

Optische Eigenschaften von Exzitonen in InGaN-Quantenstrukturen



Diplomarbeit von **Til Bartel**

Matrikelnummer: 206597

Technische Universität Berlin

Fakultät II - Institut für Festkörperphysik

Priv. Doz. Dr. Axel Hoffmann

Prof. Dr. Christian Thomsen

24. April 2004

Til Bartel

(030) 314-79792

til.bartel@web.de

Matrikelnummer: 206597

Die selbständige und eigenhändige Anfertigung
versichere ich an Eides statt.

Berlin, den 24. April 2004

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Motivation	2
1.2	Ziel und Gliederung der Arbeit	3
2	Grundlagen der III-Nitride	5
2.1	Nitrid-Halbleiterkristalle	5
2.1.1	Hexagonale und kubische Kristallstruktur	5
2.1.2	Epitaktisches Wachstum	6
2.1.3	InGaN	7
2.2	Optische Eigenschaften des Volumenhalbleiters InGaN	7
2.2.1	Exzitonische Rekombination	8
2.2.2	Bandlückenverhalten	11
2.3	Niederdimensionale Strukturen	12
2.3.1	Reduktion der Dimension	12
2.3.2	Lokalisierung und <i>Confinement</i>	14
2.3.3	Elektrische Felder - Quantum Confined Stark Effect	15
2.4	InGaN-Quantenpunkte	18
2.4.1	Wachstum	18
2.4.2	Lumineszenzeigenschaften	20
2.5	Dynamik der Rekombination	22
3	Experimentelle Methoden	25
3.1	Photolumineszenzspektroskopie	25
3.1.1	Tiefe Temperaturen	26
3.2	Zeitaufgelöste Photolumineszenz	26
3.2.1	Anregung	27
3.2.2	Nachweis und Auswertung	27

3.3	Mikro-Photolumineszenz	30
3.3.1	Das Mikroskop	30
3.3.2	Einkoppelung der Anregung	31
3.3.3	Nachweis	32
3.3.4	Mögliche Optimierung der Mikro-PL	32
4	Die Proben	37
4.1	Herstellung	37
4.2	Präparation	38
5	Ergebnisse und Diskussion	41
5.1	Ensemble- und Einzel-QP-Spektroskopie	41
5.2	Die Dynamik der Exzitonen in InGaN-Quantenpunkten	43
5.2.1	Dynamik des Quantenpunkt-Ensembles	43
5.2.2	Dynamik einzelner Quantenpunkte	45
5.3	Transferprozesse und Lokalisierung	48
5.4	Zusammenfassung der Messergebnisse	54
6	Zusammenfassung und Ausblick	57
	Anhang	61
A-1	Materialparameter von GaN und InN	61
A-2	Rezept zur Herstellung der Masken	62
A-3	Fabry-Pérot Interferenzen	63
	Literaturverzeichnis	65

Das Titelbild zeigt eine zur Lumineszenz angeregte InGaN-Quantenpunkt-Probe durch das Okular der μ -PL. Hellere Punkte sind 10 μ m und 200 nm Aperturen in einer Metallmaske auf der Probenoberfläche.

Kapitel 1

Einleitung

Die rasante Entwicklung der Halbleitertechnologien hat im vergangenen Jahrhundert unser alltägliches Leben durchdrungen und revolutioniert. Als 1947 der erste Transistor auf Halbleiterbasis gebaut wurde, legte dies den Grundstein für den Siegeszug des Siliziums. Mikrochips und die sie begleitenden Informations- und Kommunikationstechnologien gaben nach Einstein dem Menschen zum zweiten Mal ein neues Gefühl von Raum und Zeit.

Noch ist kein Ende der dadurch ausgelösten Innovationswelle abzusehen, doch sie ändert zusehends ihre Stossrichtung. Faszinierten in der unmittelbaren Nachkriegszeit die elektrischen Eigenschaften von Halbleiterkristallen, so rückten nach der Herstellung der ersten Leuchtdiode (LED, 1960) und Laserdiode (LD, 1970) auch deren optische Eigenschaften ins Zentrum des Interesses von Forschung und Industrie. Durch die Synthese neuer Halbleitermaterialien wurde die Festkörperphysik zum wichtigsten Forschungsschwerpunkt der Physik.

Die Gruppe-III-Nitride belegen einen prominenten Platz unter den neuen Materialien, da sie aufgrund ihrer Bandlücken für vielfältige Anwendungen in der Opto- und Hochleistungselektronik prädestiniert sind. Zu dieser Gruppe gehören die Basismaterialien Indiumnitrid (InN), Galliumnitrid (GaN) und Aluminiumnitrid (AlN), sowie die daraus gebildeten ternären Verbindungen. Insbesondere InGaN, dessen Bandlücke theoretisch den gesamten sichtbaren Bereich abdecken könnte, ist von besonderem Interesse für Beleuchtung und Unterhaltungselektronik.

So sind InGaN/GaN Heterostrukturen Teil einer optischen Revolution deren Höhepunkt noch bevorsteht. Sie bilden das Herz kommerziell vertriebener blau-grüner LEDs [Nak97] und ermöglichen durch Farbmischung erstmals die Produktion von weissen LEDs.

Quantisierungseffekte in niederdimensionalen Strukturen steigert die Effizienz der strahlenden Rekombination weiter [Bim99]. Insbesondere in InGaN Quantenpunkt-Lasern er-

hofft man niedrigere Schwellströme und größere Temperaturstabilität. Entsprechend wächst das Forschungsinteresse an 0-dimensionalen InGa_N-Strukturen. Beeindruckend spiegelt sich dies in der exponentiellen Zunahme von Veröffentlichungen innerhalb der letzten Jahre wider [Ara02].

Trotz einer hohen Versetzungsdichte in InGa_N-Schichten ist die strahlende Rekombination dank der starken Lokalisierung von Exzitonen sehr wahrscheinlich [Chi97, Yu98a]. Als Lokalisierungszentren in InGa_N-Quantenschichten wurden mesoskopische Inseln mit hoher Indium-Konzentration beobachtet, welche klein genug sein können um Quantenpunkteigenschaften aufzuweisen [Hir98, Dam99, Mor00].

1.1 Motivation

InGa_N-Quantenpunkt-Systeme wurden innerhalb der letzten 5 Jahre auf ihre Struktur und Lumineszenz intensiv erforscht.

Rasterkraft- und Transmissions-Mikroskopie Untersuchungen zeigen nanoskopische Inseln mit hohem Indium-Gehalt [Dam99, Kre02]. Die Inseln formen somit Potentialtöpfe in denen Exzitonen eingefangen werden können, deren Rekombination die Lumineszenz der Probe dominiert. Ortsaufgelöste Kathodolumineszenz-Untersuchungen an einzelnen Quantenpunkten zeigen außerdem scharfe Emissionslinien, die der δ -förmigen Zustandsdichte der Quantenpunkte zugeschrieben werden [Seg04c].

Das zeitliche Verhalten der Lumineszenz des Quantenpunkt-Ensembles zeigt ein multi-exponentielles Verhalten [Kre02]. Im Gegensatz dazu wurde für einzelne Quantenpunkte ein mono-exponentielles Abklingen gefunden [Rob03].

Das qualitativ unterschiedliche Verhalten der Ensemble- und der Quantenpunkt-Lumineszenz konnte bisher noch nicht eindeutig erklärt werden. Auch ist über das zeitliche Verhalten von Exzitonen in InGa_N-Quantenpunkten wenig bekannt. Der Einfluss auf die Dynamik der Rekombination von Größe und Form der Quantenpunkte, sowie von inneren elektrischen Feldern ist noch größtenteils unverstanden.

Die vorliegende Arbeit knüpft an vorhergehende zeitaufgelöste Messungen an und stellt Lumineszenz-Messungen am Quantenpunkt-Ensemble und an einzelnen Quantenpunkten direkt gegenüber. Auf diese Weise kann ein tieferes Verständnis der Dynamik von Exzitonen in InGa_N-Quantenpunkt-Strukturen erreicht werden.

1.2 Ziel und Gliederung der Arbeit

Ziel der vorliegenden Arbeit ist der Aufbau eines Mikro-Photolumineszenz-Messstandes (μ -PL) zur Untersuchung von nanostrukturierten InGaN-Quantenpunkt-Proben. Die Aufgabenstellung beinhaltet:

Aufbau einer Mikro-Photolumineszenz-Apparatur. Der Messstand muss über eine Anregung und einen Nachweis mit hoher örtlichen Auflösung verfügen und für den ultravioletten spektralen Bereich geeignet sein. Die Probe soll bis auf Temperaturen von flüssigem Helium abzukühlen sein.

Testen der Apparatur an InGaN-Quantenpunkten. Die Eignung der μ -PL zur Untersuchung von einzelne Quantenpunkten soll an InGaN-Quantenpunkt-Proben demonstriert werden. Da bei diesem Material-System die Quantenpunkt-Dichte sehr hoch ist, muss auf eine Maskentechnik zurückgegriffen werden, um eine örtliche Auflösung des Nachweises im Sub-Mikrometer-Bereich zu erreichen.

Erforschung der Dynamik von Exzitonen in solchen Strukturen. Anhand von zeitaufgelösten Lumineszenz-Messungen am Quantenpunkt-Ensemble und der orts aufgelösten Messung an einzelnen Quantenpunkten soll das transiente Verhalten von Exzitonen in InGaN-Quantenpunkten verstanden werden. Insbesondere wird eine Erklärung für das multi-exponentielle transiente Verhalten des Quantenpunkt-Ensembles gesucht. Die Transferprozesse, denen Ladungsträger in InGaN-Quantenpunkten unterliegen können, sollen mit temperaturabhängigen Messungen untersucht werden.

Die Arbeit ist wie folgt gegliedert: In Kapitel 2 werden die Grundlagen zum Verständnis von Gruppe-III-Nitriden und InGaN-Quantenpunkten vorgestellt.

Die experimentellen Methoden, die in dieser Arbeit angewandt werden, sind in Kapitel 3 beschrieben. Hier wird die zeitaufgelöste Photolumineszenz eingeführt, sowie in Detail auf den Aufbau und die Handhabung der μ -PL eingegangen. Um Untersuchungen an isolierten Quantenpunkten durchzuführen, wurde die Probenoberfläche maskiert (Kapitel 4).

In Kapitel 5 werden die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen vorgestellt. Es wurden zeitaufgelöste Photolumineszenz-Messungen am Quantenpunkt-Ensemble sowie an einzelnen Quantenpunkten durchgeführt und gegenübergestellt. Um die Relevanz von Tunnel-Prozessen und thermische Aktivierung von Exzitonen abzuschätzen, wurden außerdem temperaturabhängige Meßreihen aufgenommen.

Kapitel 6 schließt die vorliegende Arbeit mit einer Zusammenfassung der Messergebnisse und einem Ausblick auf weitere interessante Messungen.

Kapitel 2

Grundlagen der III-Nitride

Ziel dieses Kapitels ist es, ein Grundverständnis des ternären Materials Indium-Gallium-Nitrid (InGaN) und der darauf basierenden niederdimensionalen Strukturen zu vermitteln. Um dies zu erreichen, soll in Kapitel 2.1 auf die Kristallstruktur und das Wachstum seiner Konstituenten, GaN und InN, eingegangen werden. In Kapitel 2.2 werden die optischen Eigenschaften des Volumenhalbleiters InGaN dargestellt. InGaN-Quantenschichten und Quantenpunkte (QP) werden etwas ausführlicher im Kapitel 2.3 und 2.4 beschrieben. Außerdem wird auf Effekte wie das *Confinement* von Ladungsträger und ihre Beeinflussung durch innere elektrische Felder eingegangen. Abschließend wird das dynamische Verhalten von Ladungsträgern in solchen Strukturen vorgestellt.

2.1 Nitrid-Halbleiterkristalle

2.1.1 Hexagonale und kubische Kristallstruktur

Die elektrischen und optischen Eigenschaften von Festkörpern werden durch ihre elektronische Bandstruktur bestimmt. Diese ist stark von der kristallinen Anordnung der Atomrümpfe abhängig. Für die Nitrid-Verbindungen GaN und InN ergeben sich zwei mögliche Kristallmodifikationen: Die hexagonale (h) Wurtzitstruktur und die kubische (c) Zinkblendestruktur (siehe Abb. 2.1). Beide Phasen führen zu einem Halbleiter mit direkter Bandlücke. Aufgrund der trigonalen Verzerrung der tetraedrischen Verbindungen ergibt sich jedoch für die hexagonale Phase eine niedrigere Symmetrie und es kommt zu einer Ladungsträgertrennung, die eine Polarisation der Elementarzelle verursacht. Dies kann zu starken elektrische Feldern führen, die Ladungsträger und Bandstruktur beeinflussen (siehe Kap. 2.3.3).

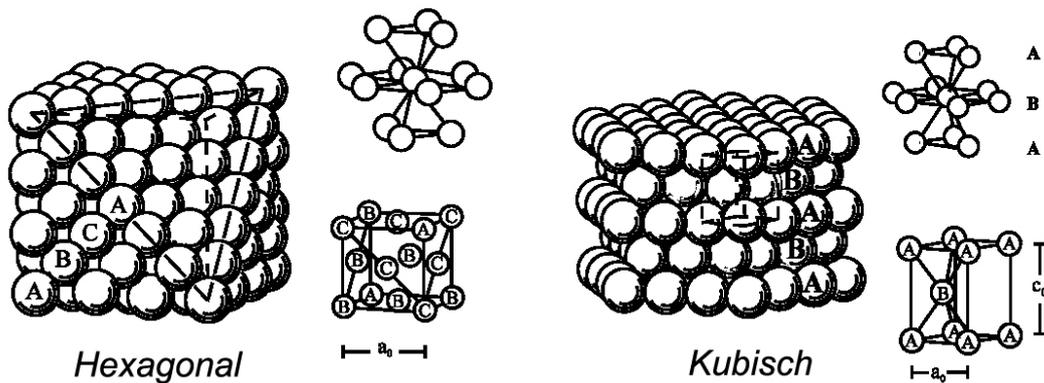


Abbildung 2.1: Hexagonale Wurtzitstruktur (h) und kubische Zinkblendestruktur (c) [Eck98]

In dieser Arbeit wurden ausschließlich hexagonale Proben untersucht, weshalb sich das Folgende auf diese Kristallstruktur beschränkt.

2.1.2 Epitaktisches Wachstum

Epitaktisches¹ Wachstum, d.h. das Auftragen atomarer Monolagen (ML) auf ein Substrat, wird an einer breiten Palette von Materialien betrieben, um saubere, einkristalline Halbleiter zu erhalten. Molekularstrahl- (MBE) und metall-organische Gasphasenepitaxie (MOCVD) von Gruppe-III-Nitriden wird seit den späten 80er Jahren angewandt. Nitride werden auf Fremdsubstraten gewachsen lassen, was eine hohe Fehlanpassung von Gitterkonstanten und thermischen Expansionskoeffizienten zur Folge hat. Außerdem verhindert die schlechte Löslichkeit von Indium in Gallium homogene InGaN-Schichten.

Nitride mit Wurtzitstruktur werden meist auf einem Substrat gewachsen, das eine hexagonale Grundstruktur vorgibt. Neben Si(111) werden auch SiC und Saphir als Substrate genutzt, alle führen jedoch aufgrund bedeutender Abweichung von Gitterabstand und thermischem Expansionskoeffizient zu verspannten und defektreichen Schichten. Dies wird durch im Anhang in Tabelle 6.2 aufgeführten Gitterparameter und Gitterfehlanpassungen illustriert. Bei einer Gitterfehlanpassung erfolgt bis zu einer kritischen Schichtdicke h_c ein pseudomorphes Wachstum, d.h. die Epischicht wächst völlig verspannt mit der Gitterkonstante des Substrats. Für Schichtdicken $> h_c$ entspannt sich das Material durch Versetzungen, Vakanzen und andere Gitterfehler.

Die kritische Schichtdicke von GaN auf Saphir liegt bei 2-3 ML, was für 3D Kristalle

¹Epi: an der Oberfläche, taxis: Anordnung (Griechisch)

zu Defektdichten von 10^8 bis $10^{11}/\text{cm}^2$ führt [Gra97]. Diese Defekte in Form von Rissen, Leerstellen und Versetzungen sind effektive nicht-strahlende Rekombinationszentren und wirken sich fatal auf die Lumineszenzeigenschaften aus. Des Weiteren weisen nominell undotierte GaN-Kristalle eine elektronische Ladungsträgerdichten von $\sim 10^{16}/\text{cm}^2$ auf (für eine Übersicht zu diesem Thema siehe z.B. [Jai00]).

Um die Defektdichte zu reduzieren, werden zum Teil sehr aufwändige Verfahren angewandt. Etabliert hat sich das Wachstum bei tiefen Temperaturen einer Nukleationsschicht (seed layer) aus GaN oder AlN mit einer dicken und bei hohen Temperaturen gewachsenen Buffer-Schicht [Ama98]. Diese Vorgehensweise baut Spannungen ab und reduziert die Defektdichte. Noch weiter geht das "strain engineering" bei dem die Struktur des Substrats Defekte an bestimmten Stellen gezielt induziert und so an anderen Stellen entspanntes und nahezu defektfreies Wachstum ermöglicht [Dad03].

2.1.3 InGaN

Die ternäre Verbindung zwischen Indium, Gallium und Stickstoff hat erst in den letzten 10 Jahren wachsendes Interesse erfahren. Ihr Wachstumsverhalten folgt prinzipiell dem ihrer Konstituenten. Es ist jedoch in der Literatur noch umstritten, wie sich die Entmischung von Indium in InGaN genau auf den Wachstum auswirkt.

Unbestritten ist, dass die chemische Komposition einer dünnen InGaN-Schicht nicht einheitlich ist. Ortsaufgelöste XPS und TEM Messungen an InGaN-Kristallen weisen mikroskopische Fluktuationen des Indiumgehalts nach. Diese Fluktuationen sind klein genug, um Quantenpunkt-Eigenschaften aufzuweisen [Mus02].

Verschiedene Gruppen haben $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ mit einer Indiumkonzentration x zwischen 0,05 und 0,2 wachsen lassen. *Grandjean* und *Massies* fanden kritische Schichtdicken von nur wenigen ML [Gra98], während *Akasaki* und *Amano* kritische Schichtdicken von fast $0.5 \mu\text{m}$ beschreiben [Aka98]. Eine Abhängigkeit von der Indiumkonzentration wurde nicht nachgewiesen.

Im Kapitel 4 wird auf die genaue Struktur der untersuchten Proben eingegangen.

2.2 Optische Eigenschaften des Volumenhalbleiters InGaN

Photonen können in Halbleitern Ladungsträger über die Bandlücke anregen. Diese können ihre Energie auf unterschiedliche Weise wieder abgeben. Die wichtigsten Prozesse hierzu

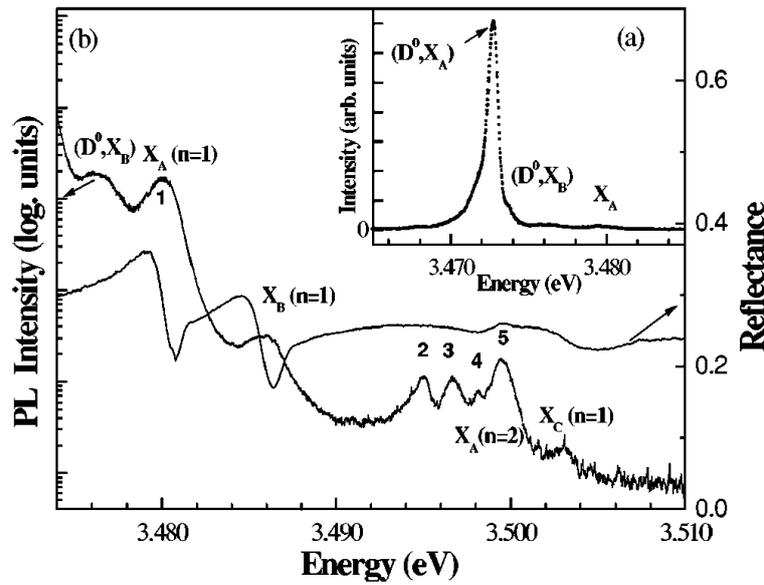


Abbildung 2.2: Logarithmische und lineare (inset) Darstellung der Lumineszenz von GaN in Bandkantennähe. Markiert sind die exzitonischen Übergänge (X). Auf der rechten Skala ist das Reflexionsspektrum aufgetragen, das die Identifikation von freien Exzitonen erlaubt [Rod01].

sind Band-Band-Rekombination, exzitonische Übergänge sowie nicht-strahlende Rekombination über Defekte. Die direkte Band-Band-Rekombination, ist in Gruppe-III-Nitriden sehr ineffektiv. Am Beispiel eines GaN Photolumineszenz-Spektrums (PL) soll auf die ungleich wahrscheinlicheren exzitonischen Rekombinationsprozesse eingegangen werden.

2.2.1 Exzitonische Rekombination

Bei Absorption eines Photons mit ausreichender Energie kann ein Elektron über die Bandlücke in das Leitungsband (LB) angeregt werden. Es hinterläßt im Valenzband (VB) eine positiv geladene Vakanz, die als "Loch" bezeichnet wird. Elektron und Loch treten über die Coulomb-Anziehung in Wechselwirkung und senken so ihre Energie ab. Diese neuen energetischen Zustände existieren nur, wenn die Ladungsträger sich gegenseitig anziehen, und man spricht deshalb von einem neuen Teilchen: dem Exziton. Exzitonen entstehen an kritischen Punkten der Bandstruktur an denen gilt

$$\nabla_k E_{LB} = \nabla_k E_{VB}. \quad (2.1)$$

In direkten Halbleitern wie GaN und InGaN entstehen Exzitonen also vorzugsweise an den Bandextrema.

Abbildung 2.2 zeigt das Emissionsspektrum einer dicken GaN-Epischicht. Die Bandlücke liegt bei 3,506 eV [Eck95], doch ist die Anziehung von Elektron und Loch im GaN so stark, dass bandkanten nahe Rekombination nur über exzitonische Prozesse geschieht, welche eine komplexe energetische Struktur aufweist. Da GaN ähnliche exzitonische Eigenschaften wie InGaN besitzt, soll im Folgenden etwas näher auf diese eingegangen werden.

Zwei Prozesse führen zu einem ausgeprägten Verhalten der Lumineszenz von GaN: a) bedingt durch die Bildung von Exzitonen mit ihrer energetischen Struktur und b) durch Aufspaltung des Valenzbandes in die Subbänder A, B und C (für eine theoretische Abhandlung siehe z.B. Rodina *et al.* [Rod01]).

Um die Bindungsenergie und die Ausdehnung eines Exzitons zu berechnen, muss das quantenmechanische Zweikörperproblem zweier Teilchen entgegengesetzter Ladung gelöst werden. Analog zur Rydbergenergie R_y und zum Bohrradius a_0 des Wasserstoffatoms ergibt sich die effektive Rydbergenergie als exzitonische Bindungsenergie E_{bin}^X und der Exziton Bohrradius a_0^X im Volumenhalbleiter zu

$$E_{bin}^X = \frac{\mu e^4}{8\epsilon \hbar^2}$$

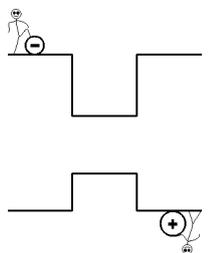
$$a_0^X = \frac{4\pi\epsilon \hbar^2}{\mu e^2},$$

mit den üblichen Definitionen von e , \hbar und $\epsilon = \epsilon_0\epsilon_r$. μ ist hier die effektive reduzierte Masse des Exzitons und wird durch die Bandstruktur bestimmt. Unter der a priori Annahme, dass der Bohrradius sehr viel größer als die Gitterkonstante ist (Wannier-Exziton [Wan37]), können wir die Volumenwerte für ϵ_r aus Tabelle 6.1 übernehmen. Mit der reduzierten Masse $\mu = m_e^*m_h^*/(m_e^* + m_h^*)$ ergibt sich nun für GaN:

$$E_{bin}^{XC} = \frac{m_0 e^4}{8\epsilon_0^2 \hbar^2} \cdot \frac{\mu}{m_0 \epsilon_r^2}$$

$$a_0^X = \frac{4\pi\epsilon \hbar^2}{m_0 e^2} \cdot \frac{m_0 \epsilon_r}{\mu}$$

Mit Werten aus Tab. 6.1 ergibt sich eine Bindungsenergie von 30 meV und ein Exziton-Bohrradius von 26 Å. Die Bindungsenergie ist selbst bei Raumtemperatur höher als die thermische Energie ($k_B T = 25 meV$) der Ladungsträger und deutet an, dass GaN-Exzitonen sehr stabile Teilchen sind. Dies erklärt das Dominieren der bandkantennahen Rekombinationsprozesse durch exzitonischen Übergänge.



