaAs Zwischenschichtdicke untersucht. Nun soll der Emissionsbereich durch die Erhöhung der InAs Schichtdicke auf 0,5 ML weiter ausgedehnt werden. Für diese Untersuchung wurde die Dicke der GaAs Zwischenschicht von 1,5 über 2,3 und 2,8 auf 4,0 ML erhöht. Die Proben bestehen jeweils aus einem 10-fach SML-Stapel der bei 500 °C gewachsen wurde.

In Abbildung 5.2 sind die PL-Spektren, aufgenommen bei Raumtemperatur und mit niedriger Anregungsdichte, gezeigt. Die Übergangsenergie nimmt ebenfalls mit sinkender GaAs Zwischenschichtdicke ab. Im Vergleich zu den Proben mit 0,3 ML InAs, emittieren die Proben erwartungsgemäß bei etwas größeren Wellenlängen. Bei Raumtemperatur ergibt sich ein Emissionsbereich von 960 nm bis 1030 nm. Es ist wieder eine Zunahme der integrierten Intensität und damit auch der Quantenausbeute mit abnehmender GaAs Zwischenschichtdicke zu beobachten.

Durch die Variation der Schichtdicke der InAs-SML und der GaAs Zwischenschichten konnte ein Emissionsbereich der SML-Stapel von 930 bis 1030 nm eingestellt werden. Zhukov u. a. geben in guter Übereinstimmung dazu einen Emissionsbereich von 920 bis 1000 nm für mit MBE hergestellte SML-Proben an [Zhu99].



**Abb. 5.2:** PL-Spektren von SML-Stapeln mit 10×(0,5 ML InAs und 1,5-4 ML GaAs), aufgenommen bei Raumtemperatur und mit niedriger Anregungsdichte.

#### 5.1.2 Einfluss der Anzahl der SML-Wiederholungen

Neben der Variation der Menge des abgeschiedenen InAs und der Dicke der GaAs Zwischenschicht kann die Emissionswellenlänge auch durch die Anzahl der SML-Wiederholungen eingestellt werden. In diesem Abschnitt soll der Einfluss dieser Variation auf die Lumineszenz der SML-Stapel untersucht werden. Dabei muss berücksichtigt werden, dass die Verspannung in pseudomorphen Schichten nur bis zu einer gewissen kritischen Schichtdicke elastisch kompensiert werden kann. Wird die kritische Schichtdicke überschritten, relaxiert ein Teil der Verspannung plastisch durch die Ausbildung von Versetzungen [Mat74]. Von M. Grundmann wurden Berechnungen der kritischen Schichtdicken nach zwei theoretischen Modellen (Matthews und Blakeslee [Mat74] bzw. People und Bean [Peo85]) durchgeführt [Gru88]. Durch die Verwendung der beiden unterschiedlichen Theorien kann eine Unterbzw. Obergrenze für die kritische Schichtdicke von InGaAs/GaAs-Quantenfilmen in Abhängigkeit von der In-Konzentration angegeben werden. Für die SML-Stapel dieser Probenserie ergibt sich, unter der Annahme einer homogenen mittleren In-Konzentration, für das Abscheiden von jeweils 0,5 ML InAs und 2,8 ML GaAs ein In-Gehalt von  $\sim 15\%$ . Damit lässt sich für die kritische Schichtdicke ein Bereich von 25 nm bis 100 nm abschätzen [Gru88].

Beginnend mit einer SML wurde deren Anzahl systematisch auf 2, 5, 10, 20 und 30 SML-Schichten vergrößert. Der SML-Stapel wurde bei einer Wachstumstemperatur von 500 °C und mit einer Wachstumsunterbrechung von einer Sekunde nach der InAs Deposition hergestellt. In Abbildung 5.3 sind die PL-Spektren, gemessen bei Raumtemperatur und mit niedriger Anregungsdichte, dargestellt. Es ist eine



**Abb. 5.3:** PL-Spektren von SML-Stapeln mit  $N \times (0,5 \text{ ML InAs und } 2,8 \text{ ML GaAs})$ , aufgenommen bei Raumtemperatur und mit niedriger Anregungsdichte.

deutliche Zunahme der integrierten Lumineszenzintensitäten für die Proben mit einem 2-, 5- und 10-fach SML-Stapel zu beobachten. Die integrierte Intensität der von dem SML-Stapel stammenden Emission nimmt beim Übergang von 2 auf 5 SML-Wiederholungen um 83 % zu, die Intensität der GaAs-Lumineszenz bei ~1,42 eV dagegen ab. Die Ursache für die geringe Intensität der SML-Emission der Probe mit dem 2-fach SML-Stapel ist die geringe Lokalisation der Ladungsträger, aufgrund der geringen Dicke der Struktur. Die Lokalisierung der Elektronen kann als < 21 meV abgeschätzt werden und ist damit kleiner als  $k_BT$  (25 meV). Mit zunehmender Anzahl der SML-Wiederholungen nimmt die Lokalisierungsenergie der Ladungsträger und damit die strahlende Rekombination in den SML-Stapeln zu.

Für den 20-fach SML-Stapel ergibt sich im Vergleich zum 10-fach SML-Stapel eine Abnahme der integrierten Intensität um 50 %. Diese Abnahme ist ein Zeichen dafür, dass sich bereits zwischen 10 und 20 SML-Wiederholungen Defekte ausbilden, die effektive nichtstrahlende Rekombinationskanäle für die Ladungsträger darstellen. Der 20-fach SML-Stapel besitzt eine Dicke von 19 nm und liegt damit unter der abgeschätzten kritischen Schichtdicke. Wahrscheinlich varriert der In-Gehalt aufgrund der SML-Deposition lokal und weicht damit von der vereinfachenden Annahme eines homogenen In-Gehaltes ab. Dadurch ergeben sich auch Schwankungen in der kritischen Schichtdicke des SML-Stapels. Die Dicke des 30-fach SML-Stapeles beträgt 28 nm und damit innerhalb des Bereiches der abgeschätzten kritischen Schichtdicken.

Die Übergangsenergie nimmt mit steigender Anzahl der Wiederholungen ab. Dies entspricht den Erwartungen und lässt sich durch die Zunahme der räumlichen Ausdehnung der Quantenstruktur in Wachstumsrichtung erklären. Durch die Variation der SML-Wiederholungen konnte für die SML-Stapel ein Emissionsbereich von 910 nm bis 1010 nm eingestellt werden. Das Überschreiten einer, vom mittleren In-Gehalt der Struktur abhängigen, kritischen Schichtdicke führt zur deutlichen Abnahme der Lumineszenzintensität.

#### 5.1.3 Einfluss der Wachstumstemperatur

Die Wachstumstemperatur beeinflusst die Wachstumsvorgänge in außerordentlich komplexer Weise und ist ein wesentlicher Parameter der Epitaxie. Mit der Wachstumstemperatur ändern sich die Zerlegung der Ausgangsstoffe, die Partialdrücke der beteiligten Stoffe, gegebenenfalls die Oberflächenrekonstruktion, die Kinetik der Oberflächenatome, die Thermodynamik und die Interdiffusion unterschiedlicher Atome innerhalb des Kristalls. Diese Änderungen folgen im Allgemeinen exponentiellen Abhängigkeiten. Die Änderung der Wachstumstemperatur sollte insbesondere die Bildung und die Anordnung der 2D Inseln beeinflussen.



Abb. 5.4: PL-Spektren von SML-Stapeln mit 10 × (0,5 ML InAs und 2,7 ML (460 °C, 500 °C) bzw. 2,5 ML (480 °C) GaAs) bei variierter Wachstumstemperatur der SML, aufgenommen bei Raumtemperatur und mit niedriger Anregungsdichte.

Zur Untersuchung des Einflusses der Wachstumstemperatur auf die Eigenschaften der SML-Stapel wurde eine Probenserie mit jeweils einem 10-fach SML-Stapel mit 0,5 ML InAs und nominell 2,7 ML GaAs bei 500 °C, 480 °C und 460 °C gewachsen. Die Schichtdicken wurden für jede Probe mittels Röntgendiffraktometrie eingestellt, trotzdem zeigten nachträglich durchgeführte Röntgenuntersuchungen für die bei 480 °C hergestellten SML-Stapel eine Abweichung der GaAs-Zwischenschichtdicke um -0,2 ML von der gewünschten Dicke.

Bei 500 °C und darunter befindet man sich für das Wachstum von GaAs mit TMGa und AsH<sub>3</sub> im kinetisch limitierten Bereich. Um die Wachstumsrate des GaAs konstant bei 0,5 ML/s zu halten, muss beim Absenken der Temperatur entsprechend der TMGa-Fluss erhöht werden. Bei einer Wachstumstemperatur von 460 °C war das aufgrund der Konfiguration der Anlage nicht mehr möglich. Deshalb wurde TEGa anstatt TMGa verwendet. TEGa hat den Vorteil, dass seine Pyrolyse-Temperatur deutlich geringer ist als die von TMGa (es ist bereits bei ca. 300 °C vollständig zerlegt [Yos85]). Zwei bei 500 °C gewachsene Vergleichsstrukturen mit TMGa bzw. TEGa als Gallium Vorläufersubstanz und ansonsten gleichen Wachstumsparametern zeigten keine Unterschiede in ihren PL-Eigenschaften.

In Abbildung 5.4 sind die Raumtemperatur-PL-Spektren der Probenserie gezeigt. Die Spektren unterscheiden sich in ihrer Form nicht oder nur sehr gering. Die Verschiebung der energetischen Lage des Maximums der Emission der bei 480 °C gewachsenen Probe, die auf die Abweichung der GaAs Zwischenschichtdicke zurückgeführt werden kann, beträgt 15 nm bzw. 19 meV und entspricht damit den in Abschnitt 5.1.1 getätigten Beobachtungen.

Die Halbwertsbreite für die bei 480 °C gewachsene Probe auf von 21 meV hat im Gegensatz zu den 17 meV der beiden anderen Proben zugenommen. Man erwartet eine weitere Zunahme der Halbwertsbreite für die bei 460 °C hergestellte Probe, da deren Anstieg wahrscheinlich auf eine Zunahme von Kompositionsfluktuationen innerhalb der SML-Struktur zurückzuführen ist, welche durch die verringerte In-Diffusion hervorgerufen wird. Ein derartiger Anstieg wurde nicht beobachtet. In Abschnitt (5.2.2) wird nochmals ausführlicher auf den Einfluss der Wachstumstemperatur eingegangen.

#### 5.1.4 Einfluss der Wachstumsunterbrechung

Eine Wachstumsunterbrechung erlaubt es den Atomen auf der Oberfläche sich umzuordnen, da im Allgemeinen davon auszugehen ist, dass die energetisch günstigste Konfiguration nicht sofort nach der Deposition erreicht wird. Wie im vorigen Kapitel gezeigt wurde, ist die Wachstumsunterbrechung zwischen der QP-Schicht und der, die QPe bedeckenden, GaAs Schicht ein entscheidender Wachstumsparameter für die Eigenschaften von SK-QPen. Während der Wachstumsunterbrechung migriert das Material aus der Benetzungsschicht zu den entstehenden und wachsenden QPen bzw. von kleinen zu großen QPen, d. h. die Wachstumsunterbrechung beeinflusst entscheidend die Bildung, die Dichte und die Größe von SK-QPen.

Für das Wachstum von InGaAs/GaAs QFen gibt es dagegen unterschiedliche Beobachtungen. Zum einem wird berichtet, dass eine Wachstumsunterbrechung vor und nach dem Abscheiden des InGaAs QFes zu einer geringeren Halbwertsbreite führt [Yoo93]. Als Grund für die Reduzierung der Halbwertsbreite werden Umordungsprozesse während der Wachstumsunterbrechung genannt, welche zur Glättung der Grenzflächen führen. Demgegenüber wird eine Zunahme der Halbwertsbreite bei einer Wachstumsunterbrechung von 90 s vor und nach dem Abscheiden von InGaAs gegenüber einer von 5 s vor und keiner Wachstumsunterbrechung nach dem Abscheiden des InGaAs berichtet [Bot96]. Die Zunahme der Halbwertsbreite wird durch einen Zunahme von Rauhigkeiten an der unteren Grenzfläche begründet. Außerdem wird angenommen, dass eine verstärkte Oberflächendiffusion der In-Atome, welche, um die Verspannungsenergie der InGaAs-Schicht zu minimieren, die Bildung von 3D Inseln fördert, zusätzlich zu einem Anstieg der Halbwertsbreite führt.

Beim Wachstum von SML-Stapeln sollte sich eine Variation der Wachstumsunterbrechung insbesondere auf die Bildung der ersten Lage von 2D Inseln und somit, im Fall von vertikaler struktureller Kopplung, auf die Eigenschaften und die Anordnung der Inseln in den folgenden Lagen auswirken. Deshalb wurde der Einfluss der Wachstumsunterbrechung nach der Deposition der InAs-SML auf die



Abb. 5.5: PL-Spektren von SML-Stapeln mit  $10 \times (0,3 \text{ ML InAs und } 3 \text{ ML GaAs})$  bei variierter Wachstumsunterbrechung nach der InAs Deposition, aufgenommen bei Raumtemperatur und mit niedriger Anregungsdichte.

Lumineszenz der SML-Stapel untersucht. Dazu wurden 4 Proben mit einem 10-fach SML-Stapel aus 0,3 ML InAs und 3 ML GaAs bei einer Temperatur von 500 °C gewachsen. Die Wachstumsunterbrechung nach der InAs Deposition wurde, unter TBAs-Fluss zur Oberflächenstabilisierung, von 0,2 s auf 1 s, 4 s und 30 s erhöht.

In Abbildung 5.5 sind die PL-Spektren bei Raumtemperatur und niedriger Anregungsdichte dargestellt. Mit veränderter Dauer der Wachstumsunterbrechung ändern sich weder die energetische Lage, die integrale Intensität, die Peak-Intensität noch die Halbwertsbreite der Lumineszenz der SML-Stapel. Daraus folgt offensichtlich, dass die Wachstumsunterbrechung nach der Deposition von InAs keinen Einfluss auf die Lumineszenz der in dieser Arbeit hergestellten SML-Stapel hat. Der finale Zustand der Anordnung der 2D Inseln nach der SML-Deposition wird instantan oder zumindest innerhalb sehr kurzer Zeit (bei t<sub>WU</sub> < 0,2 s) erreicht.

#### 5.1.5 Einfluss des V/III-Verhältnisses

In diesem Abschnitt wird der Einfluss des V/III-Verhältnisses auf die Lumineszenz der SML-Stapel untersucht. Bei der Herstellung von QPen im SK Wachstumsmodus ist das V/III-Verhältnis ein Parameter, der die Emission des QP-Ensembles entscheidend beeinflussen kann. So zeigten Untersuchungen von Heitz u. a., dass eine Erhöhung des V/III-Verhältnisses zu einem Anstieg der QP-Größe und damit zu einer Verschiebung der Emissionswellenlänge zu geringeren Energien führt [Hei98a]. Dies wird mit einer erhöhten Oberflächendiffusion der Indiumatome durch die Erhöhung des V/III-Verhältnisses erklärt.



Abb. 5.6: Normalisierte Wachstumsraten in Abhängigkeit vom V/III-Verhältnis: blau InAs, rot GaAs, bestimmt aus der In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As Schicht, schwarz GaAs bestimmt aus der GaAs Schicht.

In Voruntersuchungen wurde festgestellt, dass die Wachstumsrate von GaAs bei 500 °C vom V/III-Verhältnis abhängig ist. Es wurden 10-fach  $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ -Übergitter mit V/III-Verhältnissen von 5, 10 und 20 gewachsen. Anschließend wurden die Schichtdicken und die Komposition des  $In_xGa_{1-x}As/GaAs$ -Übergitters mit Röntgendiffraktometrie bestimmt. Dabei setzt sich die Wachstumsrate des ternären Halbleiters  $In_xGa_{1-x}As$  aus der Summe der Wachstumsraten der binären Halbleiter InAs und GaAs zusammen.

Die Wachstumsraten von InAs und GaAs in Abhängigkeit vom V/III-Verhältnis sind in Abbildung 5.6 dargestellt. Sie zeigt, dass sich die InAs-Wachstumsrate (blau) annähernd konstant gegenüber den gewählten Variationen des V/III-Verhältnisses verhält. Eine weitere Reduktion des V/III-Verhältnisses würde wahrscheinlich auch für InAs zu einer Abnahme der Wachstumsrate führen. Im Gegensatz dazu nimmt die GaAs-Wachstumsrate (schwarz und rot, wobei sich schwarz aus der GaAs-Schicht und rot aus der In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As-Schicht ergibt) mit sinkendem V/III-Verhältnis ab. Zusätzlich ist ein Unterschied im Verhalten der Wachstumsrate von GaAs, welche sich aus der ternären In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As-Schicht ergibt, zu der Wachstumsrate der binären GaAs-Schicht zu beobachten.

Obwohl nach Larsen u. a. [Lar89] TMGa bei ca. 450 °C vollständig zerlegt sein sollte (die Zerlegung hängt u. a. auch von Reaktorgeomentrie, -druck, und Gesamtfluss ab), scheint hier die Zerlegung bei 500 °C nicht vollständig zu sein. Die Zugabe von TBAs verstärkt die Zerlegung von TMGa und eine Verringerung des TBAs/TMGa-Verhältnisses wirkt sich folglich negativ auf die Zerlegung von TMGa aus. Daraus resultiert die Abnahme der GaAs-Wachstumsrate. Die Wachstumsrate von InAs zeigt dagegen in dem untersuchten Bereich keine wesentliche Abhängigkeit vom V/III-Verhältnis. Der Grund dafür liegt in der besseren thermischen



Abb. 5.7: PL-Spektren von SML-Stapeln mit  $10 \times (0,3 \text{ ML InAs und } 3 \text{ ML GaAs})$  bei variiertem V/III-Verhältnis, aufgenommen bei Raumtemperatur und mit niedriger Anregungsdichte.

Zerlegung von TMIn, welches schon bei  $310 \,^{\circ}$ C vollständig zerlegt sein sollte [Buc88]. Mit der Anwesenheit von TMIn ergibt sich ein anderes Verhalten für die GaAs-Wachstumsrate, die aus der Dicke und Komposition der In<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As-Schicht bestimmt wurde.

In Abbildung 5.7 sind die PL-Spektren, aufgenommen bei Raumtemperatur und mit niedriger Anregungsdichte, zweier SML-Stapel die mit unterschiedlichem V/III-Verhältnissen hergestellt wurden gezeigt. Die Proben bestehen jeweils aus einem bei 500 °C gewachsen 10-fach SML-Stapel. Dabei wurden 0,3 ML InAs und 3 ML GaAs abwechselnd mit einer Wachstumsunterbrechung von einer Sekunde nach der InAs-Deposition abgeschieden. Es wurde eine Probe mit einem V/III-Verhältnis von 20 und eine Probe mit einem V/III-Verhältnis von 5 jeweils für InAs und GaAs gewachsen. Die Abscheidedauer der GaAs Zwischenschicht für die Probe mit dem niedrigen V/III-Verhältnis wurde angepasst, um gleiche Schichtdicken und damit auch die Vergleichbarkeit zwischen den beiden Proben zu gewährleisten.

In den PL-Spektren (Abb. 5.7) ist kein Einfluss des V/III-Verhältnisses auf die Lumineszenz der SML zu erkennen. Die Emission der Proben unterscheidet sich weder in der Intensität noch in ihrer Halbwertsbreite. Die geringe Abweichung in der energetischen Lage der Maxima ist vermutlich auf geringe Abweichungen in den Schichtdicken zurückzuführen. Auf eine weitere Reduktion des V/III-Verhältnisses (< 5) wurde verzichtet, da dass Wachstum dann noch stärker durch das Angebot der Gruppe V-Ausgangsstoffe limitiert wäre und die Ausbildung von Punktdefekten wahrscheinlich wird.

# 5.1.6 Zusammenfassung der Einflüsse von Wachstumsparametern auf die Emissionseigenschaften von SML-Stapeln

Es wurde untersucht, in welchem Bereich die Emissionswellenlänge von SML-Stapeln eingestellt werden kann. Die Verringerung der Wachstumstemperatur zeigte lediglich eine geringe Verbreiterung der Halbwertsbreite der Lumineszenz der SML, die durch die Zunahme von Potential-Fluktuationen aufgrund der verringerten In-Diffusion erklärt werden kann. Die Variation des V/III-Verhältnisses und der Wachstumsunterbrechung zeigten dagegen keinen Einfluss auf die Lumineszenz der SML-Stapel.

Durch die Variation der Schichtdicken von InAs und GaAs konnte ein Emissionsbereich von 930 nm bis 1030 nm erreicht werden. Experimente zur Variation der SML-Wiederholungen zeigten, dass ein Emissionsbereich von 910 nm bis 1010 nm erreicht werden kann. Dabei stellen 2 SML-Wiederholungen eine Untergrenze der Variation aufgrund der geringen Lokalisation für Elektronen dar. Dagegen wird die Obergrenze, die hier bei 20 SML-Wiederholungen lag, durch die Bildung von Defekten bestimmt.

Die gezielte Optimierung von InAs- und GaAs-Schichtdicken und der Anzahl der SML-Wiederholungen ermöglicht vermutlich eine Erweiterung des nutzbaren Wellenlängenbereiches über die hier erzielten Werte hinaus. Dazu muss allerdings angemerkt werden, dass eine, mit einer Rotverschiebung der Emission verbundene, Verringerung der GaAs Zwischenschichtdicke unter die hier verwendeten 1,2–1,5 ML nicht mehr dem eigentlichen Konzept der Herstellung von QPen durch SML-Deposition entspricht.

#### 5.2 Optische und elektronische Eigenschaften von SML-Stapeln

Nach der systematischen Untersuchung des Einflusses der Variation von Wachstumsparametern auf die Lumineszenzeigenschaften der SML-Stapel werden in diesem Abschnitt deren elektronische und optische Eigenschaften untersucht und diskutiert.

# 5.2.1 Charakterisierung der Lumineszenz der SML-Stapel mittels Linienformanalyse

Um die elektronischen und optischen Eigenschaften der SML-Stapel detaillierter zu untersuchen, wurden zusätzliche PL-Messungen bei 10 K durchgeführt. Das in der folgenden Analyse exemplarisch gezeigte PL-Spektrum stammt von einem bei 500 °C gewachsene SML-Stapel mit  $10 \times (0,5 \text{ ML InAs und } 2,8 \text{ ML}$ GaAs). Die Wachstumstemperatur, die nominellen Schichtdicken und die Anzahl der SML-Wiederholungen entsprechen weitestgehend den Werten der in der Literatur [Xu03a, Mik00, Zhu99] beschriebenen Proben. Das bei 10 K und niedriger Anregungsdichte aufgenommene PL-Spektrum dieser Probe ist in Abbildung 5.8 in linearer (oben) und halblogarithmischer (unten) Darstellung gezeigt. Das Spektrum zeichnet sich durch ein einzelnes Maximum bei einer Energie von 1,346 eV mit einer Halbwertsbreite von ~4 meV aus. Untersuchungen an vergleichbaren Strukturen zeigten sehr ähnliche Ergebnisse [Mik00, Led07].



Abb. 5.8: Normalisierte PL-Spektren in linearer (oben) und halblogarithmischer (unten) Darstellung eines SML-Stapels mit  $10 \times (0.5 \text{ ML InAs und } 2,8 \text{ ML GaAs})$ , aufgenommen bei 10 K und mit niedriger Anregungsdichte, gefittet mit einer Gaußverteilung.

Unter der vereinfachten Annahme, dass die Emission des SML-Stapels einer statistischen Verteilung entspricht, wie z. B. die Emission eines QP-Ensembles, bei dem die Verbreiterung der Emission im Allgemeinen auf die statistische Verteilung der QP-Größe zurückzuführen ist [Bim98], wurde eine Gauß-Verteilung an die Emission gefittet. In der halblogarithmischen Darstellung des Spektrums ist zu erkennen, dass der mittlere Bereich des Maximums von dem Gauß-Fit sehr gut erfasst wird. Allerdings weichen die hoch- und die niederenergetische Flanke der Lumineszenz der SML von der Linienform der Gauß-Verteilung ab. Die niederenergetische Seite der Lumineszenz weicht leicht von einem linearen Verlauf ab und wird in Abschnitt 5.2.3 näher betrachtet. Dem Ursprung des zentralen Maximums und der linearen Abhängigkeit (in halblogarithmischen Darstellung) der hochenergetischen Flanke des Peaks soll im Folgenden mit Hilfe einer detaillierten Linienformanalyse auf den Grund gegangen werden.

Es wird ein QF mit Lokalisationszentren, welche durch Kompositionsfluktuationen und Grenzflächenrauigkeiten verursacht werden können, als Modellsystem gewählt. Für die theoretischen Betrachtung der Linienform wird angenommen, dass sowohl QF (2D) Zustände als auch QP (0D) zur Lumineszenz des SML-Stapels beitragen. Die Methodik der Linienformanalyse wurde aus Lumineszenzuntersuchungen an GaAs/AlGaAs Heterogrenzflächen übernommen [Chr88, Chr90].

#### Linienform der 0D Zustände

Durch Grenzflächenrauigkeiten und Kompositionsfluktuationen in einem QF ergeben sich laterale Potential-Fluktuationen. Diese brechen die Translationsinvarianz der Ladungsträger in der (x, y)-Ebene. Ist die Amplitude  $\Delta E$  der Potential-Fluktuationen größer als die thermische Energie  $k_B T_X$  (wobei  $k_B$  die Boltzmann-Konstante und  $T_X$  die Temperatur der Ladungsträger ist) der Exzitonen, thermalisieren diese in Potential-Minima und sind lateral lokalisiert (Abb. 5.9).



**Abb. 5.9:** Schematische Darstellung der lateralen Potential-Fluktuationen: Solange  $\Delta E$  der Potential-Fluktuation größer ist als die thermische Energie  $k_B T_X$  der Exzitonen, sind diese in den Potential-Minima lateral lokalisiert. Abbildung entnommen aus [Chr90].

Grundsätzlich sind die diskreten Eigenzustände der lokalisierten Exzitonen durch ihre Lebensdauer und statistisch verbreitert. Die Lebensdauerverbreiterung wird hier vernachlässigt und es wird nur die statistische Verbreiterung aufgrund der Potential-Fluktuationen berücksichtigt. Daraus ergibt sich folgende Linienform für die exzitonische Rekombination [Chr88, Chr90]:

$$I_{ex}\left(E,\left\langle E_{g}^{QW}\right\rangle\right) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{E}}\exp\left(-\frac{\left(\left\langle E_{g}^{QW}\right\rangle - E\right)^{2}}{2\sigma_{E}^{2}}\right)$$
(5.1)

Die Gleichung entspricht einer Gaußverteilung und ist in Abbildung 5.8 an die Messpunkte angepasst. Man erhält für die Standardabweichung  $\sigma_E = 1,9 \text{ meV}$  und für die Übergangsenergie  $E_g^{QW} = 1,34635 \text{ eV}$ . Aus der Standardabweichung  $\sigma_E$  kann mit  $2\sqrt{2\ln 2}\sigma_E$  die Halbwertsbreite der Lumineszenz berechnet werden. Für das Beispiel ergeben sich 4,5 meV.

#### Linienform der 2D Zustände

In einem QF führen Grenzflächenrauigkeiten und Kompositionsfluktuationen zu statistischen Schwankungen der Übergangsenergie  $E_g^{QW}$  die durch eine Verteilungsfunktion  $P(E_g^{QW}, \langle E_g^{QW} \rangle)$  beschrieben werden können. Die reduzierte Zustandsdichte ergibt sich durch Summation über alle Energien  $E_g^{QW}$ , gewichtet mit  $P(E_g^{QW}, \langle E_g^{QW} \rangle)$ :

$$\tilde{\rho}_{red}\left(E,\left\langle E_g^{QW}\right\rangle\right) = \int_0^\infty P\left(E_g^{QW},\left\langle E_g^{QW}\right\rangle\right) \ \rho_{red}\left(E,\left\langle E_g^{QW}\right\rangle\right) dE_g^{QW} \tag{5.2}$$

Gleichung (5.2) beschreibt die statistisch verbreiterte kombinierte Zustandsdichte für den Fall einer beliebigen statistischen Verteilung von  $E_g^{QW}$ . Durch weitere Annahmen [Chr88, Chr90] wird aus  $P(E_g^{QW}, \langle E_g^{QW} \rangle) P(E_g^{QW} - \langle E_g^{QW} \rangle)$  und die Integration in Gleichung (5.2) kann auf  $-\infty$  ausgedehnt werden:

$$\tilde{\rho}_{red}\left(E,\left\langle E_g^{QW}\right\rangle\right) = \int_{-\infty}^{\infty} P\left(E_g^{QW} - \left\langle E_g^{QW}\right\rangle\right) \rho_{red}\left(E,\left\langle E_g^{QW}\right\rangle\right) dE_g^{QW}$$
(5.3)

Die Funktion  $P(E_g^{QW} - \langle E_g^{QW} \rangle)$  lässt sich durch eine Gaußfunktion annähern:

$$P\left(E_g^{QW} - \left\langle E_g^{QW} \right\rangle\right) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_E} \exp\left[-\frac{\left(E_g^{QW} - \left\langle E_g^{QW} \right\rangle\right)^2}{2\sigma_E^2}\right]$$
(5.4)

wobei  $\sigma_E$  die Standardabweichung der Verteilungsfunktion ist.

Wiederum wird der Einfluss der Lebensdauerverbreiterung gegenüber der statistischen Verbreiterung vernachlässigt. Deshalb kann für die Zustandsdichte der Subbänder eine Stufenfunktion (Zustandsdichte des QFes Abb. 2.1) eingesetzt werden:  $\rho_{red}(E, \langle E_g^{QW} \rangle) = \rho_0 \Theta(E - E_g^{QW})$ . Damit wird das Integral in Gleichung (5.3)



**Abb. 5.10:** Die Linienform der 2D Zustände, angepasst an die Messdaten.

analytisch lösbar. Das Einsetzen der Gaußfunktion ergibt:

$$\tilde{\rho}_{red}\left(E,\left\langle E_g^{QW}\right\rangle\right) = \rho_0 \frac{1}{2} \operatorname{erfc}\left[\frac{\langle E_g^{QW}\rangle - E}{\sqrt{2}\sigma_E}\right]$$
(5.5)

Durch die Anwendung von Boltzmann-Statistik für die thermische Besetzung der Zustände ergibt sich schließlich die Linienform für die QF-Zustände:

$$I_{QW}\left(E,\left\langle E_{g}^{QW}\right\rangle\right) = I_{0} \ erfc\left(\frac{\left\langle E_{g}^{QW}\right\rangle - E}{\sqrt{2}\sigma_{E}}\right) \exp\left(-\frac{\left\langle E_{g}^{QW}\right\rangle - E}{kT_{X}}\right)$$
(5.6)

Der erste Term des Produktes in Gleichung 5.6 folgt aus dem Integral über die Gaußfunktion (Gl. 5.3). Dabei ist die Funktion erfc(x) = 1 - erf(x) die komplementäre Fehlerfunktion (erf(x) ist das Gaußsche Fehlerintegral). Der zweite Term in Gleichung 5.6 gibt die Besetzungswahrscheinlichkeit der Zustände im QF an. Die Größe  $T_X$  gibt die Temperatur der im Rekombinationsprozess involvierten Ladungsträger an. Nichtresonante Anregung eines kalten Halbleiters durch einen Laser oder Elektronen-Strahl führt zur Bildung von "heißen" Ladungsträgern. Deren effektive Temperatur ist das Ergebnis des Gleichgewichts zwischen Energiezufuhr vom und -abgabe an das Kristallgitter. Die Ladungsträgertemperatur ist proportional zur (strahlenden) Lebensdauer der Exzitonen und ist im Allgemeinen selbst nach langen Verzögerungen höher als die Gittertemperatur [Mun83]. Sie ist ein wesentlicher Parameter, da sie die Rekombinationswahrscheinlichkeit der Exzitonen widerspiegelt [Col89].

Die an die Messdaten angepasste Linienform des QFes ist in Abbildung 5.10 dargestellt. Für die Standardabweichung und die Übergangsenergie wurden, dem Modell entsprechend, die Ergebnisse des im vorherigen Abschnitt durchgeführten Gauß-Fit verwendet ( $\sigma_E = 1,9 \text{ meV}$  und  $E_g^{QW} = 1,34635 \text{ eV}$ ). Aus dem 2D Fit ergibt sich hier eine Ladungsträgertemperatur von  $T_x = 36 \text{ K}$ .

#### Linienform der SML-Stapel

Die endgültige Linienform des SML-Stapels ergibt sich aus der gewichteten Summe der beiden oben hergeleiteten Gleichungen (5.1 und 5.6):

$$I_{tot}\left(E,\left\langle E_{g}^{QW}\right\rangle\right) = I_{2D} \cdot erfc\left(\frac{\left\langle E_{g}^{QW}\right\rangle - E}{\sqrt{2}\sigma_{E}}\right) \exp\left(\frac{\left\langle E_{g}^{QW}\right\rangle - E}{-kT_{X}}\right) + I_{0D} \cdot \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{E}} \exp\left(\frac{\left(\left\langle E_{g}^{QW}\right\rangle - E\right)^{2}}{-2\sigma_{E}^{2}}\right)$$
(5.7)

Wie in Abbildung 5.11 zu erkennen ist, beschreibt die theoretisch ermittelte Linienform das Maximum und die hochenergetische Seite der Lumineszenz der SML sehr gut. Die optischen Eigenschaften dieses SML-Stapels lassen sich also sehr gut als die eines QFes mit Lokalisationszentren beschreiben. Eine derartige Beschreibung wurde auch von Xu u. a. aufgrund von strukturellen (TEM) [Xu03a] und spektroskopischen (anregungsdichteabhängige  $\mu$ PL) Untersuchungen [Xu03b] von SML-Stapeln gewählt.

Aus dem kompletten Fit erhält man zusätzlich zur Größe der Übergangsenergie die Ladungsträgertemperatur  $T_X$ , die Standardabweichung  $\sigma_E$  und das Verhältnis  $\beta = I_{0D}/I_{2D}$  der Intensitäten aus den Übergängen der 0D- und denen der 2D Zustände. Für die folgenden Betrachtungen wurden die Fehler dieser Größen mit  $\Delta E_g^{QW} = 0, 1 \text{ meV}, \Delta \sigma_E = 0, 2 \text{ meV}, \Delta T_X = 1 \text{ K} \text{ und } \Delta \beta / \beta = 12\%$  abgeschätzt. Es ergibt sich kein signifikanter Einfluss der Fehler auf die Schlussfolgerungen der folgenden Untersuchungen.