Die Gesamtenergie des freien Exzitons E^X ergibt sich zu:

$$E^X(n) = E_g - E_{bin}^X \cdot \frac{1}{n^2} + \frac{\hbar^2 \mathbf{K}^2}{2M} \quad (2.2)$$

Hier ist E_g die Bandlücke und der Term rechts die kinetische Energie des Exzitons mit Wellenvektor \mathbf{K} und Masse $M = m_e^* + m_h^*$.

Die Emissionspeaks in Abbildung 2.2 lassen sich klar den Rekombinationen der Exzitonen mit Schwerloch, Leichtloch und *Split-off*-Loch (X_A , X_B und X_C) und ihren angeregten Zuständen zuordnen.

Am Inset von Abbildung 2.2, in dem die Lumineszenzintensität von GaN linear aufgetragen ist, wird klar, dass die Rekombination von *freien* Exzitonen im GaN noch hinter anderen Prozessen zurückbleibt, die im Spektrum mit dem Präfix D^0 beschrieben werden. Es handelt sich hierbei um die Rekombination *gebundener* Exzitonen.

Gebundene Exzitonen und Vielteilchen-Effekte

Exzitonen können als Teilchen mit anderen Elementen des Kristalls wechselwirken. Generell können sie sich an einen neutralen oder geladenen Donator ((D^0, X) oder (D^+, X)) bzw. Akzeptor ((A^0, X) oder (A^-, X)) binden. GaN besitzt wegen seiner Defektdichte eine hohe Konzentration von Donatoren (Kap. 2.1.2), die X_A effektiv binden und zu einer strahlenden Rekombination des (D^0, X_A) -Komplexes führen.

Bei hohen Anregungsintensitäten treten insbesondere bei Exzitonen leicht Mehrteilcheneffekte auf. Wird ein zusätzlicher Ladungsträger eingefangen, entsteht ein Trion (X^- oder X^+). Bei Wechselwirkung mit einem weiteren Exziton formt sich ein Biexziton (XX). Die Bindungsenergie der Zustände äußert sich in der Lumineszenz des Zerfalls und kann so mit optischen Methoden gemessen werden. Bei Lumineszenzmessungen lassen sich Exzitonen und Biexzitonen durch Variation der Anregungsintensität unterscheiden. Die Abhängigkeit der Exzitonenintensität von der Anregungsdichte verläuft linear, während die Lumineszenzintensität des Biexzitons quadratisch zunimmt.

Mehrteilcheneffekte sind auch in Lokalisierungszentren, die aufgrund von Bandlückenschwankungen entstehen, sehr wahrscheinlich. Exzitonen, die in solchen Potentialtöpfen gefangen werden, bezeichnet man als *lokalisierte* Exzitonen. Die Bandlücke hängt sowohl von der Temperatur wie der chemischen Zusammensetzung des Kristalls ab.

2.2.2 Bandlückenverhalten

Die Bandlücke E_g eines Mischkristalls liegt zwischen den Bandlücken seiner Konstituenten. Beachtenswert bei InN und GaN ist die enorme Bandlückendifferenz vom Infraroten bis ins Ultraviolette (siehe Tab. 6.1). Eine empirische Formel beschreibt das Verhalten von $E_g(\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N})$ als Funktion der Indiumkonzentration x :

$$E_g(\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}) = x \cdot E_g(\text{InN}) + (1 - x)E_g(\text{GaN}) - bx(1 - x) \quad (2.3)$$

Hier ist b ein für jedes Materialsystem charakteristischer "bowing"-Parameter, der die nichtlineare Abhängigkeit der Bandlücke von der Indiumkonzentration beschreibt (siehe z.B. [Vur03]). Da bei tiefen Temperaturen die Bandlücke von Indium bei 0,7 eV und die von Gallium bei 3,5 eV liegt, lässt sich für InGaN durch Variieren des Indiumanteils prinzipiell das gesamte sichtbare Spektrum abdecken.

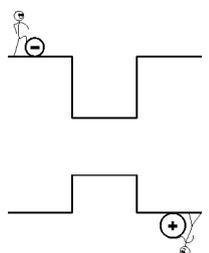
Bezeichnend für die Herausforderung, die Nitride an die Forschungsgemeinschaft darstellt, ist, dass selbst ein so grundlegender Parameter wie die Bandlücke von InN Gegenstand kontroverser Diskussionen ist. In der Tat wurde erst 2002 nachgewiesen, dass dieser Wert bei 4,2 K zwischen 0,7 eV bis 0,9 eV liegt und nicht bei 1,9 eV, wie lange angenommen² [Wu02, Dav02, Mat02].

Bei steigender Temperatur nimmt der Einfluss von Gitterschwingungen auf die Bandstruktur eines Kristalls zu. Die Bandlücke wird durch die Bewegungen der Atomrümpfe verkleinert. Dies geschieht über (1) die thermische Expansion, die die Entfernung zwischen den Kristallatomen erhöht, (2) das "Verschmieren" des periodischen Potentials durch starke Bewegungen der Atome und (3) die gegenseitige Abstoßung von Elektronen im gleichen Band und Zunahme der sog. Fan-Terme (2. Störungsordnung für Interbandkopplung) [Rid88]. Eine empirische Beschreibung der Temperaturabhängigkeit von E_g liefert die Varshni-Formel [Var67]:

$$E_g(T) = E_g(0) - \frac{\alpha \cdot T^2}{\beta + T} \quad (2.4)$$

Hierbei sind α und β materialspezifische Konstanten (siehe Tab. 6.1).

²Es wird angenommen, dass früher aufgrund der schlechten Kristallqualität die Bandlücke von In_2O_3 oder InN Nanostrukturen gemessen wurde.



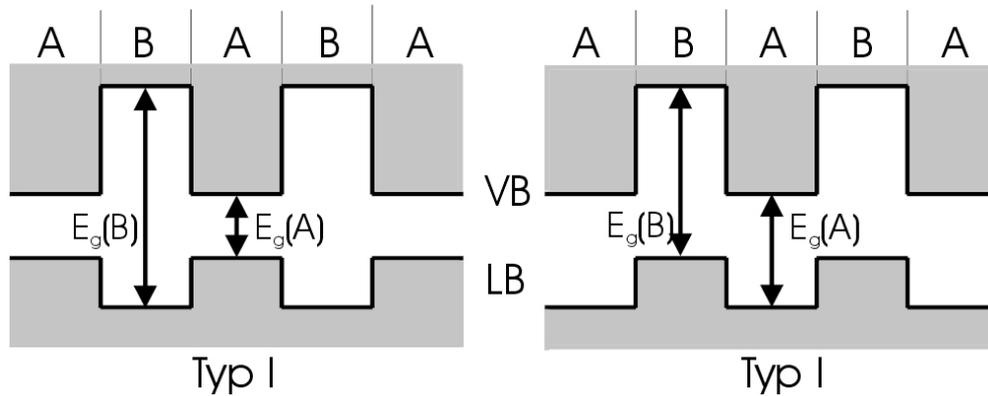


Abbildung 2.3: Heterostruktur aus zwei Halbleitern A und B mit Bandlücke $E_g(A)$ bzw. $E_g(B)$ vom Typ I (Elektron und Loch werden am selben Ort lokalisiert, dies entspricht einer GaN/InGaN/GaN Heterostruktur), und Typ II (Elektron und Loch werden räumlich getrennt).

2.3 Niederdimensionale Strukturen

Seit *Esaki* und *Tsu* 1970 die Herstellung von Übergittern aus zwei Halbleitern unterschiedlicher Bandlücke vorschlugen [Esa70], sind nanostrukturierte Materialien produziert und erforscht worden. Insbesondere GaN/InGaN/GaN Strukturen sind aufgrund ihrer optischen Eigenschaften von aktuellem und zukünftigem Interesse. Dieser Abschnitt befaßt sich mit den grundlegenden Eigenschaften solcher Heterostrukturen.

2.3.1 Reduktion der Dimension

Dem Vorschlag von *Esaki* und *Tsu* folgend, lässt sich durch epitaktisches Wachstum einer *Heterostruktur* (Lagen zweier Halbleitermaterialien unterschiedlicher Bandlücke), eine neue Potentiallandschaft modellieren [Esa70]. Es werden zwei Typen von Banddiskontinuitäten unterschieden: In Typ I wirken die Lokalisierungspotentiale gleichermaßen auf Elektron und Loch, während in Typ II die beiden Ladungsträger räumlich getrennt werden (Abb. 2.3).

Wird auf einen GaN Kristall eine Schicht InGaN und eine weitere Schicht GaN abgeschieden, so entsteht eine Typ-I-Doppel-Heterostruktur. Die Größe der Banddiskontinuitäten hängt von der Bandlücke des InGaN ab, sowie von der relativen Lage seines VB, bzw LB³. Schränkt man die Bewegungsfreiheit von Ladungsträgern durch einen Potentialtopf ein, so ist eigentlich die für die Herleitung des Blochelektrons nötige Voraussetzung des

³Genaue Messungen von Bandgapdiskontinuitäten sind schwierig. Für Rechnungen wird angenommen, dass sich die Banddiskontinuität zu 2/3 im LB niederschlägt [Mar96, Chi01].

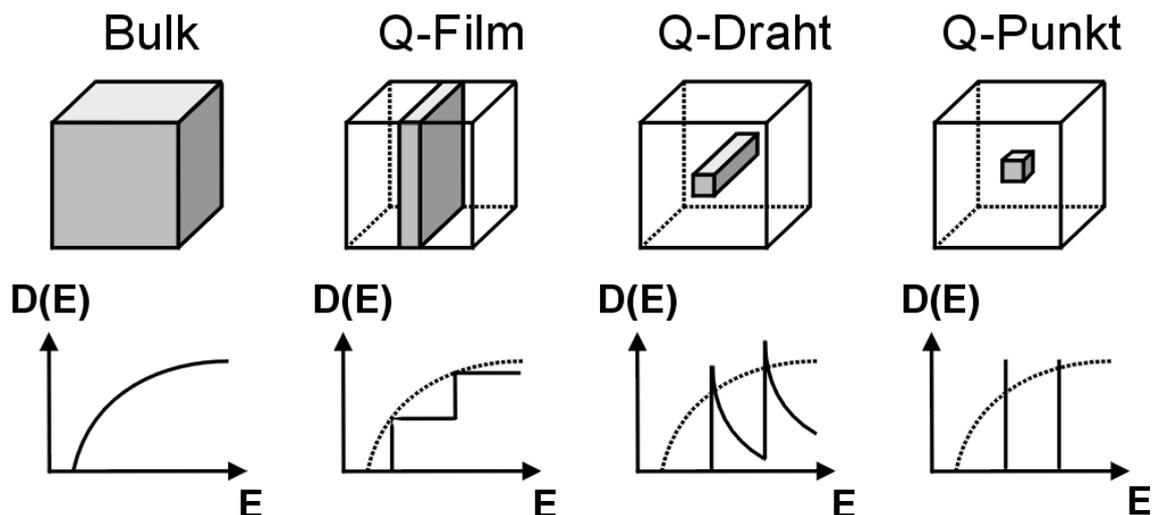


Abbildung 2.4: Von einem Volumenhalbleiter ausgehend wird die Dimensionalität durch Einschränkung der Bewegungsfreiheit sukzessiv reduziert (oben), die entsprechenden Zustandsdichten $D(E)$ zeigen erst Subbänder und schließlich Diskretisierung (unten) [Seg04b].

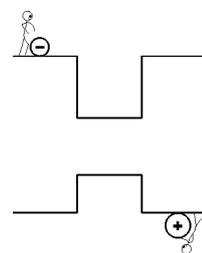
unendlichen Kristalls verletzt. Dennoch lassen sich auch sehr kleine Strukturen erfolgreich mit den Bänderigenschaften und effektiven Massen des Volumenkristalls beschreiben.

Kommt die Dicke der InGaN-Schicht in die Größenordnung der effektiven *De-Broglie*-Wellenlänge $\lambda_{deBroglie}^*$ der Ladungsträger⁴, bzw. des Bohrradius des Exzitons bilden sich in Schichtrichtung stehende Wellen mit einer Modenstruktur aus. Diese Situation entspricht dem quantenmechanischen Potentialtopfproblem, dessen Lösung einen oszillierenden Anteil innerhalb des Potentialtopfes und einen exponentiellen Abfall außerhalb besitzt.

Die Quantisierung hat zur Konsequenz, dass der Impuls keine gute Quantenzahl mehr ist, die k_z -Erhaltung ist aufgehoben. Außerdem wirkt sich die Einschränkung der Bewegungsfreiheit der Ladungsträger auch auf ihre Zustandsdichte aus, die in der Wachstumsrichtung diskret geworden ist. In der Schichtebene bleiben die Dispersionsrelationen die gleichen wie im Volumen. Insgesamt ergibt sich also in erster Näherung eine parabolische Dispersion mit einer Subbandstruktur.

Die Dimensionalität eines Systems wird definiert als die Anzahl Raumrichtungen, in denen sich die Ladungsträger frei bewegen können. Aus dem Volumenhalbleiter erhält man bei sukzessiver Einschränkung der Dimensionalität einen Quantenfilm, Quantendraht und schließlich den 0-dimensionalen Quantenpunkt. Abbildung 2.4 stellt dies schematisch zusammen mit den entsprechenden Zustandsdichten dar.

⁴ $\lambda_{deBroglie}^* = h/\sqrt{2m^*(E - E_B)}$ mit m^* - effektive Masse des Ladungsträgers und E_B - Energie des Bandes in dem sich der Ladungsträger befindet.



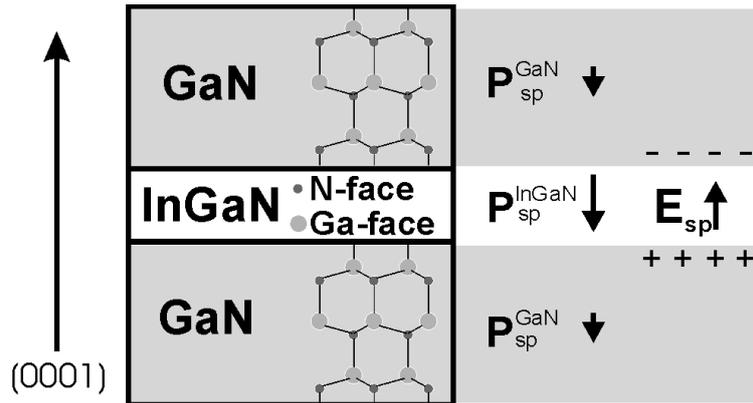


Abbildung 2.5: Spontane Polarisation in einer GaN/InGaN/GaN Heterostruktur

Von besonderem Interesse ist die treppenförmige Zustandsdichte von Quantenschichten und die diskrete (δ -förmige) Zustandsdichte von Quantenpunkten. Die abrupte Bandkantenzustandsdichte verbessert die Lumineszenzeigenschaften enorm, sie wird intensiver und engbandiger. Des Weiteren ist in einzelnen 0-dimensionalen Strukturen eine Besetzungsinversion schon mit einem Elektronen-Loch-Paar erreicht, was Laseranwendungen bei geringen Pumpintensitäten ermöglicht [Bim99].

2.3.2 Lokalisierung und *Confinement*

In einem Potentialtopf werden Ladungsträger lokalisiert, d.h. sie werden örtlich gebunden. Erst wenn die Ausmaße des lokalisierenden Potentials sich in der Größenordnung des Teilchens befinden, treten Quantisierungseffekte auf und man spricht von *confined particles*, eingegengten Teilchen. Es muss nun die Lokalisierungsenergie E_{loc} von der Confinementenergie E_{conf} unterschieden werden. Wie in Abbildung 2.6 (links) dargestellt, ist E_{conf} der Abstand des Grundzustandes zum Boden des Potentialtopfes, sie hängt von der Stärke der Einengung ab, d.h. von der Breite und Höhe des Potentialtopfes. E_{loc} ist die Energiedifferenz vom Grundzustand bis an den Rand des Potentialtopfes. Bei gleich bleibenden Bandkantendifferenzen aber unterschiedlichen Strukturgrößen lässt sich aus dem Lumineszenzverhalten auf die *Confinementenergie* schließen. Wenn hingegen bei temperatur- und zeitabhängigen Messungen Aktivierungsenergien ermittelt werden, so handelt es sich immer um die *Lokalisierungsenergie*.

2.3.3 Elektrische Felder - Quantum Confined Stark Effect

In hexagonalen Nitriden sind die Bindungslängen zwischen Metall- und Stickstoffatomen im relaxierten Zustand entlang der (0001)-Richtung länger als auf den Diagonalen. Diese Stauchung führt aufgrund des ionischen Charakters von Metall-Nitrid-Verbindungen zu einer asymmetrischen Verteilung der Ladungsträger innerhalb der Elementarzelle. Die hieraus resultierende Polarisation wird als *spontane* Polarisation bezeichnet. Man unterscheidet sie von der *piezoelektrischen* Polarisation, die in gleicher Weise aufgrund von Verspannungen auftreten kann⁵.

Des Weiteren ist in Wurtzitkristallen die [0001]-Richtung nicht mit der [000 $\bar{1}$]-Richtung äquivalent. Entsprechend hängt die Polarisation von der Ausrichtung des Kristalls ab. So unterscheidet man (0001)-Flächen, die mit Gallium abgeschlossen sind (Ga-face), und (000 $\bar{1}$)-Flächen, die aus einer Schicht Stickstoffatomen bestehen (N-face)⁶ (Abb. 2.5).

Wird Heteroepitaxie betrieben, werden also unterschiedliche Materialien aufeinander aufgetragen, so entsteht an den Grenzflächen ein Polarisationsprung, der nach Poisson $\nabla \cdot P = -\rho$ eine Ladungsträgerdichte ρ induziert. Diese führt zu starken elektrischen Feldern (Abb. 2.5). Als grobe Abschätzung der durch spontane Polarisation hervorgerufenen Felder sei folgende Rechnung an einer GaN/InN/GaN-Schicht angestellt: die Ladungsdichte an den Grenzflächen ergibt sich zu

$$\rho_{sp} = 2 \cdot (P_{sp}^{GaN} - P_{sp}^{InN})$$

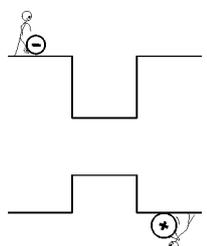
und induziert ein elektrisches Feld $E_{sp} = \rho_{sp}/\epsilon$. Mit den Werten aus Tabelle 6.1 und 6.2 ergibt sich somit $E_{sp} \cong 1,2 MV/cm$.

Rein rechnerisch ergibt sich bei einer Schichtdicke von 10 nm eine Potentialdifferenz von über 1 V an den beiden Grenzschichten. Die daraus folgende Bandverkipfung hat eine starke Auswirkung auf Ladungsträger und Lumineszenz [Amb99]. In Anlehnung an den Stark-Effekt in Atomen, der die Veränderung der energetischen Zustände durch ein äußeres elektrisches Feld beschreibt, nennt man diesen Effekt *Quantum Confined Stark Effect* (QCSE) [Mil85]. Abb. 2.6 zeigt den schematischen Bandverlauf in einem Quantenfilm mit und ohne elektrischem Feld.

Die Verkipfung der Bänder hat drei grundlegende Auswirkungen auf die in einer Quantenstruktur lokalisierten Exzitonen:

⁵Für eine theoretische Abhandlung siehe z.B. Bernardini *et al.* in [Ber97].

⁶Erstaunlicherweise sind alle MOCVD gewachsenen Proben Ga-face in Wachstumsrichtung (0001) [Dad03].



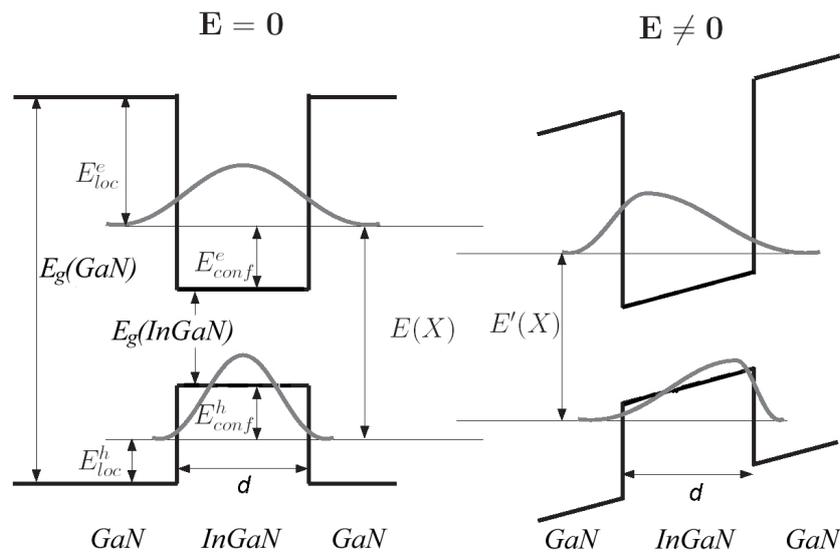


Abbildung 2.6: (links) Illustration der Lokalisierungsenergie (E_{loc}) und *Confinement*-Energie (E_{conf}) an einer GaN/InGaN/GaN-Quantenschicht der Dicke d , (rechts) ein elektrisches Feld neigt das VB und das LB und führt zu einer Reduktion des Wellenfunktionsüberlapps und einer Rotverschiebung der Übergangsenergie ($E'(X) < E(X)$) [Seg04b].

1. Absenkung der Grundzustandsenergie: Durch die Bandverbiegung wird die Energie der Ladungsträgerzustände abgesenkt.
2. Absenkung der Exzitonenbindungsenergie: Durch die räumliche Trennung von Elektron und Loch verringert sich die Coulomb-Wechselwirkung zwischen beiden Teilchen.
3. Verringerung der Oszillatorstärke des Exzitons: Durch die Trennung von Elektron und Loch verringert sich der Wellenfunktionsüberlapp, was eine strahlende Rekombination der beiden Ladungsträger unwahrscheinlicher macht. Dies schwächt die Lumineszenzintensität und beeinflusst das dynamische Verhalten.

Die ersten beiden Effekte beeinflussen die Emissionswellenlänge und bewirken eine Rotverschiebung einerseits (1) und eine Blauverschiebung andererseits (2). Die Bindungsenergie des Exzitons ist jedoch so klein, dass im allgemeinen die Rotverschiebung durch die Bandverbiegung der dominante Effekt ist. Bei den Feldstärken, wie sie in Nitriden auftreten, kann die Rotverschiebung 0,5 eV und mehr betragen [Wid98].

Lefebvre et al. haben InGaN-Quantenschichten mit einer Indium Konzentration von 15-20% und einer Dicke von 2 bis 5.5 nm untersucht. Für die unterschiedlichen Schichtdicken wandert das Lumineszenzmaximum von 2.9 eV zu 2.0 eV und die Abklingzeit der

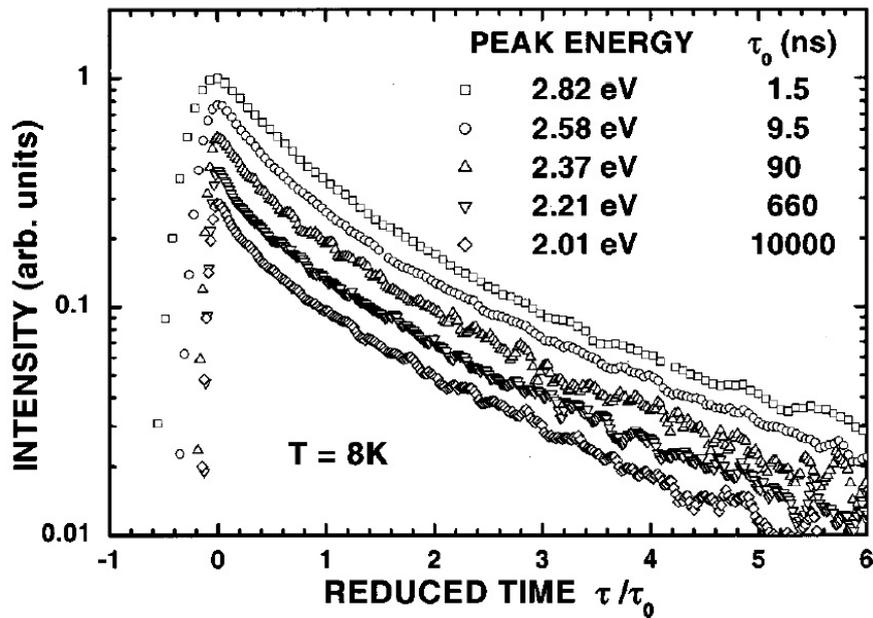
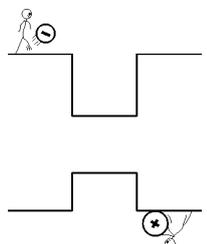


Abbildung 2.7: Illustration des QCSE am Abklingverhalten und Lumineszenzmaximum von InGaN-Schichten von 2,0 nm (Viereck) bis 5,5 nm Dicke (Rhombus). Es wird eine reduzierte Zeitskala verwendet (τ/τ_0) [Lef01].