Abb. 5.11: Die vollständige Linienform (durchgezogen) ergibt sich aus der gewichteten Summe der 2D (Striche) und der 0D Zustände (Punkte).

#### 5.2.2 Anwendung der Linienformanalyse auf ausgewählte Probenserien

Aus der Linienformanalyse der einzelnen SML-Stapel ergeben sich Werte für die Standardabweichung der Verteilung, die Ladungsträgertemperatur und das 0D/2D-Verhältnis. Im folgenden Abschnitt wird der Einfluss der Variation von Wachstumsparametern auf diese Werte dargestellt. Dabei werden die entstehenden Zusammenhänge diskutiert, um weitere Rückschlüsse auf die elektronischen und optischen Eigenschaften der SML-Stapel ziehen zu können.

#### 0,3 ML InAs und Variation der GaAs Zwischenschichtdicke

Die Raumtemperatur aufgenommenen PL-Spektren dieser Probenserie wurden bereits in Abschnitt 5.1.1 gezeigt. An dieser Stelle werden nun die bei 10 K gemessenen PL-Spektren (Abbildung 5.12) dieser Serie analysiert. Die Maxima der Emission bei 1,491 eV und 1,513 eV stammen von der (D,A)-Paar- bzw. der freien Exziton-Rekombination in GaAs. Auf der niederenergetischen Seite der Maxima der Emission der SML-Stapel befindet sich im Abstand von  $\sim 32$  meV ein Feature mit geringer Intensität. Aufgrund seines energetischen Abstandes zum Maximum wird dieses LO-Phononen assistierter Lumineszenz (29 meV bis 36 meV im verspannten InAs/GaAs-System [Hei00]) zugeordnet.

Im Folgenden werden die Ergebnisse der Linienformanalyse (Abbildung 5.13) der einzelnen PL-Spektren bei 10 K ausgewertet und diskutiert. Im linken Teil der Abbildung sind die Übergangsenergie und die Halbwertsbreite in Abhängigkeit von der GaAs Zwischenschichtdicke aufgetragen. Wie bereits im Abschnitt 5.1.1



**Abb. 5.12:** PL-Spektren von SML-Stapeln mit 10×(0,3 ML InAs und *1,2–3,5* ML GaAs), aufgenommen bei 10 K und mit niedriger Anregungsdichte.



Abb. 5.13: Ergebnisse der Linienformanalysen der Tieftemperatur PL-Spektren der SML-Stapel mit  $10 \times (0,3 \text{ ML InAs und X ML GaAs})$ . Links die Übergangsenergien und die Halbwertsbreiten der Maxima, rechts die Ladungsträgertemperaturen und die Intensitätsverhältnisse  $\beta$  der 0D zu 2D Zustände in Abhängigkeit von der GaAs Zwischenschichtdicke. Linien dienen nur als Orientierungshilfe.

gezeigt und erläutert wurde, steigt die Übergangsenergie mit zunehmender Dicke der GaAs Zwischenschicht.

Die Halbwertsbreite liegt zwischen 4,2 meV und 6,5 meV, wobei tendenziell eine Abnahme der Halbwertsbreite mit zunehmender Dicke der GaAs Zwischenschicht zu beobachten ist. Da die Halbwertsbreite ein Maß für den Einfluss der Potential-Fluktuationen ist, nimmt dieser, mit abnehmender Dicke der GaAs Zwischenschicht und somit zunehmender mittlerer In-Konzentration in den SML-Stapeln, offenbar zu.

Im rechten Teil der Abbildung 5.13 ist das Verhältnis der Intensitäten der 0D und 2D Emission und die Ladungsträgertemperatur aufgetragen. Die Ladungsträgertemperatur variiert kaum und liegt zwischen 42 K und 44 K (also innerhalb der Fehlergrenzen um 43 K). Die Änderung der GaAs Zwischenschichtdicke keinen Einfluss auf die Ladungsträgertemperatur.

# 0,5 ML InAs und Variation der GaAs Zwischenschichtdicke bei Wachstumstemperaturen von 480 $^\circ\text{C}$ und 500 $^\circ\text{C}$

In Abbildung 5.14 sind die bei bei 10 K gemessenen PL-Spektren von SML-Stapeln mit  $10 \times (0,5 \text{ ML InAs und } 1,5-4 \text{ ML GaAs})$ , hergestellt bei 500 °C (links) und 480 °C (rechts) Wachstumstemperatur, gezeigt. Die Ergebnisse der detaillierten Auswertung der Spektren mit Hilfe der Linienformanalyse sind in Abbildung 5.15 graphisch dargestellt.

Im linken Teil der Abbildung 5.15 sind die Halbwertsbreiten in Abhängigkeit der GaAs Zwischenschichtdicke aufgetragen. Beide Probenserien zeigen ein sehr ähnliches grundsätzliches Verhalten. Die Proben mit der geringsten GaAs Zwi-



Abb. 5.14: PL-Spektren von SML-Stapeln mit 10 × (0,5 ML InAs und 1,5 − 4 ML GaAs) bei 500 °C (links) und 480 °C (rechts) Wachstumstemperatur der SML, aufgenommen bei 10 K und mit niedriger Anregungsdichte.

schenschichtdicke (1,5 ML) besitzen die größten Halbwertsbreiten. Diese Proben haben den insgesamt dünnsten SML-Stapel und aufgrund des größten mittleren In-Gehaltes gleichzeitig die tiefste Lokalisation der Ladungsträger. In Übereinstimmung dazu werden auch in dünnen QFen größere Halbwertsbreiten beobachtet als in dicken, was auf den gesteigerten Einfluss von Kompositions- und Dickenfluktuationen zurückgeführt werden kann [Ber88]. Bereits geringe Schwankungen der Dicke des QFes führen zu größeren Änderungen in der Übergangsenergie, da diese quadratisch von der reziproken QF-Dicke abhängt. In den hier vorgestellten Strukturen könnte auch die, aufgrund des größeren mittleren In-Gehalts, bei gleicher relativer, größere absolute Varianz des In-Gehalts für eine größere Halbwertsbreite der Lumineszenz verantwortlich sein.

Die geringsten Halbwertsbreiten werden bei den Proben mit 2,3 ML und 2,8 ML GaAs beobachtet. Möglicherweise führt bei diesen Proben die vertikale Korrelation der 2D Inseln zu einer Reduktion der Halbwertsbreite. Ein Grund für diese Annahme ist die bei 4 ML Zwischenschichtdicke wieder geringfügig zunehmende Halbwertsbreite. Das steht im Gegensatz zu den Beobachtungen in [Ber88]. Dort wurde eine monotone Abnahme der Halbwertsbreite mit zunehmender QF-Dicke beobachtet. Zusätzlich ist in dieser Probe die nominelle In-Konzentration geringer, was ebenfalls eine geringere Halbwertsbreite zur Folge haben sollte. Grundsätzlich sind die Halbwertsbreiten der bei 480 °C gewachsenen SML-Stapel höher als die der bei 500 °C gewachsenen. Das legt nahe, dass eine geringere Wachstumstemperatur zu einer Zunahme von Potential-Fluktuationen führt.

Der Vergleich der beiden Probenserien ergibt höhere Ladungsträgertemperaturen für die bei 500 °C gewachsenen SML-Stapel. Zusätzlich ist für die SML-Stapel mit



Abb. 5.15: Ergebnisse der Linienformanalysen der Spektren mit 10×(0,5 ML InAs und 1,5– 4 ML GaAs) jeweils gewachsen bei 500 °C (schwarz) und 480 °C (rot). Links die Halbwertsbreiten und rechts die Ladungsträgertemperaturen in Abhängigkeit von der GaAs Zwischenschichtdicke. Linien dienen nur als Orientierungshilfe.

2,3 ML, 2,8 ML und 4 ML Zwischenschichtdicke bei 500 °C Wachstumstemperatur ein nicht zu erwartender Anstieg der Ladungsträgertemperatur mit zunehmender GaAs Zwischenschichtdicke zu beobachten. Für die bei 480 °C hergestellten Proben ist dieser Anstieg nicht zu erkennen. Sie verhalten sich erwartungsgemäß: Eine Abnahme der Lokalisierung resultiert in längeren Lebensdauern und damit in geringeren Ladungsträgertemperaturen. Inwieweit der Unterschied in den Ladungsträgertemperaturen zwischen den beiden Probenserien von der unterschiedlichen Wachstumstemperatur herrührt, kann an dieser Stelle nicht geklärt werden.

In Abschnitt 2.3.1 wurde auf die Theorie der vertikalen Korrelation der InAs 2D Inseln als Funktion des GaAs Zwischenschichtdicke eingegangen. Es konnte allerdings in allen drei Probenserien kein deutlicher Einfluss der GaAs Zwischenschichtdicke auf die Linienform der einzelnen Spektren festgestellt werden. Somit kann hier nicht geklärt werden, inwieweit sich die vertikale Korrelation zwischen den SML-Inseln mit der GaAs Zwischenschichtdicke ändert bzw. ob diese überhaupt vorhanden ist. Aussagen über die strukturelle vertikale Korrelation der 2D Inseln in Abhängigkeit von der GaAs Zwischenschichtdicke könnten anhand von strukturellen Untersuchungen (Querschnitts-TEM- bzw. -STM-Untersuchungen) getroffen werden. Diese lagen zum Zeitpunkt der Erstellung dieser Arbeit nicht vor.

In Abschnitt 5.2.3 wird der Einfluss der GaAs Zwischenschichtdicke noch einmal aufgegriffen und SML-Stapel mit GaAs Zwischenschichtdicken größer als 4 ML untersucht. Eine Verringerung der Zwischenschichtdicke unterhalb der hier untersuchten 1,2 bzw. 1,5 ML GaAs ist, im Rahmen des untersuchten Konzeptes der Ausbildung von QP-Strukturen durch SML-Deposition, nicht sinnvoll.

#### Variation der Wachstumstemperatur

In Abbildung 5.16 sind die bei 10 K und mit niedriger Anregungsdichte gemessenen PL-Spektren der bei Wachstumstemperaturen von 460 °C, 480 °C und 500 °C hergestellten SML-Stapel mit 10 × (0,5 ML InAs und 2,7 ML (460 °C, 500 °C) bzw. 2,5 ML (480 °C) GaAs) gezeigt. Die Ergebnisse der Linienformanalysen dieser Strukturen sind in Tabelle 5.1 aufgeführt. Das Abweichen der energetischen Lage des Maximums der Emission des bei 480 °C gewachsenen SML-Stapels wird, wie bereits in Abschnitt 5.1.3 beschrieben, durch die Abweichung der GaAs Zwischenschichtdicke hervorgerufen.

Mit abnehmender Wachstumstemperatur steigt die Halbwertsbreite von 3,6 meV auf 5,8 meV. Ob eine weitere Zunahme bei Wachstumstemperaturen unterhalb von 460 °C auftritt, konnte an dieser Stelle nicht untersucht werden. Unverhältnismäßig hohe Flüsse der Ausgangssubstanzen wären nötig, um deren schlechte thermische Zerlegung zu kompensieren und damit die Wachstumsraten konstant zu halten. Die Reduzierung der Temperatur führt zu einer geringeren Diffusion der In-Atome auf der Oberfläche [Hei98a]. Dadurch könnten die Kompositionsfluktuationen in den SML-Stapeln zunehmen, was die gezeigte Zunahme der Halbwertsbreite erklären würde. Es sind mit sinkender Wachstumstemperatur aber auch eine Zunahme von Grenzflächenrauhigkeiten oder eine breitere Verteilung der Basislängen der 2D Inseln denkbar.



Abb. 5.16: PL-Spektren von bei Wachstumstemperaturen von 460 °C (blau), 480 °C (rot) und 500 °C (schwarz) hergestellten SML-Stapeln mit 10 × (0,5 ML InAs und 2,7 ML (460 °C, 500 °C) bzw. 2,5 ML (480 °C) GaAs), aufgenommen bei 10 K und mit niedriger Anregungsdichte.
Wachstums-	Halbwerts-	Ladungsträger-	0D/2D
temperatur (°C)	breite (meV)	temperatur (K)	
460	5,8	25	2
480	5,0	27	4
500	3,6	36	7

**Tab. 5.1:** Halbwertsbreiten, Ladungsträgertemperaturen und 0D/2D-Verhältnisse in Abhängigkeit von der Wachstumstemperatur der SML-Stapel.

## Variation der Anzahl der SML-Wiederholungen

Die bei 10 K gemessenen PL-Spektren der SML-Stapel mit 2 bis 30 Wiederholungen von 0,5 ML InAs und 2,8 ML GaAs sind in Abbildung 5.17 gezeigt. Es ist, wie bereits bei Raumtemperatur, eine Zunahme der integrierten Intensität für die Proben mit einen 2-, 5- und 10-fach SML-Stapel zu beobachten. Bei 20 SML-Wiederholungen nimmt sie wieder ab. Die Abnahme der strahlenden Rekombination ist ein deutlicher Hinweis darauf, dass sich, aufgrund der zunehmenden Verspannung, zwischen 10 und 20 SML-Wiederholungen beginnend, Defekte (Versetzungen) ausbilden.

In Abbildung 5.18 sind die Ergebnisse der Linienformanalysen graphisch dargestellt. Die Linienformanalyse der Probe mit dem 30-fach SML-Stapel lieferte keine sinnvollen Ergebnisse und kann daher im Folgenden nicht betrachtet werden. In der Abbildung 5.18 sind die Übergangsenergien und Halbwertsbreiten in Ab-



**Abb. 5.17:** PL-Spektren von SML-Stapeln mit 2–30×(0,5 ML InAs und 2,8 ML GaAs), aufgenommen bei 10 K und mit niedriger Anregungsdichte.



Abb. 5.18: Ergebnisse der Linienformanalysen der PL-Spektren bei 10 K von SML-Stapeln mit variierter Anzahl der Wiederholungen. Gezeigt die Übergangsenergien und die Halbwertsbreiten der Maxima jeweils in Abhängigkeit von der Anzahl der SML-Wiederholungen. Die Linien dienen nur als Orientierungshilfe.

hängigkeit von der Anzahl der SML-Wiederholungen aufgetragen. Wie bereits in den PL-Spektren (Abb.5.3 und 5.17) zu sehen ist, nimmt die Übergangsenergie mit steigender Anzahl der SML-Wiederholungen ab. Das ist auch zu erwarten, denn mit steigender Anzahl der SML-Wiederholungen nimmt die Quantisierung und damit die Übergangsenergie ab. Dies gilt unabhängig von der Beschreibung des SML-Stapels als QF (QF-Dicke) oder QPe (QP-Höhe).

Die Halbwertsbreiten der Maxima in dieser Probenserie streuen zwischen 4,0 und 5,8 meV. Für zwei SML-Wiederholungen ergibt sich eine Halbwertsbreite von 4,4 meV die für fünf SML-Wiederholungen auf 5,8 meV ansteigt und anschließend mit zunehmender Anzahl der SML-Wiederholungen wieder abnimmt.

In QFen wurde eine exponentielle Abnahme der Halbwertsbreite mit zunehmender QF-Dicke für InGaAs/GaAs [Ber88] und für InGaAs/InAlAs [Wel85] beobachtet. Das wird damit erklärt, dass die Potential-Fluktuationen für dickere Strukturen aufgrund der Ausdehnung der Wellenfunktion weniger Einfluss haben, was in einer geringeren Halbwertsbreite resultiert. Für sehr dünne Strukturen (2-fach SML-Stapel) wird der Einfluss der Potential-Fluktuationen durch die Ausdehnung der Wellenfunktion in die GaAs-Barrieren reduziert [Tsa86, Ber88]. Diese Erklärungen könnten auch für die hier untersuchten SML-Stapel zuzutreffen.

## 5.2.3 Niederenergetische Flanke der Lumineszenz

Nachdem im Abschnitt 5.2.1 eine umfassende theoretische Beschreibung des Maximums und der hochenergetischen Flanke der Lumineszenz der SML-Stapel gelang, soll in diesem Abschnitt die niederenergetische Flanke der Lumineszenz diskutiert werden.

#### GaAs Zwischenschichtdicke größer 4 ML

Die vertikale strukturelle Korrelation der SML-Inseln sollte eine Funktion der GaAs Zwischenschichtdicke sein (Abschnitt 2.3). In den Abschnitten 5.1.1 und 5.2.2 wurden die Ergebnisse der Variation der Dicke der GaAs Zwischenschichten von 1,5 ML auf 4 ML gezeigt, die keine signifikante Änderung der Linienform zur Folge hatte. An dieser Stelle wird die Auswirkung einer weiteren Erhöhung der GaAs Zwischenschicht auf Dicken größer 4 ML mit dem Ziel der elektronischen oder strukturellen Entkopplung der einzelnen SML untersucht. Die Proben bestehen aus 10-fach SML-Stapeln, gebildet aus 0,5 ML InAs und GaAs Zwischenschichten von jeweils 4, 8, 16 und 32 ML Dicke.



**Abb. 5.19:** PL-Spektren von SML-Stapeln mit  $10 \times (0,5 \text{ ML InAs und } 4-32 \text{ ML GaAs})$ , aufgenommen bei 10 K und mit niedriger Anregungsdichte.

Die bei 10 K aufgenommenen PL-Spektren sind in Abbildung 5.19 gezeigt.<sup>1</sup> In der Abbildung ist, mit zunehmender GaAs Zwischenschichtdicke, eine Verschiebung der Maxima zu höheren Energien zu beobachten. Auf der niederenergetischen Seite bildet sich mit steigender Dicke der GaAs Zwischenschicht aus der Schulter

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Die Lumineszenz der Probe mit der 4 ML dicken GaAs Zwischenschicht ist aufgrund einer geringen Abweichung der Schichtdicke im Vergleich zu Abschnitt 5.2.2 geringfügig zu höheren Energien verschoben.

(4 ML) ein deutliches zweites Maximum (16 und 32 ML) aus. Die Andeutung einer Schulter konnte bereits im vorherigen Abschnitt (5.2.1) beobachtet werden. Ein wesentliches Merkmal des niederenergetischen Maximums (im Folgenden Maximum B) ist, dass es sich, mit zunehmender GaAs Zwischenschichtdicke, mit dem *Haupt*-Maximum (im Folgenden Maximum A) in einem festen Abstand von 12 meV zu größeren Energien verschiebt und dabei an Intensität zunimmt. Ziel der folgenden Untersuchungen war es, die Abhängigkeit des niederenergetischen Maximums von strukturellen Variationen aufzuzeigen und den Ursprung dieser Lumineszenz zu identifizieren.

## Variation der Anzahl der SML-Wiederholungen bei 32 ML GaAs Zwischenschicht

Um weitere Informationen über die Ursache des Auftretens und das Verhalten von Maximum B zu gewinnen, wurde der Einfluss der Anzahl der SML-Wiederholungen auf die Emission der SML-Stapel untersucht. Die Proben dieser Serie bestehen aus 0,5 ML InAs und 32 ML GaAs. Die Anzahl der SML wurde von 2 über 3, 5, 10 und 20 auf 30 erhöht. In Abbildung 5.20 sind die Tieftemperatur-PL-Spektren bei niedriger Anregungsdichte gezeigt. Bis zu einer SML-Anzahl von 5 schiebt Maximum A wie erwartet, und bereits in Abschnitt 5.2.2 beobachtet, zu niedrigeren Energien. Wird die Anzahl der SML-Wiederholungen größer als 5 tritt keine weitere signifikante Verschiebung des Maximums A zu niedrigeren Energien mehr auf. Stattdessen nimmt die anfänglich beobachtete Schulter bei den Proben mit 2 und 3 SML-Wiederholungen an Intensität zu und bildet sich bei 5 SML-Wiederholungen



**Abb. 5.20:** PL-Spektren von SML-Stapeln mit 2–30×(0,5 ML InAs und 32 ML GaAs), aufgenommen bei 10 K und mit niedriger Anregungsdichte.

<b>Tab. 5.2:</b> Intensitätsverhältnis $I_A/I_B$ bei niedriger Anregungs-	Anzahl SML	$I_A/I_B$
dichte für Proben mit 5, 10, 20 und 30 SML-	5	62
Wiederholungen	10	15
	20	10
	30	1,2

zu Maximum B aus. Ein weiterer Anstieg in der Anzahl der SML-Wiederholungen resultiert in einer weiteren Intensitätszunahme von Maximum B.

In Tabelle 5.2.3 sind die Intensitätsverhältnisse  $I_A/I_B$  bei niedriger Anregungsdichte in Abhängigkeit von der Anzahl der SML-Wiederholungen gezeigt. Mit zunehmender Zahl der SML-Wiederholungen nimmt das Verhältnis  $I_A/I_B$  ab, bzw. Maximum B nimmt an Intensität zu. Wird die Anregungsdichte erhöht, nimmt das Verhältnis der Intensitäten der untersuchten Proben wieder zu, bzw. Maximum A nimmt an Intensität zu. Das heißt, das Maximum A der dominierende strahlende Rekombinationskanal bleibt.

## Diskussion der Untersuchungen der niederenergetischen Flanke

Im Folgenden werden mögliche Ursachen für das Verhalten der Lumineszenz auf der niederenergetischen Flanke der Lumineszenz der SML-Stapel benannt und mit den beobachteten Abhängigkeiten verglichen.

Zunächst wird nochmals die niederenergetische Lumineszenz von SML-Stapeln mit dünner GaAs Zwischenschicht (1,5 ML, 2,3 ML, 2,8 ML und 4 ML) betrachtet. Die Spektren bei 10 K dieser Proben, gebildet aus einem 10-fach SML-Stapel mit 0,5 ML InAs, sind in Abbildung 5.21 gezeigt. Die Probe mit der dünnsten GaAs Zwischenschicht (1,5 ML) besitzt in halblogarithmischer Darstellung eine lineare Flanke auf der niederenergetischen Seite. Mit steigender Dicke der GaAs Zwischenschicht (2,3 und 2,8 ML) bildet sich diese zu einer Schulter aus. Eine mögliche Ursache für die lineare Flanke bei dünnen GaAs Zwischenschichten, ist die Existenz sogenannter *tail states*. Das sind niederenergetische Zustände, welche durch Potential-Fluktuationen bzw. Störstellen verursacht werden. Sie bewirken einen exponentiell abfallenden Band-Ausläufer der Zustandsdichte unterhalb der *mobility edge* [Kli97, Klo99]. Solche Ausläufer auf der niederenergetischen Seite wurden unter anderem in [AO98, Poc05] beobachtet.

Ist der Abstand zwischen zwei QFen so gering, dass ein Überlapp der Wellenfunktionen auftritt, kommt es zu einer Aufspaltung der Energieniveaus. Diese Aufspaltung ist analog zur Aufspaltung einzelner atomarer Energieniveaus bei Atomen im Kristallverband. Es besteht also die Möglichkeit, dass bei geringen GaAs Zwischenschichtdicken aufgespaltene Energieniveaus existieren, die für die Emission eines



Abb. 5.21: PL-Spektren von SML-Stapeln mit  $10 \times (0.5 \text{ ML InAs und } 1.5 - 4 \text{ ML GaAs})$ , aufgenommen bei 10 K und mit niedriger Anregungsdichte.

niederenergetischen Maximums verantwortlich sein könnten. Allerdings wird hier ein grundsätzlich gegensätzliches Verhalten beobachtet, Maximum B bildet sich mit zunehmender Dicke der GaAs Zwischenschicht aus. Daher kann das Maximum B nicht mit die Aufspaltung von Energieniveaus aufgrund von Kopplungsprozessen zwischen den einzelnen SML erklärt werden.

Eine weitere mögliche Ursache für Maximum B kann die Rekombination von Exzitonen unter Emission eines Photons und gleichzeitiger Generierung eines optischen Phonons sein. Diese Emission ist dann auf der niederenergetischen Seite des SML-Maximums in einem festen Abstand zu finden. Die typische Energien für optische Phononen liegen im verspannten InAs/GaAs System im Bereich von 29 bis 36 meV [Hei00] und werden auch ebenda in den hier vorgestellten Untersuchungen beobachtet.

Auch an die InAs SML gebundene Störstellen könnten für das Verhalten des niederenergetischen Maximums verantwortlich sein. Bei sehr dünnen GaAs Zwischenschichten (1,5 ML) würde ein Überlapp der Wellenfunktionen der Störstellen ebenfalls einen exponentiell abfallenden Band-Ausläufer in der Zustandsdichte hervorrufen (*tail states*). Sinkt der Überlapp der Wellenfunktionen mit zunehmender Dicke der GaAs Zwischenschicht, ergeben sich  $\delta$ -funktionsähnliche Zustände in der Zustandsdichte. Diese würden bewirken, dass ein zweites Maximum der Emission der SML-Stapel entsteht.

Bei der Diskussion der vertikalen elektronischen Kopplung der Inseln muss der Exziton-Bohrradius mit einbezogen werden. Dieser beträgt in GaAs 11 nm [Fu99]. Die dickste in dieser Arbeit gewachsene Zwischenschicht besteht aus 32 ML, also 9 nm GaAs. Das heißt eine vertikale elektronische Kopplung von 2 SML-Schichten sollte noch gegeben sein. Das erklärt aber, warum bei sehr dicken Strukturen (10-, 20-, und 30-fach SML-Stapel mit 32 ML dicker GaAs Zwischenschicht) keine weitere Verschiebung der Emission der SML-Stapel zu niedrigeren Energien mehr auftritt (Abb. 5.20). Mit zunehmender Dicke der SML-Stapel nimmt die Quantisierung der Zustände ab und die elektronischen Eigenschaften werden denen eines Volumenhalbleiters ähnlicher.

Als Ursache für das Auftreten des zweiten Maximums B werden an die InAs Submonolagen gebundene Störstellen angenommen. Zeitaufgelöste Messungen können Aufschluss über die An- und Abklingzeiten des niederenergetischen Zustandes geben und damit helfen, seine Ursache genauer zu bestimmen.

## 5.2.4 Temperaturabhängiges Verhalten der Lumineszenz der SML-Stapel

Zur weiteren Untersuchung elektronischer und optischer Eigenschaften der SML-Stapel wurden exemplarisch temperaturabhängige PL-Untersuchungen an der Probe mit  $10 \times (0,5$  ML InAs und 2,8 ML GaAs) durchgeführt. Die Spektren sind in Abbildung 5.22 gezeigt. Mit zunehmender Temperatur verschiebt sich das Maximum erwartungsgemäß zu geringeren Energien. Die Linienform des Maximums bleibt bis etwa 54 K erhalten. Bei Temperaturen oberhalb von 54 K bildet sich eine Schulter auf der hochenergetischen Seite des Maximums heraus die mit zunehmender Temperatur immer deutlicher wird. Ursache ist die thermische Besetzung von angeregten Zuständen.



**Abb. 5.22:** Temperaturabhängige PL-Spektren eines SML-Stapels mit  $10 \times (0,5 \text{ ML InAs} \text{ und } 2,8 \text{ ML GaAs})$ , aufgenommen mit niedriger Anregungsdichte

## Temperaturabhängigkeit der Übergangsenergie

Um die Temperaturabhängigkeit der Emission genauer zu charakterisieren, wurde die Übergangsenergie in Abhängigkeit von der Temperatur aufgetragen (Abb. 5.23). Typischerweise nimmt die Bandlücke mit steigender Temperatur ab. In der Abbildung sind zusätzlich die Bandlücken-Verläufe von InAs und GaAs aufgetragen, die mit Hilfe der Varshni-Formel [Var67] beschrieben werden können:

$$E_g(T) = E_0 - \frac{A \cdot T^2}{T + B} \tag{5.8}$$

 $E_g(T)$  ist die temperaturabhängige Energie der Bandlücke,  $E_0$  die Größe der Bandlücke bei 0 K (für die Abbildung wurde  $E_0$  auf 1,347 eV gesetzt), A (0,276 meV/K für InAs und 0,58 meV/K für GaAs) und B (93 K für InAs und 200 K für GaAs) sind die Varshni-Parameter [Vur01].

Bei Temperaturen zwischen 10 K und 30 K ist kaum eine Abnahme der Übergangsenergie zu beobachten und die Energien liegen geringfügig über den Bandverläufen von InAs und GaAs. Oberhalb von 30 K nimmt die Übergangsenergie des SML-Stapels mit steigender Temperatur ab und die gemessenen Energien liegen bis 130 K nahe am Bandverlauf von InAs. Ungefähr bei 160 K liegen die Messwerte in der Mitte der temperaturabhängigen Bandlücken-Verläufe von InAs und GaAs und nähern sich bei höheren Temperaturen dem Verlauf der Bandlücke von GaAs an.

Auffällig ist, dass der temperaturabhängige Verlauf der Übergangsenergie des SML-Stapels keinen sogenannten *s-shape*, eine Rot-Blau-Rot-Verschiebung der Übergangsenergie mit steigender Temperatur, aufweist. Diese Charakteristik tritt sowohl bei QPen [Hei98b] als auch in QFen mit Kompositions-Fluktuationen auf



**Abb. 5.23:** Temperaturabhängiges Verhalten der Übergangsenergie des SML-Stapels mit  $10 \times (0,5 \text{ ML InAs und } 2,8 \text{ ML GaAs})$  (Punkte) sowie der Bandlücken des InAs (rote Kurve) und des GaAs (blaue Kurve) nach Gleichung 5.8.

und beschreibt die Lokalisierung und Thermalisierung von Exzitonen in Potential-Minima. Exzitonen sind bei niedrigen Temperaturen in Potential-Minima lokalisiert, da ihre thermische Energie nicht ausreicht, um die Potential-Barrieren zu überwinden (engl. *exciton freeze-out*). Dadurch erfährt die Übergangsenergie die sogenannte Rot-Blau-Rot-Verschiebung und beschreibt einen S-förmigen temperaturabhängigen Verlauf.

## Temperaturabhängigkeit der integrierten Intensität

Zur Bestimmung der thermischen Aktivierungsprozesse und -Energien wurde die integrierte Intensität über die inverse Temperatur halblogarithmisch aufgetragen (Abb. 5.24). Die Intensität nimmt mit sinkender Temperatur zu und sättigt bei ungefähr 27 K. Um die Aktivierung der Ladungsträger aus dem Grundzustand zu untersuchen, wurde eine Gauß-Kurve konstanter Halbwertsbreite an die einzelnen Spektren gefittet. Dieser Ansatz wurde gewählt, da die Spektren ab 54 K durch die Besetzung höherer Zustände stark verbreitert sind. Außerdem wurde in Abschnitt 5.2.1 gezeigt, dass die Lumineszenz der in den Potential-Fluktuationen lokalisierten Exzitonen sehr gut mit Hilfe einer Gauß-Verteilung beschrieben werden kann.

Für einen möglichst guten Fit (rote Kurve in Abb. 5.24) der integrierten Intensitäten wurden zwei thermisch aktivierte, nichtstrahlende Prozesse mit den Aktivierungsenergien  $E_1$  und  $E_2$  angenommen, die gegen strahlende Prozesse antreten. Der Zusammenhang zwischen Aktivierungsenergie(n) und der integrierten Intensität



Abb. 5.24: Temperaturabhängiges Verhalten der integrierten Intensität des SML-Stapels mit  $10 \times (0,5 \text{ ML InAs und } 2,8 \text{ ML GaAs})$  (Punkte) und Fit mittels Arrhenius Gleichung 5.9 (rote Kurve).

wird in Bimberg u. a. [Bim71] hergeleitet:

$$I \propto \frac{1}{1 + B_1 \cdot \exp(-E_1/k_b T) + B_2 \cdot \exp(-E_2/k_B T)}$$
(5.9)

Im Bereich von 38 bis 75 K nimmt die integrierte Intensität leicht ab und entspricht einer Aktivierungsenergie von  $E_1 = 18 \pm 1$  meV. Oberhalb einer Temperatur von 75 K wird die Abnahme der Intensität steiler und entspricht einer Aktivierungsenergie von  $E_2 = 97 \pm 11$  meV.

Eine mögliche Erklärung der Aktivierungsenergie  $E_2$  ist die thermische Aktivierung von Ladungsträgern in die GaAs-Barriere. Geht nur eine Ladungsträgersorte der Grundzustandslumineszenz verloren, entspricht die Aktivierungsenergie dem Leitungs- bzw. dem Valenzband-Offset eines QFes [Lam90] zuzüglich der Exzitonenbindungsenergie. Im Falle eines 60:40 Band-Offset-Verhältnisses beträgt der Leitungsband-Offset ca. 90 meV und der Valenzband-Offset ca. 135 meV. Für andere Verhältnisse sind die energetischen Größen der Band-Offsets geringfügig größer bzw. kleiner. Demzufolge entspricht die Aktivierungsenergie  $E_2$  wahrscheinlich der thermischen Aktivierung der Elektronen in die GaAs-Barriere. Aus dem großen Wert von  $B_2$  ergibt sich außerdem, dass dieser Prozess sehr effektiv ist.

Der Ursprung der Aktivierungsenergie  $E_1$  kann nicht geklärt werden. Die Möglichkeit der thermischen Anregung von Exzitonen aus den Potential-Fluktuationen in den umgebenden InGaAs QF kann nicht in Betracht gezogen werden. Die Tiefe der Potential-Fluktuationen in dieser Probe kann grob durch die Halbwertsbreite (4 meV) abgeschätzt werden. Außerdem wird im temperaturabhängigen Verlauf der Übergangsenergie (Abb. 5.23) keine *s-shape* beobachtet, welcher ein deutliches Zeichen für die Lokalisierung und Thermalisierung von Exzitonen in Potential-Fluktuationen wäre.

# 5.2.5 Modellierung der elektronischen und optischen Eigenschaften von SML-Stapeln

In diesem Abschnitt werden die ersten Berechnungen von Wellenfunktionen und Absorptionsspektren unterschiedlicher Konfigurationen von SML-Stapeln vorgestellt. Diese Berechnungen, basierend auf 8-Band  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  Theorie in Verbindung mit der Konfigurations-Wechselwirkungs-Methode, wurden innerhalb der Arbeitsgruppe von A. Schliwa durchgeführt.

Der Prozess startet mit Annahmen hinsichtlich der Größe, Form und chemischen Komposition der SML-Stapeln. Zur Vereinfachung wurden die 2D Inseln als Quadrate mit einer Seitenlänge von 5 nm angenommen, wobei der laterale Abstand zwischen den 2D Inseln 2 nm beträgt. In der Veröffentlichung von Xu u. a. [Xu03a] wurde aus TEM-Aufnahmen eine Inselgröße von 5–10 nm ermittelt, während Hopfer

u. a. [Hop07] eine Größe von 2–3 nm angegeben. Das heißt die getätigte Annahme ist ein guter Kompromiss zwischen den bisher beobachteten Inselgrößen. Der Abstand zwischen den Inseln ergibt sich aus der Annahme, dass die Oberfläche mit 0,5 ML InAs bedeckt wurde. Das entspricht den angegebenen Schichtdicken der oben zitierten Arbeiten und den in dieser Arbeit am ausführlichsten untersuchten Strukturen.