Lumineszenz nimmt um einen Faktor 10^4 zu (Abb. 2.7). Diese Werte lassen sich nur durch zunehmende Elektron-Loch-Separation aufgrund des QCSE erklären. *Lefebvre et al.* schließen deshalb auf ein internes elektrisches Feld von 2.45 MV/cm. Durch Verspannungen verursachte piezoelektrische Felder scheinen hier eine größere Rolle zu spielen als die der spontanen Polarisation [Lef01].

In Quantenpunkt-Strukturen treten noch weitere Felder auf, die sich den konstanten piezoelektrischen Feldern überlagern. Diese sehr viel schwächeren und stochastisch fluktuierenden \mathbf{E} -Felder werden durch lokale Be- und Entladungen verursacht und produzieren über den QCSE den sogenannten *Jitter*, Variationen einzelner Emissionslinien von einigen meV über Sekunden hinweg. Zeigen zwei Emissionslinien den gleichen *Jitter*, so haben sie ihren Ursprung im selben Quantenpunkt [Tür00]. Es konnte für II-VI Quantenpunkte nachgewiesen werden, dass es sich bei den Quellen dieser Felder hauptsächlich um Be- und Entladungen von Oberflächenzuständen handelt [Tür02]. Dies ist für die untersuchten Nitrid-Proben nicht der Fall [Seg04b].



2.4 InGaN-Quantenpunkte

Ein Quantenpunkt definiert sich durch ein *Confinement* der in ihm lokalisierten Ladungsträger in alle drei Raumrichtungen. Aufgrund der hohen effektiven Massen (Tab. 6.1) resultieren für InGaN Exziton-Bohr-Radien von nur wenigen Nanometern. Entsprechend klein müssen InGaN-Strukturen sein, um Quantisierungseffekte zu zeigen.

Es wird gezeigt werden, dass epitaktisch gewachsene InGaN-Quantenschichten keineswegs homogen sind. Im Gegenteil werden ihre Lumineszenzeigenschaften von Lokalisierungszentren dominiert, die sich beim Wachstum durch Materialumverteilungen selbständig formen. Diese Lokalisierungszentren können auch Quantenpunkt-Eigenschaften aufweisen [Mor00, Nar02, Sun04].

2.4.1 Wachstum

Die Gitterfehlpassung ist für das Wachstum von Volumenkristallen unerwünscht, ermöglicht jedoch erst das selbstorganisierte Wachstum von Quantenpunkten. Je nach Fehlanpassung Δa ergeben sich aus Gründen der Energieminimierung verschiedene Wachstumsmodi. Die innere Energie der Schicht, die bei größeren Gitterfehlpassungen anwächst, verursacht nach der Relaxation eine Rissbildung. Die Grenzflächenenergie fordert eine Absättigung der Atombindungen und führt zu einem 3-dimensionalen Wachstum. Je nachdem wie groß die Gitterfehlpassung und die Schichtdicke ist, ergeben sich drei verschiedene Wachstumsmodi (siehe Abb. 2.8)[Dar97]:

- *Frank-van der Merwe*-Wachstum erfolgt bei kleinen Fehlanpassungen ($\Delta a \leq 5\%$) und entspricht dem Ablegen einer Monolage (ML) nach der anderen auf das Substrat. Die Schicht wächst pseudomorph mit der Gitterkonstante des Substrats.
- *Vollmer-Weber*-Wachstum erfolgt bei großer Fehlanpassung ($\Delta a \geq 15\%$). Die Epischicht ist so verspannt, dass sich das Material auf dem Substrat zu relaxierten Gebilden, meist in der energetisch und kristallin günstigen Pyramiden-Form, anhäuft.
- *Stranski-Krastanov*: Das Wachstum ist hier ($\Delta a \approx 5 - 15\%$) eine Kombination der beiden vorhergegangenen Modi: Eine Benetzungsschicht von wenigen ML bedeckt erst das Substrat, während überschüssiges Material einem Pyramiden-förmigen 3D-Wachstum folgt.

Während bei herkömmlichen III-V-Systemen (InP, GaAs, etc.) das Stranski-Krastanov Wachstum zur Herstellung von Quantenpunkten genutzt wird und zu recht gleichförmigen

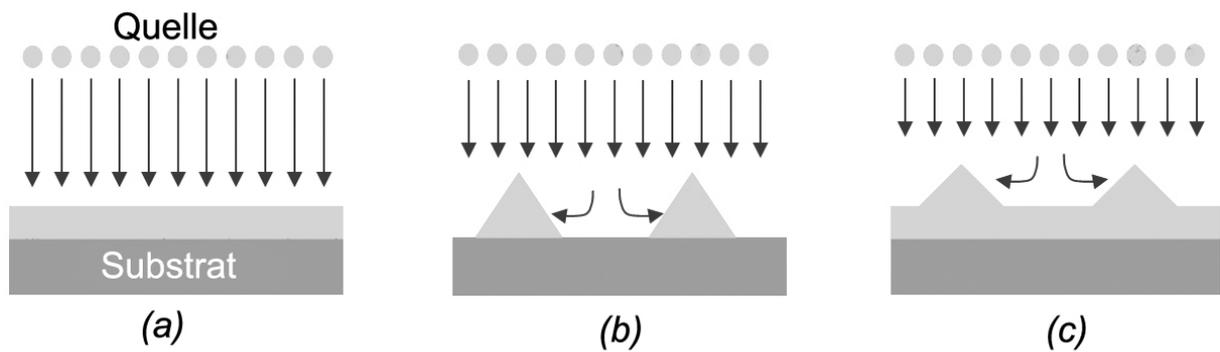


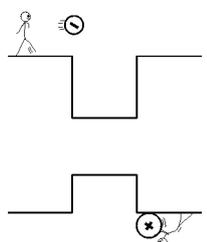
Abbildung 2.8: Die drei Wachstumsmodi: (a) Frank-van der Merwe, (b) Vollmer-Weber, (c) Stranski-Krastanov

und gut definierten Pyramiden führt, ist InGaN noch bei weitem nicht so gut beherrscht. Wie in ZnCdSe-Quantenpunkt-Systemen [Dwo02] werden bei der Herstellung von InGaN-Quantenpunkten zwei unterschiedliche Wachstumsmodi beobachtet. Beim verspannten Inselwachstum wird durch Ablegen von wenigen ML $In_xGa_{1-x}N$ mit $x = 0.2 - 0.35$ mittels MBE ein 3-dimensionales Wachstum erreicht, welches dem Stranski-Krastanov-Modus ähnelt. Die Strukturen emittieren im Blauen bis ins nahe UV, besitzen eine Dichte von $10^{10} - 10^{11}/cm^2$ und zeigen Quantenpunkteigenschaften [Dam99, Ade00]. In dünnen InGaN-Schichten entstehen außerdem durch die schlechte Löslichkeit von Indium in GaN Bereiche mit hoher Indiumkonzentration. Es formen sich so nanoskopische Entmischungseinseln mit erhöhtem Indiumgehalt, die Quantenpunkt-Eigenschaften aufweisen können [Seg04c].

Um Größe und Verteilung von Quantenpunkten, die aus 3D-Wachstum hervorgegangen sind, zu ermitteln, werden oberflächensensitive Methoden wie Rasterkraft-Mikroskopie angewandt. Abbildung 2.9 zeigt eine solche Aufnahme von InGaN-Quantenpunkten. Diese Technik ist für Entmischungseinseln nicht anwendbar. Es wird deshalb auf ein Verfahren zurückgegriffen, bei dem die chemische Komposition der Probe mit hoher Ortsauflösung gemessen werden kann. Dies geschieht indirekt durch Messung der Gitterkonstante mit Hilfe der Transmission-Elektronen-Mikroskopie (TEM). Nach der Vegard'schen Regel variiert die Gitterkonstante a eines Mischkristalls linear zwischen den Gitterkonstanten der reinen Materialien:

$$a(In_xGa_{1-x}N) = x \cdot a(InN) + (1 - x) \cdot a(GaN)$$

Ist $a(In_xGa_{1-x}N)$ bekannt, so ermöglicht dies also den Rückschluss auf die chemische Komposition des Kristalls. Dies macht sich die Methode des *Digital Analysis of Lattice Images* (DALI) zunutze [Ros96]. Abbildung 2.10 zeigt eine DALI-Aufnahme von InGaN-



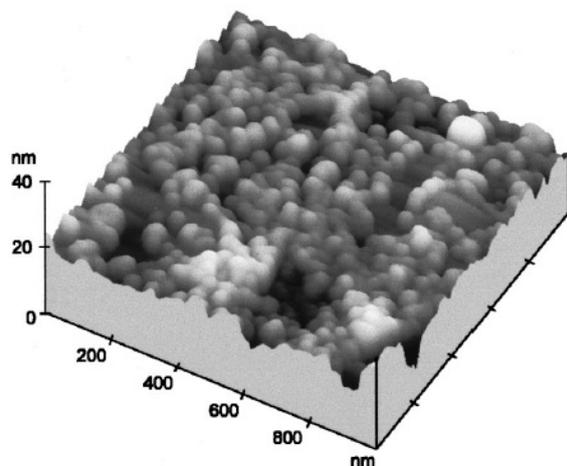


Abbildung 2.9: $1 \times 1 \mu\text{m}^2$ AFM-Bild von selbstorganisierten 3D-InGaN-Inseln [Dam99].

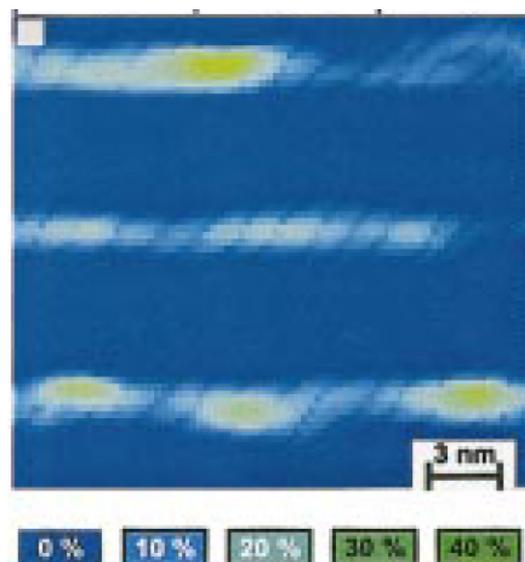


Abbildung 2.10: DALI-Aufnahme von InGaN-Quantenpunkten in einem InGaN/GaN Übergitter [Kre02].

Quantenpunkten des Entmischungstyps. Deutlich erkennbar sind Indium-reichen Inseln mit einer Ausdehnung von wenigen Nanometern.

Aus diesen Strukturanalysen wird klar, dass insbesondere die Fluktuationsinseln eine schlechte Homogenität der Quantenpunkte besitzen: ihre Größe und Potentialtiefe sind weit gestreut. Auch die geometrische Form ist willkürlich. Des Weiteren lässt sich aus der Potentialtiefe nicht auf die Lokalisierungsstärke schließen, da diese von der chemischen Zusammensetzung der Umgebung abhängt. Eine Koexistenz oder Mischung beider Quantenpunkt-Typen, wie es z.B. von ZnCdSe-Quantenpunkten bekannt ist [Dwo02], konnte für InGaN noch nicht eindeutig nachgewiesen werden [Oli03].

2.4.2 Lumineszenzeigenschaften

Die Lumineszenz von Quantenpunkten besitzt eine Reihe von Charakteristika, die sie von Licht aus dem Volumenmaterial oder aus homogenen Quantenschichten unterscheidet.

Wird ein Quantenpunkt isoliert spektroskopiert, so zeigt sich aufgrund seiner δ -förmigen Zustandsdichte ein Spektrum von spektral scharfen Linien. Die Herkunft verschiedener Linien aus demselben Quantenpunkt lässt sich mit Hilfe des *Jitters* (siehe Kap. 2.3.3) eindeutig bestimmen. Bei Kathodolumineszenzuntersuchungen von *Seguin et al.* an

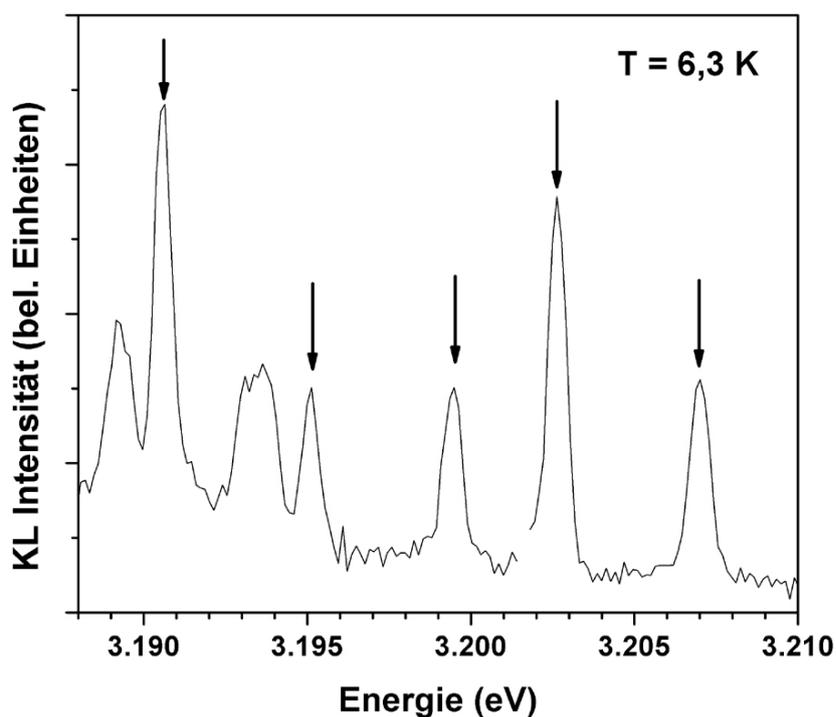
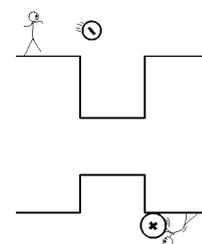


Abbildung 2.11: Kathodolumineszenz-Spektrum der TU6938 InGaN-QP-Probe. Die markierten Linien wurden über den *Jitter* einem einzelnen Quantenpunkt zugeordnet [Seg04a].

der TU6938 InGaN-QP-Probe (siehe Kap. 4) wurden über den ganzen spektralen Bereich der Emission (2,8 eV bis 3,2 eV) scharfe Linien nachgewiesen. Es konnten bis zu sechs Linien einem einzelnen Quantenpunkt zugeschrieben werden. Abbildung 2.11 zeigt ein solches Kathodolumineszenz-Spektrum. Die markierten Linien stammen aus einem einzelnen Quantenpunkt. Unter diesen konnte durch intensitätsabhängige Messungen Exziton und Biexziton identifiziert werden [Seg04c].

In einem QP-System mit unterschiedlich tiefen Lokalisierungspotentialen beeinflussen temperaturabhängige Transferprozesse die Form der Lumineszenz und erlauben so Rückschlüsse auf die Beschaffenheit des QP-Ensembles und auf die Existenz von Umverteilungsprozessen (siehe Kap. 5.3). Ein weiteres Indiz für Lokalisierung ist die Existenz von Aktivierungsenergien, die das Entfliehen der Exzitonen aus den Quantenpunkten widerspiegeln. Dies äußert sich zum Beispiel in einer schnellen Abnahme der Lumineszenzintensität oberhalb einer charakteristischen Temperatur.



2.5 Dynamik der Rekombination

Die Untersuchung der Rekombinationsdynamik eines Systems kann viel zu dessen Verständnis beitragen. Von besonderem Interesse ist es, die verschiedenen Prozesse, die zur Lumineszenz oder zur nicht-strahlenden Rekombination führen, zu verstehen.

In Lumineszenz-Experimenten wird immer nur die Abklingzeit der Lichtemission τ_{PL} gemessen. Im Rahmen eines einfachen 2-Niveau-Modells ergibt sich τ_{PL} aus einer Überlagerung von strahlenden und nicht-strahlenden Prozessen mit den Zeitkonstanten τ_r und τ_{nr} . Unter der Annahme, dass die Übergangswahrscheinlichkeit nicht von der Besetzungsdichte des Grundzustandes abhängt, ergibt sich die Besetzung $n(t)$ des höheren Zustandes nach Abschluss der Anregung aus der Ratengleichung zu:

$$n(t) = n(0)e^{-t(\frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_{nr}})}, \quad (2.5)$$

woraus sich für die Zeitkonstante der Lumineszenz ergibt:

$$\frac{1}{\tau_{PL}} = \frac{1}{\tau_r} + \frac{1}{\tau_{nr}} \quad (2.6)$$

Als weitere Information liegt bei temperaturabhängigen PL-Messungen die Abnahme der integralen Lichtemission vor. Man definiert die innere Quanteneffizienz η_{int} als den Anteil aller angeregten Ladungsträger, die strahlend rekombinieren. Es ist dann

$$\eta_{int} = \frac{1}{1 + \tau_r/\tau_{nr}}. \quad (2.7)$$

Sind $\eta_{int}(T)$ und $\tau_{PL}(T)$ bekannt⁷, so lassen sich die Beiträge von strahlender und nicht-strahlender Rekombination voneinander trennen. Typische strahlende Lebensdauern von Nitrid-Proben liegen bei etwa 1 ns (Kap. 5.2).

Trotz der hohen Defektdichte von Nitriden, die extrem effektive Zentren für nicht-strahlende Relaxation sind, besitzen dünne InGaN-Schichten eine erstaunlich hohe Quanteneffizienz. Dies erklärt sich durch die Inhomogenität der Schicht, welche Potentialfluktuationen verursacht, die Exzitonen binden. Nun können die lokalisierten Exzitonen nicht mehr zu Defekten diffundieren.

Es handelt sich bei InGaN-QP-Systemen also aufgrund der Indium-Fluktuationen nicht um ein 2-Niveau-System, sondern um ein System, in dem auch Transferprozesse in andere Zustände einen Einfluss auf die Dynamik der Lumineszenz ausüben. Für ein Exziton in

⁷Meist wird angenommen, dass bei tiefen Temperaturen nicht-strahlende Rekombinationsprozesse eingefroren sind und deshalb $\eta_{int} = 1$ gilt.

einem Lokalisierungszentrum ist eine nicht-strahlende Rekombination unwahrscheinlich, doch schon der Transfer eines seiner Ladungsträger in ein anderes Zentrum, in 2D-Zustände der InGaN-Schicht oder in die GaN-Matrix führt zur Unterdrückung der Lumineszenz. Dieser Effekt kann von der nicht-strahlenden Rekombination nicht unterschieden werden.

Welche allgemeinen Aussagen lassen sich unter diesen Voraussetzungen noch über die Zeitkonstanten der strahlenden Rekombination τ_r und seine konkurrierenden Prozesse τ_{nr} treffen?

τ_r ist invers proportional zur Rekombinationswahrscheinlichkeit $w_{i \rightarrow f}$ zwischen einem Ausgangszustand i und einem Zielzustand f . Diese wird nach Fermis goldener Regel vom optischen Dipolmoment $|M|^2$ bestimmt:

$$\frac{1}{\tau_{nr}} \sim w_{i \rightarrow f} = \frac{2\pi}{\hbar} |M|^2 \cdot \delta(E_f - E_i \pm \hbar\omega), \quad (2.8)$$

wobei

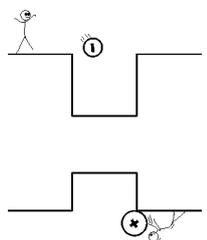
$$|M|^2 = | \langle \varphi_i | -e\mathbf{r} \cdot \mathbf{E} | \varphi_f \rangle |^2 \quad (2.9)$$

In Gl. (2.8) ist $\hbar\omega$ die Energie des emittierten Photons, während die δ -Funktion Energieerhaltung beim Übergang zwischen den Zuständen der Energie E_i und E_f garantiert. In Gl. (2.9) ist e die Ladung eines Elektrons, \mathbf{r} der Ortsoperator und \mathbf{E} das elektrische Feld. Die Wahrscheinlichkeit für einen strahlenden Übergang ist also proportional zum Wellenfunktionsüberlapp von Elektron und Loch (siehe z.B. [Rid88, Yu96]).

Zwei Effekte steuern diesen Überlapp in Lokalisierungszentren: Das *Confinement* zwingt Elektron und Loch auf engen Raum ein und erhöht den Überlapp, ein elektrisches Feld hingegen zieht die beiden Ladungsträger auseinander (Kap. 2.3.3).

τ_{nr} wird durch Transfer-Prozesse in die 2D-Zustände der InGaN-Schicht dominiert, d.h. durch Prozesse, bei denen Ladungsträger in die Umgebung des Quantenpunktes entkommen, wo sie nicht-strahlend rekombinieren und somit nicht mehr zur Lumineszenz beitragen. Die Wahrscheinlichkeit des Transfers wird durch die Lokalisierungsenergie und die Exzitonbindungsenergie sowie durch die kinetische Energie der Ladungsträger bestimmt.

Das komplizierte Verhalten von Exzitonen in einem InGaN-QP-Ensemble spiegelt sich im Abklingen seiner Lumineszenz wider. Photolumineszenz-Untersuchungen an solchen Strukturen zeigen ein multi-exponentielles An- und Abklingen der Transienten wie in Abbildung 2.12) dargestellt. Ein solches Verhalten ist aus ungeordneten Halbleitersystemen bekannt [Che92]. Als Ursache werden deswegen Quantenpunkte mit gleicher Übergangsenergie aber unterschiedlicher Zeitkonstante vorgeschlagen [Kre02]. *Robinson et al.* untersuchten einzelne Quantenpunkt-Linien und wiesen ein mono-exponentielles Abklingen mit Zeitkonstanten zwischen 1 ns und 2,6 ns nach [Rob03].



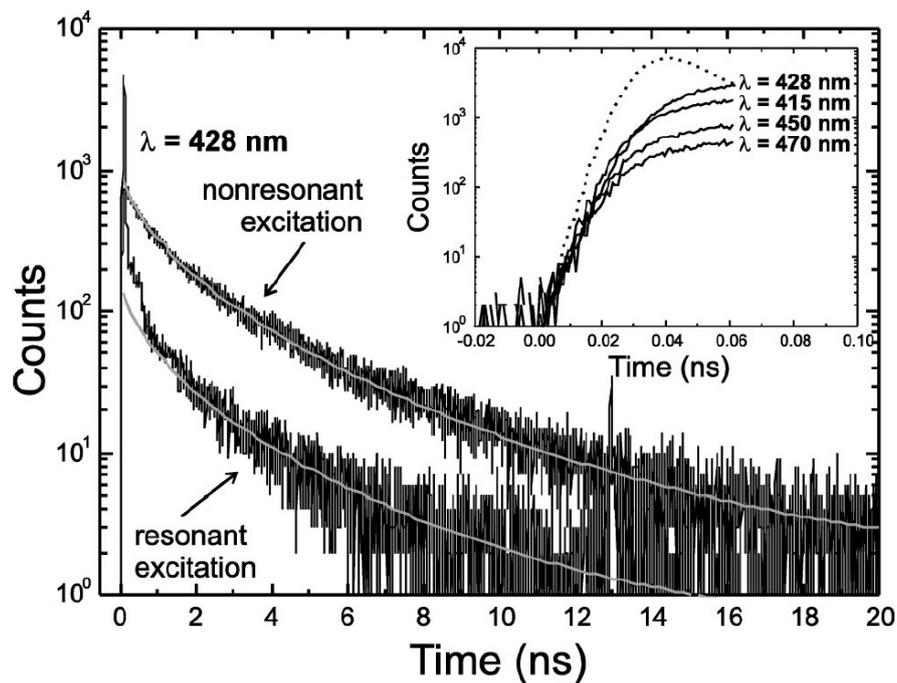


Abbildung 2.12: Zeitaufgelöste PL einer InGaN-Quantenpunkt-Probe [Kre02].

Die vorliegende Arbeit führt die PL-Untersuchungen an InGaN-Quantenpunkten weiter und versucht den Ursprung für das multi-exponentielle Abklingen der Lumineszenz zu ergründen. Außerdem soll eine Aussage über die Relevanz von Transferprozessen und nicht-strahlender Rekombination getroffen werden.

Kapitel 3

Experimentelle Methoden

In der vorliegenden Arbeit wurden verschiedene Photolumineszenzverfahren zur Untersuchung von InGaN-Quantenpunkt-Proben angewandt. Dieser Abschnitt liefert eine Beschreibung der Photolumineszenzspektroskopie allgemein (Kapitel 3.1), sowie der zeitaufgelösten Photolumineszenz (Kapitel 3.2). Etwas ausführlicher soll auf die Mikro-Photolumineszenz (μ -PL), deren Aufbau Teil der vorliegenden Arbeit war, vorgestellt werden. Außerdem soll auf Schwierigkeiten bei der Handhabung dieser Apparatur eingegangen werden (Kapitel 3.3). Abschließend wird die Struktur der untersuchten Proben erläutert und ihre Präparation für Messungen an der μ -PL beschrieben (Kapitel 4).

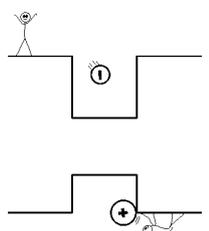
3.1 Photolumineszenzspektroskopie

Alle Resultate dieser Arbeit wurden mit Hilfe der Photolumineszenzspektroskopie erzielt. Als Photolumineszenz (PL) wird Licht bezeichnet, das von einer Probe infolge von Bestrahlung durch eine äußere Lichtquelle emittiert wird.

Um ein PL-Spektrum aufzunehmen, wird die Probe mit Licht bestrahlt, die Photonen werden im Kristall absorbiert und produzieren angeregte Ladungsträger, die über verschiedene Prozesse in ihren Grundzustand relaxieren. Bei strahlender Rekombination wird ein Photon ausgesendet, welches, wenn es den Kristall verläßt, nachgewiesen werden kann.

Zur Anregung der Lumineszenz werden wegen ihrer hohen Leistungsdichte und Monochromatizität meist Laser verwendet, deren Licht auf die Probe fokussiert wird. Das Leuchten der Probe wird zum Nachweis auf den Eintrittsspalt eines Monochromators abgebildet dessen dispersives Element (meist ein Strichgitter) nur Photonen einer bestimmten Wellenlänge auf den Austrittsspalt abbildet, wo es von einem Detektor nachgewiesen wird.

Bei allen Messungen wurde energetisch oberhalb der Bandkante der GaN-Matrix ($E_g(\text{GaN}) =$



$3.47 \text{ eV} = 357 \text{ nm}$) angeregt. Zur Anregung bei temperaturabhängigen Messungen der integralen PL wurden die UV-Linien eines Argon-Ionen-Lasers mit einer Leistung von etwa 50 mW verwendet. Ein UG1-Filter blendete die blaue Plasmastrahlung des Lasers aus, da sich diese sonst mit dem Lumineszenz-Licht überlagert hätte. Mittels einer 300 mm Linse wurde der Strahl auf einen Punkt der Probe fokussiert.

Für zeitintegrierte Messungen wurde ein 75 cm Doppelspektrometer Spex in vierter Beugungsordnung¹ und ein Bialkali-Photomultiplier (9789 QB) verwendet. Das Signal des Multipliers wurde durch ein Keithley Picoamperemeter verstärkt und über eine Analog-Digital Wandlerkarte (PC516) mit dem Rechner ausgelesen.

3.1.1 Tiefe Temperaturen

Um die Wahrscheinlichkeit für strahlende Rekombination zu erhöhen, müssen nicht-strahlende Kanäle möglichst unterbunden werden. Dies wird bei tiefen Temperaturen erreicht, da nun die Ladungsträger eine geringe Mobilität haben und nicht zu Defektstellen diffundieren können. Für PL-Messungen erlauben Kryostate ein Abkühlen der Proben bis auf wenige Kelvin über dem absoluten Nullpunkt.

Für diese Arbeit wurde ein Helium-Durchfluss-Kryostat verwandt. Zur Kühlung der Probe wird bei diesen Kryostaten die tiefe Verdampfungstemperatur von Helium (4,2 K) ausgenutzt. Das kalte Helium strömt konstant über einen Kupferblock, der die Probe thermisch mit dem Helium verbindet. Mittels einer Heizwendel kann das Helium vor dem Erreichen des Kupferblocks verdampft und erwärmt werden, so dass jede Temperatur zwischen etwa 5 K und Raumtemperatur erreicht werden kann.

Die Probe und alle anderen gekühlten Teile sind durch ein Vakuum von etwa 10^{-6} mbar von der Umwelt isoliert.

Für die Messungen wurde eine besonders handliche Version eines He-Durchfluss-Kryostats, ein Mikroskop-Kryostat der Firma Oxford Instruments genutzt. Die Proben wurden mit Leitsilber auf einem Probenhalter befestigt, der die Verbindung zum kühlenden Helium herstellt.

3.2 Zeitaufgelöste Photolumineszenz

Grundlegender Gedanke der zeitaufgelösten Photolumineszenz ist es, Rückschlüsse auf die Dynamik von Ladungsträgern zu ziehen, indem das Anklingen und Abklingen der Proben-

¹Die *Blaze*-Wellenlänge des Gitters beträgt $1,6 \mu\text{m}$, womit die vierte Beugungsordnung für Messungen bei 400 nm ideal ist.

lumineszenz nach Anregung mit einem kurzen Laserpuls untersucht wird. Wie bei einem gewöhnlichen PL-Messstand besteht der Aufbau im Pikosekundenlabor aus einem Anregungssystem und einem Energie diskriminierenden Nachweissystem (Abb. 3.1). Um jedoch eine hinreichende Zeitauflösung zu erreichen, ist eine erweiterte Messtechnik nötig, die im Folgenden beschrieben wird.

3.2.1 Anregung

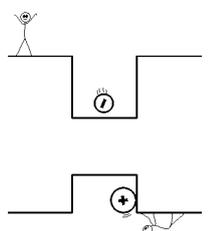
Für zeitaufgelöste Messungen werden extrem kurze Lichtpulse benötigt, wie sie in Lasern mit Modenkopplung erreicht werden. Zur aktiven Modenkopplung wird die Güte des Laserresonators der Länge L mit der Frequenz $f = c/L$ moduliert. Eine Periode entspricht damit gerade der Zeit, die ein Photon benötigt, um den Resonator einmal zu durchlaufen. Die Lasermoden überlagern sich deswegen nur an einer Stelle konstruktiv und bilden einen Puls der im Resonator hin- und herläuft. Der Laser sendet nun mit einer Frequenz f Pulse aus, deren Länge von der Anzahl der gekoppelten Moden abhängt. Die zeitliche Breite der Pulse wird über einen Autokorrelator nachgewiesen. Dort wird der Puls über einen Strahlteiler zeitversetzt mit sich selbst überlagert. Diese Überlagerung führt in einem Kristall mit nichtlinearen optischen Eigenschaften zu einer frequenzverdoppelten Komponente, welche proportional zum Überlapp des Pulses mit sich selbst ist. Wird die Zeitversetzung der beiden Pulse variiert, so lassen sich die Länge und Form der Laser-Pulse ermitteln.

Im benutzten Lasersystem wurde für die optische Anregung ein modengekoppelter Titan-Saphir-Laser (Ti:Sa) der Firma Spectra-Physics benützt. Der Laser wird von einem frequenzverdoppelten Nd-YAG-Laser mit einer Leistung von 7 W gepumpt und kann mit dem verwendeten Spiegelsatz von 700 nm bis 900 nm durchgestimmt werden. Die aktive Modenkopplung wurde mittels eines akustooptischen Modulators am Auskopplungsspiegel erreicht. Die Repetitionsfrequenz beträgt 80,1 MHz (12,48 ns Repetitionsintervall) und die Pulslänge liegt bei etwa 2 ps. Um die Bandkante von GaN zu erreichen, wurde der Ti:Sa bei etwa 706 nm mit einer Leistung von 1,2 W betrieben und im Strahlengang mit einem doppelbrechenden Kristall (SHG-FL30) von Lambela Physics zu 353 nm verdoppelt.

3.2.2 Nachweis und Auswertung

Bei klassischer zeitaufgelösten Spektroskopie ist die Dynamik des gesamten Messsystems durch den Detektor begrenzt². Mit schnellen Detektoren und einer Einzelphotonzählkette kann eine Auflösung von etwa 30 ps erreicht werden.

²Ein Ansatz der dies Beschränkung umgeht ist die *Pump and Probe* Spektroskopie.



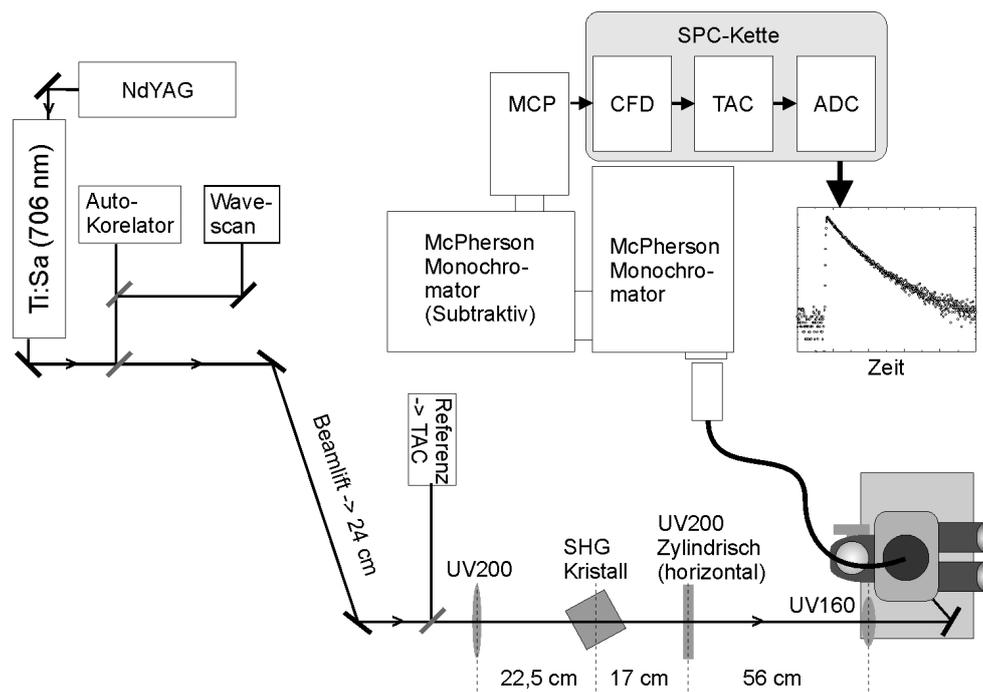


Abbildung 3.1: Schematischer Aufbau zur zeitaufgelösten Messung mit Mikroskop-Aufbau im Picosekundenlabor. Geräte und Abkürzungen werden im Begleittext beschrieben.

Zur Detektion der Lumineszenz wurde ein Peltier-gekühltes *Multi Channel Plate* (MCP) der Marke Hamamatsu genutzt. Ein Photon verursacht im Detektor einen Strompuls, der von der Photonzählkette (single photon counting, SPC) in verschiedenen Schritten weiterverarbeitet und verwertet wird, wie im folgenden beschrieben:

Constant Fraktion Discriminator (CFD)

Der CFD verwandelt die unterschiedlich hohen Pulse der MCP in Rechteckpulse konstanter Amplitude mit klar definiertem Anstieg. Der Rechteckpuls wird hierzu auf das Erreichen eines bestimmten, konstanten Bruchteils (constant fraction) der maximalen Höhe des ankommenden Pulses getriggert. Dies wird dadurch erreicht, dass der Puls mit einem Faktor α (mit $-1 > \alpha > 0$) multipliziert wird und ihm eine zeitverzögerte Kopie des Pulses hinzuaddiert wird. Der Nulldurchgang erfolgt nun unabhängig von der Höhe des Pulses immer zum gleichen Zeitpunkt und wird dem Detektionsereignis zugeordnet. Dies dient als Trigger für den TAC.

Time to Amplitude Converter (TAC)

Um den Puls aus dem CFD auf einer Zeitskala einordnen zu können, braucht man noch einen "Nullpunkt". Dieser wird durch ein Referenzsignal vorgegeben. Hierzu wird ein Teil des Laserpulses auf eine Photodiode abgelenkt. Das Signal der Diode triggert über einen zweiten CFD die TAC und lässt eine linear ansteigende Spannungsflanke loslaufen, die von dem Ereignispuls gestoppt wird³. So wandelt der TAC die Zeitdifferenz der beiden Pulse in eine Spannung um.

Da das System nach Detektion eines Photons bis zur nächsten Referenz keine weiteren Pulse verarbeiten kann, ist es wichtig, dass während dieses Intervalls kein Photon mehr den Detektor trifft. Obwohl theoretisch eine Zählrate in der Höhe der Repetitionsfrequenz des Lasers denkbar wäre, gewährt erst eine Zählrate von höchstens 10^4 Hz eine annähernd gleiche Detektionswahrscheinlichkeit für alle Ereignisse. Höhere Zählraten sind auch für den Detektor nicht verträglich.

Analog-Digital Converter (ADC)

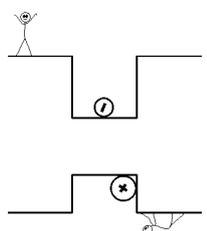
Im letzten Schritt des SPC wird die Endspannung des TACs mittels einer ADC-Karte im Rechner in eine Kanalzahl zugeordnet. Der Zähler dieses Kanals wird dann um eins inkrementiert. Es bildet sich ein Histogramm, das die Wahrscheinlichkeit für die Emission eines Photons zu einem bestimmten Zeitpunkt nach Anregung angibt und so das transiente Verhalten der Lumineszenz widerspiegelt.

Die Spektrometer

Abschließend sei erwähnt, dass schon Gangunterschiede des Lichts von einem Zentimeter die Auflösung von 30 ps zerstören können⁴. Solche Gangunterschiede treten in optischen Systemen mit 10 cm großen Spiegeln und Gittern, wie es ein Spektrometer ist, leicht auf. Aus diesem Grund wurde eins der beiden McPherson Monochromatoren im so genannten *subtraktiven* Modus betrieben, bei dem der Strahlengang genau dem des ersten entspricht, aber in umgekehrter Richtung durchlaufen wird. So werden Laufzeitunterschiede aufgehoben. Das zweite Spektrometer unterdrückt zwar Streulicht, erhöht jedoch *nicht* die spektrale Auflösung. Diese beträgt bei 50 μm Spalten etwa 1 \AA (entspricht 1 meV bei 3 eV).

³Um Totzeiten zu vermeiden lässt der Ereignispuls den Sägezahn loslaufen, und es wird die Zeit bis zur nächsten Referenz gemessen.

⁴In 30 ps legt die Lichtwelle etwa $3 \cdot 10^8 \text{ m/s} \times 30 \cdot 10^{-12} \text{ s} \cong 1 \text{ cm}$ zurück.



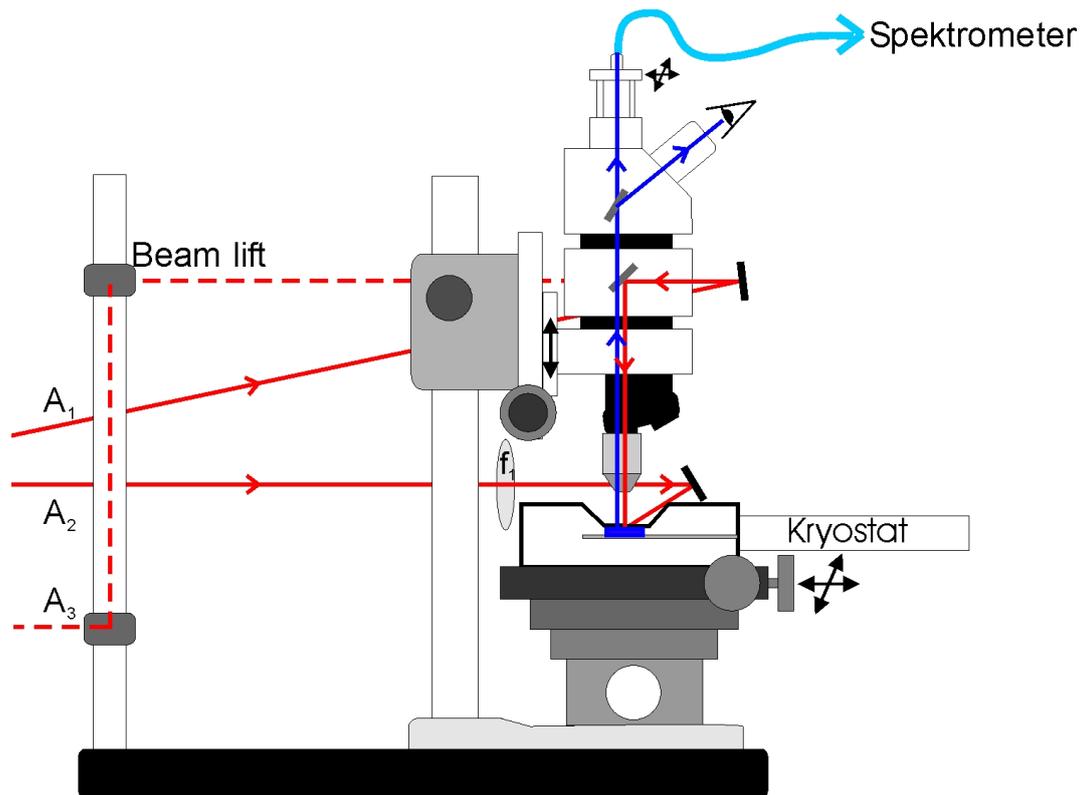


Abbildung 3.2: Schematische Zeichnung des μ -PL Aufbaus. Es sind zwei Anregungsmodi möglich (Rot): die Anregung A_1 ist makroskopisch, da sie nur durch eine Linse mit $f_1=160\text{mm}$ fokussiert wird, A_2 und A_3 (über den Beamlift) werden in den Strahlengang des Objektivs eingekoppelt und regen die Probe mikroskopisch an. Die Lumineszenz (Blau) wird in eine Glasfaser eingekoppelt.

3.3 Mikro-Photolumineszenz

Der Aufbau eines μ -PL Standes war Teil der Aufgabenstellung dieser Arbeit und soll im Folgenden im Detail beschrieben werden. Im ersten Abschnitt wird das Mikroskop mit seinen Erweiterungen vorgestellt. In den weiteren Abschnitten soll auf kritische Punkte wie die Anregung oder den Nachweis sowie auf Schwingungsprobleme eingegangen werden.

3.3.1 Das Mikroskop

Grundbaustein des Aufbaus ist ein Mikroskop von Olympus mit Erweiterungen wie in Abbildung 3.2 dargestellt. Zur optischen Abbildung stehen zwei UV-Objektive mit langem Arbeitsabstand (20x und 100x, *long working distance*) zur Verfügung. Zusätzlich wurde ein 80x-Objektiv genutzt. Zusammen mit der 20x Vergrößerung des Okulars kann somit eine

zweitausendfache Vergrößerung erreicht werden. Hierbei wird das optische Limit von etwa $0,5 \mu\text{m}$ erreicht. Strahlen innerhalb des Mikroskops verlaufen parallel und es können beliebig weitere Module eingefügt werden. Eine solche Erweiterung ermöglicht das Einkoppeln der Anregung über ein mit dielektrischen Schichten bedampftes Glasplättchen. Ein weiteres Modul koppelt auf analoge Weise Licht aus einer Lampe und beleuchtet die Probe (in Abb. 3.2 nicht dargestellt). Licht aus der Probe wird zum Nachweis in ein Glasfaserbündel eingekoppelt, das auf dem obersten Modul gefestigt ist und mit Mikrometer Schrauben positioniert werden kann.

Zur Probenhalterung wurde ein Mikroskoptisch von Märzhäuser installiert, der sich mit Schrittmotoren auf etwa $0,5 \mu\text{m}$ genau verstellen lässt. Auf diesem Tisch wurde der in Abschnitt 3.1.1 beschriebene Mikroskop-Kryostat befestigt.

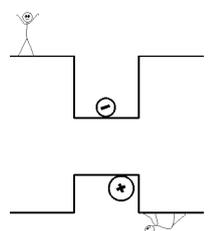
3.3.2 Einkoppelung der Anregung

Das Anregen der Probe mit einem Laserstrahl erscheint im ersten Augenblick als triviale Angelegenheit, entpuppte sich jedoch als einer der Problempunkte der μ -PL. Es stehen drei Optionen zur Einkoppelung der Anregung zur Auswahl (A_1 , A_2 , A_3 , siehe Abb. 3.3), die im Folgenden beschrieben werden sollen.

Die Einkoppelungen über A_1 und A_3 unterscheiden sich nur durch ihren Strahlengang vor dem Mikroskop. A_3 bringt den Strahl über einen Beamlift auf die richtige Höhe und kann außerdem eine Strahlaufweitung erfahren⁵. Über A_1 umgeht die Anregung den Beamlift. Beide Strahlen werden über ein mit dielektrischen Schichten bedampftes Glasplättchen auf die Oberseite des Objektivs abgebildet (Dass der Laser richtig justiert ist, lässt sich am besten ermitteln, wenn der Nachweis abgenommen wird und von oben auf das Objektiv geschaut wird. Vorsicht vor Laserreflexen!). Die dielektrischen Schichten des Plättchens wurden für eine maximale Reflexion bei 325 nm (UV-Linie des HeCd-Lasers) und maximale Transmission ab etwa 370 nm optimiert und sind polarisationsabhängig. Der genutzte Ar^+ -Laser (Linien bei etwa 350 nm, durch $\lambda/4$ -Plättchen zirkular polarisiert) verlor deshalb allein durch das Einkopplungsplättchen $2/3$ seiner Intensität. Zusammen mit Filtern und zwei Spiegeln blieben von nominell 100 mW Ausgangsleistung nur noch 7 mW vor Eintreten in das Objektiv übrig.

Die Olympus Objektive (80x: ULWD MSPlan80 und 100x: LMPlanFl) sind nach Angaben der Herstellerfirma UV tauglich, was jedoch keine Garantie für Transparenz bei

⁵Aufgrund missverständlicher Angaben von Olympus wurde angenommen, dass eine solche Aufweitung unumgänglich wäre. Dennoch lassen sich mit der vorhandenen Optik Intensität und Querschnitt des Lasers leicht steuern.



Wellenlängen unterhalb von 400 nm ist. So wird die Intensität des Ar⁺-Lasers um zwei (80x) bzw. vier (100x) Größenordnungen gedämpft. Licht des HeCd-Lasers wird völlig absorbiert. Beide erfahren bei der Einkoppelung und im Objektiv eine so extrem hohe Abschwächung, dass sie nicht mehr für Messungen genutzt werden konnten.

Die Anregung A_2 wird nicht in das Mikroskop eingekoppelt und fällt somit ungedämpft auf die Probe. Die Anregung ist nun intensiv, hat jedoch zwei Nachteile: erstens erfolgt sie makroskopisch (das Laser Profil beträgt im Fokus einer 160 mm Linse noch 300 μm Durchmesser) und zweitens muss sie nach jeder Bewegung der Probe nachgeführt werden, was wegen der Geometrie von Kryostat und Objektiv nur begrenzt möglich ist. Dennoch wurden alle Messresultate mit dieser Anordnung erzielt.

3.3.3 Nachweis

Zum Nachweis wird das Lumineszenzlicht von einem Objektiv gesammelt. Während für zeitintegrierte Messungen das 80x-Objektiv genutzt wurde, wurde für zeitaufgelöste Messungen das 20x-Objektiv verwendet, da es lichtstärker ist. Letzteres hat wegen seiner geringeren örtlichen Auflösung auch den Vorteil, dass Schwingungen des Probenarmes und Wandern des Mikroskoptisches die Messung weniger beeinflussen.

Das Bild der Probe wird durch einen Strahlteiler auf das Okular und auf den Nachweis abgebildet (Blaue Strahlen in Abb. 3.2). Der Nachweis besteht aus einem Bündel von Glasfasern mit 30 μm Durchmesser. Werden alle Fasern bis auf eine abgedeckt, ist mit dem 100x-Objektiv die örtliche Auflösung besser als ein Mikrometer. Über Umkehrung des Strahlenganges, d.h. durch Bestrahlen des freien Endes der Glasfaser, kann der Ort, von dem die Lumineszenz aufgenommen wird, durch das Okular bequem bestimmt werden. Die Positionierung des Nachweises lässt sich mittels zweier Mikrometerschrauben verstellen.

Das andere Ende der Glasfaser wird mittels der in Abbildung 3.3 dargestellten Optik auf den Eingangsspalt des Monochromators abgebildet. Die Glasfaser befindet sich im Brennpunkt der 25-mm-Linse, und ihr Bild würde im Idealfall im Fokus der 40-mm-Linse 50 μm Durchmesser betragen. Es wurde jedoch eine Erhöhung der Detektorzählrate bis 150 μm Spalten beobachtet. In der Faserhalterung befand sich eine weitere Linse, die jedoch die Abbildung erschwerte und aus diesem Grund ausgebaut wurde.