In Abbildung 5.25 sind die berechneten Exzitonen-, Elektronen- und Lochenergien für verschiedene SML-Konfigurationen dargestellt. Die GaAs Valenzband-Oberkante wird auf 0 meV und die Leitungsband-Unterkante auf 1520 meV gesetzt. 1520 meV ist die Größe der (unverspannten) GaAs-Bandlücke, welche die Potential-Barriere für die SML-Stapel darstellt. Die Energien der Zustände der Exzitonen in Abbildung 5.25 (oben) ergeben sich aus der Differenz der Elektron- und Lochenergie in Verbindung mit einem Coulomb-Wechselwirkungsanteil. Dabei ist die Exziton Grundzustandsenergie gerade um die Exziton Bindungsenergie abgesenkt.

In Abbildung 5.25 a) sind die Grundzustandsenergien des Exzitons, des Elektrons und des Lochs für ein einzelnes SML-Stapel (5 nm Breite der 2D Inseln, 3 ML Dicke der GaAs Zwischenschicht) in Abhängigkeit von der Anzahl der SML-Wiederholungen dargestellt. Es ist zu erkennen, dass sich ab 5 SML ein gebundener Elektronzustand innerhalb des SML-Stapels ausbildet. Aufgrund der größeren effektiven Masse der Löcher, sind diese bei 5 SML-Wiederholungen bereits lokalisiert. Mit zunehmender Anzahl der SML-Wiederholungen nehmen die Lokalisierungsenergien der Elektronen und der Löcher und damit auch die Bindungsenergien der Exzitonen zu. Dies ist in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Beobachtungen am SML-Ensemble (Abschnitt 5.1.2).

In Abbildung 5.25 b) sind die Grundzustandsenergien des Exzitons, des Elektrons und des Lochs eines 10-fach SML-Stapels, bei dem die GaAs Zwischenschichtdicke variiert wurde, dargestellt. Es ist zu sehen, dass sich die Lokalisierungsenergie für die Elektronen und Löcher und die Exzitonbindungsenergie mit zunehmender Dicke der GaAs Zwischenschicht reduziert. Das bedeutet auch, dass sich die vertikale elektronische Kopplung zwischen den einzelnen SML-Inseln mit steigender GaAs Zwischenschichtdicke verringert. Dies entspricht ebenfalls den experimentellen Ergebnissen (Abschnitt 5.1.1). Mit steigender GaAs Zwischenschichtdicke wurde eine Verschiebung der Emissionswellenlänge zu höheren Energien und eine Abnahme der integrierten Intensität beobachtet.

In den Abbildungen 5.25 c) und d) sind die Grundzustandsenergien des Exzitons, des Elektrons und des Lochs über die Laterale Anordnung der SML-Stapel aufgetragen. Dabei wird zunächst ein einzelner, dann ein Paar und anschließend eine  $3 \times 3$ Konfiguration dieser SML-Stapel betrachtet (siehe auch Abb. 5.26). Die Abstän-



Abb. 5.25: Exzitonen-, Elektron- und Lochenergien für verschiedene SML-Konfigurationen:
a) Bei konstanter Zwischenschichtdicke von 3 ML GaAs wurde die Anzahl der SML (5 nm Breite der 2D Inseln) variiert.
b) Für ein 10-fach SML-Stapel wurde die GaAs Zwischenschichtdicke variiert.
c-d) Vergleich zwischen einem einzelnen SML-Stapel, einem SML-Stapel-Paar mit 2 nm Abstand und einem in 3 × 3 Konfiguration lateral angeordneten äquidistanten SML-Stapel. In c) wurde ein 5-fach und in d) ein 10-fach SML-Stapel, jeweils mit 3 ML GaAs Zwischenschichtdicke, betrachtet.



Abb. 5.26: Modellierung der Elektron- (blau) und Loch-Wellenfunktion (rot), in einem 10-fach SML-Stapel, einem SML-Stapel-Paar und einem in 3 × 3 Konfiguration lateral angeordneten, äquidistanten SML-Stapel-Gitter, jeweils mit 10 × (0,5 ML InAs und 3 ML GaAs).

de zwischen den Stapeln wurden, wie schon oben beschrieben, auf 2 nm gesetzt. In c) wird ein 5-fach SML-Stapel und in d) ein 10-fach SML-Stapel, jeweils mit 3 ML GaAs Zwischenschicht, betrachtet. Idealerweise sollte sich in Abwesenheit von lateraler elektronischer Kopplung für die Grundzustandsenergien des Exzitons, Elektrons und Lochs für die verschiedenen Konfigurationen der SML-Stapel keine Änderung ergeben. Allerdings ist eine Zunahme der Lokalisationsenergien mit steigender SML-Stapel-Konfiguration zu sehen, welche eine laterale elektronische Kopplung der einzelnen SML-Stapel in den durchgeführten Berechnungen beweist.

Das wird auch durch die Form der Elektron- (blau) und Loch-Wellenfunktionen (rot) in den verschiedenen Konfigurationen der SML-Stapel in Abbildung 5.26 bestätigt: Im Fall eines einzelnen SML-Stapels sind die Elektron- und Lochwellenfunktionen vollständig in diesem eingeschlossen (Abb. 5.26 a). In Abbildung 5.26 b) werden zwei solcher Stapel im Abstand von 2 nm platziert, in dessen Folge sowohl der Elektron- als auch der Lochgrundzustand stark miteinander koppeln und Hybridzustände ausbilden. Diese Kopplung wird im Fall einer  $3 \times 3$  Konfiguration weiter verstärkt (Abb. 5.26 c).

Das berechnete Verhalten der Grundzustandsenergien des Exzitons, des Elektrons und des Lochs bei der untersuchten Variation der Parameter ist in guter Übereinstimmung mit den, in den vorangegangenen Abschnitten beschriebenen, experimentellen Beobachtungen. Die berechnete laterale Kopplung der einzelnen SML-Stapel ist geeignet, das QF-artige Verhalten der SML-Stapel zu erklären.

## 5.2.6 Zusammenfassung der elektronischen und optischen Eigenschaften der SML-Stapel

Die detaillierte Analyse der Linienform der Lumineszenz der SML-Stapel bei 10 K zeigt, dass diese gut als ein QF mit Lokalisationszentren, die durch Kompositionsoder Schichtdickenfluktuationen verursacht werden, beschrieben werden können. Aufgrund der Herstellung der Strukturen durch SML-Deposition sind Kompositionsfluktuationen wahrscheinlich.

Darüber hinaus wurde gezeigt, dass sich für eine GaAs Zwischenschichtdicke von mehr als 4 ML ein zweites Maximum auf der niederenergetischen Seite des SML-Peaks bildet. Im Rahmen dieses Kapitels wurden verschiedene Ansätze zur Erklärung der Ursache dieser Lumineszenz gegeben, wobei an die InAs SML gebundene Störstellen als Ursache für das Auftreten des zweiten Maximums angenommen werden.

Die Untersuchungen des temperaturabhängigen Verhaltens der Emission der SML zeigen, dass der Einfluss der Potential-Fluktuationen innerhalb der Struktur gering ist. Erste, auf 8-Band  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  Theorie in Verbindung mit der Konfigurations-Wechselwirkungs-Methode basierende, Modellierungen der elektronischen und optischen Eigenschaften der SML-Stapel legen nahe, dass nicht nur eine vertikale sondern auch eine laterale Kopplung zwischen einzelnen SML-Stapeln vorliegt. Dabei bestätigen die Berechnungen der Loch-, Elektron- und Exziton-Grundzustände für verschiedene SML-Konfigurationen die experimentellen Beobachtungen.

In Abschnitt 2.3.1 wurde auf die Theorie der vertikalen Korrelation der InAs 2D Inseln als Funktion des GaAs Zwischenschichtdicke eingegangen. Es konnte allerdings in allen drei Probenserien kein deutlicher Einfluss der GaAs Zwischenschichtdicke auf die Linienform der einzelnen Spektren festgestellt werden. Somit kann hier nicht geklärt werden, inwieweit sich die vertikale Korrelation zwischen den SML-Inseln mit der GaAs Zwischenschichtdicke ändert bzw. ob diese überhaupt vorhanden ist. Aussagen über die strukturelle vertikale Korrelation der 2D Inseln in Abhängigkeit von der GaAs Zwischenschichtdicke könnten anhand von strukturellen Untersuchungen (Querschnitts-TEM- bzw. -STM-Untersuchungen) getroffen werden.

## 5.3 Kantenemittierende Laser mit Submonolagen-Stapeln als aktives Medium

Die bisher gezeigten Ergebnisse, insbesondere die geringen Halbwertsbreiten und die, im Vergleich zu SK-QPen, hohen Lumineszenzintensitäten legen eine Anwendung von SML-Stapeln als aktives Medium in Laserdioden nahe. Strukturelle Stabilität während des Überwachsens und die Kenntnis der Emissionseigenschaften sind Voraussetzungen für die Herstellung solcher Strukturen. In Abschnitt 5.1 wurde gezeigt wie die Emissionswellenlänge von SML-Strukturen durch Variation der Wachstumsparameter eingestellt werden kann. In diesem Abschnitt wird die Integration von SML-Stapeln als aktive Zone eines Kantenemitters untersucht.

Zuerst wird die Temperaturstabilität der SML-Strukturen untersucht, um den Einfluss des Überwachsens während der Herstellung der Kantenemitterstruktur zu analysieren. Im Anschluss an die Beschreibung der Herstellung des Kantenemitters werden dessen charakteristische Kenndaten vorgestellt.

## 5.3.1 Thermische Stabilität der SML-Stapel

Im Rahmen dieser Arbeit wurden SML-Stapel als aktives Medium für einen Kantenemitter eingesetzt. Die typische Wachstumstemperaturen von Mantel- und Kontaktschicht des Kantenemitters (690 °C) sind, im Vergleich zur Wachstumstemperatur der SML-Stapel (500 °C), hoch. Daher muss davon ausgegangen werden, dass sich das Überwachsen der SML-Stapel wie Tempern auswirkt. Temperexperimente an InGaAs SK-QPen wurden unter anderen von Heinrichsdorff [Hei98a], Kosogov u. a. [Kos96] und Leon u. a. [Leo96] durchgeführt. In allen Fällen wurden für die Untersuchungen Temperaturen im Bereich von 700 °C bis 900 °C verwendet. Es ergaben sich mit steigenden Temperaturen und längeren Dauern Verschiebungen der QP-Lumineszenz zu größeren Energien mit gleichzeitiger Verringerung der Halbwertsbreiten [Leo96]. Die Verschiebung zu größeren Energien wird mit einer Reduzierung der Lokalisierungsenergie durch das Tempern erklärt. Kosogov u. a. beobachten einen Anstieg der effektiven QP-Größe zusammen mit einer Abnahme des In-Gehalts in den QPen, welcher mit der thermisch aktivierten Vermischung des QP- und Barrieren-Materials erklärt wird [Kos96].

Der Einfluss des Temperns auf InGaAs QFe eingebettet in GaAs wurde unter anderem in [Iik88] untersucht. Die durchgeführten Untersuchungen in einem Temperaturbereich von 750 °C bis 900 °C ergaben eine Blau-Verschiebung der Emission mit steigender Temperatur und Dauer [Iik88]. Diese Verschiebung wurde von einer Verbreiterung der einzelnen Maxima begleitet. Beide Effekte werden durch die Interdiffusion von Indium und Gallium an den QF-Grenzflächen erklärt.



Abb. 5.27: PL-Spektren von SML-Strukturen mit 10×(0,5 ML InAs und 4 ML GaAs), aufgenommen bei 10 K und mit niedriger Anregungsdichte. Schwarz: ungetempertes, rot: 1 h bei 700 °C getempertes Probenstück.

In dieser Arbeit wurden ein Teilstück der untersuchten Probe eine Stunde bei 700 °C, unter Arsin-Fluss zur Stabilisierung der GaAs Oberfläche, und einem Reaktordruck von 20 mbar getempert. Der SML-Stapel wurde aus  $10 \times (0,5 \text{ ML InAs}$  und 4 ML GaAs) bei einer Temperatur von 500 °C gebildet. Um den Einfluss des Temperns auf die elektronischen Eigenschaften dieser SML-Strukturen zu untersuchen, wurden PL-Messungen bei 10 K durchgeführt (Abb. 5.27). Es kommt zu einer Verschiebung des Maximums der Emission der getemperten Probe um ca. 9 meV zu höheren Energien, einer Abnahme der integrierten Intensität um ca. 27 % und einem Anstieg der Halbwertsbreite um ca. 1 meV.

Die durch das Tempern verursachte Verschiebung des Maximums der Emission zu höheren Energien ist in guter Übereinstimmung mit den oben genannten Veröffentlichungen. Sowohl für In(Ga)As SK-QPe als auch für InGaAs-QFe und wird die durch das Tempern verursachte Blau-Verschiebung der Emission auf In–Ga-Interdiffusion zurückgeführt. Eine Verbreiterung der Emission mit steigender Temperatur und Dauer des Temperns wurde ebenfalls beobachtet und auf die Interdiffusion von Indium und Gallium zurückgeführt [Iik88].

Diese Untersuchung zeigt, dass eine Verschiebung der Emissionswellenlänge und Verbreiterung des Peaks in den Optimierungsprozess der SML-Strukturen in Hinsicht auf ihre Anwendung als aktives Medium in photonischen Bauelementen einbezogen werden muss. Für die folgenden grundlegenden Betrachtungen ist das Verschieben der Emissionswellenlänge jedoch nicht relevant.

## 5.3.2 Herstellung und Charakterisierung des Kantenemitters

Die in dieser Arbeit verwendete Kantenemitterstruktur ist in Abbildung 5.28 schematisch dargestellt. Es handelt sich um einen SCH (engl. *separate confinement heterostructure*) Kantenemitter mit einem SML-Stapel als aktive Schicht. In dieser Struktur wird die Lichtwelle separat von den Ladungsträgern geführt. Die optische Wellenführung erfolgt aufgrund des Brechungsindexsprunges zwischen Wellenleiter und Mantelschicht. Dadurch wird das Licht im Wellenleiter geführt, was zu geringeren Verlusten und besserem optischen Überlapp der Lichtwelle mit dem aktiven Medium führt.



Abb. 5.28: Schematische Darstellung der Kantenemitterstruktur.

Um die pin-Struktur des Lasers zu realisieren, wurde die Struktur auf einem mit Silizium dotiertem GaAs-Substrat ( $n \sim 6 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ) gewachsen. Als Ausgangsstoffe wurden TMGa, TMAl und Arsin, als n-Dotant 2 %iges SiH<sub>4</sub> in H<sub>2</sub> und als p-Dotant DMZn verwendet. Die p-GaAs Kontaktschicht wurde, zum Erreichen höherer p-Dotierungen, mit TBAs statt AsH<sub>3</sub> hergestellt. Bis auf die SML-Stapel wurden alle Schichten bei 690 °C gewachsen. Im Folgenden wird kurz das Wachstum der einzelnen Schichten beschrieben:

- n-GaAs Pufferschicht: 500 nm GaAs wurde mit einem V/III-Verhältnis von 155 und einer Wachstumsrate von 2µm/h abgeschieden. Mit einem Si/III-Verhältnis von 3 wurde eine Dotierung von n ~  $2 \cdot 10^{18}$  cm<sup>-3</sup> realisiert.
- n-Al<sub>0,3</sub>Ga<sub>0,7</sub>As, untere Mantelschicht: 1500 nm Al<sub>0,3</sub>Ga<sub>0,7</sub>As wurden mit einem V/III-Verhältnis von 200 und einer Wachstumsrate von 1,7 µm/h abgeschieden. Mit einem Si/III-Verhältnis von 15 wurde eine Dotierung von  $n \sim 3 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  realisiert.
- GaAs Wellenleiter: Jeweils 300 nm GaAs wurden mit einem V/III-Verhältnis

von 155 und mit einer Wachstumsrate von 2 µm/h abgeschieden. Die Platzierung der SML-Strukturen als aktive Zone erfolgt mittig zwischen den GaAs-Schichten, um einen möglichst guten Überlapp mit der im Wellenleiter geführten optischen Welle zu gewährleisten.

- p-Al<sub>0,3</sub>Ga<sub>0,7</sub>As, obere Mantelschicht: Mit einem Zn/III-Verhältnis von 0,12 wurde eine Dotierung von p ~  $4 \cdot 10^{17}$  cm<sup>-3</sup> realisiert. Die übrigen Wachstumsparameter entsprachen denen der unteren Mantelschicht.
- p-GaAs Kontaktschicht: 300 nm GaAs wurden mit einem TBAs/III-Verhältnis von 5 und einer Wachstumsrate von 2 µm/h abgeschieden. Mit einem Zn/III-Verhältnis von 7 konnte eine, für die Herstellung eines ohmschen Kontaktes, noch ausreichende Dotierung von p ~  $4 \cdot 10^{18}$  cm<sup>-3</sup> realisiert werden.