3.3.4 Mögliche Optimierung der Mikro-PL

Der Aufbau der μ -PL, wie er in dieser Arbeit beschrieben wird, ermöglicht bereits die Spektroskopie von einzelnen Quantenpunkten. Es kann jedoch noch vieles verbessert wer-

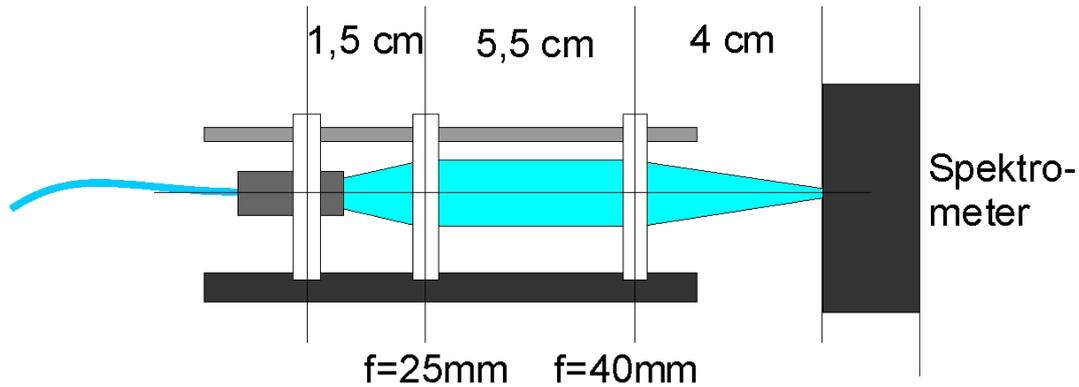


Abbildung 3.3: Zur Einkopplung in den Spektrometer wird die Glasfaser auf den Eintrittsspalt des Monochromators abgebildet.

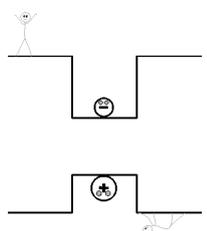
den, um die Qualität der Messungen sowie den Bedienungskomfort zu erhöhen. Vorschläge hierzu sollen im Folgenden aufgezählt und erläutert werden:

Optik

Die Anregung über A_2 ist zwar effektiv, erlaubt aber keine lokale Anregung wie über A_1 oder A_3 (siehe 3.2). Zwei optische Elemente dämpfen letztere Anregung jedoch stark: das Objektiv und der dielektrische Einkopplungsspiegel. Das Objektiv ist das wichtigste Bauteil des gesamten Aufbaus und *muss* für die vorliegende Anwendung optimiert werden. Es muss drei Anforderungen genügen (in dieser Reihenfolge):

- Einen Arbeitsabstand von mindestens 5 mm besitzen, um durch das Kryostatfenster auf die Probe fokussieren zu können.
- Gute Transmission im UV-Wellenlängenbereich, am besten bis 325 nm (HeCd) oder kürzer vorweisen.
- Hohe Vergrößerung bieten, um die nötige örtliche Auflösung zu erhalten.

Herkömmliche Objektive mit brechender Optik (Linsensysteme) absorbieren im UV stark. Als Ausweg bieten sich Spiegelobjektive an, die mit verschiedenen metallischen Beschichtungen (Al, Au) für Wellenlängen bis 20 nm ausgelegt sind. Mit großen Arbeitsabstand existieren jedoch nur Vergrößerungen bis 36x (z.B. das Spiegelobjektiv 13596-36x von Oriel). In Verbindung mit einer verbesserten Maskentechnik (siehe Kap. 4.2) würde dies jedoch ausreichen. Zu beachten ist außerdem die Größe solcher Objektive, die mit der Geometrie des Kryostaten inkompatibel sein könnte.



Eine weitere Optimierung ist eventuell bei dem dielektrischen Einkopplungsspiegel möglich. Jedoch lassen sich solche Schichten nur schlecht mit der entsprechenden Steilheit für eine hohe Reflexion bei 350 nm und hohe Transmission bei 400 nm herstellen. Selbst im Idealfall lässt sich hier höchstens ein Faktor zwei in der Anregungsintensität erzielen.

Gegenwertig wird ein Glasfaserbündel zur Einkopplung der Lumineszenz in das Spektrometer genutzt. Alle bis auf eine dieser Fasern auszublenden ist bei 30 μm Durchmesser ein schwieriges bis unmögliches Unterfangen. Es erreicht also immer etwas Licht aus anderen Fasern den Nachweis führt zu einem Verlust an örtlicher Auflösung. Das Glasfaserbündel durch eine einzelne Glasfaser zu ersetzen würde also die Messung vereinfachen. Die neue Faser muss auch im UV eine hohe Transmission vorweisen. Eventuell könnte ihre Abstrahlcharakteristik für ein 0,35 m oder 0,7 m Spektrometer optimiert sein, um direkt in den Monochromator eingekoppelt zu werden.

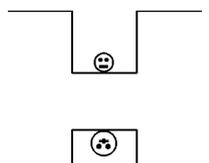
Schwingungsdämpfung

Bei allen Messmethoden, die mit einer Ortsauflösung im Sub-Mikrometerbereich arbeiten, sind Schwingungen die Ursache von Messfehlern. Schwingungsquellen finden sich sowohl innerhalb des Messaufbaus (Pumpen, unregelmässige He-Verdampfung, Eigenschwingungen), wie auch im Gebäude und seiner Umwelt (Türen, Aufzüge, U-Bahn, etc.).

Der gesamte Aufbau befindet sich aus diesem Grund auf einem möglichst steifen und schweren Tisch, der durch Luftkissen oder Federn von den Schwingungen des Gebäudes entkoppelt ist. Dennoch können Vibrationen über den He-Zufluss oder die Pumpschläuche zum Mikroskop gelangen. Diese müssen möglichst fest mit dem Tisch verbunden werden, um ihre Schwingungen zu absorbieren.

Sind diese Vorkehrungen getroffen, sind Messungen zwar möglich, aber besonders bei hohen Vergrößerungen mit dem 100x-Objektiv schwingt das Bild der Probe um bis zu einem Mikrometer mit einer Frequenz von einigen Hertz. Hierfür lassen sich zwei Gründe ausmachen. Zum einen schwingt das gesamte Mikroskop wegen seiner unzureichenden Steifheit, eventuell getrieben durch nicht gänzlich gedämpfte Gebäudeschwingungen (He-Zuleitung). Zur Verringerung der Höhe und Masse des Aufbaus wurde das Modul zur Beleuchtung der Probe ausgebaut. Denkbar, jedoch experimentell anspruchsvoll, wäre auch der Verzicht auf die Okularstufe (siehe Abb. 3.2). Sollte sich dies als sinnvoll erweisen, wäre in Betracht zu ziehen, auf das gesamte Mikroskop zu verzichten und nur noch mit Objektiv und Nachweis zu arbeiten. Der zweite Grund für die Schwingungen könnte ein unregelmässiger He-Fluss durch den Kryostaten sein. Der He-Fluss wird durch ein Nadelventil gesteuert,

das sich zeitweise verstopfen kann und zu Druckvariationen führt. Des Weiteren ist der Heber selbst eine Schwingungsquelle, wenn er sich unter der thermischen Belastung verformt und "knackt". Hier sollten Heizbänder, die um den Heber gewickelt werden und ihn auf einer konstanten Temperatur halten, Abhilfe leisten.



Kapitel 4

Die Proben

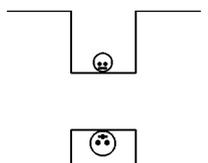
4.1 Herstellung

In dieser Arbeit werden die Resultate von Messungen an zwei Proben vorgestellt: die TU6665 wurde für zeitintegrierte Messungen genutzt und an der neueren TU6938 wurden die zeitaufgelösten Messungen durchgeführt.

Beide Proben wurden in der TU-Berlin an einer Aixtron 200 MOCVD Anlage in einem Niederdruck-Reaktor auf Si(111)-Substrat gewachsen. Ihre Struktur ist in Abb. 4.1 dargestellt. Als Precursor der InGaN-Schicht wurden TMGa, TMI_n und Amoniak verwendet. Die Schicht wurde bei 800 °C und einem Reaktordruck von 400 mbar gewachsen. Die Proben unterscheiden sich lediglich durch den Indiumfluss, der während Herstellung der aktiven Schicht für die TU6938 doppelt so hoch war wie für die TU6665.

Gerthsen et al. haben zur Strukturbestimmung von den untersuchten Proben hochauflösende Querschnitts-TEM-Messungen durchgeführt und mit DALI ausgewertet (siehe Kap. 2.4.1). Abbildung 4.2 zeigt das Resultat einer solchen Messung. Im unteren Teil der Abbildung ist die Indium-Konzentration entlang einer Linie in der InGaN-Schicht noch einmal aufgetragen. Offensichtlich ist die chemische der InGaN-Schicht sehr inhomogen¹. Die laterale Ausdehnung dieser Kompositionsfluktuationen beträgt etwa 5 nm und ist also gering genug, um bei Exzitonen Quantisierungseffekte hervorzurufen. Des Weiteren ist die Form und Größe der Fluktuationen unsystematisch gestreut: es existieren sowohl kleine Inseln mit hoher Indium-Konzentration wie auch große Inseln mit niedriger Indium-Konzentration. Die Dichte dieser Lokalisierungszentren wird auf etwa $10^{11}/\text{cm}^2$ geschätzt

¹Querschnitts-TEM-Messungen an dünnen Schichten erlauben nur eine stark fehlerbehaftete Bestimmung der absoluten Indium-Konzentrationen, da in die Tiefe über eine mehrere 100 nm dicke Schicht gemittelt wird.



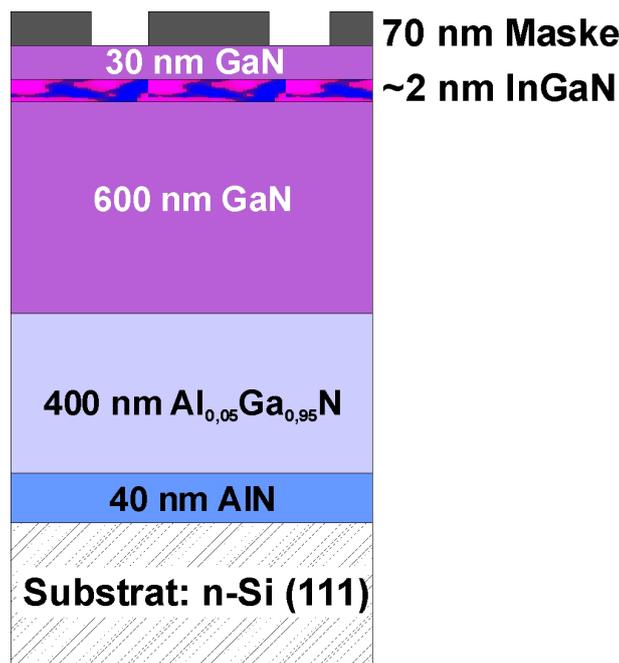


Abbildung 4.1: Schematischer Aufbau der untersuchten InGaN-Strukturen.

[Sos00].

Die Indium-Fluktuationen der InGaN-Schicht formen ein dichtes Ensemble von Quantenpunkten zufälliger Größe und Form. Sie stellen also ein geeignetes System dar, um die μ -PL zu testen. Da die Dichte der Quantenpunkte so hoch ist, muss das örtliche Auflösungsvermögen der Messapparatur weiter gesteigert werden. Da die μ -PL sich mit etwa $0,5 \mu\text{m}$ schon am Limit der klassischen Mikroskopie befindet, wird auf eine Maskentechnik zurückgegriffen, die im Folgenden beschrieben wird.

4.2 Präparation

Typische Quantenpunktdichten liegen bei etwa $10^{11}/\text{cm}^2$, was 1000 Quantenpunkten pro μm^2 entspricht. Wird nun unrealistischerweise angenommen, dass jeder Quantenpunkt nur einen Übergang besitzt, so emittiert ein μm^2 Probe 1000 Linien. Sind diese Linien über das gesamte Spektrum mit einer Halbwertsbreite von 100 meV gleichverteilt, ist zu ihrer Detektion eine spektrale Auflösung von 100 μeV nötig. Zur Untersuchung von einzelnen Quantenpunkten muss also die örtliche Auflösung des Nachweises weiter erhöht werden.

Dies geschieht durch eine Schattenmaske, die auf die Probe aufgetragen wird und in der Aperturen von einigen 100 Nanometern freigelassen werden. Anregung und Nachweis

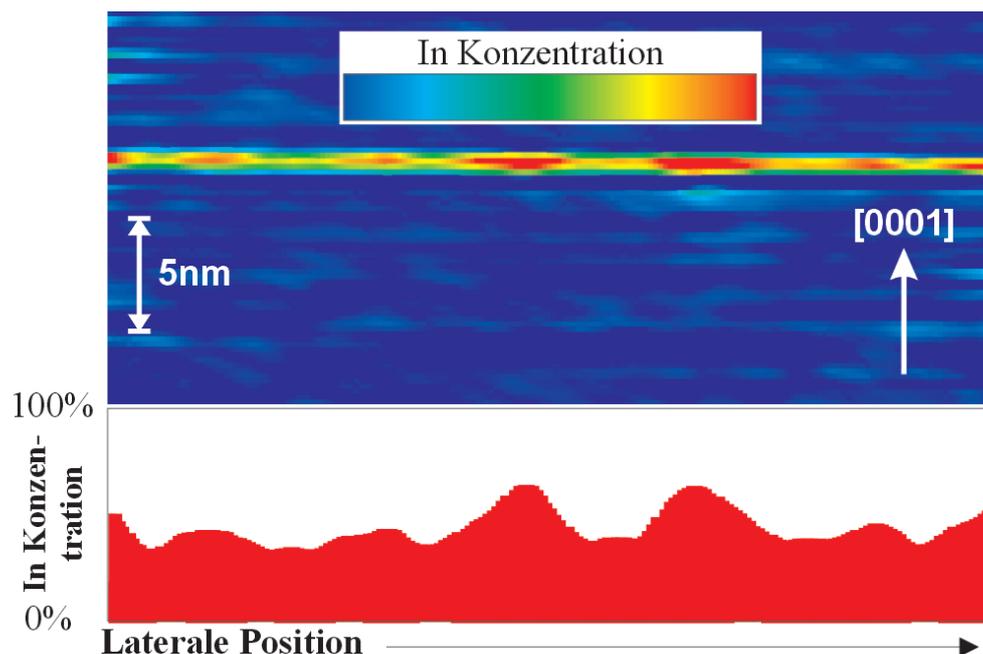


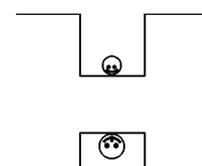
Abbildung 4.2: XTEM Aufnahme der Probe TU6665. Die InGaN-Schicht ist 2 nm dick und weist starke Kompositionsfluktuationen auf. Die Größe der indiumreichen Inseln liegt unter 5 nm [Seg04c]

geschehen nur noch über diese Öffnungen und es wird so eine Auflösung erreicht, die über der optischen Mikroskopie liegt.

Die Masken werden hergestellt, indem im Handel erhältliche Mikrokugeln aus Polystyrol auf die Oberfläche gebracht werden. Der Durchmesser dieser Kugeln beträgt wahlweise 10 μm , 200 nm oder 100 nm. Je nach Anwendung kann die Dichte der Kugeln durch Verdünnen und Vermischen gewählt werden. Die mit den Kügelchen besäte Probe wird nun mit einem Haftvermittler (Titan) und 70 nm Platin bedampft. Im nächsten Schritt werden die Kugeln in einem Ultraschallbad wieder von der Oberfläche entfernt und hinterlassen Aperturen mit dem entsprechenden Durchmesser (siehe Abb. 4.3). Die Masken schwächen das Licht um einen Faktor 1000; da der Nachweis jedoch 1 μm^2 abdeckt, kann transmittiertes Licht die Messungen erschweren. Aluminium hat einen höheren Absorptionskoeffizienten bei 3 eV, ist jedoch nicht für Messungen mit Kathodolumineszenz geeignet², die auch an den Proben durchgeführt wurden.

Für Messungen an einzelnen Quantenpunkten wurden die 200 nm Löcher benützt, hinter denen sich nur noch etwa 40 Quantenpunkte befinden (100 nm-Löcher sind zu licht-

²Aluminium ist unter Elektronenbeschuss nicht stabil und oxidiert zu AlO_x , welches transparent ist [Rod03]



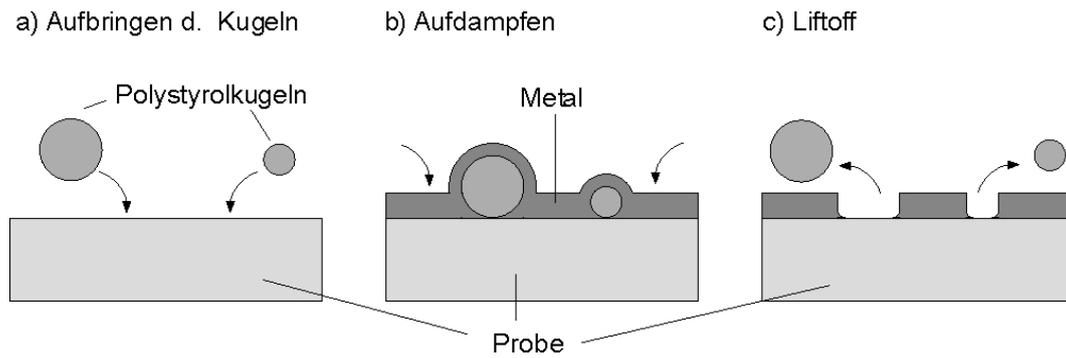


Abbildung 4.3: Herstellung der Schattenmasken [Seg04b].

schwach). Bei weiteren Arbeiten mit dieser Maskentechnik sollte die räumliche Dichte der 200 nm-Aperturen weiter reduziert werden, da Streulicht von anderen Aperturen auch vom Objektiv gesammelt wird und so zu einem Hintergrundsignal führt (für genauere Parameter bei der Herstellung der Masken, siehe Anhang A-2).

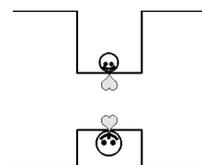
Kapitel 5

Ergebnisse und Diskussion

Um ein tieferes Verständnis von der Rekombinationsdynamik von Exzitonen in InGaN-Quantenpunkten zu erhalten, wurde das Photolumineszenzlicht dieser Strukturen untersucht. Messungen mit hoher örtlicher Auflösung konnten scharfe Emissionslinien nachweisen, die der δ -förmigen Zustandsdichte in Quantenpunkten zugeschrieben werden. Das zeitliche Abklingen der Lumineszenz ist für das QP-Ensemble multi-exponentiell, zeigt jedoch für einzelne QP-Linien ein qualitativ anderes Verhalten. Die Untersuchung von Umverteilungsprozessen deutet an, dass diese das zeitliche Verhalten von Exzitonen entscheidend beeinflussen.

5.1 Ensemble- und Einzel-QP-Spektroskopie

Abbildung 5.1 zeigt normierte Lumineszenzspektren der Proben TU6665 und TU6938 bei 6 K. Es zeigt sich ein qualitativ unterschiedliches Verhalten. Die Maxima der Emission liegen bei 2,975 eV (TU6665) und bei 2,94 eV (TU6938). Die Halbwertsbreite (FWHM) der Hauptpeaks beträgt zwischen 80 meV und 90 meV. Auf der hochenergetischen Flanke der TU6665 tritt eine Schulter auf. Eine ähnliche Schulter erscheint bei TU6938 auf der niederenergetischen Flanke und wurde auch von *Krestnikov et al.* beobachtet und als Grundzustand großer Quantenpunkte interpretiert [Kre02]. Eine andere mögliche Ursache mag die Koexistenz zweier Quantenpunktensembles unterschiedlichen Ursprungs (z.B. Quantenpunkte die im 3D Modus gewachsen sind, Entmischungsinselfen oder Lokalisierung an Defekten [Wu98]) sein, oder auch Fabry-Pérot Interferenzen (siehe Anhang A-3). Diese Erklärungen sind angesichts der unterschiedlichen Spektren der Proben spekulativ und weitere Untersuchungen sind nötig, um die Natur der Schulter zu klären. Eine kleine Übersicht der Resultate an ähnlichen InGaN-Schichten geben *O'Donnell et al.* [O'D03].



Es wird wegen der hohen Bindungsenergien der Exzitonen davon ausgegangen, dass bei tiefen Temperaturen die *gesamte* Lumineszenz exzitonerischer Natur ist. Wir werden zeigen, dass sie ihren Ursprung in den Quantenpunkten der InGaN-Schicht hat.

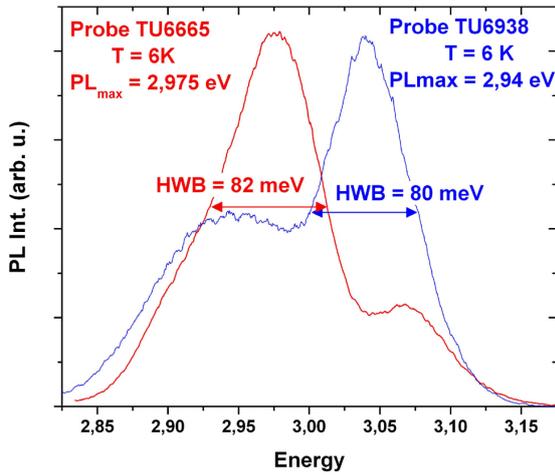


Abbildung 5.1: Ensemble-Spektren der Proben TU6665 (Rot) und TU6938 (Blau) bei 6 K.

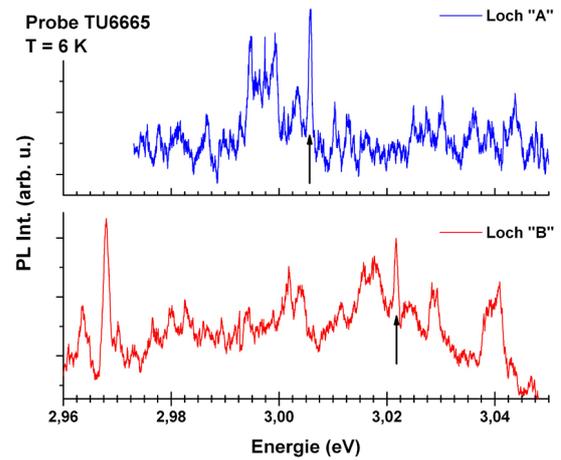


Abbildung 5.2: Zwei typische μ PL Spektren durch verschieden 200 nm Lochmasken. Nur die zwei markierten Linien sind auflösungsbeschränkt.

Werden die Proben durch eine 200 nm Apertur der Maske spektroskopiert, so ändert sich die Form der Lumineszenz und es treten scharfe Linien auf (Abb. 5.2). Diese Linien werden einzelnen exzitonerischen Übergängen in InGaN-Quantenpunkten zugeordnet. In den gezeigten Spektren ist jeweils nur eine Linie auflösungsbeschränkt (Markierungen). Dies bedeutet *nicht*, dass alle übrigen keine einzelnen Quantenpunktlinien sind; der *Jitter* (siehe Kap. 2.3.3) kann durchaus Linienbreiten von 1-2 meV hervorrufen wenn ein zeitlich integriertes Spektrum aufgenommen wird. Sind die Strukturen energetisch breiter, so handelt es sich um Überlagerungen einzelner Linien.

Die Emission einzelner QP-Zustände kann nachgewiesen werden und beweist die Eignung der μ -PL zur Untersuchung einzelner Quantenpunkte. Es eröffnet sich somit die Möglichkeit zum Vergleich von zeitaufgelösten Lumineszenzuntersuchungen am QP-Ensemble und an einzelnen Quantenpunkten.

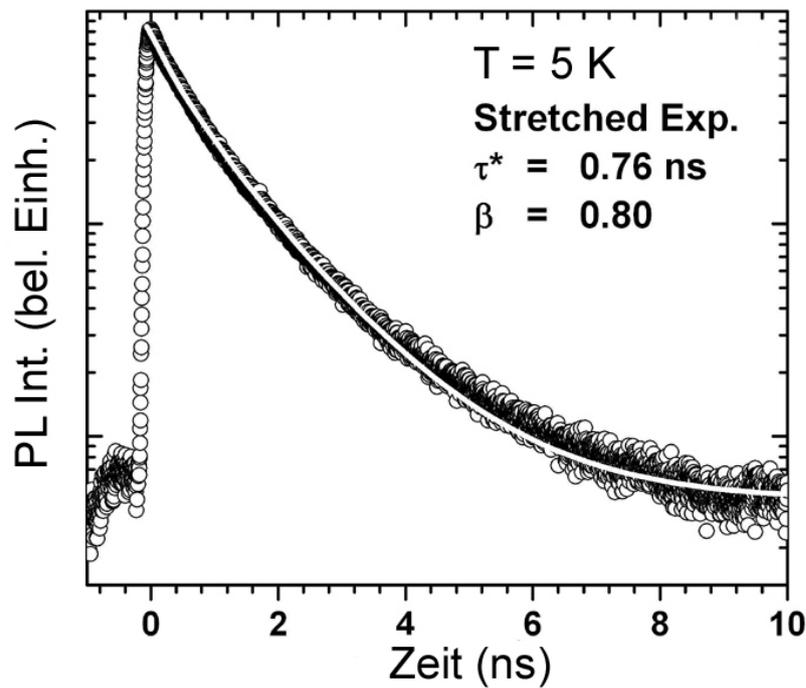


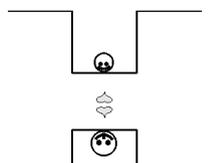
Abbildung 5.3: Zeitaufgelöste PL der TU6938: Zeitabhängigkeit der Ensemble-Lumineszenz, gefittet mit der gestreckten Exponentialfunktion (5.1)

5.2 Die Dynamik der Exzitonen in InGaN-Quantenpunkten

Um die Dynamik von Exzitonen in InGaN-Strukturen zu verstehen, wurden zeitaufgelöste Messungen an einzelnen QP-Linien sowie am gesamten QP-Ensemble durchgeführt. Es wurden zwei qualitativ unterschiedliche Verhalten beobachtet, die in diesem Abschnitt gegenübergestellt werden. Diese Messungen wurden an der Probe TU6938 durchgeführt.

5.2.1 Dynamik des Quantenpunkt-Ensembles

Für ein 2-Niveau-Modell wird nach Abschnitt 2.5 ein mono-exponentielles Abklingen erwartet. Wie jedoch in Abbildung 5.3 zu ersehen, zeigt das QP-Ensemble ein nicht-exponentielles Abklingen. Dem System kann keine Zeitkonstante im herkömmlichen Sinn zugeordnet werden. Dieses Verhalten wurde auch an anderen ungeordneten Halbleiterstrukturen beobachtet [Che92] und ist typisch für InGaN-Quantenstrukturen [Pop98, Kas00, Kre02]. Es kann mit der Kohlrausch oder William-Watts *gestreckten Exponentialfunktion* beschrieben werden [Koh54, Wil70]:



$$I(t) = I_0 \exp[-(t/\tau^*)^\beta], \quad (5.1)$$

Hier ist β der "Streck"-Parameter. Bei $\beta \rightarrow 1$ wird die Funktion mono-exponentiell, für kleinere Werte klingt sie anfangs immer schneller ab. Die Zeitkonstante ergibt sich zu $\tau^* = 0,76$ ns und der Streckparameter $\beta = 0,8$.

τ^* ist eine charakteristische Zeitkonstante für die es zwei Interpretationen gibt:

- τ^* ist die charakteristische Konstante einer zeitlichen Entwicklung, d.h. die Zeitkonstante des Systems ändert sich mit der Zeit. Ein solches Verhalten ist zu erwarten, wenn bei Hochanregung die im Halbleitermaterial erzeugten Elektronen und Löcher in der InGaN-Schicht ein internes Feld abschirmen. Dieses Abschirmen des elektrischen Feldes verringert für Quantenpunkte in der Schicht den QCSE und erhöht damit die Rekombinationswahrscheinlichkeit (siehe Kap. 2.3.3). Nach und nach baut sich die Abschirmung durch Rekombination ab, und das wachsende Feld führt zu längeren Zeitkonstanten. Dieses Verhalten wurde in der Tat an dünnen Nitrid-Schichten beobachtet [Lef04, Got03, Pop98]. Um den Einfluss solcher Abschirmungseffekte an den untersuchten Proben abzuschätzen, wurden intensitätsabhängige Messungen mit einer Dämpfung der Anregung von bis zu zwei Größenordnungen durchgeführt¹. Es wurde jedoch keine Änderung im Abklingverhalten beobachtet. Solche Effekte können somit ausgeschlossen werden.
- τ^* entspricht der charakteristische Konstante einer örtlichen Verteilung, d.h. je nachdem, wo das Exziton lokalisiert ist, besitzt es eine unterschiedliche Zerfallskonstante. Die Überlagerung aller Zerfallszeiten führt dann zu einem multi-exponentiellen Abklingen der gesamten Lumineszenz im nicht-ortsaufgelösten Experiment.

Um diese verschiedenen Zerfallskonstanten zu erklären, entwickelten Morel *et al.* ein zweidimensionales *Pseudo*-DAP Modell [Mor03]. In Analogie zur Donator-Akzeptor-Paar-Rekombination (DAP) von Thomas und Hopfield [Tho65] übernehmen hier Quantenpunkte die Rolle der Donatoren und Akzeptoren. Es wird in diesem Modell angenommen, dass die Ladungsträger in unterschiedlichen Lokalisierungszentren räumlich getrennt sind.

¹Hochanregung liegt in der Tat vor, wie aus folgender Rechnung anschaulich wird: Am gepulsten Ti:Sa-Laser wird eine "CW"-Leistung von 30 mW gemessen. Es ergibt sich bei einer Pulslänge von etwa 1 ps und einem Pulsintervall von etwa 10 ns eine Leistung von 300 W. Nach Fokus des Lasers auf 10^{-3} cm² liegt also eine Leistungsdichte von 30 KW/cm² vor.

Die Wellenfunktionen dieser Ladungsträger werden der Einfachheit halber mit einer 2-dimensionalen Gaussfunktion beschrieben werden. Wenn die Rekombinationswahrscheinlichkeit $W(r)$ proportional zum optischen Dipolmoment $|M|^2$ nach Gl. (2.9) ist, dann hängt $W(r)$ nur noch vom Abstand r der Lokalisierungszentren ab:

$$W(r) = W_{max} e^{-r^2/a^2} \quad (5.2)$$

Hier ist W_{max} eine Konstante und a ein charakteristischer Abstand der Wellenfunktionen. Je größer die Trennung, desto unwahrscheinlicher die Rekombination und desto länger die Zeitkonstante des Zerfalls. Die Lumineszenzintensität $I(t)$ zeigt ein multi-exponentielles Abklingen.

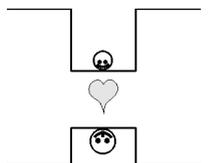
Dieses Modell nähert die experimentellen Daten für das Abklingen der Lumineszenz der QP-Proben gut an, beschreibt jedoch unserer Ansicht nach nicht die in diesem Materialsystem relevanten Prozesse. Während bei Thomas and Hopfield jeweils nur Löcher an die Akzeptoren und Elektronen an die Donatoren binden können und so eine räumliche Trennung notgedrungen geschieht, können Quantenpunkte beide Ladungsträger binden.

Wir werden zeigen, dass die nicht-systematische Streuung der Quantenpunkt-Parameter wie Größe, Potentialtiefe und Form stark unterschiedliche Zeitkonstanten verursacht und das multi-exponentielle Abklingen der Ensemble-Lumineszenz erklären kann.

5.2.2 Dynamik einzelner Quantenpunkte

Zur Untersuchung der Dynamik exzitonenischen Übergängen in *einzelnen* Quantenpunkte wurden deren Emissionslinien zeitaufgelöst spektroskopiert. Abbildung 5.4 zeigt das transiente Verhalten eines solchen Überganges, dessen Lumineszenz im Inset hervorgehoben ist. Die untersuchten Linien sind mit einem Hintergrundsignal unterlegt, das bis zu 70 % der Lumineszenzintensität ausmachen kann. Dieses Hintergrundsignal ist Lumineszenzlicht des Quantenpunkt-Ensembles, das von anderen Maskenlöchern in den Nachweis gestreut wird oder das die Maske transmittiert. Um das transiente Verhalten des Hintergrundes herauszufiltern und die Quantenpunktmission zu isolieren, wurden zwei Transienten aufgenommen: eine mit dem spektralen Nachweis auf der Linie und eine 5-10 meV daneben (Abb. 5.4 (a)). Bei Subtraktion der Hintergrundtransiente von der Linie tritt das Lumineszenzverhalten eines einzelnen Quantenpunktes zutage². Dies ist möglich da, wie bereits gezeigt, die Dynamik des Quantenpunktensembles sich für Energiedifferenzen von ein paar meV nur wenig verändert (siehe Abb. 5.1). Abbildung 5.4 (b) zeigt das Abklingen einer

²Diese Vorgehensweise wurde schon von Robinson *et al.* angewandt [Rob03]



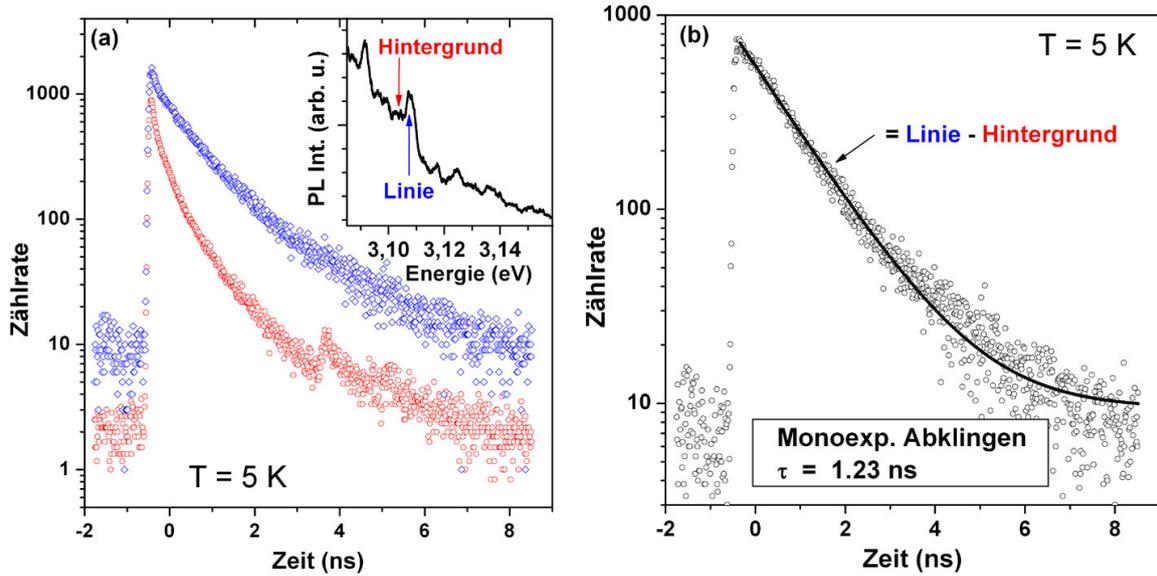


Abbildung 5.4: Zeitaufgelöste PL an einzelnen Quantenpunktlinien (TU6938). (a) Die Transienten der Linie (blau) und des Hintergrunds (rot) wurden an der im Inset markierten Stellen aufgenommen. (b) Nach Subtraktion des Hintergrunds von der Linie offenbart die Lumineszenz eines Quantenpunktes ihren mono-exponentielle Dynamik.

einzelnen Quantenpunktlinie. Im Gegensatz zur Ensemble-Lumineszenz wurde bei allen untersuchten Linien ein mono-exponentielles Verhalten beobachtet. Die Zerfallszeiten liegen zwischen 0.4 und 1.6 ns. Auf ihre breite Verteilung soll im folgenden eingegangen werden.

Die Zeitkonstanten der QP-Linien sind in Abbildung 5.5 als Funktion ihrer Übergangsenergie aufgetragen (Dreiecke) und den Zeitkonstanten des QP-Ensembles (Vierecke) gegenübergestellt. Die Werte der einzelnen Quantenpunkte zeigen selbst für ähnliche Nachweis-Energien eine weite Streuung. Ein Sub-Ensemble von Quantenpunkten mit gleicher Übergangs-Energie kann also offenbar unterschiedliche Lebensdauern besitzen.

Die Dynamik von Exzitonen in Quantenpunkten wird nach Gl. (2.6) durch zwei konkurrierende Prozesse bestimmt: die strahlende Rekombination mit der Zeitkonstante τ_r und die nicht-strahlende Rekombination mit der Zeitkonstante τ_{nr} . Der erste Prozess hängt vor allem vom Überlapp der Elektron- und Loch-Wellenfunktion ab, der durch Quantenpunktparameter wie Größe, Form und Tiefe seines Lokalisierungspotentials beeinflusst wird. Für den zweiten Prozess muss mindestens einer der Ladungsträger in die Matrix oder die InGaN-Schicht entkommen, um dort an Defekten zu rekombinieren. Die Wahrscheinlichkeit hierfür hängt also von der Tiefe der Lokalisierung ab.

Die Stärke der Lokalisierung ist nicht durch die absolute Indiumkonzentration des

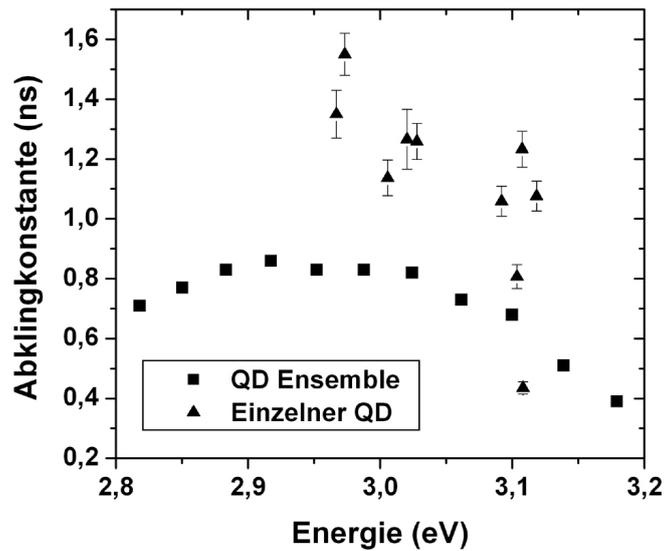
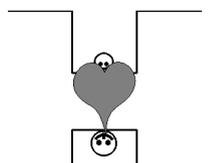


Abbildung 5.5: Spektrale Abhängigkeit der Zeitkonstanten einzelner Quantenpunktzustände (Dreiecke) und der Ensemble Lumineszenz (Vierecke).

Quantenpunktes gegeben, sondern wird durch den Konzentrationsunterschied zwischen dem Quantenpunkt und seiner Umgebung bestimmt. Wegen der ungeordneten Natur der InGaN-Schichten, ist die Übergangsenergie *nicht* mit der Lokalisierungsenergie korreliert (siehe auch Abb. 4.2). Es kann also ein Sub-Ensemble von Quantenpunkten definiert werden, in dem alle Quantenpunkte die selbe Übergangsenergie besitzen, jedoch nicht formgleich sein müssen und unterschiedliche Lokalisierungsstärken besitzen können. In einem solchen Sub-Ensemble können die Wahrscheinlichkeiten von strahlender und nicht-strahlender Rekombination sehr unterschiedlich sein. Aufgrund der Unordnung in InGaN-QP-Schichten kann also innerhalb eines QP-Sub-Ensembles eine weite Streuung der Zeitkonstanten vorliegen.

Das Abklingen des Quantenpunkt-Ensembles ergibt sich als Superposition der unterschiedlichen Abklingverhalten einzelner Quantenpunkte und erhält dadurch seine multi-exponentielle Form. Es wurde also gezeigt, dass das multi-exponentielle Verhalten der Lumineszenz des QP-Ensembles direkt aus der Unordnung der InGaN-Quantenstruktur folgt.

Um den jeweiligen Einfluss strahlender und nicht-strahlende Prozesse abschätzen zu können, wurden Messungen angestellt die auf die Tiefe der Lokalisierungszentren und die Relevanz von Transferprozessen schließen lassen.



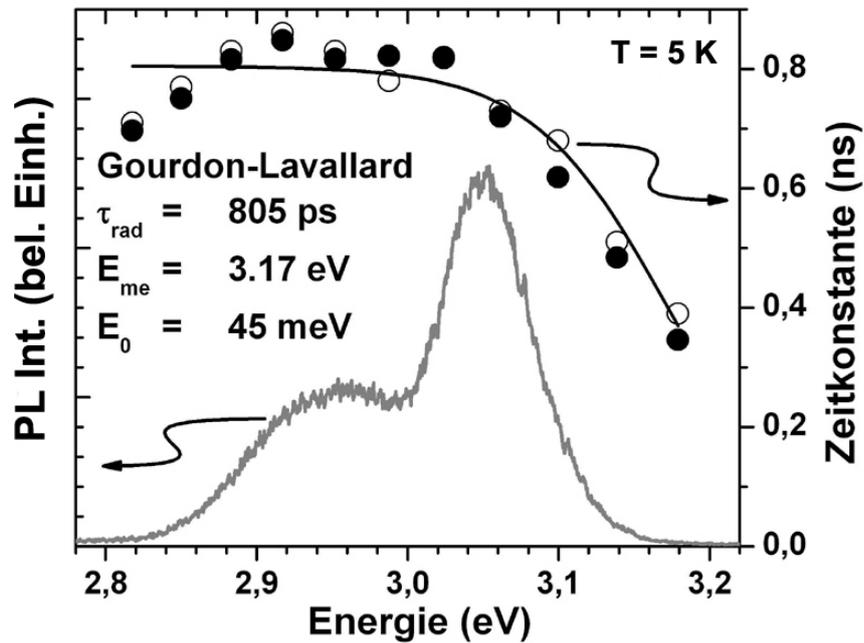


Abbildung 5.6: Zeitaufgelöste PL der TU6938: Spektrale Abhängigkeit des 1/e-Abklingens (offene Punkte) und des Fitparameters τ^* (gefüllte Punkte) gefittet mit 5.3. In Grau die zeitintegrierte Lumineszenz.

5.3 Transferprozesse und Lokalisierung

Wird ein Exziton in einem Quantenpunkt gebunden, so kann es seinem lokalisierenden Potential auch wieder entweichen. Dies kann geschehen indem es in ein nahegelegenes tieferes Potential tunnelt oder thermisch in die InGaN-Schicht aktiviert wird. Dieses Verhalten beeinflusst die Lumineszenz und kann somit untersucht werden.

Abbildung 5.6 zeigt die spektral aufgelöste Abhängigkeit der Zeitkonstanten der Ensemble-Lumineszenz. Leere Kreise geben das Verhalten des 1/e-Abklingens wieder, volle Kreise stellen den Wert von τ^* aus einem Fit mit Gl. (5.1) dar. Zwischen beiden Abklingkonstanten liegen nur unwesentliche Abweichungen vor.

Das Abnehmen der Zerfallskonstanten auf der höherenergetischen Seite der Lumineszenzbande ist charakteristisch für ein System, dessen Licht aus Lokalisierungszentren herrührt. Für Quantenpunkte mit höherer Übergangsenergie werden die Lokalisierungsenergien immer kleiner. Dadurch nimmt die Wahrscheinlichkeit für Tunnelprozesse in tiefere Potentialtöpfe zu. Die Lebensdauer von Zuständen in diesen flachen Quantenpunkten wird dadurch stark reduziert.

Gourdon und *Lavallard* haben ein Modell entwickelt das, solche Transferprozesse beschreibt, jedoch Einschränkungen besitzt, derer man sich bewußt sein muss. Insbesondere werden nur Prozesse berücksichtigt, bei denen Ladungsträger aus einem Potentialtopf in einen energetische niedrigeren Topf gelangen. Thermische Aktivierung ist also ausgeschlossen. Des Weiteren wird angenommen, dass in allen Lokalisierungszentren die strahlende Rekombination gleich wahrscheinlich ist. Das bedeutet, dass die strahlende Lebensdauer τ_{rad} unabhängig von der Übergangsenergie und anderen Quantenpunkt-Parametern ist. Für einzelne Quantenpunkte gilt dies, wie im vorigen Abschnitt beschrieben, schon für die gleiche Übergangsenergie nicht. Es kann jedoch a priori angenommen werden, dass der Mittelwert über ein QP-Sub-Ensemble mit gleicher Übergangsenergie von dieser unabhängig ist. Die spektrale Abhängigkeit der Zeitkonstante des Abklingen der Lumineszenz wird dann mit folgender Formel beschrieben [[Gou89](#)]:

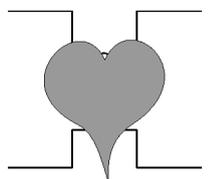
$$\tau_{PL} = \frac{\tau_{rad}}{1 + \exp[(E - E_{me})/E_0]} \quad (5.3)$$

Hier ist τ_{rad} die strahlende Lebensdauer aller Quntenpunkte. E_{me} ist eine charakteristische Energie des Systems bei der die Wahrscheinlichkeit der strahlenden Rekombination und des Transfers gleich sind. Sie entspricht somit in gewisser Weise einem Übergang von lokalisierten Zuständen zu 2D-artigen-Zuständen der InGaN-Schicht. E_0 ist eine charakteristische Energie der Zustandsdichte und kann als eine mittlere Lokalisierungsenergie interpretiert werden.

In [Abbildung 5.6](#) ist der Fit der Zerfallskonstanten τ^* mit [Gl. \(5.3\)](#) aufgetragen. Es ergibt sich eine strahlende Zeitkonstante von $\tau_{rad} \sim 0,8 \text{ ns}$ sowie $E_{me} = 3,17 \text{ eV}$ und $E_0 = 45 \text{ meV}$. Interessant an diesen Werten ist, dass praktisch die gesamt Lumineszenzbande unterhalb von E_{me} liegt, was andeutet, dass die gesamte Rekombination in Quantenpunkten stattfindet.

Die Übereinstimmung des Modells von *Gourdon* und *Lavallard* mit den Daten ist für Energien über 2,9 eV gut, überschätzt die Lebensdauer auf der niederenergetischen Flanke jedoch. Effekte, wie das zunehmende *Confinement* in tiefen Lokalisierungszentren, die in diesen Modell nicht berücksichtigt werden, verringern die Lebensdauer dieser Zustände. Das *Confinement* vergrößert den Elektron-Loch-Überlapp und erhöht so die Rekombinationswahrscheinlichkeit. Die Annahme, dass τ_{rad} unabhängig von der Übergangsenergie ist, wird hier augenscheinlich verletzt.

Dennoch lässt sich aus diesem Modell eine mittlere strahlende Lebensdauer und eine mittlere Lokalisierungsenergie abschätzen und auf die hohe Relevanz von Tunnel-Prozessen zwischen den Quantenpunkten schließen.



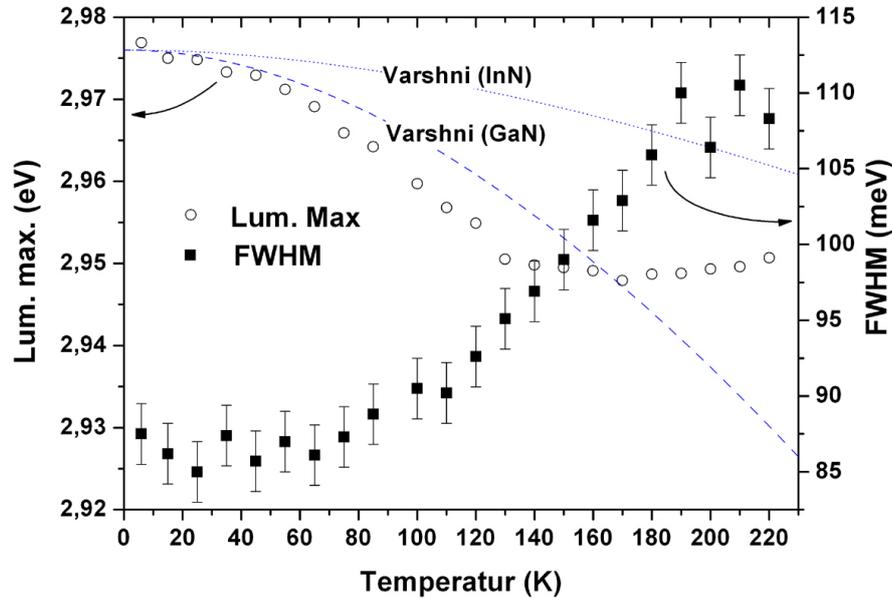


Abbildung 5.7: Lumineszenzmaximum und FWHM einer Temperaturserie der Probe TU6665. Die Varshni-Funktionen zeigen das Bandlückenverhalten von InN und GaN.

Um den Einfluß weiterer Transferprozesse, insbesondere den der thermischen Aktivierung zu evaluieren, wurden temperaturabhängige PL-Messungen von 4 K bis zu 220 K durchgeführt. Die Entwicklung der Lumineszenz erlaubt Rückschlüsse auf Umverteilungsprozesse zwischen den Lokalisierungszentren des QP-Ensembles und auf Transferprozesse in die sie umgebende InGaN-Schicht.