## Prozessierung und Charakterisierung

Prozessierung und Charakterisierung der hier vorgestellten Kantenemitter mit SML-Stapeln als aktive Zone wurde innerhalb der Arbeitsgruppe von Thorsten Kettler und Kristijan Posilovic durchgeführt. Dabei wurden in einem Schnellprozess Breitstreifen-Laser hergestellt und anschließend im Riegelverbund im Pulsbetrieb charakterisiert. Der Schnellprozess besteht im Allgemeinen aus vier Prozessierungsschritten, die im Folgenden kurz erläutert werden:

- p-Kontakt: Mittels Lithographietechnik werden p-Metallisierungsstreifen auf der hochdotierten GaAs-Kontaktschicht mit einem Elektronenstrahlverdampfer aufgebracht. Es handelt sich um ein Dreischichtsystem aus Titan, Platin und Gold, das einen ohmschen Kontakt herstellt.
- Mesa ätzen: Die auf dem Wafer erzeugten Metallstreifen dienen im anschließenden nass-chemischen Ätzschritt als Strukturierungsmaske. Neben den Kontakten wird die p-Kontaktschicht entfernt.
- Dünnen: Anschließend an das Ätzen erfolgt das Dünnen des n-GaAs Substrates (Unterseite des Wafers) auf 100-150 µm. Dazu wird das Substrat mittels eines Läppverfahrens auf entsprechende Dicke gedünnt.
- n-Kontakt: Der n-Kontakt wird mittels eines thermischen Verdampfers aufgebracht. Es wurde Nickel, eine Gold-Germanium-Legierung (Au<sub>0,88</sub>: Ge<sub>0,12</sub>) und Gold gewählt, um auch hier einen ohmschen Kontakt für die Elektronenleitung herzustellen.

Mit dem hier vorgestellten Prozess werden auf schnelle Art und Weise Breitstreifen prozessiert. Sie erlauben es, grundlegende Parameter der Laser zu bestimmen.

Aus dem prozessierten Wafer wurden Laser mit unterschiedlichen Längen von 1,5 mm bis 4 mm gespalten. Für eine schnelle Charakterisierung wurden die Laser nicht einzeln aufgebaut, sondern als Barren mit 5 bzw. 10 Lasern vermessen. Als n-Kontakt diente ein vergoldeter Kupferblock und als p-Kontakt eine Goldnadel. Die verwendete gepulste Stromquelle liefert bis zu 2 A an 50  $\Omega$ . Es werden Pulsbreiten von 800 ns bei einer Wiederholrate von 1 kHz erzeugt. Als Detektor diente eine Ulbricht-Kugel mit integrierten InGaAs- bzw. Silizium-Fotodetektoren mit unterschiedlichen Farbfiltern. Dadurch lässt sich gleichzeitig eine Leistungs- und Wellenlängenmessung über zwei unabhängige Fotoströme realisieren.

## 5.3.3 Ergebnisse und Diskussion

Es wurden zwei Kantenemitter mit leicht unterschiedlichen aktiven Schichten hergestellt. Die aktiven Schichten bestehen aus einem 10-fach bzw. einem 20-fach SML-Stapel mit jeweils 0,5 ML InAs und 4 ML GaAs, wobei eine Wachstumsunterbrechung von einer Sekunde nach der InAs Deposition durchgeführt wurde. Das V/III-Verhältnis betrug jeweils 20 für die InAs-Schicht und 10 für die GaAs-Schicht bei einer Wachstumstemperatur von 500 °C. Beide SML-Kantenemitter wurden als Breitstreifenlaser mit einer Breite von 100 µm prozessiert. Im Folgenden werden die wichtigsten Eigenschaften dieser Laser vorgestellt und verglichen.

Abbildung 5.29 zeigt die gemessenen Licht-Strom-Kennlinien (L-I-Kennlinien) der 100 µm breiten und 2 mm langen Laser. Die Schwellstromdichten  $J_{thr}$  betragen 111 Acm<sup>-2</sup> und 131 Acm<sup>-2</sup>, die differentiellen Quanteneffizienzen 76 % und 77 %, jeweils für den Laser mit 10- und 20-fach SML-Stapel. Die erreichten Schwellstrom-



Abb. 5.29: L-I-Kennlinien der Kantenemitter mit 10- und 20-fach SML-Struktur und ihre spezifischen Kenndaten.



**Abb. 5.30:** Bestimmung der Tranzparenzstromdichte  $J_{tr}$  der Kantenemitter mit 10-fach (schwarz) und 20-fach SML-Stapel (rot).

dichten liegen deutlich unter den besten bisher berichteten Schwellstromdichten von 200 Acm<sup>-2</sup> [Zhu99, Mik00] und 374 Acm<sup>-2</sup> [Xu04] für Kantenemitter mit vergleichbarer aktiver Zone und ähnlicher Probenstruktur.

Aus der Bestimmung der Kenndaten der Laser durch die Messung von L-I-Kennlinien für die 100 µm breiten Laser mit unterschiedlichen Kavitätslängen ergibt sich Abbildung 5.30. Es ist der Logarithmus der Schwellstromdichte  $J_{thr}$  über der inversen Kavitätslänge aufgetragen. Aus einer linearen Extrapolation auf unendliche Kavitätslänge ergibt sich eine Transparenzstromdichte  $J_{tr}$  von 93 ± 4 Acm<sup>-2</sup> für die 10-fach und 95 ± 1 Acm<sup>-2</sup> für die 20-fach SML-Struktur.

Der lineare Anstieg der L-I-Kennlinie im Laserbetrieb ergibt die differentielle Effizienz. Die differentielle Effizienz wurde für Laser verschiedener Längen (1,5 mm bis 4 mm) bestimmt und ist in Abbildung 5.31 reziprok über der Kavitätslänge aufgetragen. Es ergeben sich dabei die interne Quanteneffizienz  $\eta_i$  und die internen optischen Verluste  $\alpha$  nach:

$$\frac{1}{\eta_{diff}} = \frac{2 \cdot \alpha \cdot L}{\eta_i \cdot \ln\left(\frac{1}{R_1 R_2}\right)} + \frac{1}{\eta_i}$$
(5.10)

wobei L die Kavitätslänge und  $R_i$  die Reflektivitäten der Spaltflächen sind.

Es konnten praktisch identische, hervorragende interne Quanteneffizienzen von  $94 \pm 1 \%$  und  $93 \pm 1 \%$  für die 10- und die 20-fach SML-Struktur bestimmt werden. Die interne Quanteneffizienz beschreibt die Generierung von Photonen aus Ladungsträgerpaaren im aktiven Medium, was die Qualität der SML-Strukturen unterstreicht. Sie steht in sehr guter Übereinstimmung mit den in [Zhu99, Mik00, Kov03] veröfentlichten Werten.



Abb. 5.31: Bestimmung der internen Quanteneffizienz  $\eta_{int}$  sowie der internen optischen Verluste  $\alpha$  der Kantenemitter mit 10-fach (schwarz) und 20-fach SML-Stapel (rot).

Die internen optischen Verluste von  $1,5\pm0,2\,\mathrm{cm}^{-1}$  und  $1,4\pm0,3\,\mathrm{cm}^{-1}$  sind geringer als die vergleichbarer SML-Kantenemitter (2,3 cm<sup>-1</sup> [Zhu99, Mik00] und 3,2 cm<sup>-1</sup> [Kov03]). Die dort auftretenden internen optischen Verluste können unter anderem durch die Streuung der optischen Welle an freien Ladungsträgern aufgrund der höheren Dotierungen von  $n/p \sim 3 \cdot 10^{18} \,\mathrm{cm}^{-3}$  in den AlGaAs-Barrieren und sowie durch Rauigkeiten an den AlGaAs zu GaAs Grenzflächen entstehen.

Das Emissionsspektrum des 2 mm langen und 100 µm breiten Lasers mit 10-fach SML-Stapel bei 1,1- und 2-facher Schwellstromdichte ist in Abbildung 5.32 links dargestellt. Die zentrale Emissionswellenlänge beträgt für beide Spektren 994 nm mit einer Halbwertsbreite von 1,5 nm für die 1,1-fache und 2,6 nm für die 2-fache



Abb. 5.32: EL-Spektrum knapp über der Laserschwelle (schwarz) und bei doppeltem Schwellstrom (rot) der Kantenemitter mit 10-fach (links) und 20-fach SML-Stapel (rechts).

Schwellstromdichte. In Abbildung 5.32 rechts ist das Emissionsspektrum des 2 mm langen und 100  $\mu$ m breiten Lasers mit 20-fach SML-Stapel gezeigt. Dieser Kantenemitter emittiert bei einer Wellenlänge von 1021 nm mit einer Halbwertsbreite von 2,8 nm knapp über der Laserschwelle und von 3,3 nm bei 2-facher Schwellstromdichte. Die Emissionswellenlänge ist aufgrund der größeren Anzahl SML zu größeren Wellenlängen verschoben (siehe Abschnitt 5.1.2).

## 5.3.4 Zusammenfassung

Die hergestellten Kantenemitter besitzen mit Schwellstromdichten von 111 Acm<sup>-2</sup> und 131 Acm<sup>-2</sup>, differentiellen Quanteneffizienzen von 76 % und internen Quanteneffizienzen von 93 % ausgezeichnete Kenndaten. Diese sind vergleichbar oder besser als die bisher für Breitstreifenlaser veröffentlichten Daten. Das zeigt, dass die mit MOCVD hergestellten SML-Strukturen eine ausgezeichnete Qualität besitzen. Außerdem lassen die geringen optischen Verluste auf eine geringe Defektdichte innerhalb der Kantenemitterstruktur und auf eine geringe Streuung der optischen Welle an den AlGaAs-Mantelschichten schließen.

# Kapitel 6

# Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit ist es gelungen, das Verständnis der Bildung von InAs Quantenpunkten im Stranski-Krastanow Wachstumsmodus zu erweitern. Außerdem wird erstmals eine umfassende und systematische Untersuchung des Einflusses der wesentlichen Wachstumsparameter auf die Lumineszenzeigenschaften von InAs/GaAs Submonolagen-Stapeln präsentiert und deren elektronische und optische Eigenschaften diskutiert.

Verantwortlich für das Auftreten der Aufspaltung der Lumineszenz in eine multimodale Verteilung von, im Stranski-Krastanow Wachstumsmodus hergestellten, Quantenpunkt-Ensembles ist eindeutig die Ausbildung von flachen Quantenpunkten mit scharfen oberen und unteren Grenzflächen. Deren elektronische und optische Eigenschaften konnten in hervorragender Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen auf Basis der 8-Band  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  Theorie und der Konfigurations-Wechselwirkungs-Methode modelliert werden.

Die Bildung multimodaler Quantenpunkt-Ensembles wurde erstmals gezielt untersucht. Dabei konnte festgestellt werden, dass die Wachstumsrate der GaAs Deckschicht über den Quantenpunkten einen entscheidenden Einfluss auf die Ausbildung der multimodalen Verteilung hat. Die Zugabe geringer Mengen, des für InAs und GaAs als Tensid wirkenden Antimons, verstärkt die ML-Aufspaltung zusätzlich. Während die Erhöhung der Wachstumstemperatur von 500 °C auf 530 °C zur deutlichen Reduktion der ML-Aufspaltung führt, zeigt die Variation der Menge des abgeschiedenen InAs keinen ausgeprägten Einfluss.

Das Auftreten der ML-Aufspaltung ermöglicht detaillierte Aussagen zum Einfluss von Wachstumsparametern in Probenserien und gibt Hinweise auf strukturelle Eigenschaften des gesamten Quantenpunkt-Ensembles. Die qualitative Veränderung des Ensembles kann für überwachsene Quantenpunkte allein durch optische Methoden untersucht werden. Dies wird bei der detaillierten Diskussion der Entwicklung eines Quantenpunkt-Ensembles während der Wachstumsunterbrechung deutlich. Die Entwicklung der Höhenverteilung des Ensembles kann im Detail verfolgt werden und es sind qualitative Aussagen über die Entwicklungen der Basislängen möglich. Die Ausbildung der Quantenpunkt-Subensembles mit unterschiedlichen Höhen konnte sehr gut mit einem kinetischen Modell beschrieben werden. Im zweiten Teil der Arbeit wurde die Herstellung von Quanten(punkt)strukturen durch Submonolagen-Deposition untersucht. Dabei wurde zuerst analysiert in welchem Bereich die Emissionswellenlänge von Submonolagen-Stapeln eingestellt werden kann. Die Verringerung der Wachstumstemperatur zeigte lediglich eine geringe Verbreiterung der Halbwertsbreite der Lumineszenz der Submonolagen, die durch die Zunahme von Potential-Fluktuationen aufgrund der verringerten In-Diffusion erklärt wird. Die Variation des V/III-Verhältnisses und der Wachstumsunterbrechung zeigten dagegen keinen Einfluss auf die Lumineszenz, insbesondere der Emissionswellenlänge, der Submonolagen-Stapel. Durch die Variation der Schichtdicken von InAs und GaAs konnte ein Emissionsbereich von 930 nm bis 1030 nm eingestellt werden. Die Variation der Wiederholungen von Submonolagen mit 0,5 ML InAs und 2,8 ML GaAs ergab einen Bereich von 910 nm bis 1010 nm. Dabei stellen 2 Submonolagen-Wiederholungen, aufgrund der geringen Lokalisation für Elektronen, eine Untergrenze der Variation dar. Dagegen wird die Obergrenze, die hier bei 20 Wiederholungen lag, durch die Bildung von Defekten bestimmt.

Die detaillierte Analyse der Linienform der Lumineszenz der Submonolagen-Stapel bei 10 K zeigte, dass diese sehr gut als ein Quantenfilm mit Lokalisationszentren, die durch Kompositions- oder Schichtdickenfluktuationen verursacht werden, beschrieben werden können. Aufgrund der Herstellung der Strukturen durch Submonolagen-Deposition sind Kompositionsfluktuationen wahrscheinlich. Aus den Untersuchungen des temperaturabhängigen Verhaltens der Emission des Submonolagen-Stapels ergibt sich, dass der Einfluss der Potential-Fluktuationen innerhalb der Struktur gering ist. Erste, auf 8-Band  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  Theorie in Verbindung mit der Konfigurations-Wechselwirkungs-Methode basierende, Modellierungen der elektronischen und optischen Eigenschaften der SML-Stapel zeigen, dass möglicherweise nicht nur eine vertikale sondern auch eine laterale Kopplung zwischen einzelnen SML-Stapeln existiert. Dabei bestätigen die Berechnungen der Loch-, Elektronund Exziton-Grundzustände für verschiedene Submonolagen-Konfigurationen die experimentellen Beobachtungen.

Weiterhin wurde gezeigt, dass sich für eine GaAs Zwischenschichtdicke von mehr als 4 ML ein zweites Maximum auf der niederenergetischen Seite der Lumineszenz der Submonolagen-Stapel bildet, dessen Ursache im Rahmen dieser Arbeit nicht vollständig geklärt werden konnte. Als am wahrscheinlichsten werden an die InAs Submonolagen gebundene Störstellen angenommen.

Die, zur Demonstration der Eignung von Submonolagen-Stapeln für optische Bauelemente, hergestellten Kantenemitter besitzen mit Schwellstromdichten von 111 Acm<sup>-2</sup> und 131 Acm<sup>-2</sup>, differentiellen Quanteneffizienzen von 76 % und internen Quanteneffizienzen von 93 % ausgezeichnete Kenndaten. Diese sind vergleichbar oder besser als die bisher für Breitstreifenlaser veröffentlichten Daten. Das zeigt, dass die mit MOCVD hergestellten Submonolagen-Strukturen eine ausgezeichnete Qualität besitzen.

## 6.1 Ausblick

Die gezielte Optimierung von InAs- und GaAs-Schichtdicken und der Anzahl der Submonolagen-Wiederholungen ermöglicht vermutlich eine Erweiterung des nutzbaren Wellenlängenbereiches über die hier erzielten Werte hinaus. Dazu muss allerdings angemerkt werden, dass eine, mit einer Rotverschiebung der Emission verbundene, Verringerung der Dicke der GaAs Zwischenschicht unter die hier verwendeten 1,2–1,5 ML nicht mehr dem eigentlichen Konzept der Herstellung von Quantenpunkten durch Submonolagen-Deposition entspricht.

Weiterführende optische und insbesondere hoch ortsaufgelöste strukturelle Untersuchungen wären zum Verständnis der Bildung genauso wie zum Verständnis der elektronischen und optischen Eigenschaften der Submonolagen-Stapel erforderlich. Strukturellen Untersuchungen können auch die Basis für weitere Modellierungen der elektronischen und optischen Eigenschaften, welche unterschiedliche Basislängen der Submonolagen und verschiedene Abstände zwischen den Submonolagen-Stapeln beinhalten sollten, darstellen.

Des Weiteren ist die Fortführung der Wachstumsuntersuchungen, wie z. B. eine Variation der Wachstumsrate der GaAs Zwischenschicht (siehe auch Monolagen-Aufspaltung in Stranski-Krastanow Quantenpunkten) oder die Einbettung der InAs Submonolagen in ein Matrixmaterial mit größerer Bandlücke wie Al(Ga)As zur Vergrößerung der Lokalisierungsenergie sinnvoll.

Die bereits durchgeführten Messungen der lateralen Polarisationseigenschaften von Submonolagen-Stapeln lieferten keine befriedigenden Ergebnisse und sollten fortgesetzt werden. Dabei ist besonders auf die Unterdrückung der Oberflächenemission zu achten. Mit dem Überwachsen der Proben mit einer dicken InGaAs Schicht kann dabei ein viel versprechender Ansatz weiterverfolgt werden.