Abbildung 5.7 zeigt die energetische Position des Lumineszenzmaximums sowie seine Halbwertsbreite (Full Width at Half Maximum: FWHM) in Abhängigkeit der Temperatur.

Bei einer hypothetischen InGaN-Schicht ohne Lokalisierungszentren würde erwartet werden, dass das Maximum der Lumineszenz dem Bandkantenverhalten folgt. Dieses wird durch die Varshni-Funktion beschrieben (Gl. 2.4) mit Parametern, die in der Nähe von denen von InN und GaN liegen. Die Lumineszenz folgt jedoch einem qualitativ anderen Verhalten; bei tiefen Temperaturen und bis 130 K ist die Rotverschiebung stärker als die Bandlückenabnahme. Bei höheren Temperaturen invertiert sich der Effekt und es kommt zu einer schwachen Blauverschiebung.

Dieses sogenannte *s-shape*-Verhalten ist typisch für lokalisierende Systeme mit breiter Streuung der Potentialtiefe und wurde an anderen QP-Systemen beobachtet (siehe z.B. [Xu96, Hei99, Nar02, Dwo02]). Es hat seinen Ursprung in Umverteilungseffekten zwischen

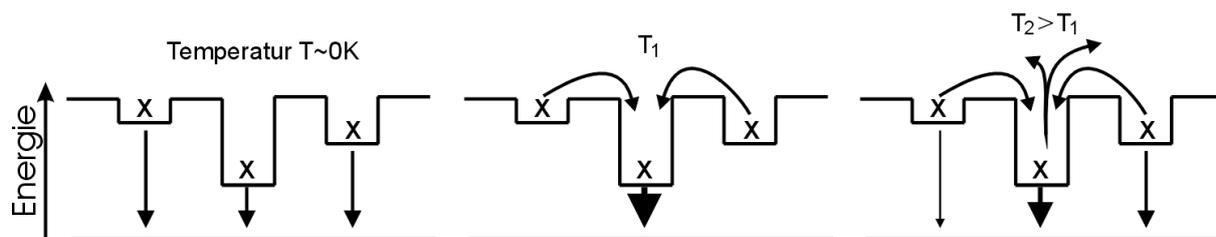
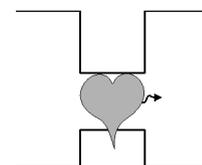


Abbildung 5.8: Schematische Darstellung der Umverteilungsprozesse und Rekombinationswahrscheinlichkeiten zur Erklärung des *s-shape*-Verhaltens.

den Lokalisierungszentren wie in Abb. 5.8 dargestellt. Bei niedrigen Temperaturen ist die Besetzung der Quantenpunkte rein statistischer Natur und die Ladungsträger sind in ihnen "eingefroren". Bei steigender Temperatur erlaubt es die kinetische Energie den Ladungsträgern, ihre flachen Lokalisierungszentren zu verlassen und in tiefere Quantenpunkte zu relaxieren: die Emission wandert ins Rote. Ab 130 K reicht die thermische Energie (~ 11 meV) der Ladungsträger aus, um auch die tiefen Quantenpunkte zu verlassen, und die Rekombination findet aus allen Quantenpunkten heraus statt. Dieser Effekt konkurriert mit dem *Varshni-shift* so, dass das Lumineszenzmaximum sich stabilisiert oder sich sogar wieder zu höheren Energien verschiebt.

Diese Transferprozesse wirken sich, wie in Abbildung 5.7 ersichtlich, auch auf die Halbwertsbreite der Lumineszenzbande aus. Von tiefen Temperaturen an bis 70 K bleibt die FWHM nahezu konstant bei etwa 85 meV, steigt dann aber für höhere Temperaturen an. Dieses Verhalten lässt sich mit den selben Prozessen erklären wie das *s-shape*. Das bei 4 K die Lumineszenz nicht viel breiter ist als bei 70 K, lässt jedoch darauf schließen, dass selbst bei tiefen Temperaturen Transferprozesse (Tunnelprozesse) aus flachen Quantenpunkten wahrscheinlich sind. Im Gegensatz zu Prozessen die auf thermischer Aktivierung beruhen führen diese Tunnelprozesse aber nicht zu einer Umverteilung in die tiefsten Quantenpunkte. Dies kann dadurch erklärt werden, dass resonantes Tunneln sehr viel wahrscheinlicher ist, als der nicht-resonante Prozess von einem energetisch höheren in einen tieferen Zustand, bei dem ein Phonon generiert werden muss.

Zunehmende Umverteilung mit steigender Temperatur beeinflusst auch die Intensität der exzitonischen Lumineszenz. So werden Ladungsträger zunehmend thermisch in 2D-Zustände der InGaN-Schicht aktiviert. Sie sind nun sehr mobil und können zu Gitterfehlern und Defekten diffundieren, wo sie nicht-strahlend rekombinieren. Wenn eine thermische Aktivierung der dominierende Effekt ist, lässt sich die Abnahme der integralen Lumineszenzintensität für ein n-Niveau-System mit der folgenden Formel beschreiben [Bim71]:



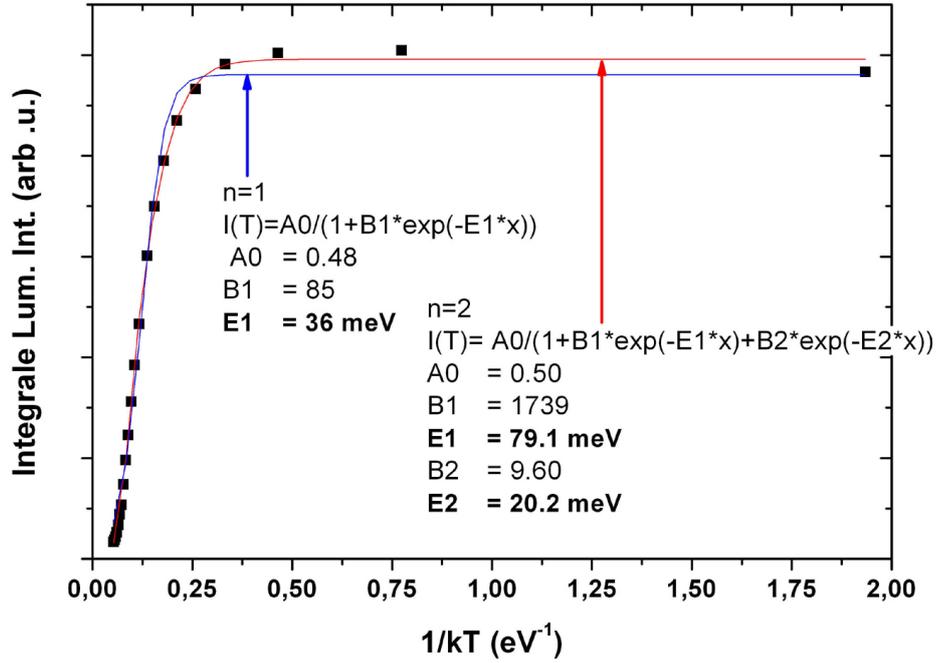


Abbildung 5.9: Arrhenius-Plot der Integralen Lumineszenzintensität der Probe TU6665. Ein Modell mit zwei Aktivierungsenergien nach Gl. 5.4 beschreibt die Daten gut.

$$I(T) = I_0 \left(1 + \sum_n B_n \exp \left(-\frac{\Delta E_{0n}}{k_B T} \right) \right)^{-1}. \quad (5.4)$$

- I_0 – Intensität bei $T=0$ K
- n – n -ter angeregter Zustand
- E_{0n} – Aktivierungsenergie vom Grund- in den n -ten angeregten Zustand
- k_B – Boltzmann-Konstante

Mit temperaturabhängigen Untersuchungen lassen sich nun die Aktivierungsenergien der Exzitonen in angeregte Zustände abschätzen. Für InGaN-QP-Systeme entspricht diese Energie der Lokalisierungsenergie der Exzitonen. In Abbildung 5.9 ist in einem Arrhenius-Plot das Abklingen der Intensität über $1/k_b T$ aufgetragen. Die Daten wurden mit der Funktion (5.4) mit $n=1$ und $n=2$ angepasst. Die Aktivierungsenergien ergeben sich entsprechend zu $E_A^{int} = 36 \text{ meV}$ ($n=1$) und $E_A^{int} = 20.2$ und 79.1 meV ($n=2$).

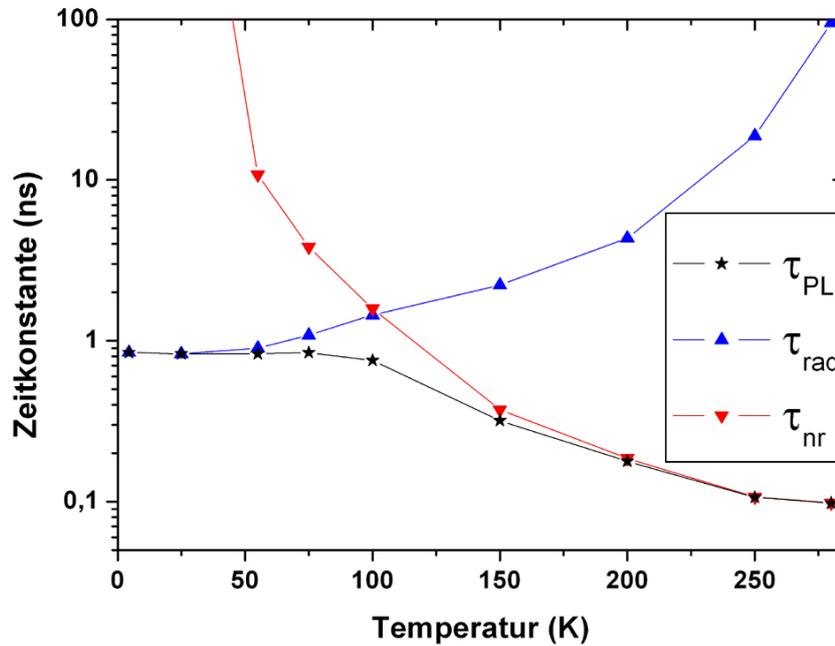
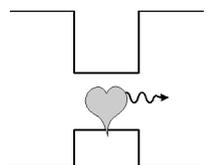


Abbildung 5.10: Temperaturabhängigkeit der Zeitkonstanten der Lumineszenz τ_{PL} strahlenden (τ_r) und nicht-strahlenden Rekombination (τ_{nr}).

Die weite Streuung der ermittelten Aktivierungsenergien ist erstaunlich. Es muss jedoch berücksichtigt werden, dass es sich um Mittelwerte des QD-Ensembles handelt, und die Aktivierungsenergien unterschiedlichen Quantenpunkten entsprechen. Messungen an einzelnen Quantenpunktlinien lieferten Aktivierungsenergien von 20 meV und 30 meV wobei jedoch schon die Aktivierung aus dem Grundzustand heraus genügte, um die Lumineszenz zu unterdrücken [Seg04b]. Die erhaltenen Aktivierungsenergien sind also eine Abschätzung für die obere und untere Schranke der Lokalisierungsenergien. Angesichts dieser breiten Streuung decken sich die Aktivierungsenergien recht gut mit der mittleren Potentialtiefe aus dem Modell von Gourdon und Lavallard ($E_0 = 45 \text{ meV}$).

Um strahlende Zeitkonstanten von nicht-strahlenden unterscheiden zu können, wurden temperaturabhängige zeitaufgelöste Messungen durchgeführt. Wenn die innere Quantenausbeute bekannt ist, lassen sich die Gleichungen (2.6) und (2.7) nach τ_r und τ_{nr} auflösen. Unter der vereinfachenden Annahme eines 2-Niveau-Systems und einer Quantenausbeute $\eta(T=0)=1$, die durch das Einfrieren nicht-strahlender Prozesse bei tiefen Temperaturen gerechtfertigt ist, ergibt sich die in Abbildung 5.10 dargestellte Abhängigkeit der Zeitkonstanten von der Temperatur. Bei tiefen Temperaturen bestimmt die Zeitkonstante τ_{rad}



die Rekombinationsdynamik. Sie liegt bei etwa 800 ps und stimmt gut mit dem Wert aus Gl. (5.3) überein. Mit steigender Temperatur rückt τ_{nr} jedoch in die selbe Größenordnung wie τ_{rad} und nicht-strahlende Rekombinationen werden immer wahrscheinlicher. Die Lumineszenz-Intensität nimmt stark ab, wie es die in Abb. 5.9 gezeigten Daten fordern. Bei 100 K sind beide Prozesse gleich wahrscheinlich, bei weiter steigenden Temperaturen wird die Lumineszenz durch schnelle, thermisch aktivierte Transferprozesse in die InGaN-Schicht praktisch unterdrückt. Die Zunahme der strahlenden Lebensdauer wurde schon an anderen ungeordneten Quantenpunktsystemen beobachtet [Str02] und könnte durch die Aktivierung in flachere Quantenpunkte erklärt werden. Dort ist das *Confinement* und somit der Elektron-Loch-Überlapp geringer, also die strahlende Lebensdauer größer. Bei hohen Temperaturen könnte die Lumineszenz aus 2D-Zuständen der InGaN-Schicht herrühren. Der QCSE könnte bei solchen Zuständen Elektron und Loch weiter trennen und zu sehr hohen strahlenden Lebensdauern führen (siehe z.B. [Lef01]).

Der Ansatz eines 2-Niveau-Systems ist für ein Quantenpunkt-Ensemble dieser Art eventuell etwas stark vereinfacht. *Chichibu et al.* wenden das Model eines 3-Niveau-Systems auf ihren Daten an und führen eine Lebensdauer für Exzitonen in Lokalisierungszentren ein [Chi01]. Einen ähnlichen Ansatz verfolgen *Minsky et al.*, wobei die Lokalisierungsenergie der Potentialfluktuationen als Parameter mit in die Beschreibung einfließt und über die Lebenszeiten versucht wird, auch die Temperaturabhängigkeit der inneren Quantenausbeute zu bestimmen [Min02]. Diese Modelle unterschlagen jedoch Beiträge von freien Ladungsträgern und Effekte wie elektrische Felder oder Sättigung der Lokalisierungszentren und können Messdaten nur schlecht beschreiben.

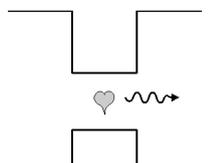
5.4 Zusammenfassung der Messergebnisse

Es wurde in diesem Kapitel gezeigt, dass mit der μ -PL erfolgreiche Untersuchungen an einzelnen Quantenpunkten durchgeführt werden können. Mit dieser Technik konnte die Dynamik des QP-Ensembles dem einzelner Quantenpunkte gegenübergestellt werden. Es wurde auf diese Weise ein tieferes Verständnis von InGaN-Quantenpunkten und der in ihnen lokalisierten Exzitonen erreicht. Die Proben wurden mit MOCVD auf Si(111) gewachsen.

Die Lumineszenz des QP-Ensemble zeigt ein multi-exponentielles Abklingverhalten, dessen Herkunft bisher nicht eindeutig geklärt wurde. Im Gegensatz dazu ist das zeitliche Verhalten von Übergänge in einzelnen Quantenpunkten mono-exponentiell. Die Zeitkonstanten liegen zwischen 0,4 ns und 1,6 ns und zeigen eine breite Streuung selbst für ein glei-

che Übergangsenergie. In Übereinstimmung mit hochauflösenden Strukturuntersuchungen der InGaN-Schicht wird dieses Verhalten auf die ungeordnete Natur des Quantenpunkt-Systems zurückgeführt. Die Lokalisierungsenergie, Größe und Form, sowie die Übergangsenergie, der Quantenpunkte sind derart unsystematisch und in keiner Weise miteinander korreliert, so dass auch die Wahrscheinlichkeit für strahlende Rekombination und Aktivierung in andere Zustände stark variieren können. Somit erklärt sich die Streuung der Zeitkonstanten durch die Unordnung des InGaN-QP-Systems. Das multi-exponentielle Abklingen des QP-Ensembles kann so auf die Überlagerung vieler verschiedener Zeitkonstanten der einzelnen Quantenpunkte zurückgeführt werden.

Weitere Messungen am QP-Ensemble beweisen die große Relevanz von Tunnelprozessen bei tiefen Temperaturen, die die Umverteilung von Exzitonen von Quantenpunkten mit hoher Übergangsenergie zu tieferen Lokalisierungszentren steuern. Bei höheren Temperaturen höheren Temperaturen dominieren thermisch aktivierte Umverteilungsprozesse in andere Quantenpunkte, 2D-Zustände der InGaN-Schicht und die GaN-Matrix. Die Messdaten erlaubten eine Abschätzung der Lokalisierungsenergie der InGaN-Quantenpunkte zwischen 20 meV und 80 meV.



Kapitel 6

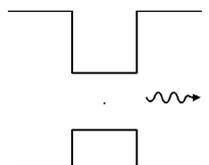
Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit war der Aufbau eines μ -PL Messstandes zur ortsaufgelösten Untersuchung der optischen Eigenschaften von Exzitonen in InGaN-Quantenpunkt-Strukturen.

Der in Abschnitt 3.3 beschriebene Aufbau hat sich als geeignet zur Untersuchung einzelner Quantenpunkte erwiesen. An den InGaN-Proben konnten auflösungsbeschränkte Emissionslinien aus einzelnen Quantenpunkten nachgewiesen und ihr zeitliches Verhalten untersucht werden. Die Quantenpunkt-Linien zeigen ein mono-exponentielles Abklingen. Es wurde, selbst für Quantenpunkte mit ähnlichen Übergangsenergien, eine grosse Streuung der Zeitkonstanten zwischen 0,4 ns und 1,6 ns beobachtet. Dies wird durch die unterschiedliche Größe, Potentialtiefe und Form der Quantenpunkte erklärt, da diese verschiedene Wellenfunktionsüberlapps und Lokalisierungsenergien aufweisen.

Das multi-exponentielle Abklingen, das für das QP-Ensemble beobachtet wurde, ergibt sich demnach aus der Überlagerung des mono-exponentiellen Abklingens mit verschiedenen Zeitkonstanten der einzelnen Quantenpunkte. Es uns damit gelungen, das transiente Verhalten des QP-Ensembles direkt mit der Unordnung des InGaN Quantenpunkt-Systems zu erklären.

Des Weiteren wurden am Quantenpunkt-Ensemble temperaturabhängige und zeitaufgelöste Messungen durchgeführt. Es wurde die Relevanz von Transferprozessen und Umverteilung zwischen Quantenpunkten mit unterschiedlicher Potentialtiefe demonstriert. Bei tiefen Temperaturen geschieht dies durch Tunneln der Ladungsträger von flachen Quantenpunkten in tiefere Lokalisierungszentren, während bei höheren Temperaturen die thermische Aktivierung der dominante Prozess ist. Es wurden Lokalisierungsenergien zwischen 20 meV und 80 meV gemessen.



Ausblick

Bei weiterführenden Arbeiten an der μ -PL sind die in Abschnitt 3.3 genannten Verbesserungen in Betracht zu ziehen. Am dringendsten erscheint die Anschaffung eines Spiegelobjektivs um mikroskopische Anregung hinreichender Intensität zu erzielen. Des Weiteren würde ein CCD-Detektor die Untersuchung einzelner Quantenpunktlinien extrem vereinfachen. So wäre das Auffinden einzelner Linien komfortabler und schneller. Außerdem könnten sie über den *Jitter* einzelnen Quantenpunkte zugeordnet werden. Mittels Intensitätsabhängigen Messungen könnten Exziton und Biexziton identifiziert werden.

Ein interessanter Ansatz für weitere Nachforschungen ergibt sich aus der Kombination von Resultaten aus Kathodolumineszenz-Untersuchungen die an den gleichen Proben von der AG Bimberg durchgeführt wurden. Mittels Kathodolumineszenz (KL) konnten dort Exzitonen und Multiexzitonenkomplexe identifiziert und einzelnen Quantenpunkten zugewiesen werden [Seg04b]. Die Proben könnten dort *gemappt* werden und die so kartographierten Löcher in der μ -PL wiedergefunden werden. Decken sich die Spektren eines bestimmten Lochs (was noch zu zeigen ist), so könnten beispielsweise, unter der KL identifizierte, Exziton- und Biexziton-Linie eines einzelnen Quantenpunktes zeitaufgelöst untersucht werden.

Es wurde bereits ein Versuch unternommen, solch ein Mapping durchzuführen, Er scheiterte jedoch an den unterschiedlichen Auflösungen der Systeme: die ausgewählten Löcher lagen nur wenige Mikrometer neben 10 μ m Aperturen, und konnten unter der μ -PL nicht gefunden werden da es im Streulicht des grossen Maskenlochs unterging. Eine geringere Dichte von Löchern könnte jedoch zum Erfolg führen und so weitere spannende und erstmalige Untersuchungen an InGaN-Quantenpunkten ermöglichen.

Danksagung

Jegliche Forschung baut auf dem Wissen und Know-how ihres Umfeldes auf. Diese Tatsache hat sich selbst an einer kleinen Schrift wie dieser Diplomarbeit aufs Prachtigste besttigt. Zunchst mochte ich **Herrn Priv. Doz. Dr. Axel Hoffmann** fur eine spannende Aufgabenstellung sowie seine anregende, interessierte und personliche Betreuung danken. **Herrn Prof. Dr. Christian Thomsen** gilt mein Dank fur die Bereitschaft die Zweitkorrektur zu ubernehmen. **Dr. Martin Straburg** danke ich fur die Vorarbeiten an der μ -PL und fur eine grundliche Einfuhrung in die Welt der Photolumineszenzspektroskopie. **Matthias Dworzak** hat mit groem Zeitaufwand und konstruktiver Kritik zum Erfolg dieser Arbeit beigetragen. Fur sein Engagement mochte ich ihm an dieser Stelle besonders danken und ihm viel Erfolg fur die nachsten Jahre wunschen. Ich danke **Priv. Doz. Dr. Andre Strittmatter** fur die Herstellung der Proben sowie **Robert Seguin** und **Sven Rodt** fur deren Preparation und das Mapping. An die Arbeitsgruppen **Hoffmann** und **Thomsen** in ihrer Gesamtheit geht ein groes Dankschon fur Tischtennispartien und sonstige Abwechslungen die mir manchen langen Messtag versusst haben. Wahrlich Grashalme im Heuhaufen suchen mussten **Nadine Kewitsch**, **Rita Stockmann** und **Max Bartel** bei der Velersuche an dieser Arbeit, vielen Dank!

Anhang

A-1 Materialparameter von GaN und InN

Tabelle 6.1: Bandparameter und Phononen Energien.

Material	h-GaN	h-InN
Bandlücke 4K (eV)	3,47 ^a	0,7-0,9 ^b
Varshni α (meV/K)	0,939 ^h	0,245 ⁱ
Varshni β (K)	772 ^h	624 ⁱ
ϵ_r (statisch)	8,9 ^d	15,3 ^c
Effektive Masse: Elektron (m_0)	0,2 ^d	0,11 ^g
Effektive Masse: Schwerloch (m_0)	1,4 ^f	1,63 ^h
Effektive Masse: Leichtloch (m_0)	0,3 ^f	0,27 ^h
Effektive Masse: <i>Split-off</i> -Loch (m_0)	0,6 ^f	0,65 ^h
E_{LO} Phonon (meV)	92.1 ^d	73 ^e

^a [Tan97]

^b Diese Werte sind noch umstritten [Wu02, Mat02, Dav02].

^c [Zub01]

^d [Bou01]

^e [Kas03]

^f [Les96]

^g [Lam93]

^h [Pug99]

^h [Tei94b]

ⁱ [Tei94a]

Tabelle 6.2: Kristallparameter

Material	h-GaN	h-InN
Gitterkonstante a (\AA) ^a	3.189	3.545
Gitterkonstante c (\AA) ^a	5.185	5.703
Gitterfehlpassung Si(111) (%) ^b	-16,9	-15
Gitterfehlpassung AlN (%) ^b	2.4	12,2
Spontane Polarisation P_{sp} (C/m^2) ^a	-0.034	-0.042

^a [Vur03]

^b [Dad03]

A-2 Rezept zur Herstellung der Masken

Im Vergleich zur TU6665 wurde für die TU6938 die Dichte der 10 μm - und 200 nm-Aperturen reduziert, um unter der $\mu\text{-PL}$ weniger Streulicht von benachbarten Aperturen zu detektieren. Außerdem wurde auf 100 nm-Löcher gänzlich verzichtet.

Das Maskieren wurde nach der in Kapitel 4.2 beschriebenen Methode durchgeführt. Die Polystyrolkugeln befinden sich in einer Isopropanol Lösung und sind nach Größe sortiert. Um die erwünschte Löcherdichte zu erhalten, müssen die entsprechenden Lösungen verdünnt werden und auf die saubere Probenoberfläche getropft werden. Das Isopropanol verflüchtigt sich rasch und hinterläßt die in ihm gelösten Kügelchen auf der Probe.

Die Kugelmischung die auf die TU6938 aufgetragen wurde ist nach folgendem Rezept zusammengestellt:

- **15 μl** der Lösung mit 200 nm Kügelchen + **1,075 ml** Isopropanol
- \leftrightarrow **25 μl** aus dieser Mischung entnehmen und mit
- **50 μl** der Lösung mit 10 μm Kügelchen + **1 ml** Isopropanol vermengen.

Das Resultat gut schütteln und mit einer Pipette einen Tropfen auf die Probe fallen lassen. Es resultiert eine Maske wie sie auf dem Titelbild dieser Arbeit zu sehen ist. Die Dichte der 200 nm Kugeln könnte noch um mindestens einen Faktor zwei bis drei verkleinert werden. Die Konzentration der 10 μm Löcher sollte nicht sehr viel weiter reduziert werden, da sie als Orientierungshilfe auf der Probenoberfläche sehr Hilfreich sind.

Für Proben, die nur an der $\mu\text{-PL}$ untersucht werden, sollten Aluminium Masken genutzt werden [Yu98b].

A-3 Fabry-Pérot Interferenzen

Aufgrund der hohen Brechzahldifferenz von GaN ($n \cong 3$) zu Luft und zum Silizium-Substrat erfährt ein Photon an den Grenzflächen der Probe eine nicht zu vernachlässigende Reflexion¹. Es können sich so Fabry-Pérot Moden ausbilden, d.h. es bilden sich konstruktive Interferenzen für bestimmte Wellenlängen und destruktive Interferenzen für andere. Diese Interferenzen überlagern das Lumineszenzspektrum und verfälschen es so. Die Moden liegen bei vertikalem Nachweis in einem Abstand von etwa 180 meV. Damit sie gut beobachtbar werden, muss also die Halbwertsbreite der Emission mindestens im Bereich des Modenabstandes liegen, wie es nach Abbildung 5.7 bei Temperaturen um 300 K der Fall ist. Wird nun der Winkel des Nachweises geändert, so sollte sich dies in der Modenstruktur niederschlagen. Abbildung 6.1 zeigt ein Spektrum der Probe bei Raumtemperatur und verschiedenen Winkeln des Nachweises zur Flächennormale. Das Wandern der Peaks beweist die Relevanz von Fabry-Pérot Interferenzen bei höheren Temperaturen. Eine qualitative Auswertung, geht über die Aufgabenstellung dieser Arbeit hinaus, weshalb an dieser Stelle an [Hum04] verwiesen wird.

¹Bei senkrechtem Einfall von GaN zu Luft vereinfachen sich die Fresnel-Gleichungen der Reflexion zu $R = \frac{(n-1)^2}{(n+1)^2} \sim 1/4$.

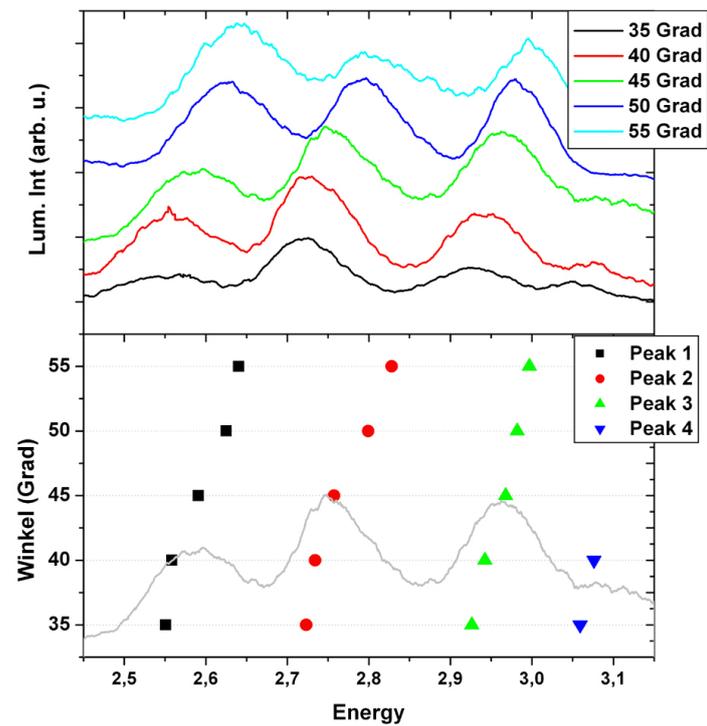


Abbildung 6.1: (a) Winkelabhängigkeit der PL bei Raumtemperatur (mit offset) (b) Position der Lumineszenzmaximas.

Literaturverzeichnis

- [Ade00] C. Adelman, J. Simon, G. Feuillet, N. T. Pelekanos, B. Daudin, and G. Fishman, *Self-assembled InGaN quantum dots grown by molecular-beam epitaxy*, Appl. Phys. Lett. **76** (12), 1570 (2000).
- [Aka98] Akasaki and Amano, *GaN*, volume 1, pp. 459–472, Academic, New York (1998).
- [Ama98] H. Amano, I. Akasaki, K. Hiramatsu, N. Koide, and N. Sawaki, *Effects of the buffer layer in metalorganic vapour phase epitaxy of GaN on sapphire substrate*, Thin film solids **163**, 415 (1998).
- [Amb99] Ambacher, Smart, J. Shealy, Weimann, Murphy, Dimitrov, Wittmer, Stutzmann, Rieger, and Hilsenbeck, *Two-dimensional electron gases induced by spontaneous and piezoelectric polarization charges in N- and G-face AlGaIn/GaN heterostructures*, J. Appl. Phys. **85** (6), 3222 (1999).
- [Ara02] Y. Arakawa, *Progress in GaN-Based Quantum Dots for Optoelectronics Applications*, IEEE J. sel. top. Q. Electronics **8** (4), 823 (2002).
- [Ber97] F. Bernardini, V. Fiorentini, and D. Vanderbilt, *Spontaneous polarization and piezoelectric constants of III-V nitrides*, Physical Review B **56** (16), R10024 (1997).
- [Bim71] D. Bimberg, M. Sondergeld, and E. Grobe, *Thermal Dissociation of Excitons Bounds to Neutral Acceptors in High-Purity GaAs*, Physical Review B **4** (10), 3451 (1971).
- [Bim99] D. Bimberg, M. Grundmann, and N. N. Ledentsov, *Quantum Dot Heterostructures*, Wiley New York (1999).
- [Bou01] Bougrov, *Properties of Advanced Semiconductor Materials GaN, AlN, InN, BN, SiC, SiGe*, pp. 1–30, John Wiley & Sons Inc., New York (2001).

- [Che92] X. Chen, B. Henderson, and K. P. O'Donnell, *Luminescence decay in disordered low-dimensional semiconductors*, Appl. Phys. Lett. **60** (21), 2672 (1992).
- [Chi97] S. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota, H. Amano, and I. Akasaki, *Optical properties of tensile-strained wurtzite GaN epitaxial layers*, *Applied Physics Letters* **70** (1997).
- [Chi01] Chichibu, Onuma, Aoyama, Nakajima, Ahmet, Chikyow, Sota, DenBaars, Nakamura, Kitamura, Ishida, and Okumura, *Localized excitons dynamics in strained cubic InGaN/GaN Multiquantum wells*, J. Appl. Phys. **79** (26), 4319 (2001).
- [Dad03] A. Dadgar, A. Strittmatter, J. Bläsing, M. Poschenrieder, O. Contreras, P. Veit, T. Riemann, F. Bertram, A. Reiher, A. Krtschil, A. Diez, T. Hempel, T. Finger, A. Kasic, M. Schubert, D. Bimberg, F. A. Ponce, J. Christen, and A. Krost, *Metalorganic chemical vapor phase epitaxy of gallium-nitride on silicon*, phys. stat. sol. (c) **0**, 1583 (2003).
- [Dam99] B. Damilano, N. Grandjean, S. Dalmaso, and J. Massies, *Room-temperature blue-green emission from InGaN/GaN quantum dots made by strain-induced islanding growth*, Appl. Phys. Lett. **75** (24), 3751 (1999).
- [Dar97] I. Daruka and A.-L. Barabási, *Dislocation-Free Island Formation in Heteroepitaxial Growth: A Study at Equilibrium*, Phys. Rev. Lett **79**, 3708 (1997).
- [Dav02] Davydov, Klochikhin, Seisyan, Emtsev, Ivanov, Bechstedt, Furthmüller, Harima, Mudruyi, Aderhold, Semchinova, and Graul, *Absorption and Emission of hexagonal InN. Evidence of narrow fundamental Band Gap*, Phys. Stat. Sol. B **229** (3), R1 (2002).
- [Dwo02] M. Dworzak, *Relaxationsmechanismen in optisch angeregten ZnCdSe-Quantenpunktstrukturen*, Diplomarbeit, TU-Berlin (2002).
- [Eck95] Eckey, Podlowski, Göldner, Hoffmann, Broser, Meyer, Meyer, Volm, Streib, Hiramatsu, Detchprohm, Amano, and Akasaki, *Excitonic structure of GaN epitaxial films grown by hybride-vapor-phase epitacy*, in S. Nakashima, H. Matsunami, S. Yoshida, and H. Harima (eds.), *Silicon Carbide and Related Materials 1995: Proceedings of the Sixth International Conference*, pp. 943–946, Institute of Physics Conference Series 142 (1995).
- [Eck98] L. Eckey, *Exzitonen in Galliumnitrid - Struktur und Dynamik*, Doktorarbeit, TU-Berlin (1998).

- [Esa70] L. Esaki and R. Tsu, *Superlattice and negative differential conductivity in semiconductors*, IBM J. Res. Devel. **14**, 61 (1970).
- [Got03] H. Gotoh, T. Tawara, Y. Kobayashi, N. Kobayashi, and T. Saitoh, *Piezoelectric effects on photoluminescence properties in 10-nm-thick InGaN quantum wells*, Appl. Phys. Lett. **83** (23), 4791 (2003).
- [Gou89] C. Gourdon and P. Lavallard, *Exciton transfer between Localized States in CdSSe Alloys*, phys. stat sol. b **153**, 641 (1989).
- [Gra97] N. Grandjean and J. Massies, *GaN and Al_xGa_{1-x}N molecular beam epitaxy monitored by reflection high-energy electron diffraction*, Applied Physics Letters **71**, 1816 (1997).
- [Gra98] N. Grandjean and J. Massies, *Real time control of In_xGa_{1-x}N molecular beam epitaxy growth*, Applied Physics Letters **72**, 1078 (1998).
- [Hei99] R. Heitz, I. Mukhametzhanov, A. Madhukar, A. Hoffmann, and D. Bimberg, *Temperature Dependent Optical Properties of Self-Organized InAs/GaAs Quantum Dots*, Journal of Electronic Materials, Vol. 28, No. 5, 1999 **28** (5), 520 (1999).
- [Hir98] H. Hirayama, S. Tanaka, P. Ramvall, and Y. Aoyagi, *Intense photoluminescence from self-assembling InGaN quantum dots artificially fabricated on AlGaIn surfaces*, Applied Physics Letters **72** (1998).
- [Hum04] C. Hums, *Optische Charakterisierung von InGaIn-Heterostrukturen*, Diplomarbeit, TU-Berlin (2004).
- [Jai00] S. C. Jain, M. Willander, J. Narayan, and R. V. Overstraeten, *III-nitrides: Growth, characterization, and properties*, Journal of Applied Physics **87**, 965 (2000).
- [Kas00] A. Kaschner, J. Holst, U. von Gfug, A. Hoffmann, F. Bertram, T. Riemann, D. Rudloff, P. Fischer, J. Christen, R. Averbeck, and H. Riechert, *Correlation Between Structural Properties and Optical Amplification in InGaIn/GaIn Heterostructures Grown by Molecular Beam Epitaxy*, MRS Internet J. Nitride Semicond. Res. **5S1**, W11.34 (2000).
- [Kas03] A. Kasic, M. Schubert, J. Off, B. Kuhn, F. Scholz, S. Einfeldt, T. Böttcher, D. Hommel, D. J. As, U. Köhler, A. Dadgar, A. Krost, Y. Saito, Y. Nanishi, M. R. Correia, S. Pereira, V. Darakchieva, B. Monemar, H. Amano, I. Akasaki,

- and G. Wagner, *Phonons and free-carrier properties of binary, ternary, and quaternary group-III nitride layers measured by Infrared Spectroscopic Ellipsometry*, *phys. stat. sol. (c)* **0**, 1750 (2003).
- [Koh54] Kohlrausch, *Pogg. Ann. Phys.Chem.* **91**, 179 (1854).
- [Kre02] I. L. Krestnikov, N. N. Ledentsov, A. Hoffmann, D. Bimberg, A. V. Sakharov, W. V. Lundin, A. F. Tsatsul'nikov, A. S. Usikov, Z. I. Alferov, Y. G. Musikhin, and D. Gerthsen, *Quantum dot origin of luminescence in InGaN-GaN structures*, *Phys. Rev. B* **66**, 155310 (2002).
- [Lam93] W. R. Lambrecht and B. Segall, *Anomalous band-gap behavior and phase stability of c-BN-diamond alloys*, *Physical Review B* **47**, 9289 (1993).
- [Lef01] P. Lefebvre, A. Morel, M. Gallart, T. Taliercio, J. Allègre, B. Gil, B. D. H. Mathieu, N. Grandjean, , and J. Massies, *High internal electric field in a graded-width InGaN/GaN quantum well: Accurate determination by time-resolved photoluminescence spectroscopy*, *Appl. Phys. Lett.* **78** (9), 1252 (2001).
- [Lef04] Lefebvre, Kalliakos, Bretagnon, Valvin, Taliercio, Gil, Grandjean, and Massies, *Observation and modelling of the time dependent descreening of internla electric field in a wurtzite GaN/AlGaN quantum well after high photexcitation*, *Phys. Rev. B* **69**, 035307 (2004).
- [Les96] M. Leszczynski, H. Teisseyre, T. Suski, I. Grzegory, M. Bockowski, J. Jun, S. Porowski, K. Pakula, J. M. Baranowski, C. T. Foxon, and T. S. Cheng, *Lattice parameters of gallium nitride*, *Applied Physics Letters* **69** (1996).
- [Mar96] G. Martin, A. Botchkarev, A. Rockett, and H. Morkoc, *Valence-band discontinuities of wurtzite GaN, AlN, and InN heterojunctions measured by x-ray photoemission spectroscopy*, *Applied Physics Letters* **68**, 2541 (1996).
- [Mat02] T. Matsuoka, H. Okamoto, M. Nakao, H. Harima, and E. Kurimoto, *Optical bandgap energy of wurtzite InN*, *Applied Physics Letters* **81**, 1246 (2002).
- [Mil85] D. A. B. Miller, D. S. Chemla, T. C. Damen, A. C. Gossard, W. Wiegmann, T. H. Wood, and C. A. Burrus, *Band-Edge Electroabsorption in Quantum Well Structures: The Quantum-Confined Stark Effect*, *Physical Review Letters* **53**, 2173 (1985).

- [Min02] Minsky, Watanabe, and Yamada, *Radiative and nonradiative lifetimes in GaInN/GaN multiquantum wells*, J. Appl. Phys. **91** (8), 5176 (2002).
- [Mor00] O. Moriwaki, T. Someya, K. Tachibana, S. Ishida, and Y. Arakawa, *Narrow photoluminescence peaks from localized states in InGaN quantum dot structures*, Appl. Phys. Lett. **76** (17), 2361 (2000).
- [Mor03] A. Morel, P. Lefebvre, S. Kalliakos, T. Taliercio, T. Bretagnon, and B. Gil, *Donor-acceptor-like behavior of electron-hole pair recombinations in low-dimensional GaInN/GaN systems*, *Physical Review B* **68**, 045331 (2003).
- [Mus02] Y. G. Musikhin, D. Gerthsen, D. A. Bedarev, N. A. Bert, W. V. Lundin, A. F. Tsatsul'nikov, A. V. Sakharov, A. S. Usikov, Z. I. Alferov, I. L. Krestnikov, N. N. Ledentsov, A. Hoffmann, and D. Bimberg, *Influence of metalorganic chemical vapor deposition growth conditions on In-rich nanoislands formation in InGaN/GaN structures*, *Applied Physics Letters* **80**, 2099 (2002).
- [Nak97] S. Nakamura and G. Fasol, *The Blue Laser Diode*, Berlin Germany: Springer Verlag (1997).
- [Nar02] F. B. Naranjo, M. A. Sanchez-Garcia, F. Calle, E. Calleja, B. Jenichen, and K. H. Ploog, *Strong localization in InGaN layers with high In content grown by molecular-beam epitaxy*, Applied Physics Letters **80** (2), 231 (2002).
- [O'D03] O'Donnell, Pereira, Martin, Edwards, and Tobin, *Wishful physics - some common misconceptions about InGaN*, Phys. stat. sol. (a) **195** (3), 532 (2003).
- [Oli03] R. A. Oliver, G. A. D. Briggs, M. J. Kappers, C. J. Humphreys, S. Yasin, J. H. Rice, J. D. Smith, and R. A. Taylor, *InGaN quantum dots grown by metalorganic vapor phase epitaxy employing a post-growth nitrogen anneal*, Appl. Phys. Lett. **83** (4), 755 (2003).
- [Pop98] M. Pophristic, F. H. Long, C. Tran, I. T. Ferguson, R. F. Karlicek, and Jr., *Time-resolved photoluminescence measurements of InGaN light-emitting diodes*, *Applied Physics Letters* **73**, 3550 (1998).
- [Pug99] S. K. Pugh, D. J. Dugdale, S. Brand, and R. A. Abram, *Band-gap and $k.p.$ parameters for GaAlN and GaInN alloys*, *Journal of Applied Physics* **86** (1999).
- [Rid88] B. K. Ridley, *Quantum Processes in Semiconductors*, Oxford University Press New York, 2 edition (1988).

- [Rob03] J. W. Robinson, J. H. Rice, A. Jarjour, J. D. Smith, R. A. Taylor, R. A. Oliver, G. A. D. Briggs, M. J. Kappers, C. J. Humphreys, and Y. Arakawa, *Time-resolved dynamics in single InGaN quantum dots*, Appl. Phys. Lett. **83** (13), 2674 (2003).
- [Rod01] Rodina, Dietrich, Göldner, Eckey, Hoffmann, Efros, Rosen, and Meyer, *Free excitons in GaN*, Phys. Rev. B **64**, 115204 (2001).
- [Rod03] S. Rodt, *Interne Kommunikation* (2003).
- [Ros96] A. Rosenauer, S. Kaiser, T. Reisinger, J. Zweck, and W. Gebhardt, *Digital analysis of high-resolution transmission electron microscopy lattice images*, Optik **102**, 63 (1996).
- [Seg04a] R. Seguin, *Interne Kommunikation* (2004).
- [Seg04b] R. Seguin, *Untersuchung einzelner InGaN/GaN und In(Ga)As/GaAs Quantenpunkte mittels Kathodolumineszenzspektroskopie*, Diplomarbeit, TU-Berlin (2004).
- [Seg04c] R. Seguin, S. Rodt, A. Strittmatter, L. Reißmann, T. Bartel, A. Hoffmann, D. Bimberg, E. Hahn, and D. Gerthsen, *Multi-excitonic complexes in single InGaN quantum dots*, Submitted to Appl. Phys. Lett. (2004).
- [Sos00] I. P. Soshnikov, V. V. Lundin, A. S. Usikov, I. P. Kalmykova, N. N. Ledentsov, A. Rosenauer, B. Neubauer, and D. Gerthsen, *Specifics of MOCVD Formation of In_xGa_{1-x}N Inclusions in a GaN Matrix*, **Semiconductors** **34**, 621 (2000).
- [Str02] M. Strassburg, M. Dworzak, H. Born, R. Heitz, A. Hoffmann, M. Bartels, K. Lischka, D. Schikora, and J. Christen, *Lateral redistribution of excitons in CdSe/ZnSe quantum dots*, **Applied Physics Letters** **80** (2002).
- [Sun04] Y. Sun, Y.-H. Cho, E.-K. Suh, H. J. Lee, R. J. Choi, and Y. B. Hahn, *Carrier dynamics of high-efficiency green light emission in graded-indium-content InGaN/GaN quantum wells: An important role of effective carrier transfer*, **Applied Physics Letters** **84**, 49 (2004).
- [Tan97] Tansley, Goldys, Godlewski, Zhou, and Zuo, *GaN and Related Materials*, Gordon and Breach (1997).

- [Tei94a] H. Teisseyre, P. Perlin, T. Suski, I. Grzegory, S. Porowski, J. Jun, A. Pietraszko, and T. D. Moustakas, *Temperature Dependence of Band Gap Change in InN and AlN*, Jpn. J. Appl. Phys **33**, 2453 (1994).
- [Tei94b] H. Teisseyre, P. Perlin, T. Suski, I. Grzegory, S. Porowski, J. Jun, A. Pietraszko, and T. D. Moustakas, *Temperature dependence of the energy gap in GaN bulk single crystals and epitaxial layer*, *Journal of Applied Physics* **76**, 2429 (1994).
- [Tho65] D. G. Thomas, J. J. Hopfield, and W. M. Augustyniak, *Kinetics of Radiative Recombination at Randomly Distributed Donors and Acceptors*, Phys. Rev. **140**, 202 (1965).
- [Tür00] V. Türck, S. Rodt, O. Stier, R. Heitz, R. Engelhardt, U. W. Pohl, and D. Bimberg, *Effect of random field fluctuations on excitonic transitions of individual CdSe quantum dots*, Physical Review B **61**, 9944 (2000).
- [Tür02] V. Türck, S. Rodt, R. Heitz, O. Stier, M. Straßburg, U. W. Pohl, and D. Bimberg, *Interplay of surface charges and excitons localized in CdSe/ZnSe quantum dots*, Physica E **13**, 269 (2002).
- [Var67] Y. P. Varshni, *Temperature dependence of the energy gap in semiconductors*, Physica **34**, 149 (1967).
- [Vur03] I. Vurgaftman and J. R. Meyer, *Band parameters for nitrogen-containing semiconductors*, *Journal of Applied Physics* **94**, 3675 (2003).
- [Wan37] G. Wannier, *The Structure of Electronic Excitation Levels in Insulating Crystals*, Phys. Rev. **52** (3), 191 (1937).
- [Wid98] F. Widmann, J. Simon, B. Daudin, G. Feuillet, J. L. Rouvière, N. T. Pelekanos, and G. Fishman, *Blue-light emission from GaN self-assembled quantum dots due to giant piezoelectric effect*, Physical Review B **58** (24), R15989 (1998).
- [Wil70] G. William and D. Watts, *Non-symmetrical dielectric relaxation behavior arising from simple empirical decay function*, Trans. Faraday Soc. **66**, 80 (1970).
- [Wu98] Wu, Elsass, Abare, Mack, Keller, Petroff, and Rosner, *Struktural origin of V-defects and correlation with localized excitonic centers in InGaN/GaN quantum wells*, Appl. Phys. Lett. **72** (6), 692 (1998).

- [Wu02] J. Wu, W. Walukiewicz, K. M. Yu, J. W. A. III, E. E. Haller, H. Lu, W. J. Schaff, Y. Saito, and Y. Nanishi, *Unusual properties of the fundamental band gap of InN*, Applied Physics Letters **80**, 3967 (2002).
- [Xu96] Z. Y. Xu, Z. D. Lu, X. P. Yang, Z. L. Yuan, B. Z. Zheng, J. Z. Xu, W. K. Ge, Y. Wang, J. Wang, and L. L. Chang, *Carrier relaxation and thermal activation of localized excitons in self-organized InAs multilayers grown on GaAs substrates*, Physical Review B (Condensed Matter) **54**, 11528 (1996).
- [Yu96] P. Y. Yu and M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors*, Springer Berlin (1996).
- [Yu98a] H. Yu, H. Htoon, A. deLozanne, C. K. Shih, P. A. Grudowski, R. D. Dupuis, K. Zeng, R. Mair, J. Y. Lin, and H. X. Jiang, *Dynamics of localized excitons in InGaN/GaN quantum wells*, volume 16, AVS (1998). [<http://link.aip.org/link/?JVB/16/2215/1>]
- [Yu98b] H. Yu, H. Htoon, A. deLozanne, C. K. Shih, P. A. Grudowski, R. D. Dupuis, K. Zeng, R. Mair, J. Y. Lin, and H. X. Jiang, *Dynamics of localized excitons in InGaN/GaN quantum wells*, in *Papers from the 25th annual conference on the physics and chemistry of semiconductor interfaces*, volume 16, pp. 2215–2217, AVS (1998). [<http://link.aip.org/link/?JVB/16/2215/1>]
- [Zub01] Zubrilov, *Properties of Advanced Semiconductor Materials GaN, AlN, InN, BN, SiC, SiGe*, pp. 49–66, John Wiley & Sons, Inc., New York (2001).