Abschließend kann gesagt werden, dass der Ansatz der Submonolagen-Deposition sowohl aus Sicht der Grundlagenphysik, als auch zur Verbesserung optischer Bauelemente weiterverfolgt werden sollte.

## Literaturverzeichnis

- [Aga87] A. W. Agar, R. H. Alderson, D. Chescoe: Principles and Practice of Electron Microscope Operation. 1987 (Practical Methods in Electron Microscopy)
- [Aki03] T. Akiyama, N. Hatori, Y. Nakata, H. Ebe, M. Sugawara: Pattern-effect-free amplification and cross-gain modulation achieved by using ultrafast gain nonlinearity in quantum-dot semiconductor optical amplifiers. In: *Physica Status Solidi b* 238 (2003), S. 301
- [And02] S. Anders, C. S. Kim, B. Klein, M. W. Keller, R. P. Mirin, A. G. Norman: Bimodal size distribution of self-assembled  $In_xGa_{1-x}As$  quantum dots. In: *Physical Review B* 66 (2002), Nr. 12, S. 5
- [AO98] A. Ait-Ouali, A. Chennouf, R. Y. F. Yip, J. L. Brebner, R. Leonelli, R. A. Masut: Localization of excitons by potential fluctuations and its effect on the Stokes shift in InGaP/InP quantum confined heterostructures. In: *Journal of Applied Physics* 84 (1998), S. 5639
- [Bau58] I. E. Bauer: Phenomenological theory of crystal precipitation on surfaces. In: Zeitschrift für Kristallographie, Kristallgeometrie, Kristallphysik, Kristallchemie 110 (1958), S. 372
- [Bel96] J. G. Belk, J. L. Sudijono, D. M. Holmes, C. F. McConville, T. S. Jones, B. A. Joyce: Spatial distribution of In during the initial stages of growth of InAs on GaAs(001)-c(4x4). In: *Surface Science* 365 (1996), Nr. 3, S. 735
- [Bel97] J. G. Belk, C. F. McConville, J. L. Sudijono, T. S. Jones, B. A. Joyce: Surface alloying at InAs-GaAs interfaces grown on (001) surfaces by molecular beam epitaxy. In: *Surface Science* 387 (1997), Nr. 1-3, S. 213
- [Ber88] D. C. Bertolet, J. K. Hsu, S. H. Jones, M. L. Kei: Pseudomorphic GaAs/InGaAs single quantum wells by atmospheric-pressure organometallic chemical vapor-deposition. In: *Applied Physics Letters* 52 (1988), S. 293
- [BH94] V. Bressler-Hill, A. Lorke, S. Varma, P. M. Petroff, K. Pond, W. H.
   Weinberg: Initial stages of InAs epitaxy on vicinal GaAs(001)-(2 × 4).
   In: *Physical Review B* 50 (1994), Nr. 12, S. 8479

- [Bim71] D. Bimberg, M. Sondergeld: Thermal dissociation of excitons bounds to neutral acceptors in high-purity GaAs. In: *Physical Review B* 4 (1971), S. 4
- [Bim98] D. Bimberg, M. Grundmann, N. N. Ledentsov: Quantum Dot Heterostructures. Chichester : John Wiley & Sons, 1998
- [Bim01] D. Bimberg, M. Grundmann, N. N. Ledentsov, M. H. Mao, C. Ribbat, R. Sellin, V. M. Ustinov, A. E. Zhukov, Z. I. Alferov, J. A. Lott: Novel infrared quantum dot lasers: Theory and reality. In: *Physica Status Solidi* b 224 (2001), S. 787
- [Bim03] D. Bimberg, N. N. Ledentsov: Quantum dots: lasers and amplifiers. In: Journal of Physics: Condensed Matter 15 (2003), S. R1063
- [Bim08] D. Bimberg (Hrsg.): Semiconductor Nanostructures. Heidelberg, Berlin : Springer, 2008 (NanoScience and Technology)
- [Bot96] J. R. Botha, A. W. R. Leitch: Influence of growth interruption on the heterointerface mophorlogy of InGaAs/GaAs strained quantum wells. In: *Journal of Crystal Growth* 169 (1996), S. 629
- [Bow98] D. K. Bowen, B. K. Tanner: High Resolution X-Ray Diffractometry And Topography. London : Taylor & Francis, 1998
- [Buc88] N. J. Buchan, C. A. Larsen, G. B. Stringfellow: Mass spectrometric studies of trimethylindium pyrolysis. In: *Journal of Crystal Growth* 92 (1988), S. 591
- [Cha67] B. K. Chakraverty: Grain size distribution in thin films 1. Conservative systems. In: *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 28 (1967), Nr. 12, S. 2401
- [Che93] Y. C. Chen, P. K. Bhattacharya: Determination of critical layer thickness and strain tensor in InxGa1-xAs/GaAs quantum-well structures by x-ray diffraction. In: *Journal of Applied Physics* 73 (1993), S. 7389
- [Chr88] J. Christen: Bestimmung der atomaren Morphologie von GaAs/AlGaAs-Heterogrenzflächen mittels Lumineszenzuntersuchungen, Technische Universität Berlin, Dissertation, 1988
- [Chr90] J. Christen, D. Bimberg: Line-Shapes of Intersubband and Excitonic Recombination in Quantum-Wells - Influence of Final-State Interaction, Statistical Broadening, and Momentum Conservation. In: *Physical Review B* 42 (1990), Nr. 11, S. 7213

- [Col89] C. Colvard, D. Bimberg, K. Alavi, C. Maierhofer, N. Nouri: Localization-dependent thermalization of excitons in  $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$ quantum wells. In: *Physical Review B* 39 (1989), Nr. 5, S. 3419
- [Col97] M. Colocci, F. Bogani, L. Carraresi, R. Mattolini, A. Bosacchi,
   S. Franchi, P. Frigeri, M. Rosa-Clot, S. Taddei: Growth patterns of self-assembled InAs quantum dots near the two-dimensional to three-dimensional transition. In: *Applied Physics Letters* 78 (1997), Nr. 23, S. 3140
- [Dar97] I. Daruka, A.-L. Barabasi: Dislocation-Free Island Formation in Heteroepitaxial Growth: A Study at Equilibrium. In: *Physical Review Letters* 79 (1997), Nr. 19, S. 3708
- [Dar99] I. Daruka, J. Tersoff, A.-L. Barabśi: Shape Transition in Growth of Strained Islands. In: *Phys. Rev. Lett.* 82 (1999), Nr. 13, S. 2753
- [Dru93] Jeff Drucker: Coherent islands and microstructural evolution. In: *Physical Review B* 48 (1993), Nr. 24, S. 18203
- [Eag90] D. J. Eaglesham, M. Cerullo: Dislocation-free Stranski-Krastanow Growth of Ge on Si(100). In: *Physical Review Letters* 64 (1990), S. 1943
- [Eis02] H. Eisele, A. Lenz, C. Hennig, R. Timm, M. Ternes, M. Dähne: Atomic structure of InAs and InGaAs quantum dots determined by cross-sectional scanning tunneling microscopy. In: 11th International Conference on Metalorganic Vapor Phase Epitaxy. Berlin, Germany : Elsevier Science Bv, 2002, S. 322
- [Eke91] M. J. Ekenstedt, S. M. Wang, T. G. Andersson: Temperature-dependent critical layer thickness for In<sub>0.36</sub>Ga<sub>0.64</sub>As/GaAs single quantum-wells. In: *Applied Physics Letters* 58 (1991), Nr. 8, S. 854
- [Fra49] F. C. Frank, J. H. van der Merwe: One-Dimensional Dislocations. I. Static Theory. In: *Royal Society of London Proceedings Series A* 198 (1949), S. 205
- [Fu99] H. Fu, L. W. Wang, A. Zunger: Excitonic exchange splitting in bulk semiconductors. In: *Physical Review B* 59 (1999), S. 5568
- [Gel07] M. Geller, A. Marent, T. Nowozin, D. Feise, K. Pötschke, N. Akcay, N. Oncan, D. Bimberg: Towards an universal memory based on self-organized quantum dots. In: 13th International Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS13). Genova, ITALY : Elsevier Science Bv, 2007, S. 1811

- [Ger08] T. D. Germann, A. Strittmatter, J. Pohl, U. W. Pohl, D. Bimberg, J. Rautiainen, M. Guina, O. G. Okhotnikov: High-power semiconductor disk laser based on InAs/GaAs submonolayer quantum dots. In: *Applied Physics Letters* 92 (2008), Nr. 10, S. 101123
- [Gol85] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse, G. L. Roux: Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices. In: *Applied Physics Letters* 47 (1985), S. 1099
- [Gru88] M. Grundmann: *Pseudomorphe Quantentöpfe und exzitonische Effekte*, Technische Universität Berlin, Diplomarbeit, 1988
- [Gru95] M. Grundmann, J. Christen, N. N. Ledentsov, J. Böhrer, D. Bimberg,
  S. S. Ruvimov, P. Werner, U. Richter, U. Gösele, J. Heydenreich, V. M. Ustinov, A. Yu Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kop'ev, Zh I. Alferov: Ultranarrow Luminescence Lines from Single Quantum Dots. In: *Physical Review Letters* 74 (1995), Nr. 20, S. 4043
- [Gru02] M. Grundmann (Hrsg.): *Nano-Optoelectronics*. Heidelberg, Berlin : Springer, 2002 (NanoScience and Technology)
- [Guf04] F. Guffarth, R. Heitz, A. Schliwa, K. Pötschke, D. Bimberg: Observation of monolayer-splitting for InAs/GaAs quantum dots. In: *Eleventh International Conference on Modulated Semiconductor Structures* Bd. 21, 2004 (Proceedings of the Eleventh International Conference on Modulated Semiconductor Structures), S. 326
- [Guh90] S. Guha, A. Madhukar, K. C. Rajkumar: Onst of incoherency and defect introduction in the initial stages of molecular beam epitaxial growth of highly strained  $In_xGa_{1-x}As$  auf GaAs (100). In: *Applied Physics Letters* 57 (1990), S. 2110
- [Hei97] R. Heitz, T.R. Ramachandran, A. Kalburge, Q. Xie, I. Mukhametzhanov, P. Chen, A. Madhukar: Observation of re-entrant 2D to 3D morphology transition in highly strained epitazy: InAs on GaAs. In: *Physical Review Letters* 78 (1997), Nr. 21, S. 4071
- [Hei98a] F. Heinrichsdorff: *MOCVD growth and laser applications of In(Ga)As/GaAs quantum dots*, Technische Universität Berlin, Dissertation, 1998
- [Hei98b] R. Heitz, I. Mukhametzhanov, A. Madhukar, A. Hoffmann, D. Bimberg: Temperature dependent optical properties of self-organized InAs GaAs quantum dots. In: 40th Electronic Materials Conference (EMC-40). Charlottesville, Virginia : Minerals Metals Materials Soc, 1998, S. 520

- [Hei00] R. Heitz, H. Born, A. Hoffmann, D. Bimberg, Mukhametzhanov I.,
   A. Madhukar: Resonant Raman scattering in self-organized InAs/GaAs quantum dots. In: *Applied Physics Letters* 77 (2000), S. 3746
- [Hol99] V. Holy, U. Pietsch, T. Baumbach: *High resolution X-ray scattering from thin films and multilayers*. Berlin, Heidelberg, New York : Springer, 1999
- [Hop06] F. Hopfer, A. Mutig, M. Kuntz, G. Fiol, D. Bimberg, N. N. Ledentsov, V. A. Shchukin, S. S. Mikhrin, D. L. Livshits, I. L. Krestnikov, A. R. Kovsh, N. D. Zakharov, P. Werner: Single-mode submonolayer quantum-dot vertical-cavity surface-emitting lasers with high modulation bandwidth. In: *Applied Physics Letters* 89 (2006), Nr. 14
- [Hop07] F. Hopfer, A. Mutig, G. Fiol, M. Kuntz, V. A. Shchukin, V. A. Haisler, T. Warming, E. Stock, S. S. Mikhrin, I. L. Krestnikov, D. A. Livshits, A. R. Kovsh, C. Bornholdt, A. Lenz, H. Eisele, M. Dähne, N. N. Ledentsov, D. Bimberg: 20 Gb/s 85 degrees C error-free operation of VCSELs based on submonolayer deposition of quantum dots. In: *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* 13 (2007), Nr. 5, S. 1302
- [Iik88] F. Iikawa, P. Motisuke, J. A. Brum, M. A. Sacilotti, A. P. Roth, R. A. Masut: Thermally induced In/Ga interdiffusion in  $In_xGa_{1-x}As/GaAs$  strained single quantum well gron by LPMOVPE. In: *Journal of Crystal Growth* 93 (1988), S. 336
- [Jes98] D. E. Jesson, G. Chen, K. M. Chen, S. J. Pennycook: Self-Limiting Growth of Strained Faceted Islands. In: *Physical Review Letters* 80 (1998), Nr. 23, S. 5156
- [Kam99] T. I. Kamins, G. Medeiros-Ribeiro, D. A. A. Ohlberg, R. Stanley
   Williams: Evolution of Ge islands on Si(001) during annealing. In: *Journal of Applied Physics* 85 (1999), Nr. 2, S. 1159
- [Kir94] N. Kirstaedter, N. N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg, V. M. Ustinov, S. S. Ruvimov, M. V. Maximov, P. S. Kopev, Z. I. Alferov, U. Richter, P. Werner, U. Gosele, J. Heydenreich: Low-Threshold, Large T-0 Injection-Laser Emission from (InGa)As Quantum Dots. In: *Electronics Letters* 30 (1994), Nr. 17, S. 1416
- [Kit06] T. Kita, N. Tamura, O. Wada, M. Sugawara, Y. Nakata, H. Ebe,
   Y. Arakawa: Artificial control of optical gain polarization by stacking quantum dot layers. In: *Applied Physics Letters* 88 (2006), S. 211106

- [Kli97] C. F. Klingshirn: Semiconductor Optics. Berlin Heidelberg New York : Springer Verlag, 1997 (Springer Study Edition)
- [Klo99] A. Klochikhin, A. Reznitsky, S. Permogorov, T. Breitkopf, M. Grün, M. Hetterich, C. Klingshirn, V. Lyssenko, W. Langbein, J. M. Hvam: Luminescence spectra and kinetics of disordered solid solutions. In: *Physical Review B* 59 (1999), S. 12947
- [Kob96] N. P. Kobayashi, T. R. Ramachandran, P. Chen, A. Madhukar: In situ, atomic force microscope studies of the evolution of InAs three-dimensional islands on GaAs(001). In: *Applied Physics Letters* 68 (1996), Nr. 23, S. 3299
- [Kop91] R. F. Kopf, E. F. Schubert, T. D. Harris, R. S. Becker: Photoluminescence of GaAs quantum wells grown by molecular beam epitaxy with growth interruptions. In: *Applied Physics Letters* 58 (1991), Nr. 6, S. 631
- [Kos96] A. O. Kosogov, P. Werner, U. Gosele, N. N. Ledentsov, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. Y. Egorov, A. E. Zhukov, P. S. Kopev, N. A. Bert, Z. I. Alferov: Structural and optical properties of InAs-GaAs quantum dots subjected to high temperature annealing. In: *Applied Physics Letters* 69 (1996), S. 3072
- [Kov03] A. R. Kovsh, A. E. Zhukov, N. A. Maleev, S. S. Mikhrin, D. A. Livshits, Y. M. Shernyakov, M. V. Maximov, N. A. Pihtin, I. S. Tarasov, V. M. Ustinov, Z. I. Alferov, J. S. Wang, L. Wei, G. Lin, J. Y. Chi, N. N. Ledentsov, D. Bimberg: High power lasers based on submonolayer InAs-GaAs quantum dots and InGaAs quantum wells. In: *Microelectronics Journal* 34 (2003), S. 491
- [Kre99] I. L. Krestnikov, M. Strassburg, M. Caesar, A. Hoffmann, U. W. Pohl, D. Bimberg, N. N. Ledentsov, P. S. Kop'ev, Z. I. Alferov, D. Litvinov, A. Rosenauer, D. Gerthsen: Control of the electronic properties of CdSe submonolayer superlattices via vertical correlation of quantum dots. In: *Physical Review B* 60 (1999), Nr. 12, S. 8695
- [Kre01] I. L. Krestnikov, N. N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg: Arrays of two-dimensional islands formed by submonolayer insertions: Growth, properties, devices. In: *Physica Status Solidi a* 183 (2001), Nr. 2, S. 207
- [Kro96] A. Krost, G. Bauer, J. Woitok: High resolution x-ray diffraction. In: G. Bauer (Hrsg.), W. Richter (Hrsg.): Optical Characterization of Epitaxial Semiconductor Layers. Berlin : Springer, 1996, S. 287

- [Lam90] J. D. Lambkin, D. J. Dunstan, K. P. Homewood, L. K. Howard: Thermal quenching of the photoluminescence of InGaAs/GaAs and InGaAs/AlGaAs strained-layer quantum wells. In: *Applied Physics Letters* 57 (1990), S. 1986
- [Lar89] C. A. Larsen, N. I. Buchan, S. H. Li, G. B. Stringfellow: Decomposition mechanisms of tertiarybutylarsine. In: *Journal of Crystal Growth* 94 (1989), S. 663
- [Led02] N. N. Ledentsov, D. Bimberg, V. M. Ustinov, Z. I. Alferov, J. A. Lott: Self-organized InGaAs quantum dots for advanced applications in optoelectronics. In: *Japanese Journal of Applied Physics* 41 (2002), S. 949
- [Led07] N. N. Ledentsov, D. Bimberg, F. Hopfer, A. Mutig, V. A. Shchukin, A. V. Savel'ev, G. Fiol, E. Stock, H. Eisele, M. Dähne, D. Gerthsen, U. Fischer, D. Litvinov, A. Rosenauer, S. S. Mikhrin, A. R. Kovsh, N. D. Zakharov, P. Werner: Submonolayer quantum dots for high speed surface emitting lasers. In: *Nanoscale Research Letters* 2 (2007), S. 417
- [Lee98] H. Lee, R. Lowe-Webb, T. J. Johnson, W. D. Yang, P. C. Sercel: Photoluminescence study of in situ annealed InAs quantum dots: Double-peak emission associated with bimodal size distribution. In: *Applied Physics Letters* 73 (1998), Nr. 24, S. 3556
- [Leo96] R. Leon, Y. Kim, C. Jagadish, M. Gal, J. Zou, D. J. H. Cockayne: Effects of interdiffusion on the luminescence of InGaAs/GaAs quantum dots. In: *Applied Physics Letters* 69 (1996), S. 1888
- [Leu98] S. Leu, F. Höhnsdorf, W. Stolz, R. Becker, A. Salzmann, A. Greiling: Cand O-incorporation in (AlGa)As epitaxial layers grown by MOVPE using TBAs. In: *Journal of Crystal Growth* 195 (1998), Nr. 1, S. 98
- [Liu99] G. Liu, A. Stintz, H. Li, K. J. Malloy, L. F. Lester: Extremely low room-temperature threshold current density diode lasers using InAs dots in In<sub>0.15</sub>Ga<sub>0.85</sub>As quantum well. In: *Electronics Letters* 35 (1999), S. 1163
- [Luc08] F. Luckert: *MOCVD-Wachstum von Sub-Monolagen Quantenpunkten*, Technische Universität Berlin, Diplomarbeit, 2008
- [Mad94] A. Madhukar, Q. Xie, P. Chen, A. Konkar: Nature of strained InAs three-dimensional island formation and distribution on GaAs(100). In: *Applied Physics Letters* 64 (1994), Nr. 20, S. 2727

- [Mad98] A. Madhukar, T. R. Ramachandran, A. Konkar, I. Mukhametzhanov, W. Yu, P. Chen: On the atomistic and kinetic nature of strained epitaxy and formation of coherent 3D island quantum boxes. In: *Applied Surface Science* 123/124 (1998), S. 266
- [Mat74] J. W. Matthews, A. E. Blakeslee: Defects in epitaxial multilayers. 1. Misfit Dislocations. In: *Journal of Crystal Growth* 27 (1974), S. 118
- [Mik00] S. S. Mikhrin, A. E. Zhukov, A. R. Kovsh, N. A. Maleev, V. M. Ustinov, Y. M. Shernyakov, I. P. Soshnikov, D. A. Livshits, I. S. Tarasov, D. A. Bedarev, B. V. Volovik, M. V. Maximov, A. F. Tsatsul'nikov, N. N. Ledentsov, P. S. Kop'ev, D. Bimberg, Z. I. Alferov: 0.94 μm diode lasers based on Stranski-Krastanow and sub-monolayer quantum dots. In: *Semiconductor Science and Technology* 15 (2000), S. 1061
- [Mol98] N. Moll, M. Scheffler, E. Pehlke: Influence of surface stress on the equilibrium shape of strained quantum dots. In: *Phys. Rev. B* 58 (1998), Nr. 8, S. 4566
- [Muk99] I. Mukhametzhanov, Z. Wei, R. Heitz, A. Madhukar: Punctuated island growth: An approach to examination and control of quantum dot density, size, and shape evolution. In: *Applied Physics Letters* 75 (1999), Nr. 1, S. 85
- [Mun83] H. Munzel, D. Bimberg, A. Steckenborn: Direct evidence for screening of carriers - acoustic phonon interaction. In: *Physicsa* 117B & 188B (1983), S. 214
- [Nak00] Y. Nakata, K. Mukai, M. Sugawara, K. Ohtsubo, H. Ishikawa,
   N. Yokoyama: Molecular beam epitaxial growth of InAs self-assembled quantum dots with light-emission at 1.3 µm. In: *Journal of Crystal Growth* 208 (2000), S. 93
- [Peo85] R. People, J. C. Bean: Calculation of Critical Layer Thickness Versus Lattice Mismatch for  $Ge_xSi_{1-x}/Si$  Strained-Layer Heterostructures. In: *Applied Physics Letters* 47 (1985), S. 322
- [Poc05] L. C. Pocas, E. M. Lopes, J. L. Duarte, I. F. L. Dias, S. A. Lourenco, E. Laureto, M. Valadares, P. S. S. Guimaraes, L. A. Cury, J. C. Harmand: The effect of potential fluctuations on the optical properties of InGaAs/InAlAs superlattices. In: *Journal of Applied Physics* 97 (2005), S. 103518
- [Poh08] U. W. Pohl, S. Rodt, A. Hoffmann: Optical properties of III-V Quantum Dots. In: D. Bimberg (Hrsg.): Semiconductor nanostructures. Berlin

Heidelberg New York : Springer, 2008 (Nanoscience and Technology), S. 267

- [Raa00] A. Raab, G. Springholz: Oswald ripening and shape transitions of self-assembled PbSe quantum dots on PbTe (111) during annealing. In: *Applied Physics Letters* 77 (2000), Nr. 19, S. 2991
- [Ram97] T. R. Ramachandran, R. Heitz, P. Chen, A. Madhukar: Mass transfer in Stranski-Krastanow growth of InAs on GaAs. In: *Applied Physics Letters* 70 (1997), Nr. 5, S. 640
- [Rei93] L. Reimer: Series in Optical Sciences. Bd. 36: Transmission Electron Microscopy. Berlin : Springer, 1993
- [Ric86] W. Richter: Physics of metal organic chemical vapour deposition. In: Advances in Solid State Physics Bd. 26. Springer Berlin/Heidelberg, 1986, S. 335
- [Ros98] F. M. Ross, J. Tersoff, R. M. Tromp: Coarsening of Self-Assembled Ge Quantum Dots on Si(001). In: *Physical Review Letters* 80 (1998), Nr. 5, S. 984
- [Ruv95] S. Ruvimov, P. Werner, K. Scheerschmidt, U. Gösele, J. Heydenreich, U. Richter, N. N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. Yu. Egorov, P. S. Kopev, Zh. I. Alferov: Structural characterization of (In,Ga)As quantum dots in a GaAs matrix. In: *Physical Review B* 51 (1995), Nr. 20, S. 14766
- [Sai99] H. Saito, K. Nishi, S. Sugou: Shape transition of InAs quantum dots by growth at high temperature. In: *Appl. Phys Lett.* 74 (1999), Nr. 9, S. 1224
- [Sch07a] A. Schliwa: *Electronic Properties of Self-Organized Quantum Dots*, Technische Universität Berlin, Dissertation, 2007
- [Sch07b] A. Schliwa, M. Winkelnkemper, D. Bimberg: Impact of size, shape, and composition on piezoelectric effects and electronic properties of In(Ga)As/GaAs quantum dots. In: *Physical Review B* 76 (2007), Nr. 20, S. 17
- [Sek97] S. Sekiguchi, T. Miyamoto, F. Koyama, K. Iga: Auto-doping of Carbon to AlAs Grown by Metalorganic Chemical Vapor Deposition using Trimethylaluminum and Tertiarybutylarsine. In: *Japanese Journal of Applied Physics* 36 (1997), S. 2638
- [Sel03] R. Sellin: Metalorganic Chemical Vapor Deposition of High-Performance GaAs-Based Quantum-Dot Lasers, Technische Universität Berlin, Dissertation, 2003

- [SG01] G. Saint-Girons, G. Patriarche, L. Largeau, J. Coelho, A. Mereuta, J. M. Moison, J. M. Gerard, I. Sagnes: Bimodal distribution of Indium composition in arrays of low-pressure metalorganic-vapor-phase-epitaxy grown InGaAs/GaAs quantum dots. In: *Applied Physics Letters* 79 (2001), Nr. 14, S. 2157
- [Shc95] V. A. Shchukin, N. N. Ledentsov, P. S. Kop'ev, D. Bimberg: Spontaneous Ordering of Arrays of Coherent Strained Islands. In: *Physical Review Letters* 75 (1995), S. 2968
- [Shc98a] V. A. Shchukin, D. Bimberg: Strain-driven self-organization of nanostructures on semiconductor surfaces. In: *Applied Physics A* 64 (1998), Nr. d, S. 687
- [Shc98b] V. A. Shchukin, D. Bimberg, V. G. Malyshkin, N. N. Ledentsov: Vertical correlations and anticorrelations in multisheet arrays of two-dimensional islands. In: *Physical Review B* 57 (1998), Nr. 19, S. 12262
- [Shc99] V. A. Shchukin, D. Bimberg: Spontaneous ordering of nanostructures on crystal surfaces. In: *Reviews of Modern Physics* 71 (1999), S. 1125
- [Shc00] V. A. Shchukin, N. N. Ledentsov, V. M. Ustinov, Yu. M. Musikhin, V. B. Volovik, A. Schliwa, O. Stier, R. Heitz, D. Bimberg: New tools to control morphology of self-organized quantum dot nanostructures. In: *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* 618 (2000), S. 79
- [Shc04] V. A. Shchukin, N. N. Ledentsov, D. Bimberg: *Epitaxy of Nanostructures*. Heidelberg, Berlin : Springer, 2004 (NanoScience and Technology)
- [Sny91] C. W. Snyder, B. G. Orr, D. Kessler, L. M. Sander: Effect of strain on surface morphology in highly strained InGaAs films. In: *Physical Review Letters* 77 (1991), S. 3032
- [Sti99] O. Stier, M. Grundmann, D. Bimberg: Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band-kp theory. In: *Physical Review B* 59 (1999), S. 5688
- [Sti00] O. Stier: *Electronic and Optical Properties of Quantum Dots and Wires*, Technische Universität Berlin, Dissertation, 2000
- [Sto00] W. Stolz: Alternative N-, P- and As-precursors for III/V-epitaxy. In: Journal of Crystal Growth 209 (2000), Nr. 2-3, S. 272
- [Str37] I. N. Stranski, L. Krastanow: Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von Ionenkristallen aufeinander. In: *Monatshefte für Chemie* 71 (1937), Nr. 1, S. 351
- [Str99] G. B. Stringfellow: Organometallic Vapor-Phase Epitaxy: Theory and Practice. second. London : Academic Press, 1999
- [Tak62] S. Takagi: Dynamical theory of diffraction applicable to crystal with any kind of small distortion. In: *Acta Crystallographica* 15 (1962), S. 1311
- [Tsa86] W. T. Tsang, E. F. Schubert: Extremely high-quality Ga<sub>0.47</sub>In<sub>0.53</sub>As/InP quantum-wells grown by chemical beam epitaxy. In: *Applied Physics Letters* 49 (1986), S. 220
- [Var67] Y. P. Varshni: Temperature dependence of the energy gap in semiconductors. In: *Physica* 34 (1967), S. 149
- [Ven84] J. A. Venables, G. D. Spiller, M. Hanbücken: Nucleation and growth of thin films. In: *Reports on Progress in Physics* 47 (1984), Nr. 4, S. 399
- [Vol26] M. Volmer, A. Weber: Nucleus formation in supersaturated systems. In: Z. Physik. Chem. 119 (1926), S. 277
- [Vur01] I. Vurgaftman, J.R. Meyer, L.R. Ram-Mohan: Band parameters for III/V compound semiconductors and their alloys. In: *Applied Physics Letters* 89 (2001), S. 5815
- [Wei80] C. Weisbuch, R. Dingle, A. C. Gossard, W. Weigmann: Summary Abstract: Optical characterization of interface disorder in multiquantum well GaAs-Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As superlattice structures. In: *Journal of Vacuum Science and Technology* 17 (1980), Nr. 5, S. 1128
- [Wel85] D. F. Welch, G. W. Wicks, L. F. Eastman: Luminescence line-shape broadening mechanisms in GalnAs/AllnAs quantum wells. In: Applied Physics Letters 46 (1985), S. 991
- [Xu03a] Z. C. Xu, D. Birkedal, J. M. Hvam, Z. Y. Zhao, Y. M. Liu, K. T. Yang, A. Kanjilal, J. Sadowski: Structure and optical anisotropy of vertically correlated submonolayer InAs/GaAs quantum dots. In: *Applied Physics Letters* 82 (2003), S. 3859
- [Xu03b] Z. C. Xu, K. Leosson, D. Birkedal, V. Lyssenko, J. M. Hvam,
  J. Sadowski: InGaAs/GaAs quantum-dot-quantum-well heterostructure formed by submonolayer deposition. In: *Nanotechnology* 14 (2003), S. 1259
- [Xu04] Z. C. Xu, D. Birkedal, M. Juhl, J. M. Hvam: Submonolayer InGaAs/GaAs quantum-dot lasers with high modal gain and zero-linewidth enhancement factor. In: *Applied Physics Letters* 85 (2004), Nr. 15, S. 3259

- [Xu06] Z. C. Xu, Y. T. Zhang, J. M. Hvam, J. J. Xu, X. S. Chen, W. Lu: Carrier dynamics in submonolayer InGaAs/GaAs quantum dots. In: *Applied Physics Letters* 89 (2006), S. 3
- [Yoo93] S. F. Yoon, H. M. Li, Radhakrishnan K., D. H. Zhang: The effect of growth interruption on the photoluminescence linewidth of GaAs/InGaAs quantum wells grown by molecular beam epitaxy. In: *Journal of Crystal Growth* 131 (1993), S. 1
- [Yos85] M. Yoshida, H. Watanabe, F. Uesugi: Mass spectrometric study of  $Ga(CH_3)_3$  and  $Ga(C_2H_5)_3$  decomposition reaction in  $H_2$  and  $N_2$ . In: *Journal of The Electrochemical Society* 132 (1985), S. 677
- [Yu99] P. Yu, W. Langbein, K. Leosson, J. M. Hvam, N. N. Ledentsov,
  D. Bimberg, V. M. Ustinov, A. Y. Egorov, A. E. Zhukov, A. F. Tsatsul'nikov, Y. G. Musikhin: Optical anisotropy in vertically coupled quantum dots. In: *Physical Review B* 60 (1999), S. 16680
- [Yua02] Z. L. Yuan, B. E. Kardynal, R. M. Stevenson, A. J. Shields, C. J. Lobo, K. Cooper, N. S. Beattie, D. A. Ritchie, M. Pepper: Electrically driven single-photon source. In: *Science* 295 (2002), Nr. 5552, S. 102
- [Zha01] Y. C. Zhang, C. J. Huang, F. Q. Liu, B. Xu, J. Wu, Y. H. Chen, D. Ding, W. H. Jiang, X. L. Ye, Z. G. Wang: Thermal redistribution of photocarriers between bimodal quantum dots. In: *Journal of Applied Physics* 90 (2001), Nr. 4, S. 1973
- [Zhu98] L. Zhuang, L. J. Guo, S. Y. Chou: Silicon single-electron quantum-dot transistor switch operating at room temperature. In: *Applied Physics Letters* 72 (1998), Nr. 10, S. 1205
- [Zhu99] A. E. Zhukov, A. R. Kovsh, S. S. Mikhrin, N. A. Maleev, V. M. Ustinov, D. A. Livshits, I. S. Tarasov, D. A. Bedarev, M. V. Maximov, A. F. Tsatsul'nikov, I. P. Soshnikov, P. S. Kop'ev, Z. I. Alferov, N. N. Ledentsov, D. Bimberg: 3.9W cw power from sub-monolayer quantum dot diode laser. In: *Electronics Letters* 35 (1999), S. 1845

## Danksagung

Prof. Bimberg danke ich für die Möglichkeit der Dissertation auf dem (verbrauchsmittelintensiven) Gebiet der MOCVD und die Betreuung der Arbeit.

Prof. Krost danke ich für das Interesse und die Übernahme des Zweitgutachtens.

Dr. Robert Heitz danke ich für die leider kurze Zeit der Zusammenarbeit. Er wird mir in vielen Dingen ein Vorbild bleiben.

David Feise und Franziska Luckert danke ich für die Unterstützung und die angenehme Zusammenarbeit.

Kathrin Schatke gilt mein besonderer Dank insbesondere für die tatkräftige Unterstützung an den MOCVD-Anlagen.

Dr. André Strittmatter danke ich für anregende Diskussionen und Hinweise zum Kristall- und Quantenpunktwachstum und für die Unterstützung an AIX1107.

Dr. Andrei Schliwa danke ich für die Durchführung der 8-Band  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  Modellierungen.

Kristian Posilovic und Torsten Kettler danke ich für die Prozessierung und Vermessung der Laser.

Sven Rodt danke für die Korrekturen der Arbeit und die Unterhaltungen auf dem "Balkon".

Allen Kolleginnen und Kollegen der exzellenten Arbeitsgruppe danke ich für die angenehme Arbeitsatmosphäre und die vielen angenehmen Stunden während und zum Teil auch nach der Arbeit.

Unzähligen Entwicklern freier Software bin ich für die Entwicklung und Pflege der Programme und Programmpakete LATEX, MikTeX, Koma-Script, UltraVNC, TeXnicCenter, PsPad, Putty, WinSCP zu Dank verplichtet.

Antje Pötschke danke ich mich für die Unterstützung, die Geduld und die vielen Stunden *umgewidmeter* Zeit in denen sie auf mich verzichten musste.